

**Titre:** Études de l'effet d'échelle sur l'expansion du béton affecté par la  
Title: réaction alcalis-silice (RAS): contexte des ouvrages hydrauliques en  
béton

**Auteur:** Imane Sebai  
Author:

**Date:** 2023

**Type:** Mémoire ou thèse / Dissertation or Thesis

**Référence:** Sebai, I. (2023). Études de l'effet d'échelle sur l'expansion du béton affecté par la  
Citation: réaction alcalis-silice (RAS): contexte des ouvrages hydrauliques en béton  
[Mémoire de maîtrise, Polytechnique Montréal]. PolyPublie.  
<https://publications.polymtl.ca/57000/>

 **Document en libre accès dans PolyPublie**  
Open Access document in PolyPublie

**URL de PolyPublie:**  
PolyPublie URL: <https://publications.polymtl.ca/57000/>

**Directeurs de  
recherche:** Mahdi Ben Ftima  
Advisors:

**Programme:** Génie civil  
Program:

**POLYTECHNIQUE MONTRÉAL**

affiliée à l'Université de Montréal

**Études de l'effet d'échelle sur l'expansion du béton affecté par la réaction  
alcalis-silice (RAS): contexte des ouvrages hydrauliques en béton**

**IMANE SEBAI**

Département des génies civil, géologique et des mines

Mémoire présenté en vue de l'obtention du diplôme de *Maîtrise ès sciences appliquées*

Génie Civil

Décembre 2023

# **POLYTECHNIQUE MONTRÉAL**

affiliée à l'Université de Montréal

Ce mémoire intitulé :

## **Études de l'effet d'échelle sur l'expansion du béton affecté par la réaction alcalis-silice (RAS): contexte des ouvrages hydrauliques en béton**

présenté par **Imane SEBAI**

en vue de l'obtention du diplôme de *Maîtrise ès sciences appliquées*

a été dûment accepté par le jury d'examen constitué de :

**Pierre LÉGER**, président

**Mahdi BEN FTIMA**, membre et directeur de recherche

**Matthieu ARGOUGES**, membre externe

## DÉDICACE

*À mes parents et mon frère.*

*À ma grand-mère Amina.*

## REMERCIEMENTS

Je tiens à exprimer ma profonde reconnaissance envers M. Mahdi Ben Ftima, qui a accepté de superviser ce travail de recherche. L'opportunité d'être sous sa direction a été pour moi une expérience des plus enrichissantes. Sa grande expertise dans le domaine a été une source constante d'inspiration, élargissant mes perspectives et approfondissant ma compréhension du sujet. Je tiens également à souligner ses qualités humaines, qui ont été particulièrement précieuses lors des moments difficiles.

Je tiens à exprimer ma profonde gratitude envers la compagnie ELEMISSION pour avoir généreusement et gratuitement réalisé les scans LIBS des deux échantillons utilisés dans le volet expérimental. Leur contribution inestimable a grandement enrichi ce travail. Je souhaite également remercier chaleureusement Clélia Desmettre, associée de recherche à Polytechnique Montréal, pour avoir piloté les opérations de scan. Sa supervision experte a été essentielle à la réussite du volet expérimentale de ce travail.

Je remercie l'École Polytechnique de Montréal et l'École Hassania des Travaux Publics pour l'accord qui a permis la réalisation de ce double diplôme.

Je tiens à exprimer mes sincères remerciements aux membres du jury, le Professeur Pierre Léger, Ph.D., et Monsieur Matthieu Argouges, M.Sc.A., d'avoir accepté d'évaluer ce travail.

Une pensée chaleureuse pour ma famille au Maroc, en particulier ma mère Ghariba, mon père Hassane, et mon frère Mohammed. Vos mots réconfortants ont été un phare dans les moments difficiles, et votre fierté est ma plus grande source de motivation. Ce succès est le vôtre aussi. Merci pour votre soutien constant.

À ma chère grand-mère Amina, qui repose en paix et qui me manque profondément. Ce travail lui est dédié avec tout mon amour et ma gratitude.

Un sincère merci à mes amis et à toutes les personnes que j'ai croisées, de près ou de loin, au cours de cette aventure. Chacune de ces rencontres a été captivante, m'apportant des enseignements précieux. Il était particulièrement gratifiant de recevoir des conseils bienveillants de personnes aussi gentilles et attentionnées que Maxime, Niloofar, Kamrul, Rihana, Maïssa, Ikrame. Leur influence a été une source d'enrichissement indéniable. Merci à vous tous pour ces moments significatifs.

## RÉSUMÉ

La réaction alcalis-silice (RAS) est une forme de dégradation accélérée des structures en béton contenant des granulats réactifs. Elle est principalement due à l'expansion du gel de RAS en présence d'eau. Pour les structures hydrauliques en béton, ce phénomène est donc critique et peut entraîner des problèmes de fonctionnement et de sécurité.

Compte tenu de la complexité de ce phénomène, des analyses non linéaires sophistiquées par éléments finis sont essentielles pour étudier les structures hydrauliques affectées par la RAS. La cinétique de l'expansion libre de la RAS est l'un des intrants les plus importants pour ces analyses. Elle pourrait théoriquement être évaluée avec un suivi en expansion de spécimens de béton en chambre environnementale dans des conditions accélérées de la RAS. Des travaux expérimentaux antérieurs ont toutefois montré que cette expansion dépendrait de la taille des éprouvettes, et que la cinétique de la RAS de spécimens de petite taille n'était pas représentative de celle des ouvrages hydrauliques massifs. Ce phénomène, connu sous le nom d'effet d'échelle chimique, résulterait du lessivage des alcalis survenant dans les petites éprouvettes en laboratoire. Il modifie considérablement les prévisions du modèle numérique, ce qui entraîne une sous-estimation de l'expansion asymptotique des structures hydrauliques.

Cette étude fait partie d'un projet de recherche dont l'objectif à long terme est la prédiction du comportement futur d'un aménagement hydraulique existant atteint par la RAS, via des analyses numériques par éléments finis. Les objectifs ultimes de ce travail de maîtrise sont la compréhension de l'effet d'échelle sur l'expansion et le développement de modèles numériques permettant de le reproduire. Deux grands volets ont été parallèlement explorés dans ce travail, afin d'atteindre ces objectifs. Un premier volet purement analytique et numérique vise à développer une méthodologie de calcul multi-échelles et multi-physiques pour la modélisation du phénomène de lessivage des alcalins, reconnu comme une des principales causes de l'effet d'échelle. Un deuxième volet expérimental vise, pour la première fois dans la littérature, à l'exploration d'une technologie émergente de spectroscopie par émission atomique (LIBS) dans le contexte de caractérisation de l'effet d'échelle à l'échelle mésoscopique. À cet effet, deux échantillons différents ont été considérés, et sont issus de spécimens en béton reconstitué (granulat maximum de 76 mm) de l'aménagement hydraulique existant. Les deux spécimens choisis ont atteint un niveau d'expansion

similaire après plus de 3 ans d'entreposage dans une chambre environnementale, mais sont de tailles différentes.

La méthodologie de calcul multi-physiques et multi-échelles développée prend en compte l'équilibre de la masse d'alcalis dans les échantillons et intègre à la consommation d'alcalis pendant la production de gel RAS au niveau des granulats. La méthodologie a été développée dans le logiciel Abaqus et elle est basée sur deux analyses consécutives : une première analyse poro-mécanique pour le calcul hydrique et une deuxième analyse chimique utilisant l'analogie thermique, et dans laquelle une sous-routine DFLUX a été programmée pour la modélisation de la diffusion et consommation des alcalis à l'échelle des granulats. La méthodologie a été vérifiée et validée en considérant des résultats d'essais disponibles dans la littérature.

Pour le volet expérimental, des algorithmes numériques de traitement d'images ont été développés sous *Python* pour le post-traitement des résultats LIBS. Ces algorithmes sophistiqués permettent la visualisation de la cartographie des éléments pertinents pour la RAS, tel que les éléments alcalins ( $K$ ,  $Na$ ) et le silicium ( $Si$ ) dans les différents composants isolés de la mésostructure de l'échantillon : pâte de ciment et granulats. Plus spécifiquement, ils permettent la visualisation du profil de distribution des alcalis dans un granulat donné. En comparant les deux échantillons, il a été possible d'identifier visuellement une différence de concentration des ions alcalins qui semblent être plus diffus dans les granulats de l'échantillon provenant du plus petit spécimen (cylindre), qui est probablement le plus affecté par l'effet d'échelle. Pour l'échantillon prélevé du gros bloc, la distribution des alcalis semble être plus localisée au niveau des fissures induites par la RAS, près des limites externes des granulats. Cette observation a été validée quantitativement en appliquant l'algorithme de post-traitement des données LIBS sur deux granulats de formes similaires issus des deux échantillons. Les résultats révèlent des profils de distribution des alcalins très différents entre deux granulats. Pour le granulat de l'échantillon prélevé du petit spécimen, on observe un profil d'alcalis quasi-uniforme qui correspond au profil typique à la fin du processus de diffusion avec une concentration stabilisée. En revanche, pour le granulat de l'échantillon prélevé du gros bloc, un gradient de concentration a été observé, avec des valeurs plus faibles vers le centre du granulat. Cette étude montre que l'utilisation de la technologie de spectroscopie LIBS est très prometteuse dans le contexte de diagnostic et de caractérisation de béton atteint par la RAS.

## ABSTRACT

Alkali-silica reaction (ASR) is a form of accelerated degradation of concrete structures containing reactive aggregates. This is mainly due to the expansion of the ASR gel in the presence of water. This phenomenon is critical for hydraulic concrete structures and can lead to operational and safety problems.

Given the complexity of this phenomenon, sophisticated non-linear finite element analyses are essential to study hydraulic structures affected by ASR. The kinetics of the free expansion of ASR is one of the most critical inputs for such analyses. Theoretically, it can be evaluated with expansion monitoring of concrete specimens in environmental chambers under accelerated ASR conditions. However, previous experimental works have shown that this expansion depends on the size of the specimens and that the ASR kinetics of small specimens are not representative of those of massive hydraulic structures. This phenomenon, known as the chemical size effect, mainly results from the leaching of alkalis from small specimens in the laboratory. It considerably modifies the prediction of the numerical model, leading to an underestimation of the asymptotic expansion of hydraulic structures.

This study is part of a research project whose long-term objective is to predict the future behaviour of an existing hydraulic structure affected by ASR, using advanced finite element analyses. The main objectives of this master's thesis are to understand the size effect in expansion and to develop numerical models that can reproduce the phenomenon. Two main areas have been explored in parallel to achieve these objectives. The first, purely analytical and numerical, aims to develop a comprehensive multi-scale and multi-physics model for simulating alkali leaching, recognized as one of the main causes of the size effect. A second experimental part aims, for the first time in the literature, to explore *Laser-Induced Breakdown Spectroscopy* (LIBS) technology in the context of characterizing the size effect in ASR expansion, at the mesoscopic scale. To our best knowledge, this study is the first to investigate size effect using this technique. For this purpose, two different samples were taken from reconstituted concrete specimens (maximum aggregate 76 mm) from the existing hydraulic structure. Both specimens with different sizes, have reached a similar level of expansion after more than three years of storage in an environmental chamber. The larger specimen did not however reach its asymptotic expansion.

The multi-physics and multi-scale calculation methodology developed in this thesis considers the alkali mass balance in the specimens and incorporates alkali consumption during ASR gel production at the aggregate level. The methodology was implemented in the general-purpose finite element software Abaqus. It is based on two consecutive analyses: (i) a poro-mechanical analysis for the water calculation and (ii) a chemical analysis using the thermal analogy in which a DFLUX subroutine was developed to model the diffusion and consumption of alkalis at the aggregate level. The methodology was verified and validated using the available test results from the literature.

For the experimental part, digital image processing algorithms were developed using *Python* for post-processing the LIBS results. This sophisticated algorithm makes it possible to visualize the mapping of elements relevant to ASR, such as alkali elements (*K*, *Na*) and silica (*Si*) in the various isolated components of the sample meso-structure: cement paste and aggregates. More specifically, they make it possible to visualize the alkali distribution profile in each aggregate. The two selected samples were compared. The difference in alkali ion concentration was visually identified. Alkali ions seemed more diffuse in the smaller specimen's aggregate which is likely most affected by the size effect. For the sample taken from the large block, the distribution of alkalis seems to be more localized near the outer limits of the aggregates at the level of the cracks induced by ASR. This observation was quantitatively validated by the developed algorithm for two similarly shaped aggregates from the two samples.

The algorithm results show completely different alkali distribution profiles between the two aggregates. For the aggregate taken from the small specimen a quasi-uniform alkali profile was observed; that corresponds to the typical profile at the end of the diffusion process with a stabilized concentration. In contrast, for the aggregate of the sample taken from the large block, a concentration gradient was observed, with lower values towards the centre of the aggregate.

Finally, the study shows that the use of LIBS spectroscopy technology is highly robust and promising in diagnosing and characterizing the ASR affected concrete.

## TABLE DES MATIÈRES

|                                                                                                   |      |
|---------------------------------------------------------------------------------------------------|------|
| DÉDICACE.....                                                                                     | I    |
| REMERCIEMENTS .....                                                                               | IV   |
| RÉSUMÉ.....                                                                                       | V    |
| TABLE DES MATIÈRES .....                                                                          | IX   |
| LISTE DES TABLEAUX.....                                                                           | XIII |
| LISTE DES FIGURES.....                                                                            | XIV  |
| LISTE DES ANNEXES.....                                                                            | XIX  |
| LISTE DES SIGLES ET ABRÉVIATIONS .....                                                            | XX   |
| CHAPITRE 1 INTRODUCTION.....                                                                      | 1    |
| 1.1 Contexte général.....                                                                         | 1    |
| 1.2 Problématique.....                                                                            | 2    |
| 1.3 Objectifs du projet de recherche.....                                                         | 3    |
| 1.4 Méthodologie du projet de maitrise .....                                                      | 3    |
| 1.5 Structure du mémoire .....                                                                    | 4    |
| CHAPITRE 2 REVUE DE LITTÉRATURE .....                                                             | 5    |
| 2.1 Mécanisme de la réaction alcali-silice (RAS).....                                             | 5    |
| 2.2 Phénomène d’effets d’échelle (chimique) dans l’expansion du béton affecté par la<br>RAS ..... | 8    |
| 2.2.1 Effet d’échelle dans l’expansion du béton affecté par la RAS.....                           | 8    |
| 2.2.2 Théories explicatrices de l’effet d’échelle .....                                           | 9    |
| 2.2.3 Perméation du gel.....                                                                      | 10   |
| 2.2.4 Lessivage des alcalis .....                                                                 | 14   |
| 2.2.5 Synthèse sur les origines de l’effet d’échelle sur l’expansion de la RAS .....              | 19   |

|            |                                                                                                           |    |
|------------|-----------------------------------------------------------------------------------------------------------|----|
| 2.3        | Considération du lessivage.....                                                                           | 20 |
| 2.3.1      | Corrélation entre l'expansion de laboratoire et celle de la structure.....                                | 20 |
| 2.3.2      | Modélisation numérique du lessivage des alcalis .....                                                     | 21 |
| 2.3.3      | Considération semi-empirique du lessivage.....                                                            | 26 |
| 2.3.4      | Synthèse .....                                                                                            | 30 |
| 2.4        | Spectroscopie LIBS (Laser-Induced Breakdown Spectroscopy) .....                                           | 31 |
| 2.4.1      | Principe de mesure LIBS.....                                                                              | 31 |
| 2.4.2      | La plateforme LIBS CORIOSITY EMISSION.....                                                                | 33 |
| 2.4.3      | Applications dans le domaine du génie civil.....                                                          | 35 |
| CHAPITRE 3 | DÉVELOPPEMENTS ANALYTIQUES ET NUMÉRIQUES POUR LA<br>MODÉLISATION DU LESSIVAGE DES ALCALIS.....            | 40 |
| 3.1        | Introduction .....                                                                                        | 40 |
| 3.2        | Équations constitutives et hypothèses .....                                                               | 40 |
| 3.2.1      | Échelle du granulat.....                                                                                  | 42 |
| 3.2.2      | Échelle du spécimen.....                                                                                  | 45 |
| 3.2.3      | Méthodologie générale de modélisation .....                                                               | 47 |
| 3.3        | Calcul du terme source de consommation – résolution numérique par méthode des<br>différences finies ..... | 49 |
| 3.3.1      | Discretisation des équations .....                                                                        | 49 |
| 3.3.2      | Approximations des dérivées .....                                                                         | 51 |
| 3.3.3      | Méthode de résolution.....                                                                                | 52 |
| 3.3.4      | Validation.....                                                                                           | 60 |
| 3.4        | Modélisation par éléments finis .....                                                                     | 63 |
| 3.4.1      | Modélisation multi-physiques.....                                                                         | 63 |
| 3.4.2      | Modélisation multi-échelles .....                                                                         | 74 |

|            |                                                                                                                |     |
|------------|----------------------------------------------------------------------------------------------------------------|-----|
| 3.5        | Exemples de validation .....                                                                                   | 80  |
| 3.5.1      | Description des essais.....                                                                                    | 80  |
| 3.5.2      | Description des modèles.....                                                                                   | 80  |
| 3.6        | Discussions.....                                                                                               | 83  |
| CHAPITRE 4 | ANALYSE PAR SPECTROSCOPIE LIBS.....                                                                            | 85  |
| 4.1        | Introduction .....                                                                                             | 85  |
| 4.2        | Méthodologie .....                                                                                             | 85  |
| 4.2.1      | Contexte de l'étude sur la RAS dans le béton et Importance de l'analyse des données LIBS dans cette étude..... | 85  |
| 4.2.2      | Objectif principal de cette étude.....                                                                         | 89  |
| 4.2.3      | Post-traitement avancé des données .....                                                                       | 91  |
| 4.3        | Création des masques binaires pour la distinction ciment/granulats.....                                        | 93  |
| 4.3.1      | Utilisation de l'opération <i>ceil</i> pour classifier les points du béton .....                               | 93  |
| 4.3.2      | Application de l'opération d'ouverture morphologique pour un masquage précis ....                              | 94  |
| 4.4        | Analyses avancées avec le masque binaire .....                                                                 | 95  |
| 4.4.1      | Cartographie distincte des éléments chimiques dans le ciment et les granulats .....                            | 95  |
| 4.4.2      | Cartographie statistique des concentrations d'éléments chimiques .....                                         | 96  |
| 4.5        | Exploration des résultats LIBS dans les granulats .....                                                        | 98  |
| 4.5.1      | Segmentation avancée pour la détection des granulats .....                                                     | 98  |
| 4.5.2      | Indexation des différents granulats .....                                                                      | 99  |
| 4.5.3      | Concentration d'éléments chimiques dans les granulats isolés.....                                              | 100 |
| 4.5.4      | Application .....                                                                                              | 102 |
| CHAPITRE 5 | CONCLUSIONS.....                                                                                               | 105 |
| 5.1        | Conclusions .....                                                                                              | 105 |
| 5.2        | Premier volet analytique/numérique .....                                                                       | 106 |

|                                                    |                                  |     |
|----------------------------------------------------|----------------------------------|-----|
| 5.3                                                | Deuxième volet expérimental..... | 108 |
| 5.4                                                | Recommandations .....            | 110 |
| RÉFÉRENCES.....                                    |                                  | 111 |
| ANNEXE A : TENTATIVE DE RESOLUTION ANALYTIQUE..... |                                  | 116 |

## LISTE DES TABLEAUX

|                                                                                                                                                      |    |
|------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|----|
| Tableau 3-1 : Approximation de la dérivée première .....                                                                                             | 51 |
| Tableau 3-2 : Approximation de la dérivée seconde.....                                                                                               | 52 |
| Tableau 3-3 : Conditions aux limites de l'équation de convection-diffusion.....                                                                      | 53 |
| Tableau 3-4 : Conditions aux limites de l'équation de diffusion : méthode Crank-Nicolson .....                                                       | 58 |
| Tableau 3-5 : Paramètres utilisés pour résoudre l'équation de diffusion dans les granulats (exemple de Takahashi et al. (2021), scénarios A/B) ..... | 61 |
| Tableau 3-6 : Paramètres d'entrées pour l'expérience de Morenon (2007) .....                                                                         | 66 |
| Tableau 3-7 : Analogie thermique-chimique : comparaison des paramètres .....                                                                         | 70 |
| Tableau 3-8 : Formulation du béton employé dans l'expérience de Lindgard et al. (2013).....                                                          | 78 |
| Tableau 3-9 : Paramètres de modélisation employés par Multon & Sellier (2016).....                                                                   | 78 |
| Tableau 4-1 : Proportions et caractérisation du mélange en étude.....                                                                                | 85 |

## LISTE DES FIGURES

|                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                         |    |
|-------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|----|
| Figure 2-1 : Schéma simplifié du mécanisme réactionnel de la RAS (Joo & Takahashi, 2023) .....                                                                                                                                                                                                                                                                          | 6  |
| Figure 2-2 : Relation conceptuelle entre la durée et la fiabilité des méthodes d'évaluation des mesures de prévention de la RAS (Hayman & Thomas ,2011) .....                                                                                                                                                                                                           | 7  |
| Figure 2-3 : Cinétique de la RAS et effets d'échelle (Chéruef et Ben Ftima, 2023).....                                                                                                                                                                                                                                                                                  | 8  |
| Figure 2-4 : Relation entre l'expansion et la teneur alcalis pour les échantillons contenant du sable de silex dans différentes conditions d'essai (Thomas et al., 2006) .....                                                                                                                                                                                          | 9  |
| Figure 2-5 : Comparaison des effets d'échelle pour une expansion causée par la RAS et pour une expansion thermique (Takahashi et al., 2016).....                                                                                                                                                                                                                        | 11 |
| Figure 2-6 : Schéma de calcul multi-échelles chimio-hydrigue poro-mécanique (Takahashi et al., 2014).....                                                                                                                                                                                                                                                               | 11 |
| Figure 2-7 : Spécimens de mortier de différentes tailles et formulation employée dans l'expérience menée (Takahashi et al., 2016).....                                                                                                                                                                                                                                  | 12 |
| Figure 2-8 : Résultats des essais de Takahashi et al. (2016) : (a) expansion libre moyenne et sa fourchette de variabilité pour des bétons affectés par la RAS de différentes tailles. (b) profils des fissures apparentes sur les spécimens de mortier.....                                                                                                            | 13 |
| Figure 2-9 : Stockage des prismes d'essai au-dessus de l'eau dans des conteneurs hermétique, modifiée de Rivard et al. (2006).....                                                                                                                                                                                                                                      | 14 |
| Figure 2-10 : Corrélation entre la quantité des alcalis lessivés ( $D_a$ en %) et le ratio du volume du contenant hermétique sur volume de spécimen (Costa et al., 2017) .....                                                                                                                                                                                          | 16 |
| Figure 2-11 : Évolution dans le temps du lessivage des alcalis (en trait continu) et de l'expansion du prisme (en trait pointillé) (Costa et al., 2017). .....                                                                                                                                                                                                          | 17 |
| Figure 2-12 : Influence de la taille de spécimen et des conditions hydriques sur l'expansion selon les résultats expérimentaux de Lindgård et al. (2013) : (a) % d'alcalis lessivés et (b) % d'expansion pour différentes sections de prisme (traits pointillés : expansion théorique sans tenir compte de l'effet de lessivage) (tiré de Multon & Sellier (2016))..... | 18 |

|                                                                                                                                                                                                                                                                         |    |
|-------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|----|
| Figure 2-13 : Bilan massique des alcalis à l'échelle des granulats (avec diffusion et fixation dans les gels RAS) et, à l'échelle de l'échantillon du béton (diffusion dans l'échantillon) (Multon & Sellier, 2016).....                                                | 22 |
| Figure 2-14 : Distribution des alcalis dans un échantillon maintenu en condition de lessivage (Multon & Sellier, 2016).....                                                                                                                                             | 24 |
| Figure 2-15 : Courbes d'expansion idéales : résultats du modèle de Nhu Nguyen et al. (2022) comparés aux résultats de la modélisation multi-échelle de Multon & Sellier (2016) .....                                                                                    | 29 |
| Figure 2-16 : Prévion de l'expansion future potentielle à l'aide du modèle proposé par Nhu Nguyen et al. (2022).....                                                                                                                                                    | 29 |
| Figure 2-17 : Configuration de mesure LIBS (Cabral et al., 2023) .....                                                                                                                                                                                                  | 31 |
| Figure 2-18 : Principe physique de la technique LIBS (Gardette et al., 2023) .....                                                                                                                                                                                      | 32 |
| Figure 2-19 : Dispositif instrumental LIBS CORIOSITY (Elemission, 2023).....                                                                                                                                                                                            | 34 |
| Figure 2-20 : Avantages de l'instrument LIBS CORIOSITY : Cartographie multi élémentaire LIBS haute résolution pour l'or, avec balayage rapide comparé à la méthode traditionnelle (5 min par surface de 40 x 40 mm à 1 kHz vs 8,4 h à 10 Hz) (Rifai et al., 2018) ..... | 34 |
| Figure 2-21 : Emplacements d'échantillonnage des carottes de forage (à gauche) et plan de coupe (à droite) (Weise et al., 2022).....                                                                                                                                    | 36 |
| Figure 2-22 : Représentation comparative des teneurs en sodium et en chlorure par rapport à la profondeur pour les carottes de forage prélevées au centre et au bord de la dalle de chaussée en béton (Weise et al., 2022).....                                         | 36 |
| Figure 2-23 : (a) Coupe d'échantillon de béton d'une surface de 50 × 40mm, (b) cartographie LIBS pour l'élément Ca et (c) Distributions de calcium (Ca) uniquement dans la pâte de ciment (Gottlieb et al., 2017) .....                                                 | 37 |
| Figure 2-24 : (a) Échantillons immergés dans l'eau saturée de sel (NaCl), (b) Cartographie LIBS de Cl <sup>-</sup> résultant du scan des échantillons et (c) Profil de concentration expérimentale (LIBS) confirmant la loi de Fick (Mateo et al., 2023).....           | 38 |
| Figure 3-1 : Diffusion des alcalis et leurs consommations à l'échelle du granulat .....                                                                                                                                                                                 | 41 |

|                                                                                                                                                                                                                                                                 |    |
|-----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|----|
| Figure 3-2 : Bilan massique des alcalis à l'échelle du béton et à l'échelle du granulat .....                                                                                                                                                                   | 41 |
| Figure 3-3 : Hypothèses simplificatrices dans le granulat: (a) granulat réactif au sein d'une matrice cimentaire, (b) granulat réactif supposé sphérique, (c) exemple de V.E.R. pour une seule classe granulaire réactive (modifiée de Poyet (2003)).....       | 44 |
| Figure 3-4 : Variation du coefficient de diffusion $D_c$ en fonction de $S_r$ (Bazant et Najjar, 1972) .                                                                                                                                                        | 47 |
| Figure 3-5 : Méthodologie développée pour modéliser le lessivage des alcalis .....                                                                                                                                                                              | 48 |
| Figure 3-6 : Maillage pour différences finies.....                                                                                                                                                                                                              | 50 |
| Figure 3-7: Concentration alcaline dans le granulat obtenue dans Takahashi et al. (2021) pour deux scénarios : (a) scénario A : diffusion rapide + réaction lente; (b) scénario B : diffusion lente + réaction rapide. ....                                     | 60 |
| Figure 3-8 : Concentration alcaline dans le granulat obtenue dans Takahashi et al. (2021) Résolue avec les trois méthodes de différences finies : (a) scénario A : diffusion rapide + réaction lente et (b) scénario B : diffusion lente + réaction rapide..... | 62 |
| Figure 3-9 : Analyse de la pression interstitielle : (a) relation pression interstitielle-degré de saturation et (b) relation perméabilité-degré de saturation (Ben Ftima et al., 2023) .....                                                                   | 64 |
| Figure 3-10 : Vérification du modèle [à l'aide des résultats expérimentaux de Multon & Toutlemonde (2010)] : (a) Expansion longitudinale en fonction du temps et (b) Variation de masse en fonction du temps .....                                              | 67 |
| Figure 3-11 : Reproduction des résultats de Martin et al. (2013) avec la méthodologie de calcul hydrique originale de Ben Ftima et al. (2023) (loi de Van Genuchten utilisée) .....                                                                             | 68 |
| Figure 3-12 : Reproduction des résultats de Martin et al. (2013) avec la méthodologie de calcul hydrique modifiée de Ben Ftima et al. (2023) (loi de Van Genuchten utilisée) .....                                                                              | 68 |
| Figure 3-13 : Vérification de la méthode de calcul de lessivage par les deux méthodes.....                                                                                                                                                                      | 74 |
| Figure 3-14 : Géométrie, maillage et condition adiabatique pour vérifier l'implémentation de la sous-routine .....                                                                                                                                              | 77 |
| Figure 3-15 : Terme source calculé par la méthode explicite en utilisant les paramètres de Lindgard et al. (2013) et de Multon & Sellier (2016).....                                                                                                            | 79 |

|                                                                                                                                                                                                                                       |     |
|---------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|-----|
| Figure 3-16 : Vérification de l'implémentation de la sous-routine pour le cas adiabatique : les profils de concentration théorique et numérique se superposent.....                                                                   | 79  |
| Figure 3-17 : Géométrie, maillage et conditions aux limites des modèles numériques.....                                                                                                                                               | 80  |
| Figure 3-18 : Variation du terme source avec la variation de $[Na^{eq}]_{agg}(r = R) = Co$ .....                                                                                                                                      | 81  |
| Figure 3-19 : Profil des alcalis ( $\text{mol/m}^3$ ) dans les prismes 100 x 100 mm et 70 x 70 mm dans les conditions de lessivage (CPT) de l'expérience de Lindgard et al. (2013) pour une durée de 50 semaines et 100 semaines..... | 82  |
| Figure 3-20 : Résultat numérique du lessivage et comparaison aux résultats expérimentaux de Lindgard et al. 2013 .....                                                                                                                | 83  |
| Figure 4-1 : Méthodologie de la campagne expérimentale : (a) avant les essais de fendage ; (b) après les essais de fendage .....                                                                                                      | 86  |
| Figure 4-2 : Comparaison des spécimens B76-CAR-2 et B76-BLOCK-3 : profils de fissuration, expansions et DRI (vues développées) (tiré de Chérueil et Ben Ftima (2023)).....                                                            | 87  |
| Figure 4-3 : Comparaison de l'expansion des spécimens B76-BLOCK-3 et B76-CAR-2.....                                                                                                                                                   | 87  |
| Figure 4-4 : Échantillons choisis pour le LIBS après une durée d'essai d'expansion durant 1200 jours et après l'analyse par DRI .....                                                                                                 | 88  |
| Figure 4-5 : Image mapping de $Na^{eq}$ et $Si$ dans les deux spécimens étudiés .....                                                                                                                                                 | 90  |
| Figure 4-6 : Segmentation des composants dans l'échantillon de béton : masque binaire distinguant granulats et ciment .....                                                                                                           | 94  |
| Figure 4-7 : Amélioration du masque binaire : avant et après l'opération d'ouverture morphologique .....                                                                                                                              | 95  |
| Figure 4-8 : Cartographie sélective de $Na^{eq}$ : spécimen, granulats et ciment .....                                                                                                                                                | 96  |
| Figure 4-9 : Cartographies de $Na^{eq}$ en largeur dans les deux échantillons : B76-CAR-2 (à gauche) et B76-BLOCK-3 (à droite) .....                                                                                                  | 97  |
| Figure 4-10 : Présentation des résultats de segmentation avancée des granulats.....                                                                                                                                                   | 99  |
| Figure 4-11 : Résultats d'indexation des granulats .....                                                                                                                                                                              | 100 |
| Figure 4-12 : Création du masque du granulat 155.....                                                                                                                                                                                 | 100 |

|                                                                                                                                                                              |     |
|------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|-----|
| Figure 4-13 : Schématisation de l'étape d'extraction d'informations pour une forme quelconque d'un granulat .....                                                            | 101 |
| Figure 4-14 : Procédure pour l'étude de la distribution spatiale d'un élément chimique dans le granulat.....                                                                 | 102 |
| Figure 4-15 : Exploration des résultats LIBS dans les granulats : (a) Identification des granulats et (b) Comparaison des profils de distribution de $Na^{eq}$ et $Si$ ..... | 103 |

## **LISTE DES ANNEXES**

|                                                    |     |
|----------------------------------------------------|-----|
| Annexe A : TENTATIVE DE RESOLUTION ANALYTIQUE..... | 116 |
|----------------------------------------------------|-----|

## LISTE DES SIGLES ET ABRÉVIATIONS

### Abréviations :

|                                   |                                                                                      |
|-----------------------------------|--------------------------------------------------------------------------------------|
| ANLEF                             | Analyse Non Linéaire par Éléments Finis                                              |
| ASTM                              | <i>American Society for Testing and Materials</i> – Association de normes techniques |
| ASR                               | Alcali silica reaction                                                               |
| CPT                               | <i>Concrete Prism Test</i> – CSA A23.2-14A                                           |
| DRI                               | <i>Damage Rating Index</i> – Indice d'endommagement                                  |
| LIBS                              | <i>Laser-Induced Breakdown Spectroscopy</i>                                          |
| $\text{Na}_2\text{O}_{\text{eq}}$ | Teneur en alcalis équivalente                                                        |
| ASR                               | Alcali silica reaction                                                               |
| RAS                               | Réaction Alcalis-Silice                                                              |

### Variables :

|                              |                                                                           |
|------------------------------|---------------------------------------------------------------------------|
| A                            | Teneur en alcali dans le béton                                            |
| %AL                          | Quantité en % d'alcalis lessivés du spécimen à l'instant t                |
| $C_0$                        | Concentration initiale en alcalis dans le béton                           |
| $C_{\text{thr}}$             | « Seuil » de concentration alcaline nécessaire au déclenchement de la RAS |
| $c_p$                        | Chaleur thermique spécifique                                              |
| $D_{\text{agg}}$             | Coefficient de diffusion des alcalis dans le granulat                     |
| $D_c$                        | Coefficient de diffusion des alcalis dans le béton                        |
| $D_0$                        | Coefficient de diffusion pour un degré de saturation de 1.0               |
| HR                           | Humidité relative                                                         |
| $\bar{J}_{\text{thermique}}$ | Densité de flux thermique                                                 |
| $\bar{J}_{\text{massique}}$  | Densité de flux massique                                                  |

|                     |                                                                                                                             |
|---------------------|-----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|
| $k$                 | Constante de réaction de la RAS caractérisant la réactivité des granulats et le taux d'attaque de la silice par les alcalis |
| $\hat{k}$           | Perméabilité intrinsèque du béton                                                                                           |
| $k_c$               | Perméabilité du béton quand il est complètement saturé                                                                      |
| $k_s$               | Coefficient de dépendance de la perméabilité au degré de saturation                                                         |
| $k_{\varepsilon,A}$ | Coefficient exprimant la dépendance à la teneur en alcali A dans l'expansion volumétrique asymptotique due à la RAS         |
| $k_{C,LA}$          | Coefficient exprimant la dépendance au lessivage des alcalis du temps caractéristique dans le modèle de Larive              |
| $k_{L,LA}$          | Coefficient exprimant la dépendance au lessivage des alcalis du temps de latence dans le modèle de Larive                   |
| $K_{Na}$            | Coefficient de convection surfacique des alcalis                                                                            |
| $n_{Na}^-$          | Quantité molaire d'alcalis sortants du spécimen à l'instant t                                                               |
| $n_{Na}^0$          | Quantité molaire d'alcalis présents initialement dans le spécimen                                                           |
| $n_{Na}^r$          | Quantité molaire d'alcalis restants à l'instant t                                                                           |
| $n_{gel}^{mol}$     | Quantité molaire de gel formé                                                                                               |
| $[Na^{eq}]_{agg}$   | Concentration homogénéisée des alcalis pour un granulat                                                                     |
| $[Na^{eq}]_c$       | Concentration d'alcalis dans la solution interstitielle du béton                                                            |
| $[Na^{eq}]_M$       | Concentration d'alcalis dans une position quelconque M du granulat                                                          |
| $p_{agg}$           | Porosité du granulat                                                                                                        |
| $p_c$               | Porosité du béton                                                                                                           |
| $Pdp$               | Prise de poids entre l'instant 0 et l'instant t                                                                             |
| $P_w$               | Pression de l'eau                                                                                                           |
| $R_{agg}$           | Rayon moyen de chaque classe granulaire dans le béton                                                                       |
| $S_{Na}^{agg}$      | Terme source volumique caractérisant la consommation à l'échelle des granulats                                              |

|                     |                                                                                                                                                |
|---------------------|------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|
| $S_{\Sigma Na_f}^c$ | Terme source, représentant la somme des alcalis pénétrant dans les particules de granulats à chaque pas de temps déterminé par le calcul local |
| $Sr_t$              | Degré de saturation à l'instant $t$                                                                                                            |
| $Sr_0$              | Degré de saturation à l'instant 0                                                                                                              |
| $T$                 | Température                                                                                                                                    |
| $\rho$              | Densité                                                                                                                                        |
| $Q_{Na\ eq.}^{agg}$ | Quantité d'ions alcalins équivalents ayant pénétré dans le granulat à un moment $t$                                                            |
| $Q_{massique}$      | Quantité de matière échangée pendant $dt$ par une surface $S$                                                                                  |
| $v_w$               | La vitesse relative du fluide par rapport à la phase solide                                                                                    |
| $V_{béton}$         | Volume du spécimen en béton                                                                                                                    |
| $W$                 | Teneur en eau                                                                                                                                  |

### Variables grecques

|                                   |                                                               |
|-----------------------------------|---------------------------------------------------------------|
| $\varepsilon^\infty$              | Déformation volumétrique asymptotique due à la RAS            |
| $\varepsilon_{\infty-long}(S_r)$  | Déformation longitudinale asymptotique due à la RAS           |
| $\overline{\phi_{Na\ eq.}^{agg}}$ | Flux instantané d'alcalis traversant la surface d'un granulat |
| $\overline{\phi_{Na}^c}$          | Flux d'alcalis dans l'éprouvette béton                        |
| $\phi_{thermique}$                | Flux thermique                                                |
| $\phi_{massique}$                 | Flux massique                                                 |
| $\lambda$                         | Coefficient d'anisotropie                                     |
| $\lambda_{thr}$                   | Conductivité thermique                                        |
| $\rho_w$                          | Densité de l'eau                                              |
| $\rho_c$                          | Densité du béton                                              |
| $\tau_L$                          | Temps de latence                                              |
| $\tau_C$                          | Temps caractéristique                                         |

# CHAPITRE 1 INTRODUCTION

## 1.1 Contexte général

Les installations hydroélectriques constituent depuis longtemps des ouvrages indispensables à la société. Au Québec, ces structures majeures permettent de fournir 97 % de la production totale d'électricité de la province. Conçues généralement pour être exploitées sur une période minimale de 50 à 60 ans, la majorité de ces structures approchent de la fin de leur durée de vie. Au Canada, à titre illustratif, 51% des grands barrages datent de plus de 50 ans (CDA, 2019). Les installations hydroélectriques en béton sont des infrastructures stratégiques dont le coût de remplacement est très élevé. Compte tenu du volume important de béton employé dans leur construction, la prolongation de leur durée de vie par des technologies de réhabilitation bien ciblées et planifiées permettrait de limiter les émissions de dioxyde de carbone au cours des prochaines décennies.

La dégradation du béton est un défi majeur auquel sont confrontés les propriétaires d'installations hydrauliques dans le monde entier. Plus particulièrement, le gonflement du béton dû à la réaction alcali silice (RAS) est un des mécanismes de détérioration les plus importants, parce qu'il contribue à une dégradation accélérée du béton et à des problèmes de fonctionnement et d'intégrité structurale à l'échelle de l'ouvrage (Ben Ftima et al., 2023).

L'auscultation et le pronostic continus de ces ouvrages sont indispensables. Une stratégie cohérente et économiquement justifiée, compte tenu des coûts importants associés à la mise hors service dans ce cas, serait l'utilisation de modèles numériques sophistiqués utilisant des *analyses avancées non linéaires par éléments finis* (ANLEF) (Ben Ftima et al., 2016). L'objectif principal des ANLEF est de contribuer à la prévision de la détérioration liée à la RAS, susceptible d'entraîner des niveaux inadmissibles de fonctionnalité, de résistance et de durabilité.

Cependant, plusieurs défis majeurs doivent être relevés avant d'atteindre cet objectif. La complexité du phénomène de RAS résulte essentiellement de sa nature multi-physiques. Les essais de caractérisation sur les structures existantes posent des difficultés. Notamment pour les ouvrages hydrauliques, les mélanges de béton de masse contiennent des granulats grossiers (typiquement, la taille maximale des granulats varie de 40 à 150 mm), et de très grands éléments en béton (typiquement, la taille nominale est supérieure à 3 m). En conséquence, des effets d'échelle considérables apparaissent, et les résultats des tests de caractérisation expérimentaux ne peuvent

pas être directement utilisés dans les modèles de simulation EF puisque des effets d'échelle peuvent altérer les paramètres physico-chimiques mesurés en laboratoire, induisant ainsi un impact significatif sur les prédictions des simulations numériques multi-physiques.

Dans ce contexte, une campagne expérimentale a été lancée il y a 6 ans au Laboratoire de structures de Polytechnique Montréal (Lemery 2019, Chérueil 2022), visant à caractériser les propriétés mécaniques et la cinétique de la RAS d'un mélange de béton réactif utilisé dans la construction d'une installation hydroélectrique existante (granulat maximal de 76 mm). L'accent est mis sur la cinétique d'expansion libre de la RAS, un des paramètres les plus importants pour les modèles macro-chimio-mécaniques constitutifs du béton.

## 1.2 Problématique

Pour des fins de faisabilité et simplicité, la cinétique d'expansion est généralement mesurée sur des éprouvettes en béton de petite taille (moins de 150 mm), entreposées dans des chambres environnementales à humidité et température contrôlées. La température est artificiellement augmentée (ex : 38 °C) pour accélérer la réaction chimique et atteindre l'asymptote d'expansion dans des délais raisonnables. Les résultats de littérature et de la campagne d'essais sur l'aménagement existant (Ben Ftima et al., 2023), montrent que ces expansions ne sont pas représentatives de l'expansion réelle vue par l'ouvrage, en raison de la présence d'un effet d'échelle. Actuellement, il n'existe pas de consensus sur les origines de cet effet d'échelle, mais plusieurs études pointent vers la piste de lessivage des alcalis lors de l'essai en laboratoire ((Thomas et al., 2006), (Lindgård et al., 2013), (Multon & Sellier, 2016), (Costa et al., 2017), (Sinno & Shehata, 2019), (Bavasso et al., 2020) et (Nguyen et al., 2022)). Il est donc très pertinent de comprendre et reproduire numériquement cet effet d'échelle, afin de pouvoir corriger les courbes d'expansion libre mesurées au laboratoire et les utiliser éventuellement comme intrant pour les analyses numériques prédictives de la RAS. La modélisation de l'effet d'échelle sur l'expansion de RAS nécessite la caractérisation d'intrants à l'échelle mésoscopique (porosité des granulats, coefficient de diffusion des alcalis dans les granulats, constante de réaction caractérisant la consommation des alcalis par les granulats réactifs), et le recours à des techniques d'analyses chimiques locales de l'échantillon est donc requis. Parmi ces techniques, la spectroscopie par émission atomique, *Laser-Induced Breakdown Spectroscopy*, plus connue sous l'acronyme LIBS est une technologie en pleine émergence en ce moment, en raison des progrès réalisés récemment

au niveau de l'acquisition rapide des données et de l'utilisation de l'intelligence artificielle (Rifai et al., 2018). À notre connaissance, le LIBS n'a jamais été utilisé pour le contexte spécifique de la RAS dans le béton et une phase d'exploration et de développements est donc nécessaire.

### **1.3 Objectifs du projet de recherche**

L'objectif ultime de ce projet de maîtrise est la compréhension et la modélisation de l'effet d'échelle chimique sur l'expansion du béton causée par la RAS. Pour y arriver, les objectifs spécifiques suivants sont visés :

- Développement d'une méthodologie de calcul multi-échelles et multi-physiques pour la modélisation du phénomène de lessivage des alcalins, reconnu comme une des principales causes de l'effet d'échelle sur l'expansion;
- Exploration de la spectroscopie par émission atomique (LIBS) dans le contexte de la RAS et plus spécifiquement pour la caractérisation de l'effet d'échelle chimique au niveau de la mésostructure du béton.

### **1.4 Méthodologie du projet de maîtrise**

Les objectifs précédents se traduisent concrètement par les étapes suivantes:

- Revue de littérature pertinente sur le sujet, plus spécifiquement sur les différents phénomènes qui contribuent à l'effet d'échelle chimique;
- Apprentissage de l'environnement de calcul Abaqus et exploration des possibilités de modélisation offertes dans le contexte multi-physiques;
- Formulation d'hypothèses simplificatrices et développement d'une méthodologie de calcul multi-échelles et multi-physiques pour la prédiction du lessivage;
- Vérification et validation de la méthodologie en considérant des benchmarks pertinents de la littérature;
- Sélection de spécimens de la campagne expérimentale (Lemery 2019, Chérueil 2022) pour l'analyse par spectroscopie LIBS

- Développement d'algorithmes de post-traitement des résultats LIBS pour le contexte de diagnostic et caractérisation de l'effet d'échelle chimique dans l'expansion due à la RAS;
- Applications, conclusions et recommandations pour les études futures.

## **1.5 Structure du mémoire**

Ce rapport du projet de maîtrise est composé de 5 chapitres incluant l'introduction et la conclusion.

Après ce chapitre 1 introductif, le chapitre 2 propose une revue critique de la littérature pertinente sur le sujet. Le chapitre 3 présente les développements de la méthodologie de modélisation multi-échelles et multi-physiques du lessivage, ainsi que les vérifications et les validations réalisées.

Le chapitre 4 traite des résultats des analyses LIBS pour mettre en évidence l'effet d'échelle. Il présente les différents algorithmes développés afin de permettre une meilleure analyse/visualisation des résultats LIBS et une éventuelle mise en évidence de l'effet d'échelle dans les résultats de post-traitement.

Le chapitre 5 énonce les conclusions tirées tout au long de ce mémoire, accompagnées de recommandations pour des études futures.

## CHAPITRE 2 REVUE DE LITTÉRATURE

Ce chapitre explore la Réaction Alkali-Silice (RAS) dans le béton, mettant en évidence l'effet d'échelle chimique entre les résultats de laboratoire et le terrain. Il examine les mécanismes de la RAS, les méthodes de diagnostic et les théories expliquant l'effet d'échelle. Le chapitre aborde également la modélisation numérique du lessivage des alcalis et explore la technique novatrice de spectroscopie LIBS dans le contexte d'applications en génie civil et matériaux de construction.

### 2.1 Mécanisme de la réaction alcali-silice (RAS)

La réaction alcali-silice (RAS) est une réaction chimique entre les hydroxydes alcalis présents dans la solution poreuse et la silice dissoute provenant de granulats réactifs, qui conduit à la formation d'un gel expansif au contact avec l'eau. Cette expansion cause une fissuration et dégradation du béton avec le temps. De nombreuses études ont été menées pour identifier les mécanismes sous-jacents à la RAS.

Le processus de dommages causés par la RAS dans le béton peut être résumé comme suit Joo & Takahashi (2023), comme l'illustre la Figure 2-1 : (a) diffusion des alcalis dans les granulats et dissolution de la silice due à l'attaque alcaline, (b) formation d'un gel de RAS à l'intérieur et autour des granulats, (c) fissuration des granulats due à la pression du gel, (d) migration du gel dans la pâte de ciment à travers les fissures et (e) conversion du gel.

D'après l'étude effectuée par Joo & Takahashi (2023), la conversion du gel fait référence à un processus au cours duquel la composition chimique du gel change lorsqu'il réagit avec l'hydroxyde de calcium présent dans la pâte de ciment. Grâce à ce processus, un gel riche en alcalis est distribué autour du granulat et un gel riche en calcium avec une composition chimique similaire à celle d'un hydrate de silicate de calcium ( $C-S-H$ ) est réparti dans la pâte de ciment.

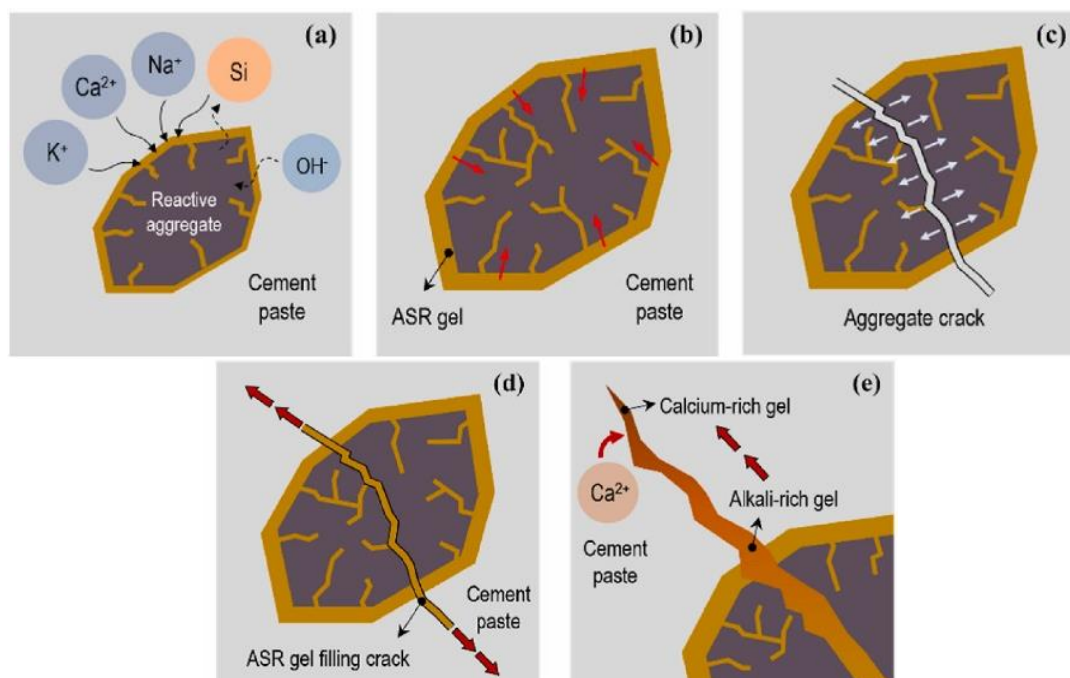


**Figure 2-1 : Schéma simplifié du mécanisme réactionnel de la RAS (Joo & Takahashi, 2023)**

Il convient de souligner que, lorsque le gel subit une déshydratation partielle, son expansion se suspend temporairement. Cependant, cette expansion reprend de manière rapide dès qu'une source d'eau supplémentaire est introduite (Figueira et al., 2019). Ceci explique le caractère cumulatif et irréversible des gonflements induits par la réaction.

L'expansion de la RAS conduit à la formation de microfissures, entraînant ainsi une diminution de la résistance et de la rigidité du matériau. Des déformations structurales peuvent survenir, engendrant des problèmes opérationnels voire des enjeux sécuritaires (ex : le blocage des vannes d'évacuateur, le désalignement d'équipements vitaux, ...) (Chérueil & Ben Ftima, 2023).

De nombreuses méthodes d'essai ont été mises au point pour évaluer l'efficacité des mesures de prévention de l'expansion due à la RAS. Beaucoup d'entre elles impliquent la production de spécimens de mortier ou de béton et la mesure de l'expansion en fonction du temps. Pour l'aspect pratique, il est généralement nécessaire d'accélérer la réaction d'une manière ou d'une autre, afin que les résultats soient disponibles dans un délai raisonnable. Les méthodes d'accélération comprennent la réduction de la taille de l'échantillon, l'augmentation de la température, la hausse de la teneur en alcalis, la hausse de l'humidité, ou une combinaison de ces méthodes. Malheureusement, accélérer la réaction la modifie dans une certaine mesure et il est convenu que plus la durée du test est courte, moins le résultat du test est fiable (Thomas et al., 2006).

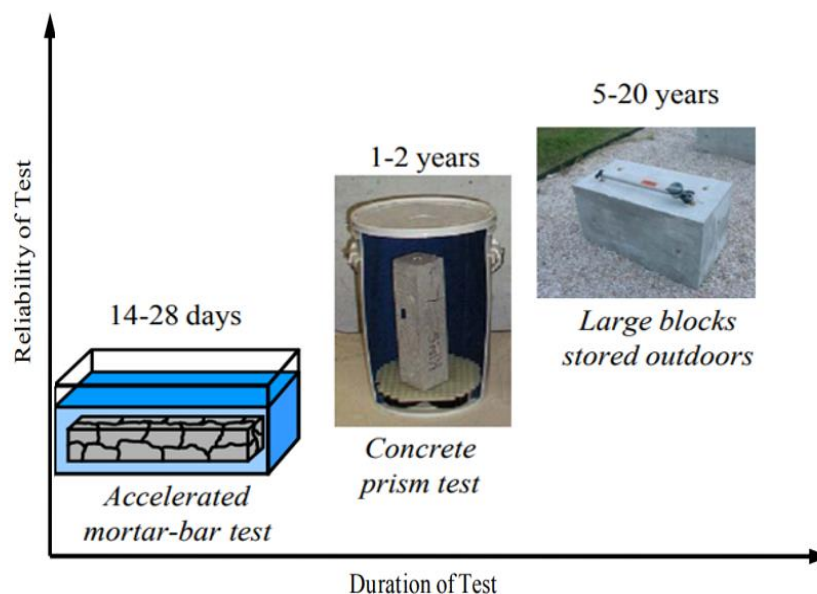


**Figure 2-2 : Relation conceptuelle entre la durée et la fiabilité des méthodes d'évaluation des mesures de prévention de la RAS (Hayman & Thomas ,2011)**

Ceci est illustré dans la Figure 2-2 pour les différentes méthodes d'évaluation les plus utilisées en littérature :

- L'essai accéléré de barres de mortier, AMBT (ASTM C 1567) : dans cet essai, de petites éprouvettes de mortier (25 x 25 x 250 mm) sont stockées dans une solution de  $NaOH$  1 M à une température de 80°C et l'expansion est mesurée sur une période de 14 à 28 jours.
- Essai de prisme en béton, CPT (ASTM C 1293) : dans ce test, des prismes de béton (75 x 75 x 250 mm) sont stockés dans des conteneurs scellés au-dessus de l'eau à 38°C et hautement humides ( $HR > 95\%$ ). Une durée d'essai d'un an est nécessaire. Une limite d'expansion de 0,040 % est utilisée pour déterminer si un granulat présente une réactivité délétère et une période de deux ans avec la même limite d'expansion est nécessaire pour évaluer une mesure préventive.
- Blocs d'exposition : de grands blocs 900 x 900 x 900 mm<sup>3</sup> ont par exemple été produits par Thomas et al. (2006) et exposés à l'environnement extérieur. Il est possible de mesurer l'expansion de l'échantillon en plaçant des repères à la surface sur une période donnée. Une analyse de l'ouverture des fissures est également réalisée sur les échantillons sur le terrain.

## 2.2 Phénomène d'effets d'échelle (chimique) dans l'expansion du béton affecté par la RAS

### 2.2.1 Effet d'échelle dans l'expansion du béton affecté par la RAS

Dans la pratique des projets d'infrastructures tels les ponts, de barrages et de routes, il est généralement possible de détecter les premiers signes caractéristiques de l'altération due à la RAS après une période de 5 à 10 ans. Cette réaction a tendance à persister et à se développer au fil du temps, au-delà d'une cinquantaine d'années après la construction de la structure. Ainsi, afin d'explorer la RAS sur une échelle de temps réaliste en laboratoire, des tests accélérés sont réalisés des petits spécimens, ce qui induit le phénomène d'effet d'échelle. Cet effet se manifeste par une altération de la cinétique d'expansion de la RAS, ce qui peut entraîner une fausse estimation de l'expansion potentielle des échantillons coulés au laboratoire et de l'expansion résiduelle des carottes extraites de l'installation.

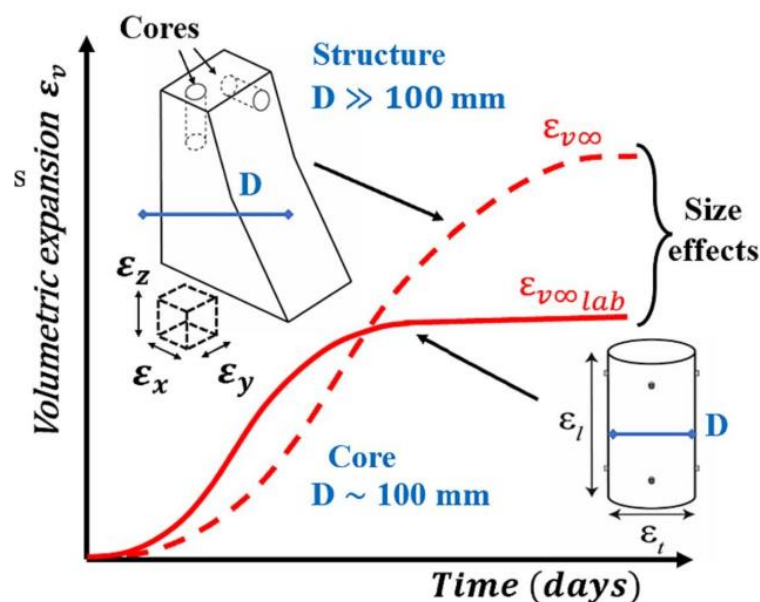


Figure 2-3 : Cinétique de la RAS et effets d'échelle (Chérueil et Ben Ftima, 2023)

La Figure 2-3 montre qualitativement la tendance d'effet d'échelle qui a été observée sur plusieurs campagnes expérimentales, soit une accélération de la cinétique et une sous-estimation de l'expansion asymptotique.

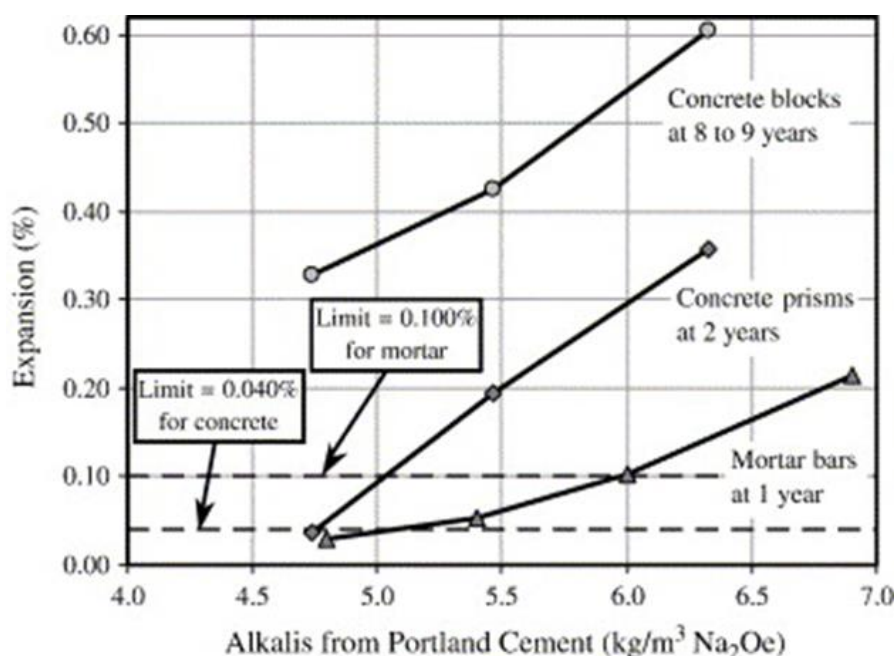


**Figure 2-4 : Relation entre l'expansion et la teneur alcalis pour les échantillons contenant du sable de silex dans différentes conditions d'essai (Thomas et al., 2006)**

L'étude de Thomas et al. (2006) est un des exemples de campagnes expérimentales, mettant en évidence l'effet d'échelle. Dans la Figure 2-4, divers types d'échantillons, tels que des barres de mortier, des prismes de béton et des blocs de béton, contenant 1,15 % de ciment d'alcalis en masse et incorporant 25 % de sable de pierre réactif, ont été soumis à une analyse en laboratoire et sur le terrain. De manière remarquable, les blocs de béton exposés aux conditions extérieures ont montré des expansions induites par la RAS deux fois plus importantes que les échantillons de laboratoire, sur une période de deux ans. La discordance entre les résultats obtenus en laboratoire et sur le terrain soulève des préoccupations quant à la capacité des protocoles d'essai en laboratoire à prédire avec précision les performances à long terme des structures en béton impactées par la RAS sur le terrain.

## 2.2.2 Théories explicatrices de l'effet d'échelle

La revue de littérature indique principalement deux origines de l'effet d'échelle sur l'expansion de la RAS, qui surviennent fréquemment de manière concomitante lors des expériences d'expansion en laboratoire (Multon & Sellier, 2016). La première origine est le lessivage des alcalis, relié à la migration des ions alcalis vers l'extérieur du spécimen. Il s'agit de la cause la plus probable de l'effet d'échelle, puisque le sujet a été abordé par plusieurs équipes de chercheurs ((Thomas et al.,

2006), (Lindgård et al., 2013), (Multon & Sellier, 2016), (Costa et al., 2017), (Sinno & Shehata, 2019), (Bavasso et al., 2020) et (Nguyen et al., 2022)). La seconde origine est la perméation de gel, qui résulte du déplacement du gel généré par la RAS vers les bords du spécimen. Cet aspect a été étudié par Gao et al. (2013), Takahashi et al. (2016) et Kawabata et al. (2019). Plus spécifiquement, Takahashi et al. (2016) ont développé un modèle numérique pour représenter la perméation du gel et son interaction avec l'effet d'échelle dans les structures en béton affectées par la RAS. Les deux phénomènes de lessivage et de perméation sont détaillés dans les sections suivantes. Une synthèse sur les choix faits dans ce travail est présentée à la fin de cette section (2.2.5).

### **2.2.3 Perméation du gel**

À notre connaissance, l'étude de Takahashi et al. (2016) est la plus complète dans la littérature, puisqu'elle a considéré à la fois une campagne expérimentale et une modélisation numérique de l'effet de la perméation du gel. Selon cette étude, le lessivage des alcalis est associé à la "cause de la réaction", tandis que la migration des gels RAS est liée au "résultat de la réaction" avec une forte influence des champs de contrainte. Les auteurs considèrent que plus le spécimen est petit, plus le gel peut s'évacuer rapidement par exsudation, donc la pression interne est moins importante au cours de la réaction et l'expansion finale est plus faible. Ils comparent ce phénomène à l'hydratation thermique du ciment et à l'expansion thermique du béton. Pour des dimensions réduites, l'énergie thermique se dissipe facilement, entraînant une expansion thermique limitée. En revanche, pour des dimensions plus importantes, la libération d'énergie devient plus difficile, induisant une expansion thermique significative (Figure 2-5).

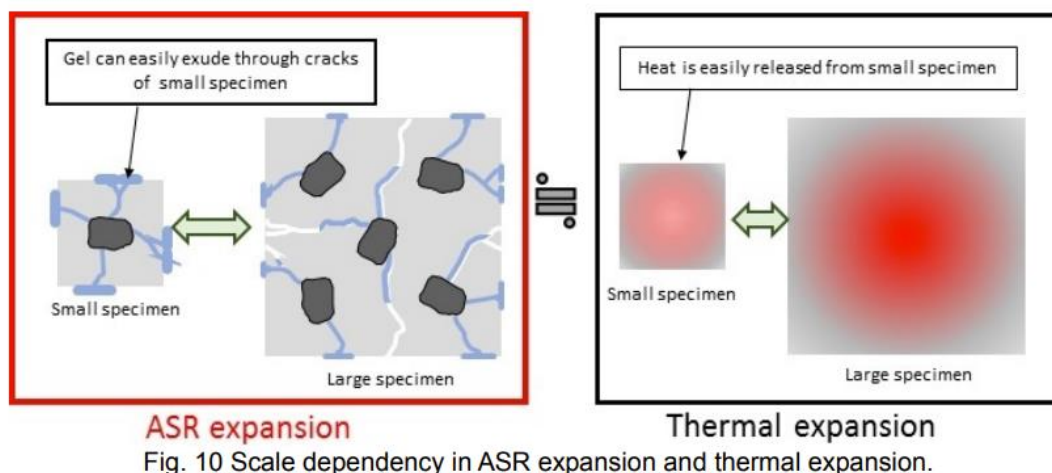


**Figure 2-5 : Comparaison des effets d'échelle pour une expansion causée par la RAS et pour une expansion thermique (Takahashi et al., 2016)**

Le modèle d'expansion induite par la RAS utilisé dans cette étude est formulé sur la base de l'approche poro-mécanique multi-échelles développée par Takahashi et al. (2014) et illustrée dans la Figure 2-6.

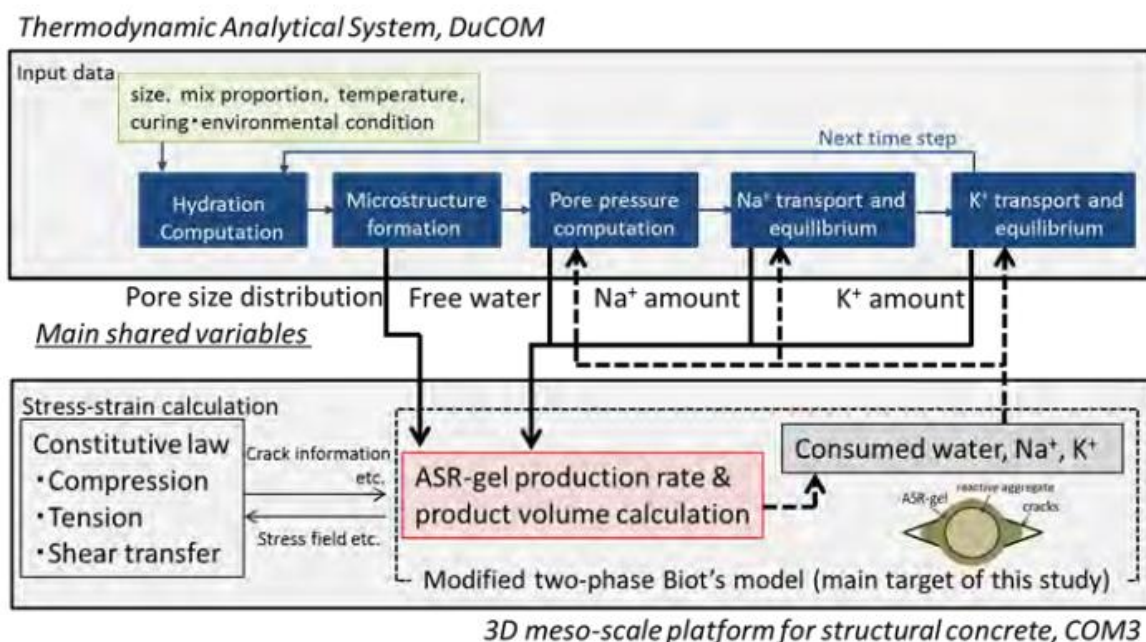
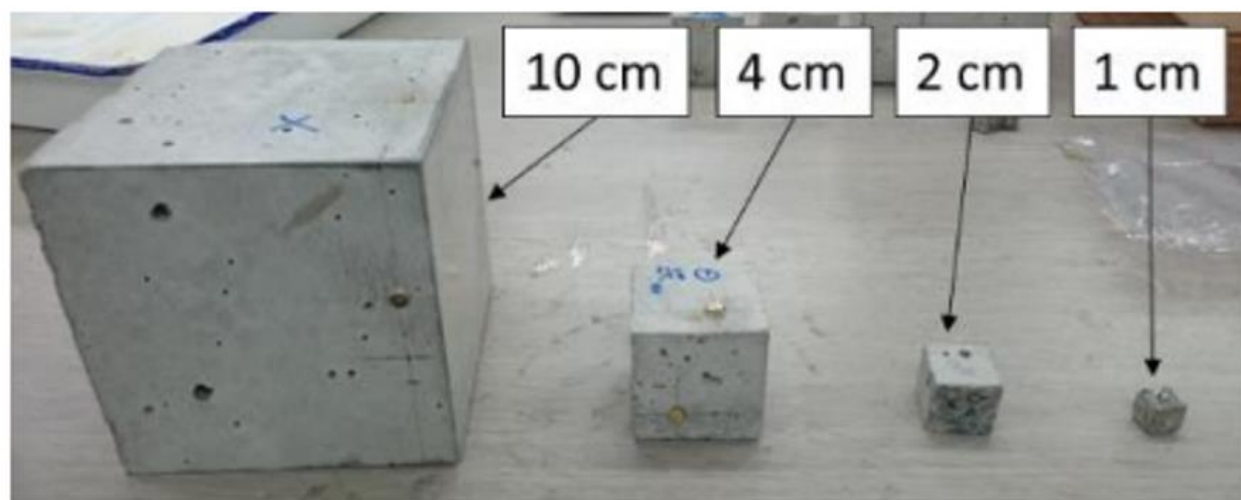


**Figure 2-6 : Schéma de calcul multi-échelles chimio-hydrrique poro-mécanique (Takahashi et al., 2014)**

Cette approche considère le gel RAS comme un fluide occupant les fissures et les micro-vides, se propageant à travers le réseau poreux du matériau. La formulation intègre les aspects cinématiques des milieux poreux avec la déformation du squelette solide et la fracturation associée, offrant ainsi une compréhension approfondie du comportement de l'expansion due à la RAS. Le modèle permet de modéliser la migration du gel due au gradient de pression du gel dans le schéma du milieu poreux en suivant le modèle de Biot (1963).

Le coefficient de perméabilité au gel de RAS étant le paramètre le plus important dans cette modélisation, et en absence de protocole expérimental permettant d'identifier directement ce paramètre, les auteurs ont entrepris une analyse inverse (procédure de calibration) pour le retrouver.

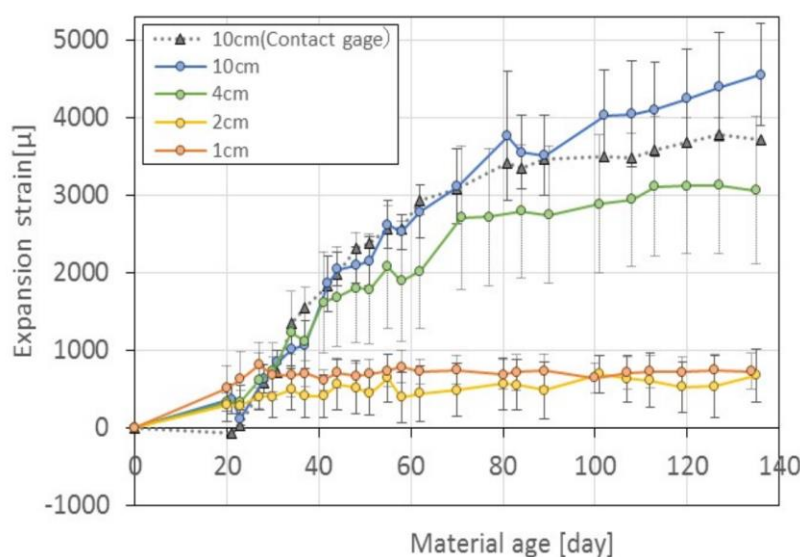
Dans ce contexte, Takahashi et al. (2016) ont entrepris une étude expérimentale, suivie d'une analyse numérique comportant une étude de sensibilité de la perméabilité du gel RAS. Des spécimens de mortier de tailles différentes : 1 cm, 2 cm, 4 cm et 10 cm (Figure 2-7), ont été hermétiquement enveloppés et placés dans une chambre humide à 95-99 % d'humidité et 40°C afin d'accélérer la réaction. Aucun déplacement d'humidité ni d'alcali n'a été autorisé pendant cette phase d'accélération.



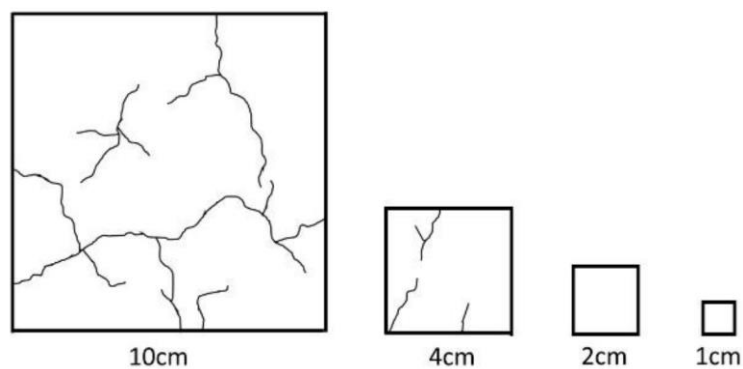
| W/C | W                    | C                    | S (reactive andesite) | Na <sub>2</sub> O <sub>eq</sub> |
|-----|----------------------|----------------------|-----------------------|---------------------------------|
| (%) | (kg/m <sup>3</sup> ) | (kg/m <sup>3</sup> ) | (kg/m <sup>3</sup> )  | (kg/m <sup>3</sup> )            |
| 50  | 296                  | 591                  | 1331                  | 11.61                           |

**Figure 2-7 : Spécimens de mortier de différentes tailles et formulation employée dans l'expérience menée (Takahashi et al., 2016).**

Les résultats d'expansions varient nettement en fonction de la taille des spécimens (Figure 2-8(a)), avec la plus grande expansion observée pour les spécimens de 10 cm, suivis par ceux de 4 cm. Les spécimens de 1 cm et 2 cm présentent des expansions plus faibles. Les fissures visibles, principalement multidirectionnelles, apparaissent davantage sur les plus grands spécimens, tandis qu'elles sont rares sur les plus petits (Figure 2-8 (b)). Des exsudations de gel sur les surfaces des échantillons sont observées indépendamment de l'apparition de fissures, pouvant influencer le degré d'expansion.



(a)



(b)

**Figure 2-8 : Résultats des essais de Takahashi et al. (2016) : (a) expansion libre moyenne et sa fourchette de variabilité pour des bétons affectés par la RAS de différentes tailles. (b) profils des fissures apparentes sur les spécimens de mortier.**

Les auteurs ont reproduit numériquement les tendances expérimentales des expansions RAS avec différents modèles, en réalisant une analyse de sensibilité sur la perméabilité. Une perméabilité extrêmement faible ( $10^{-23} \text{ m/s}$ ) montre une absence d'effet d'échelle, tandis qu'une perméabilité plus élevée ( $10^{-17} \text{ m/s}$ ) conduit à des expansions moins prononcées. Une perméabilité entre  $10^{-18} \text{ m/s}$  et  $10^{-19} \text{ m/s}$  reproduit les tendances expérimentales jusqu'à environ 80 jours, ensuite une perméabilité de  $10^{-19} \text{ m/s}$  offre une meilleure prédiction. Ceci suggère donc une dépendance temporelle des propriétés physiques des gels RAS.

## 2.2.4 Lessivage des alcalis

### Description du phénomène

Le phénomène de lessivage des alcalis a été signalé pour la première fois par Blanks et Meissner (1946) où les auteurs ont détecté une concentration croissante d'ions alcalis dans l'eau au fond des récipients dans lesquels les barres de mortier étaient stockées (Figure 2-9). Les auteurs ont relié ce phénomène à l'eau non chargée en ions alcalis, qui se condense à la surface des barres et s'écoule par la suite le long des barres vers le réservoir inférieur.

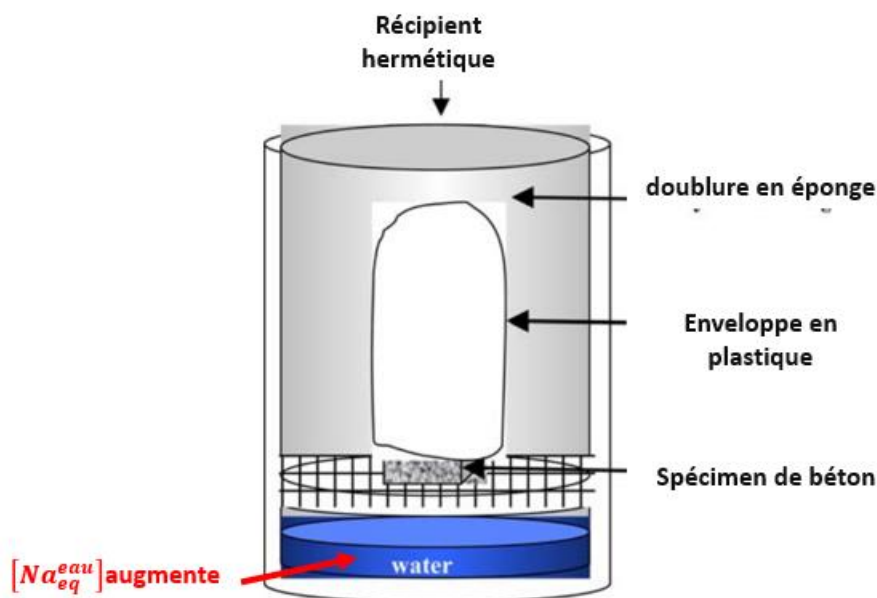


**Figure 2-9 : Stockage des prismes d'essai au-dessus de l'eau dans des conteneurs hermétiques, modifiée de Rivard et al. (2006)**

Le phénomène physique de lessivage des alcalis peut être décrit en deux étapes distinctes. Tout d'abord, le transport interne des ions alcalis jusqu'à la surface du spécimen, suivi de la libération externe de ces ions, également appelée *capacité de puits* ou « *sink capacity* ». ((Costa et al., 2017) et (Rivard et al., 2003)).

Le transport interne des ions alcalis dans le béton repose sur plusieurs éléments essentiels. Il repose en premier lieu sur la présence de l'eau interstitielle dans le spécimen, qui va assurer par diffusion le transport des ions alcalis. Ensuite, la distance que les ions alcalis parcourent dans la solution interstitielle du béton dépend de la taille de la section transversale du spécimen. Enfin, la force motrice du lessivage des ions alcalis est le gradient de concentration des alcalis entre la solution interstitielle du béton et l'eau "liquide" en surface du spécimen. Cette force motrice est aussi influencée par la "capacité de puits" du matériau et la concentration d'ions alcalis dans l'eau interstitielle du béton (Lindgard et al., 2013).

La *capacité de puits* ou « *sink capacity* » dépend de l'environnement de stockage. Plus il y a de l'eau entourant les prismes, plus les alcalis lessivés peuvent être absorbés par l'eau. Les conditions de stockage les plus extrêmes à cet égard sont les prismes totalement immergés dans de l'eau désionisée qui est remplacée par de l'eau neuve à chaque période de mesure d'expansion et de prise de masse du spécimen. À l'inverse, si seulement un nombre limité de gouttes d'eau se condensent à la surface de spécimens stockés sur des grilles au-dessus de l'eau, la capacité de puits pourrait être le facteur limitant pour le lessivage des alcalis.

Selon Costa et al. (2017), la condensation de la vapeur d'eau peut se produire même en l'absence de variations de température, celles-ci survenant lors de l'échauffement des spécimens à 38 °C ou lors de la phase de refroidissement des échantillons pour mesurer les expansions. Leurs constatations reposent sur les études expérimentales de Thomas et al. (2006) et de Lindgard et al. (2013), qui ont mesuré l'expansion et le lessivage sur des échantillons de tailles similaires (75 x 75 x 300 mm et 70 x 70 x 280 mm respectivement) avec des fréquences de mesures respectives de trois et sept fois par an. Malgré des différences de fréquence, les quantités lessivées étaient très proches, atteignant respectivement 35 % et 37 %.

Costa et al. (2017) mettent en relation la condensation de la vapeur d'eau avec la condensation capillaire, phénomène indépendant des variations de température. Ce processus est provoqué par le gradient de pression entre la pression d'équilibre dans les pores du béton et la pression de

l'environnement extérieur du spécimen : la pression dans le béton est en général inférieure à la pression dans l'environnement extérieur du spécimen dans le récipient hermétique. Ce gradient permet à la vapeur d'eau de s'écouler à travers les pores du béton et de se condenser. La relation inverse entre le rayon du pore et la pression de vapeur indique que la condensation capillaire prédomine dans la couche externe de l'échantillon, caractérisée par une porosité plus importante et une sensibilité accrue aux microfissures par rapport au cœur du béton.

Costa et al. (2017) ont établi en conséquence une corrélation entre le pourcentage de lessivage des alcalis et le ratio du volume du contenant hermétique de confinement sur le volume de spécimen de béton confiné (Figure 2-10). Cette corrélation repose sur les résultats expérimentaux de leurs propres études ainsi que d'autres études antérieures portant sur des essais d'expansion accélérés. Elle montre particulièrement que pour une taille donnée de spécimen de béton, plus le volume de vapeur d'eau dans le contenant est grand, plus le lessivage des alcalis est important.

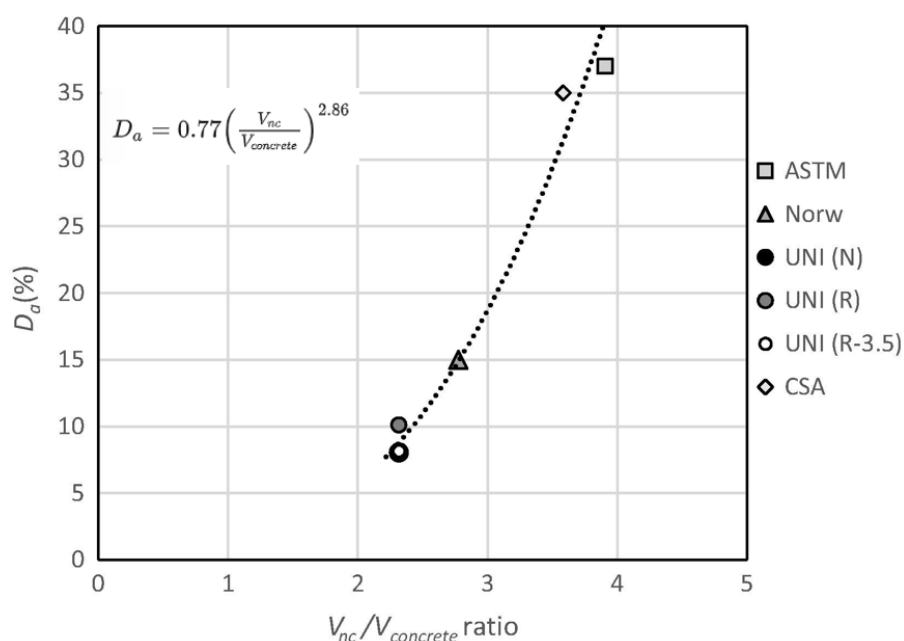


**Figure 2-10 : Corrélation entre la quantité des alcalis lessivés ( $D_a$  en %) et le ratio du volume du contenant hermétique sur volume de spécimen (Costa et al., 2017)**

D'après la même étude de Costa et al. (2017), la réactivité des granulats semble avoir un impact limité sur la quantité d'alcalis lessivés par rapport à son influence sur le taux d'expansion, comme illustré dans la Figure 2-11 (N: granulats non réactifs; R: granulats réactifs). En présence de granulats réactifs, le lessivage s'accélère vers la fin au-delà de 250 jours, pour rattraper le lessivage

sans granulats réactifs (courbes en trait continu de la Figure 2-11). Des études futures avec différents granulats réactifs et des ratios variables de volume du contenant sur volume de spécimen sont nécessaires pour confirmer cette constatation, car elle pourrait avoir des implications dans la modélisation du lessivage des alcalis, en considérant ou non la consommation des alcalis à l'échelle des granulats dans le béton.

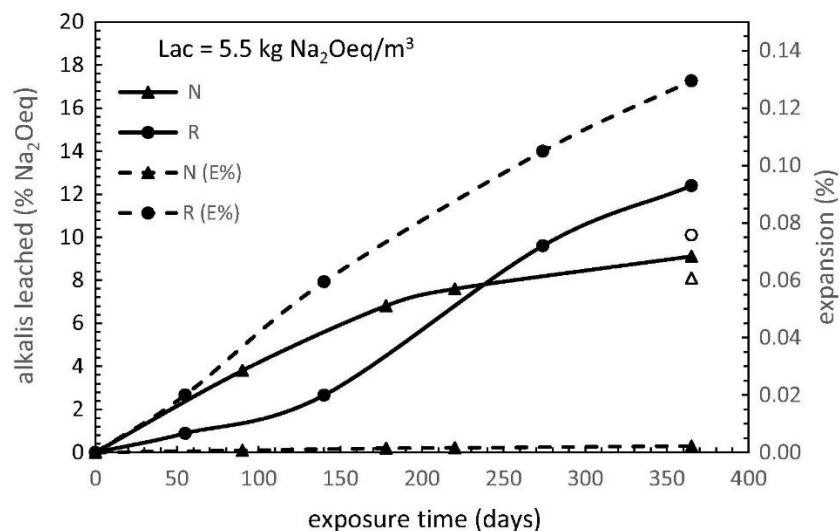


**Figure 2-11 : Évolution dans le temps du lessivage des alcalis (en trait continu) et de l'expansion du prisme (en trait pointillé) (Costa et al., 2017).**

### Effet du lessivage sur l'expansion de RAS et effet d'échelle

Le processus du lessivage des alcalis peut entraîner une diminution de l'expansion observée lors des essais de prismes de béton en laboratoire. Dans certaines situations, cela peut donner lieu à des conclusions erronées concernant la réactivité de granulats, ou en d'autres termes à un faux test négatif (Costa et al., 2017).

L'étude menée par Thomas et al. (2006) a mis en évidence l'ampleur de lessivage des alcalis dans le béton pour le test du prisme à béton (CPT), représentant environ 35 % des alcalis initialement présents (voir Figure 2-4 montrée précédemment). Cette recherche a donc remis en question l'applicabilité de l'essai CPT, largement utilisé dans les laboratoires, pour évaluer la réactivité alcaline des granulats ou encore l'efficacité des inhibiteurs de la RAS dans le béton. Thomas et al. (2006) ont conclu que la principale raison de l'effet d'échelle entravant la corrélation entre l'expansion observée dans les échantillons de laboratoire et la structure réelle sur le terrain est le lessivage significatif des alcalis des échantillons de laboratoire. Cette conclusion est soutenue par

des travaux antérieurs menées par Ideker et al. (2004) et Fournier et al. (2004), qui ont également mis en évidence l'impact préjudiciable du lessivage des alcalis sur les tests en laboratoire par rapport aux conditions sur le terrain.

Lindgård et al. (2013) ont mesuré l'expansion induite par la RAS et le lessivage des alcalis sur le test CPT. Ils ont trouvé que les éprouvettes de béton pouvaient perdre entre 3 et 20% d'alcalis au cours des 4 premières semaines et jusqu'à 50% au bout d'un an.

Sinno & Shehata (2019) ont mesuré l'expansion et le lessivage des alcalis sur des échantillons de béton composés de calcaire Spratt réactif et de granulats d'argilite grise de Sudbury en utilisant différentes tailles d'échantillons (à savoir des prismes standards de 75 x 75 x 285 mm et des cylindres de 100 x 300 mm). Les résultats ont révélé un lessivage des alcalis de plus de 25 % et 40 % après 1.5 ans pour les échantillons de Spratt et de Sudbury, respectivement. De plus, pour les deux granulats réactifs, l'augmentation de lessivage et la diminution de l'expansion ont été plus importantes pour les échantillons de plus petite section (prismes) que pour les échantillons de plus grande taille (cylindres).

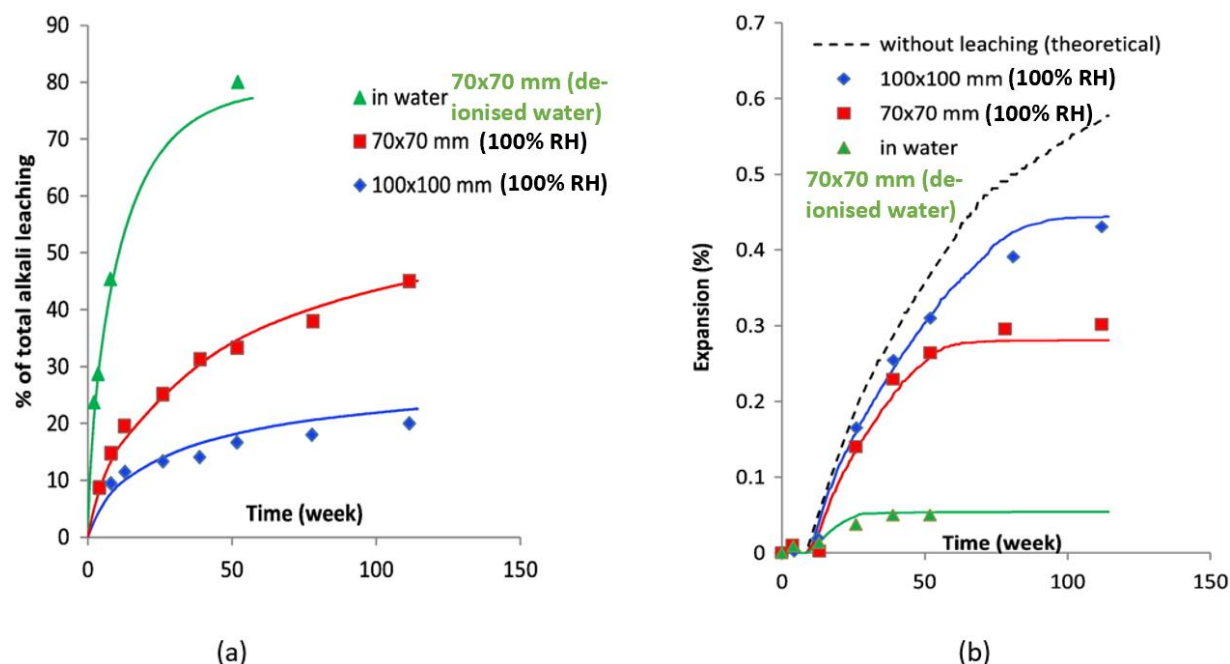


**Figure 2-12 : Influence de la taille de spécimen et des conditions hydriques sur l'expansion selon les résultats expérimentaux de Lindgård et al. (2013) : (a) % d'alcalis lessivés et (b) % d'expansion pour différentes sections de prisme (traits pointillés : expansion théorique sans tenir compte de l'effet de lessivage) (tiré de Multon & Sellier (2016))**

Thomas et al. (2006), ont rapporté que le processus de lessivage des alcalis serait sensiblement réduit pour les gros blocs par rapport aux échantillons plus petits, lorsqu'ils sont exposés à des conditions environnementales naturelles affirmant que la corrélation est limitée entre le comportement des matériaux observé en laboratoire et sur le terrain (Figure 2-4). Des études complémentaires menées par Lindgård et al. (2013) confirment cette tendance, leurs résultats indiquent que des prismes de plus grande section transversale, de  $100 \times 100 \text{ mm}^2$ , subissent moins de lessivage des alcalis et connaissent une expansion supérieure par rapport aux prismes de  $70 \times 70 \text{ mm}^2$  de section (voir Figure 2-12(a) et (b)). Ils ont également noté que, dans des conditions d'immersion complète dans l'eau dé-ionisée, le processus de lessivage des alcalis est plus significatif, tandis que l'expansion finale demeure négligeable (voir Figure 2-12(a) et (b) pour spécimen  $70 \times 70 \text{ mm}^2$  immergé dans l'eau).

### **2.2.5 Synthèse sur les origines de l'effet d'échelle sur l'expansion de la RAS**

Selon la revue détaillée aux sections précédentes, il est très probable que les phénomènes de lessivage des alcalis et de perméation de gel agissent simultanément et contribuent à l'effet d'échelle dans l'expansion de la RAS. Dans tous les cas, l'effet est attribuable aux effets de bord qui sont plus prédominants pour les spécimens de plus petite taille et négligeables pour les spécimens de grande taille. La présence de ces bords permet le lessivage des ions alcalins et la perméation de gel. Il est difficile de se prononcer sur l'importance relative des deux phénomènes. À notre connaissance, la seule étude qui a considéré séparément le phénomène de perméation de gel est celle de Takahashi et al. (2016). Cette étude n'a cependant pas évalué le lessivage seul. Il n'est pas sur aussi que le lessivage ne soit pas intervenu dans les essais de Takahashi et al. (2016) puisque le risque de condensation de vapeur d'eau dans les spécimens scellés n'est pas nul. Les auteurs eux-mêmes mentionnent ce risque. De plus, même si l'on suppose qu'il n'y a pas eu de lessivage, il est possible de faire les remarques suivantes en examinant les différentes expansions de la Figure 2-8(a) :

- Il ne semble pas y avoir de différence d'expansion entre les deux plus petits spécimens de 10 et 20 mm, qui sont d'ailleurs de taille trop petite pour des spécimens en béton. La différence d'expansion est relativement petite entre les deux plus gros spécimens de 100 mm et 40 mm, qui sont de taille plus conventionnelle comme spécimens de laboratoire.

- Les spécimens sont en mortier et ne sont pas 100% représentatif de mélanges de béton avec granulats.
- L'expansion a augmenté de l'ordre de 50 % en passant de la taille 40 mm à 100 mm (Figure 2-8(a)). C'est à peu près cette même augmentation (45 %) qui a eu lieu pour le cas des essais de Lindgard et al. (2013) (Figure 2-12 (b)) en considérant le lessivage, mais pour un passage de 70 mm à 100 mm et pour une géométrie prismatique et non pas cubique (le cube présente plus d'effets de bords que le prisme pour une même section).
- La modélisation numérique de la perméation de gel par Takahashi et al. (2016) ne donne pas réellement une validation du modèle numérique, ni une confirmation du phénomène de perméation. Elle paraît plus comme un exercice de calibration qui montre d'ailleurs la grande sensibilité au coefficient de perméabilité de gel utilisé dans l'analyse poro-mécanique. La mise en pratique et la généralisation de cette méthodologie est vraiment difficile.

Pour les raisons évoquées plus haut, il a été décidé dans ce travail de se concentrer uniquement sur le phénomène de lessivage et plus précisément d'assumer que l'effet d'échelle dans l'expansion est principalement causé par le lessivage.

## **2.3 Considération du lessivage**

### **2.3.1 Corrélation entre l'expansion de laboratoire et celle de la structure**

Pour un mélange de béton donné, il pourrait y avoir une courbe d'expansion qui soit indépendante des dimensions de l'échantillon et des conditions d'exposition. Cette courbe correspondrait par exemple à un élément structural de taille infiniment grande, de telle sorte que le lessivage des alcalis serait négligeable (Figure 2-3). Il serait plus pertinent alors, pour des éléments massifs de béton (par exemple, avec des dimensions nominales excédant 1 m), d'utiliser cette courbe idéalisée, plutôt que la courbe d'expansion issue d'un spécimen de laboratoire.

Quelques rares tentatives ont été rapportées dans la littérature afin de filtrer l'effet d'échelle chimique et de suggérer à partir de courbes d'expansion de laboratoire, une courbe idéalisée sans effet d'échelle (ou sans lessivage si l'on suppose que le lessivage est la source principale de l'effet d'échelle).

Le premier exemple est l'étude menée par Multon & Sellier (2016), et qui a permis d'obtenir numériquement la courbe d'expansion idéalisée sans lessivage, en calant le modèle numérique par rapport aux essais expérimentaux de Lindgard et al. (2013). La modélisation numérique est basée sur une modélisation multi-échelles qui sera détaillée ci-après. En bloquant artificiellement le processus de lessivage, à l'aide d'une condition aux limites au niveau modèle numérique, les chercheurs obtiennent une courbe d'expansion idéalisée sans effets d'échelle (voir courbe en pointillé dans la Figure 2-12(b)).

Le second exemple est le modèle semi-empirique développé par Nguyen et al. (2022), proposé pour prédire l'expansion induite par la RAS du béton en apportant des corrections aux expansions mesurées en laboratoire. Ces deux approches sont décrites en détail ci-après.

### 2.3.2 Modélisation numérique du lessivage des alcalis

Une approche multi-échelles a été développée par Sellier & Multon (2016) pour la modélisation numérique de l'effet d'échelle chimique de l'expansion de la RAS, induit par le lessivage. Cette approche repose sur l'étude des mécanismes chimiques en évaluant le bilan des alcalis à deux niveaux : au niveau local des granulats et au niveau global de l'éprouvette de béton. Ce bilan prend en considération, d'une part, la diffusion des alcalis au sein des granulats et leur fixation dans le gel, et d'autre part, il intègre la diffusion et le déplacement des alcalis à l'intérieur et à l'extérieur du spécimen de l'essai (Figure 2-13).

A l'échelle du granulat, le transport des ions hydroxyles et des alcalis vers la silice réactive commence de la surface extérieure vers le cœur des granulats, conformément à une équation de diffusion simplifiée prenant en compte la porosité du granulat ( $p_{agg}$ ), son degré de saturation ( $S_r$ ), la concentration en alcalis ( $[Na^{eq}]_{agg}$ ) et la consommation de ces derniers par le gel RAS, représentée par un terme source ( $S_{Na}$ ).

L'équation est la suivante:

$$p_{agg}S_r \frac{d[Na^{eq}]_{agg}}{dt} = -div(\overline{\Phi_{Na_{agg}}}) + S_{Na} \quad 2-1$$

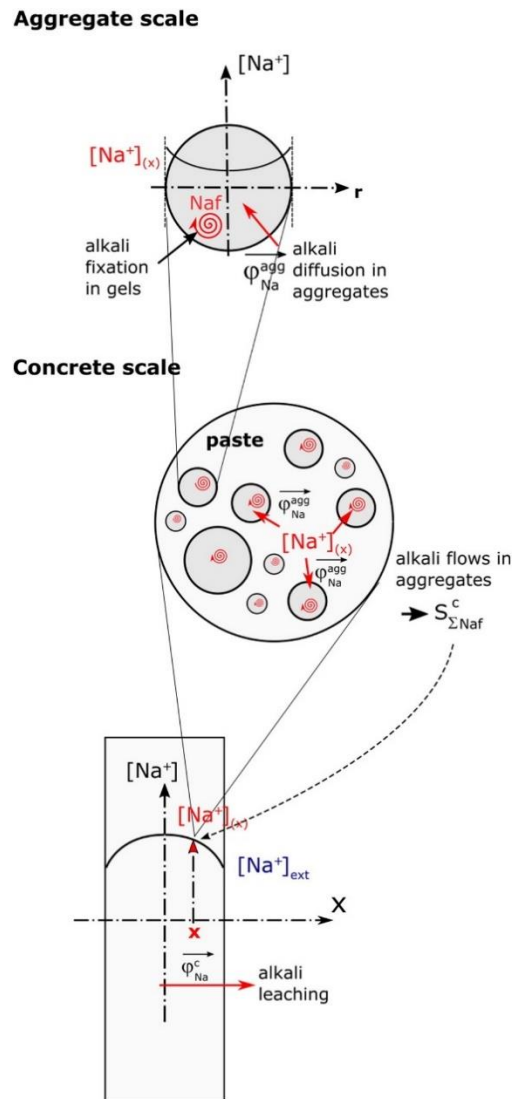


**Figure 2-13 : Bilan massique des alcalis à l'échelle des granulats (avec diffusion et fixation dans les gels RAS) et, à l'échelle de l'échantillon du béton (diffusion dans l'échantillon) (Multon & Sellier, 2016)**

Où  $t$  est le temps et  $\overline{\phi_{Na_{agg}}}$  le flux d'alcalis entrants dans les particules de granulats, qui dépend du coefficient de diffusion des alcalis dans le granulat  $D_{agg}$  par la relation :

$$\overline{\phi_{Na_{agg}}} = -D_{agg} \cdot \overline{grad}([Na^{eq}]_{agg}) \quad 2-2$$

La vitesse à laquelle les ions hydroxydes attaquent la silice réactive, menant à la formation du gel de RAS, est supposée proportionnelle à sa concentration. La fixation des alcalis par le gel se fait supposément en même temps que cette attaque. Ce phénomène peut être représenté par une relation

linéaire reliant le taux de fixation des alcalis ( $Na_f$ ) et la différence de concentration des alcalis par rapport à une valeur de seuil minimal requis pour l'attaque de la silice  $C_{thr}$  :

$$\frac{\partial Na_f}{\partial t} = \frac{1}{\tau_{RAS}} \langle [Na^{eq}] - C_{thr} \rangle \quad 2-3$$

Avec  $\tau_{RAS}$  étant le temps caractéristique de fixation des alcalis par la formation de gels.

La quantité de gel formée est supposée égale à la quantité de silice attaquée par les ions  $OH^-$  ou à la quantité d'alcalis fixés par le gel de RAS. Comme le rapport molaire entre la silice ( $SiO_2$ ) et alcali ( $Na_2O$ ) présent dans les gels dans des conditions de laboratoire est d'environ 5. Le nombre de moles de gel RAS produites par la réaction est supposé être égal au nombre de moles de silice attaquées par les alcalis et peut donc être déduit de l'équation suivante :

$$\frac{\partial n_{gel}^{mol}}{\partial t} = \frac{1}{\tau_{RAS}} \times \frac{5}{2} \langle [Na^{eq}] - C_{thr} \rangle \quad 2-4$$

En somme, la modélisation du transport des alcalis dans le granulat est nécessaire pour reproduire la dépendance de la cinétique de la RAS de la taille des granulats à réactivité élevée et intermédiaire. Le terme de consommation dépendant de la concentration alcaline est nécessaire pour représenter la fixation alcaline et reproduire la cinétique de la RAS des granulats à faible réactivité et des mélanges de granulats réactifs de différentes tailles (en particulier l'impact des particules réactives les plus fines pour les granulats à réactivité intermédiaire).

À l'échelle du spécimen, une diffusion des alcalis vers l'extérieur est provoquée par le gradient de concentration des alcalis entre la solution interstitielle du béton et l'eau "liquide" en surface du spécimen dû à la condensation de vapeur d'eau en surface externe des spécimens. Multon et al. (2016) suggèrent l'équation (2-5) pour modéliser la diffusion des alcalis à l'échelle du spécimen :

$$p_c S_r \frac{d[Na^{eq}]_c}{dt} = -div(\overline{\Phi_{Na}^c}) + S_{\Sigma Na_f}^c \quad 2-5$$

$$S_{\Sigma Na_f}^c = \Sigma_{agg} N_{agg} \cdot 4\pi R_{agg}^2 \cdot \Phi_{Na}^{agg}(r = R_{agg}) \quad 2-6$$

Où  $p_c$  est la porosité du béton,  $S_r$  le degré de saturation,  $[Na^{eq}]_c$  la concentration d'alcalis dans la solution interstitielle du béton,  $\overline{\phi_{Na}^c}$  le flux d'alcalis dans l'éprouvette où le coefficient de diffusion des alcalis dans le béton est de l'ordre de  $10^{-12} \text{ m}^2/\text{s}$  et  $S_{\Sigma Na_f}^c$  le terme source représentant la somme des alcalis pénétrant dans les particules de granulats à chaque pas de temps, déterminé par le calcul à l'échelle locale des granulats (2-1). Ce dernier terme permet le couplage entre l'échelle des granulats et l'échelle du spécimen.

En synthèse, les précédentes équations permettent d'évaluer, dans un premier temps, le nombre de moles de gels RAS provoquant l'expansion dans le béton en simulant la diffusion des espèces chimiques au niveau des granulats ((2-1) et (2-4)). En cas de forte teneur en alcalins dans le système (tel une conservation en solution alcaline), cette quantité est essentiellement fonction de la quantité de silice réactive disponible. En second lieu, la diffusion vers l'extérieur des alcalins dans le spécimen ((2-5) et Figure 2-14), influence significativement l'expansion du béton. Le couplage des phénomènes de diffusion à ces deux échelles, à l'aide d'outils de modélisation, permet d'estimer un gonflement théorique représentatif de la réalité du cœur d'une structure massive.

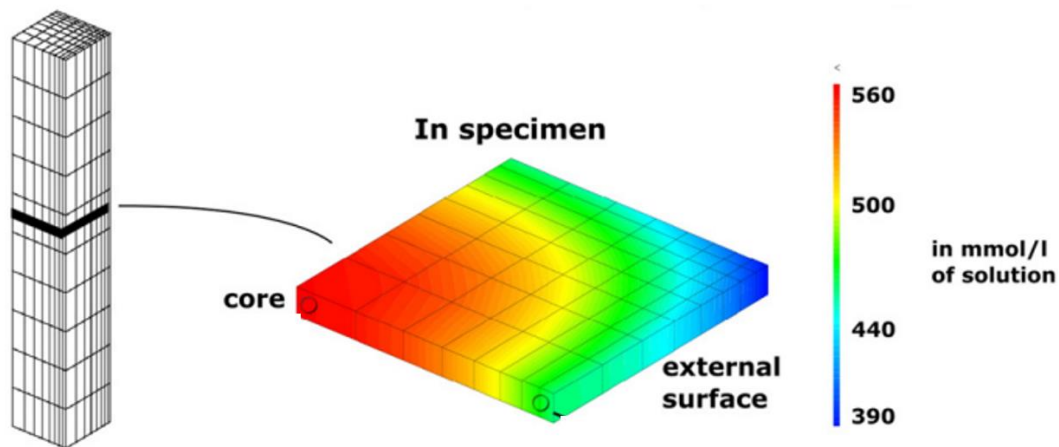


**Figure 2-14 : Distribution des alcalis dans un échantillon maintenu en condition de lessivage (Multon & Sellier, 2016)**

Une des lacunes du modèle de Multon & Sellier (2016) est la non-considération du phénomène de de condensation capillaire. Les auteurs appliquent sans justification une condition de convection aux surfaces exposées (par analogie thermique), en ajustant la concentration à l'infini et le coefficient de convection sur la base des résultats expérimentaux de lessivage, rendant leur

approche semi-empirique. En outre, dans leur article, ils ne fournissent pas de précision sur la concentration initiale d'alcalis employée. Certes, la teneur en alcalis équivalente en  $kg/m^3$  est connue, mais la conversion en concentration molaire ( $mol/m^3$ ) n'est pas évidente et nécessite certaines hypothèses. Les caractéristiques du degré de saturation et de la porosité du béton n'ont pas non plus été fournies, et il est très probable que le spécimen ait été assumé complètement saturé (à la fois les granulats et le ciment).

La thèse de doctorat de Morenon (2017) met en relief le rôle important que joue l'étude du lessivage dans les essais liés à une réaction de gonflement interne distincte et fournit plus de détail sur l'estimation du champ de degré de saturation et son influence sur le lessivage. Dans le contexte de la réaction sulfatique interne (RSI) ou formation d'ettringite retardée qui est un processus dans le béton où la réaction chimique de l'ettringite se produit après la prise initiale du matériau, conduisant potentiellement à des problèmes de gonflement et de fissuration, le lessivage des alcalis joue un rôle important, en particulier pour les bétons dopés employés en laboratoire. Le départ des alcalis favorise la précipitation de l'ettringite, nécessitant un calcul préalable du lessivage dans les structures modélisées afin de reproduire fidèlement la cinétique de gonflement. Le lessivage des alcalis est modélisé par une loi de diffusion (2-7) dont le coefficient de diffusion dépend du degré de saturation ( $S_r$ ) selon la loi (2-8) de Bažant & Najjar (1972).

$$\frac{d[Na^{eq}]_c}{dt} = \text{div} \left( D_c(S_r) \overrightarrow{\text{grad}}([Na^{eq}]_c) \right) \quad 2-7$$

$$D_c(S_r) = D_0 \frac{1}{1 + a(1 - S_r)^b} \quad 2-8$$

Pour obtenir la variation du champ du degré de saturation  $S_r$ , un modèle de diffusion hydrique (2-9) est employé. Le coefficient de diffusion hydrique intègre les transferts par perméation et sa dépendance au degré de saturation liquide est fonction de la teneur en eau  $W$ , selon le modèle (2-10) de Mensi et al. (1988).

$$\frac{dW}{dt} = \text{div} \left( D(W) \overrightarrow{\text{grad}}(W) \right) \quad 2-9$$

$$D(W) = a \cdot e^{b \cdot W} \quad 2-10$$

Morenon (2017) a entrepris la modélisation du lessivage des alcalis sur des spécimens en expansion RSI immergés dans l'eau, s'inscrivant dans le cadre des travaux expérimentaux menés par Martin (2010). Les expériences ont été réalisées avec des cylindres de dimensions  $\emptyset 11 \times 22$  cm. Pour la modélisation numérique, une section représentant 1/8 du cylindre a été utilisée, avec trois plans de symétrie. La concentration initiale en alcalis était de  $0,9 \text{ mol/L}$ . Les conditions aux limites ont été définies de manière à maintenir la concentration à  $0 \text{ mol/L}$  sur les faces extérieures du cylindre, avec un flux nul sur les faces de symétrie. Ainsi, un changement clair dans les conditions aux limites apparaît ici, par rapport à la condition convective utilisée dans les travaux de Multon & Sellier (2016). Cette nouvelle condition aux limites d'imposer une concentration nulle nous paraît plus réaliste pour la modélisation du lessivage et c'est elle qui va être considérée dans ce projet.

### 2.3.3 Considération semi-empirique du lessivage

Les travaux de Ben Ftima et al. (2023) et Nguyen et al. (2022) sont des exemples de travaux où l'effet du lessivage a été considéré d'une façon semi-empirique.

Dans l'approche de Ben Ftima et al. (2023), les auteurs supposent que le lessivage agit sur le temps caractéristique  $\tau_c$  et l'expansion asymptotique  $\varepsilon_\infty$  de l'expansion du laboratoire modélisée par la cinétique du modèle de Larive donné par l'équation suivante :

$$\varepsilon(t, T) = \frac{1 - e^{-\frac{t}{\tau_c(T)}}}{1 + e^{-\frac{t - \tau_L(T)}{\tau_c(T)}}} \varepsilon_\infty \quad 2-11$$

Les auteurs assument que le lessivage n'influence pas le temps de latence  $\tau_L$  et suggèrent une relation semi-empirique mettant en relation les caractéristiques cinétiques de la structure exempte d'effet d'échelle avec celles du laboratoire, pour des conditions thermique et hydrique de référence:

$$\tau_c(S_r, T) = \alpha_{\tau_c} \cdot \tau_{c_{lab}}(S_r, T) \quad 2-12$$

$$\varepsilon_\infty(S_r, T) = \alpha_{\varepsilon_\infty} \cdot \varepsilon_{\infty_{lab}}(S_r, T) \quad 2-13$$

Les facteurs d'échelle  $\alpha_{\tau_c}$  et  $\alpha_{\varepsilon_\infty}$  sont déterminés par calage avec les données d'instrumentation et en utilisant les résultats d'un essai d'expansion résiduelle.

L'approche de Nguyen et al. (2022) modifie aussi les paramètres de Larive de manière à permettre la modélisation de l'expansion induite par la RAS sur les structures avec différentes teneurs en alcalis et un lessivage minime ou nul.

$$\varepsilon^{\infty} = \varepsilon^{\infty,0}(T_0, RH_0, A_0) k_{\varepsilon,RH} k_{\varepsilon,A} \quad 2-14$$

$$\tau_C = \tau_C^0(T_0, RH_0, A_0) \cdot k_{C,T} \cdot \frac{1}{k_{C,LA}} \quad 2-15$$

$$\tau_L = \tau_L^0(T_0, RH_0, A_0) \cdot k_{L,T} \cdot \frac{1}{k_{L,LA}} \quad 2-16$$

Où  $RH$ ,  $T$ ,  $A$  et  $LA$  désignent l'humidité relative (%), la température ( $^{\circ}C$ ), la teneur en alcalis du béton ( $kg/m^3$ ) et la quantité d'alcalis lessivé à 1 an (%), respectivement.  $\varepsilon^{\infty,0}$ ,  $\tau_C^0$  et  $\tau_L^0$  sont des paramètres du modèle de référence, qui sont l'expansion ultime et les temps caractéristique et de latence de RAS, obtenus à partir des conditions d'essai en laboratoire, c'est-à-dire à  $T = 38^{\circ}C$ , 100 % d'humidité relative et charge alcalis  $A = A_0$  (prise égale à  $5,25 kg/m^3$  dans le CPT).

$k_{\varepsilon,RH}$  et  $k_{\varepsilon,A}$  tiennent compte respectivement de l'effet de l'humidité relative et de la teneur en alcalis sur l'expansion ultime.  $k_{C,T}$  et  $k_{C,LA}$  tiennent compte des effets sur le temps caractéristique (et  $k_{L,T}$  et  $k_{L,LA}$  sur le temps de latence) de la température et du lessivage des alcalis dans les échantillons de laboratoire.

Pour un mélange de béton composé de granulats réactifs et ayant une teneur initiale en alcalis de  $A_0$  ( $kg/m^3$ ), il est nécessaire de prévoir une charge en alcalis supérieure  $A$  ( $kg/m^3$ ) afin de compenser le lessivage et reproduire le scénario idéal "sans lessivage" de la charge initiale en alcalis  $A_0$ , d'après l'équation suivante :

$$A = \frac{A_0}{1 - LA} \quad 2-17$$

Comme l'indiquent l'équation (2-17), l'utilisation de cette teneur supérieure en alcalis  $A$  permet de conserver la même quantité initiale d'alcalis  $A_0$  dans le mélange de béton testé au bout d'un an.

Les coefficients  $k_{\varepsilon,A}$  et  $k_{\varepsilon,A_0}$  dépendant de la teneur en alcalis sont dérivés de la charge en alcalis de  $A$  et  $A_0$ , respectivement. La différence fractionnelle entre  $k_{\varepsilon,A}$  et  $k_{\varepsilon,A_0}$  est employée pour accroître l'expansion induite des échantillons de CPT "lessivés" afin de représenter leur courbe d'expansion idéale sans lessivage.

$$\varepsilon_{\text{sans lessivage}}^{\infty} = \varepsilon_{\text{avec lessivage}}^{\infty} \frac{k_{\varepsilon,A}}{k_{\varepsilon,A_0}} \quad 2-18$$

$\varepsilon_{\text{sans lessivage}}^{\infty}$  est l'expansion ultime du scénario "sans lessivage" et  $\varepsilon_{\text{avec lessivage}}^{\infty}$  est l'expansion ultime obtenue à partir du meilleur ajustement de la courbe d'expansion mesurée en laboratoire (c.-à-d. CPT).

La dépendance des constantes de temps ( $\tau_c$  et  $\tau_L$ ) par rapport au lessivage des alcalis est représentée par les coefficients de lessivage alcali  $k_{C,LA}$  et  $k_{L,LA}$  dans les équations semi-empiriques suivantes :

$$k_{C,LA} = -1.05 \cdot LA + 1 \quad 2-19$$

$$k_{L,LA} = -0.7 \cdot LA + 1 \quad 2-20$$

Nguyen et al. (2022) ont validé leur approche avec les résultats de Lindgård et al. (2013). Ils ont calculé l'expansion idéale "sans lessivage" pour trois séries d'essais : série 1 : 100 x 100 x 450 mm, série 2 : 70 x 70 x 280 mm et série 3 : prismes 70 x 70 x 280 mm immergés dans de l'eau déionisée avec remplacement régulier (Figure 2-15 : Courbes d'expansion idéales : résultats du modèle de Nhu Nguyen et al. (2022) comparés aux résultats de la modélisation multi-échelle de Multon & Sellier (2016), approches 1,2,3 respectivement pour les séries 1,2, et 3). Ils ont aussi comparé avec la courbe idéalisée obtenue de l'approche numérique de Multon & Sellier (2016).

Les auteurs ont aussi tenté de prédire l'expansion des blocs de béton de Spratt et Sudbury, aux sites situés à Ottawa (projet par le centre de recherche CANMET) et au Texas (projet par l'Université du Texas) dans des conditions environnementales différentes. Selon les prédictions à la Figure 2-16, les blocs de l'UT (en bleu) pourraient gonfler jusqu'à 0,55 % en 5 ans, tandis que ceux entreposés à CANMET (en rouge) pourraient gonfler d'environ 0,05 % en 5 ans.

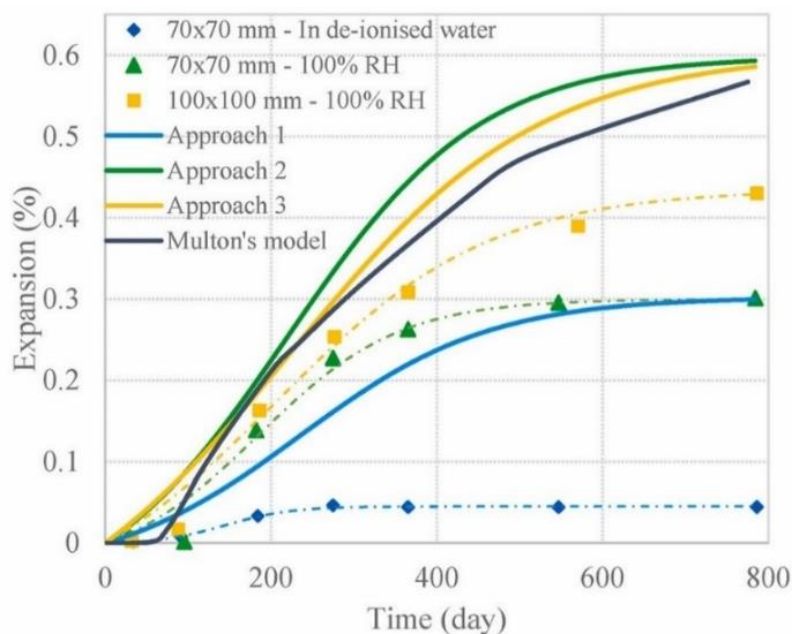


**Figure 2-15 : Courbes d'expansion idéales : résultats du modèle de Nhu Nguyen et al. (2022) comparés aux résultats de la modélisation multi-échelle de Multon & Sellier (2016)**

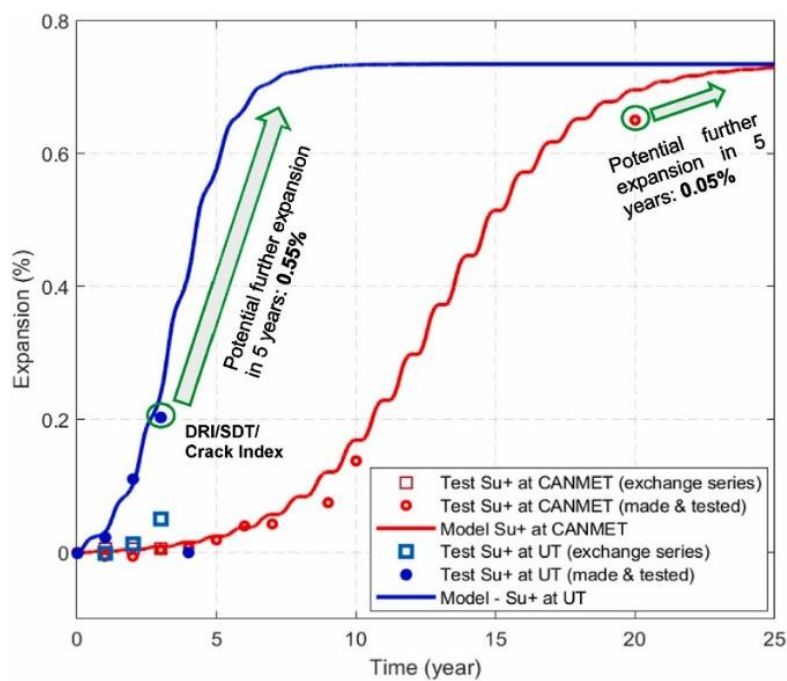


**Figure 2-16 : Prédiction de l'expansion future potentielle à l'aide du modèle proposé par Nhu Nguyen et al. (2022)**

### 2.3.4 Synthèse

Les modèles semi-empiriques de prédiction sont connus pour être dépendants de la qualité des données utilisées et des conditions expérimentales des essais retenus pour la dérivation des relations semi-empiriques. Leur capacité prédictive est donc assez limitée, et il n'est pas possible d'étendre leur applicabilité à toutes les configurations. Le calage aux données d'instrumentation de l'ouvrage dans le cas de l'approche proposée par Ben Ftima et al. (2023) limite aussi la robustesse de la méthode d'après les principes bien établis de vérification et validation (Thacker et al. ,2004)..

Dans le cas de l'approche numérique multi-échelles suggérée par Multon & Sellier (2016), le calage des conditions aux limites du modèle numérique (condition de convection au bord du spécimen) pour représenter l'expansion d'un spécimen est aussi critiquable. À notre connaissance, aucune approche numérique existante n'a modélisé le phénomène de condensation capillaire aux bords du spécimen et l'effet de capacité de puits bien exprimé par la Figure 2-10 trouvée par les chercheurs Costa et al. (2017). Il est clair que la condition aux limites utilisée dans la modélisation de Multon & Sellier (2016) ne pourra pas reproduire les résultats de cette figure.

Dans ce travail, on se propose d'utiliser une approche numérique inspirée de l'approche multi-échelles suggérée par Multon & Sellier (2016) et avec une meilleure considération de la condition aux limites aux bords à l'échelle du spécimen, et sans calage sur le résultat expérimental.

Les analyses chimiques représentent une procédure essentielle dans le domaine de diagnostic et de prédiction de durabilité des structures en béton (Cabral, et al. ,2023). Au fil du temps, les structures en béton subissent différents types de dégradations d'origines internes (ex : RAS) ou externes (induites par l'environnement), telle la pénétration de sulfates et de chlorures (Millar et al., 2019). En conséquence, la quantification et le suivi des substances chimiques dans le béton permet d'évaluer la qualité du matériau et la durabilité des structures (Mateo et al., 2019).

Ceci a suscité l'intérêt de développer de nouvelles techniques d'analyse chimique, semi-destructives ou non destructives, simples à utiliser et capables d'identifier rapidement de nombreux éléments, avec une bonne résolution spatiale (Senesi et al., 2021).

L'analyse par spectroscopie par claquage induit par laser plus connue sous l'acronyme LIBS en anglais pour « *Laser-Induced Breakdown Spectroscopy* » est une de ces techniques émergentes qui

sera utilisée dans ce projet dont le principal objectif par rapport aux techniques analytiques conventionnelle est sa capacité à fournir une analyse en temps réel avec une préparation minimale ou nulle de l'échantillon, et sous atmosphère ambiante (Rifai et al. ,2018). Elle est détaillée dans la section suivante pour le contexte spécifique de diagnostic des matériaux de construction.

## 2.4 Spectroscopie LIBS (Laser-Induced Breakdown Spectroscopy)

### 2.4.1 Principe de mesure LIBS

Le LIBS est une technique non destructive qui utilise des ondes électromagnétiques sous la forme d'un laser pulsé pour identifier les éléments chimiques présents. Une configuration LIBS typique se compose d'une source laser, d'un prisme réfléchissant, d'une lentille de focalisation et d'un spectromètre attaché à une unité de calcul (Figure 2-17).

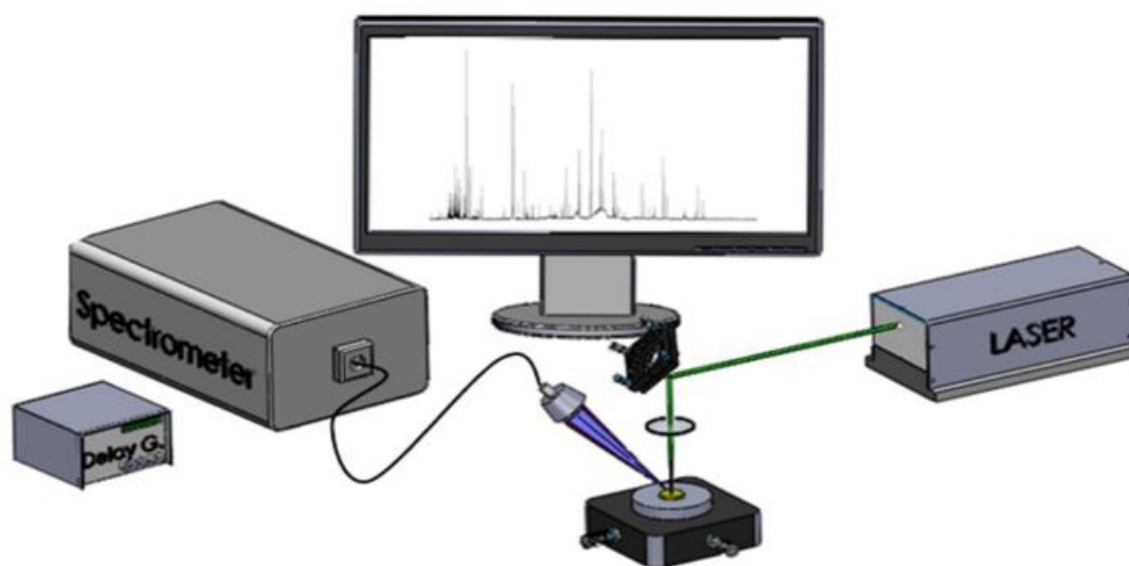


**Figure 2-17 : Configuration de mesure LIBS (Cabral et al., 2023)**

L'impulsion laser permet d'ablater une faible quantité de matériau de l'échantillon, généralement de l'ordre d'une fraction de microgramme, voire moins, et à générer un plasma à partir de la matière évaporée. Ce plasma a une courte durée de vie, généralement quelques microsecondes, et il atteint des températures aux environs de 10 000 K, permettant l'excitation de la plupart des éléments présents. La lumière émise par ce plasma, qui porte la signature élémentaire de l'échantillon, est recueillie par des éléments optiques (lentilles, miroirs, fibres optiques), puis analysée à l'aide d'un spectromètre optique (Figure 2-18). Les résultats de ces mesures se présentent sous la forme de

spectres, qui correspondent à l'intensité lumineuse en fonction de la longueur d'onde pour des éléments chimiques spécifiques.

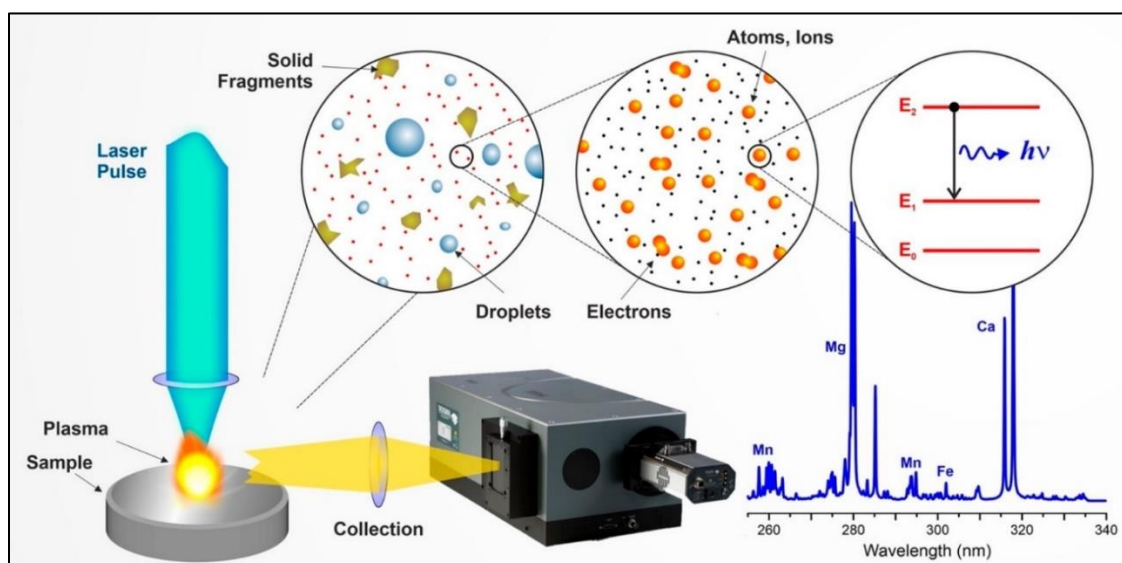


**Figure 2-18 : Principe physique de la technique LIBS (Gardette et al., 2023)**

Le principe de base de l'imagerie LIBS implique la formation d'une série de plasmas à différents endroits de l'échantillon d'intérêt. Chaque spectre obtenu est ensuite analysé pour identifier les lignes d'émission émanant des éléments d'intérêt, permettant de construire les images élémentaires correspondantes. Généralement, l'échantillon est placé sur des dispositifs XY motorisés, permettant ainsi des séquences automatisées. La résolution latérale, c'est-à-dire la taille des déplacements entre les tirs laser successifs, détermine la résolution de l'image finale. En pratique, la résolution minimale qui peut être atteinte est dictée par la taille du cratère résultant du laser. Il est important de noter que dans la plupart des cas, il n'y a pas de chevauchement entre les tirs laser successifs, car cela pourrait altérer de manière considérable la pertinence de la mesure. Dans leur synthèse des travaux sur la LIBS, Rifai et al. (2022) et Gardette et al. (2023) ont conjointement rapporté une plage de résolution spatiale étendue, allant de 10 à 1000  $\mu\text{m}$ .

Le LIBS convient à l'analyse d'échantillons solides, liquides, et gazeux et offre une grande précision dans la cartographie des éléments. Grâce à sa fréquence de mesure élevée, atteignant jusqu'à 1 000 Hz, il permet d'acquérir de nombreux points de mesure en quelques minutes seulement. De plus, cette technique peut détecter simultanément plusieurs éléments en un seul point de mesure (Günther et al., 2022).

## 2.4.2 La plateforme LIBS CORIOSITY EMISSION

Les analyses par la technique LIBS dans notre étude ont été effectuées à l'aide de l'analyseur LIBS CORIOSITY-G3, développé par EMISSION Inc. (Montréal, QC, Canada), un instrument LIBS hyperspectral de pointe soutenue par l'intelligence artificielle. Cette combinaison offre une solution pour une minéralogie quantitative automatisée dédiée à la géologie, représentant ainsi une avancée significative pour des analyses scientifiques pointues (Figure 2-19).

Son innovation majeure réside dans sa capacité à fournir une cartographie simultanée de haute résolution et rapide de plusieurs éléments. En effet, il peut acquérir et traiter 1 000 spectres par seconde, une performance techniquement inatteignable avec l'instrumentation LIBS traditionnelle dont la vitesse de balayage se situe généralement entre 1 et 100 Hz. Cette capacité améliorée est soutenue par l'intelligence artificielle intégrée à l'appareil, optimisant ainsi la rapidité et la précision des analyses (Rifai et al., 2018).

L'analyseur CORIOSITY-G3 trouve son application prépondérante dans le domaine minier, où la cartographie des métaux précieux tels que l'or et l'argent à la surface de la roche est cruciale. De plus, il permet l'identification efficace de minéralogies spécifiques telles que la pyrite, la chalcoppyrite, la sphalérite et l'électrum, fournissant des informations essentielles pour les travaux de prospection et d'exploitation minière. Cette technologie ouvre ainsi de nouvelles perspectives pour la recherche géologique et l'exploration des ressources minérales (Figure 2-20).

Cet instrument commercial est entièrement automatisé, intégrant l'électronique, la source laser, le spectromètre, et la chambre d'ablation de classe 1 dans un seul boîtier. L'instrument LIBS est également équipé d'un dispositif de focalisation automatique permettant de positionner l'échantillon dans le plan focal (« *minimum spot size* »). De plus, une caméra optique à haute résolution offre à l'utilisateur une vue d'ensemble de la zone d'échantillonnage pour optimiser le positionnement précis de l'échantillon.

L'émission de plasma générée est recueillie par des lentilles achromatiques afin de garantir un décalage chromatique minimal sur l'ensemble du spectre, améliorant ainsi la sensibilité d'un passe-bande large. Le signal optique est ensuite résolu spectralement à l'aide d'un spectromètre optique couvrant une plage de 220 à 930 nm.

Le spectromètre est équipé d'un détecteur à métal-oxyde-semiconducteur complémentaire (CMOS : « *Complementary Metal-Oxide-Semiconductor* »), contrôlé par des composants électroniques exclusifs. L'électronique personnalisée unique permet une lecture de la caméra à 1000 images complètes par seconde.



Figure 2-19 : Dispositif instrumental LIBS CORIOSITY (Elemission, 2023)

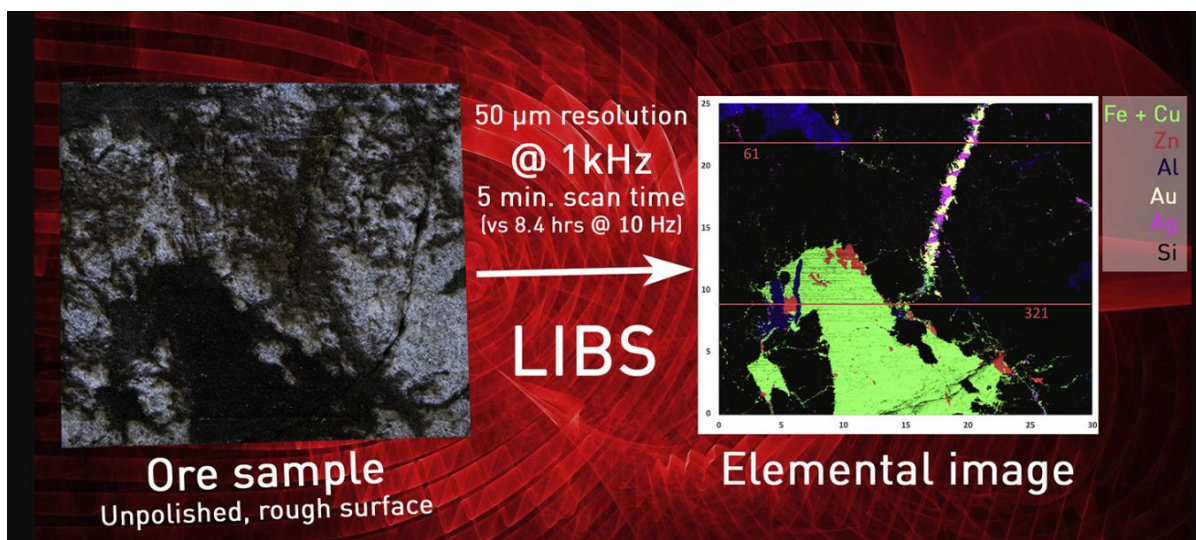


Figure 2-20 : Avantages de l'instrument LIBS CORIOSITY : Cartographie multi élémentaire LIBS haute résolution pour l'or, avec balayage rapide comparé à la méthode traditionnelle (5 min par surface de 40 x 40 mm à 1 kHz vs 8,4 h à 10 Hz) (Rifai et al., 2018)

L'analyseur LIBS CORIOSITY peut effectuer des balayages sur une surface maximale de  $40 \times 40 \text{ mm}^2$ . De plus, la chambre d'ablation offre la possibilité d'analyser consécutivement un échantillon plus grand si nécessaire, en utilisant une plate-forme linéaire mobile automatisée qui peut accueillir des échantillons allant jusqu'à  $200 \times 100 \text{ mm}^2$ .

Couplé à cet instrument, le logiciel ELEDIT prend les données brutes provenant de l'instrument LIBS CORIOSITY. Il normalise les intensités des signaux des éléments pour les représenter sur une échelle commune, divise chaque pixel en sous-pixels associés à des couleurs en fonction de la concentration des éléments, et permet une représentation visuelle de la distribution des éléments sur la surface de l'échantillon.

### **2.4.3 Applications dans le domaine du génie civil**

Le LIBS a été utilisé pour la première fois pour l'analyse et le diagnostic des matériaux de construction au cours de la dernière décennie du 20<sup>ème</sup> siècle. Les applications dans ce domaine comprennent la détermination de la distribution du sel dans les matériaux de construction dans le cadre de la RAS (alcalis), l'étude de la pénétration dans le processus de carbonatation, et surtout dans l'analyse des sulfates et des chlorures dans le béton ((Eto et al., 2014), (Šavija et al., 2014), (Labutin et al., 2014), (Mateo et al., 2019) et (Mateo et al., 2023)).

Une détérioration grave due à la RAS ne devient visible que lorsque les réactions d'expansion et la formation de fissures qui en résulte aux niveaux nano et micro s'accumulent pour entraîner des déformations aux niveaux méso et macro. Il est essentiel d'examiner en détail ces mécanismes microstructuraux pour comprendre le processus de dommage lors de l'implication de la RAS. La spectroscopie par claquage induit par laser (LIBS) se révèle être un moyen efficace pour mener à bien cette tâche (Weise, et al., 2022).

À la connaissance de l'auteur, les seules études qui ont été menées pour étudier la RAS dans le béton par le biais du LIBS ont été réalisées dans le contexte des chaussées routières soumises à des conditions climatiques sévères et à l'utilisation de sel de déverglage contenant des alcalis, ce qui accélère le développement de la RAS. Les études qui ont été faits dans ce sens ont voulu quantifier la pénétration des ions alcalis dans les chaussées et leurs impact et contribution à accélérer le développement de la RAS.

Dans cette perspective, Weise et al. (2022) ont réalisé une inspection visuelle et sélectionné des points d'échantillonnage sur la chaussée en béton. Ils ont étudié la pénétration du sel de déglacage en utilisant la technique LIBS et des tests de chimie humide (« *wet chemical analyses* »). La Figure 2-21, illustre l'emplacement des points d'échantillonnage, ainsi que les zones des spécimens extraits soumis à l'analyse LIBS d'une part et à l'analyse chimique d'autre part, permettant une comparaison des deux approches en ce qui concerne le développement et la progression de la RAS dans le béton.

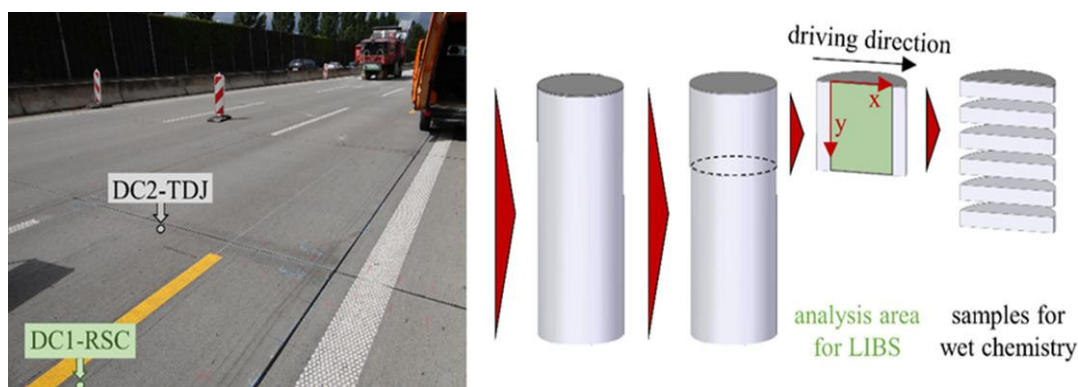


**Figure 2-21 : Emplacements d'échantillonnage des carottes de forage (à gauche) et plan de coupe (à droite) (Weise et al., 2022)**

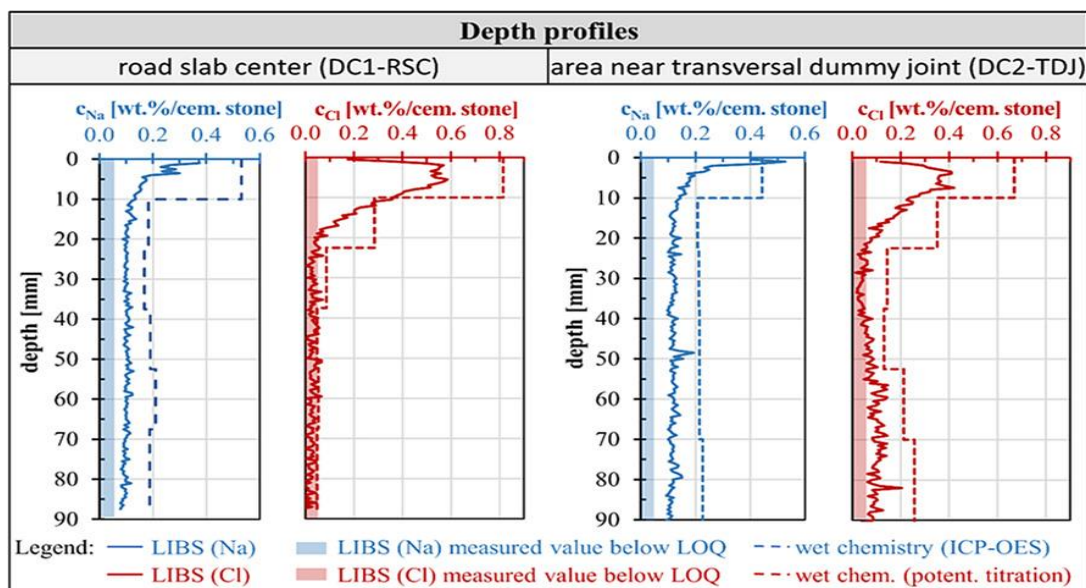


**Figure 2-22 : Représentation comparative des teneurs en sodium et en chlorure par rapport à la profondeur pour les carottes de forage prélevées au centre et au bord de la dalle de chaussée en béton (Weise et al., 2022)**

Les mesures des échantillons de carottes présentées par l'auteur dans la Figure 2-22 démontrent une corrélation qualitative satisfaisante entre les profils de sodium et de chlorure obtenus par le LIBS et les résultats de la chimie humide. De plus, le LIBS offre l'avantage d'une résolution en profondeur plus élevée, renforçant ainsi sa pertinence pour de telles analyses.

Dans une démarche similaire, Hong et al. (2014) ont utilisé des images élémentaires LIBS pour examiner la distribution 3D du chlorure, comparant ainsi leurs résultats avec ceux de l'analyse radar de pénétration au sol (« *Ground Penetrating Radar (GPR)* »), une méthode géophysique plus conventionnelle. Les chercheurs ont observé une bonne corrélation entre les deux techniques.

Le potentiel de LIBS à discrétiser les limites de phase à l'intérieur de mortiers et de bétons hétérogènes a été évalué par Gottlieb et al. (2017). Un exemple des images rapportées est présenté à la Figure 2-23. Les chercheurs ont développé un algorithme de post-traitement des résultats d'imagerie LIBS permettant le déphasage des deux composants du béton (granulats et pâtes de ciment), optimisant ainsi les résultats fournis par l'imagerie LIBS en se basant sur la distribution spatiale de l'élément *Ca* dans le béton.

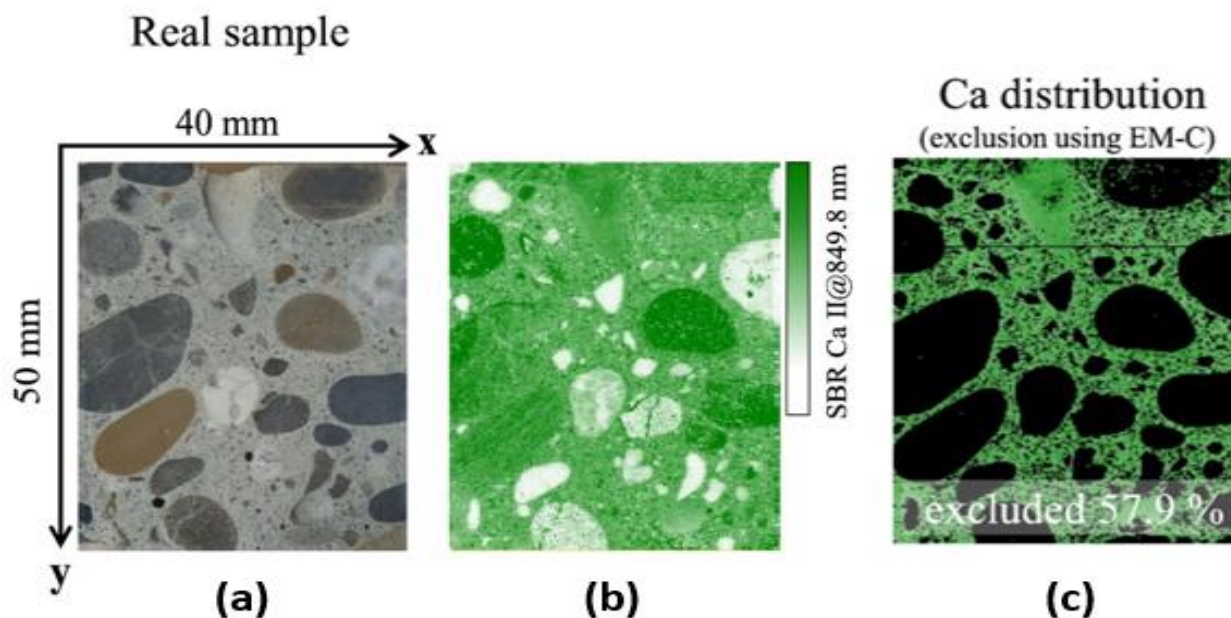


**Figure 2-23 : (a) Coupe d'échantillon de béton d'une surface de 50 × 40mm, (b) cartographie LIBS pour l'élément *Ca* et (c) Distributions de calcium (*Ca*) uniquement dans la pâte de ciment (Gottlieb et al., 2017)**

Dans le même sens d'étude de dégradation des matériaux de construction, une étude novatrice réalisée par les auteurs Mateo et al. (2023) a eu pour objectif de démontrer l'efficacité du LIBS dans l'analyse des propriétés de transport ionique. Cette étude constitue la première contribution de la littérature à ce domaine spécifique, se concentrant principalement sur l'analyse de la diffusion des ions chlorure et de la corrosion dans des environnements salés tels que le mortier et le béton. La Figure 2-24(a) illustre les échantillons de mortier et de béton immergés dans une solution saturée de sel ( $NaCl$ ).

Au cours de cette recherche, les échantillons de mortier ont été exposés à des ions chlorure pendant différentes durées (3, 9 et 30 mois), et un échantillon de béton a été immergé dans une solution saturée de sel pendant 60 mois. L'objectif était d'étudier la pénétration de ces ions à travers le matériau en utilisant la spectroscopie LIBS. La Figure 2-24(b) présente succinctement le principe de la spectroscopie LIBS et la cartographie LIBS illustrant le profil de concentration des ions  $Cl^-$  dans le béton exposé à une solution saturée de sel.

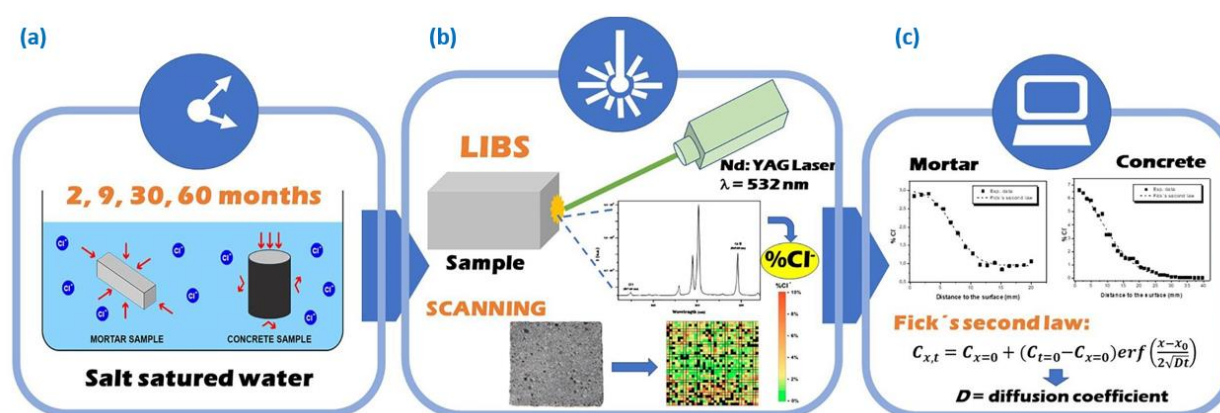


**Figure 2-24 : (a) Échantillons immergés dans l'eau saturée de sel ( $NaCl$ ), (b) Cartographie LIBS de  $Cl^-$  résultant du scan des échantillons et (c) Profil de concentration expérimentale (LIBS) confirmant la loi de Fick (Mateo et al., 2023)**

Les résultats de cette étude ont mis en évidence que la diffusion des ions chlorure dans le mortier et le béton suivait la deuxième loi de Fick, comme illustré dans la Figure 2-24(c). En utilisant cette loi, les chercheurs ont calculé le coefficient de diffusion apparent ( $D$ ) pour les trois échantillons de mortier et de béton, obtenant des valeurs d'environ  $10^{-13} \text{ m}^2/\text{s}$ , en concordance avec d'autres études expérimentales similaires dans la littérature. Cette cohérence renforce la validité des résultats obtenus.

L'application du LIBS pour déterminer les paramètres de transport hydrique dans le béton offre une alternative non destructive, soulignant sa rapidité et sa capacité à fournir une qualité visuelle élevée dans l'analyse. Cette approche présente des avantages significatifs en termes d'efficacité et de préservation de l'intégrité des échantillons, tout en fournissant des informations pertinentes pour la compréhension des processus de transport dans les matériaux de construction.

## **CHAPITRE 3 DÉVELOPPEMENTS ANALYTIQUES ET NUMÉRIQUES POUR LA MODÉLISATION DU LESSIVAGE DES ALCALIS**

### **3.1 Introduction**

Ce chapitre vise à proposer une méthodologie de modélisation multi-échelles (granulat-béton) et multi-physiques (chimique-hydrique) du lessivage des alcalis dans les conditions d'expansion de béton accélérées. Les calculs se font au niveau des deux échelles : celle des granulats et celle du béton. Nous commençons par résoudre analytiquement et numériquement l'équation de bilan des alcalis à l'échelle des granulats afin de quantifier leur consommation due à la RAS. Ensuite, nous couplons cette échelle avec celle du béton.

### **3.2 Équations constitutives et hypothèses**

Le lessivage des alcalis est modélisé par une approche chimique multi-échelles, caractérisée par un bilan massique des alcalis à deux niveaux :

- À l'échelle du granulat, l'équation du bilan massique des alcalis prend en compte leur diffusion et leur fixation dans les gels RAS présents dans les granulats (Figure 3-1).
- À l'échelle du béton, le bilan massique considère la diffusion alcaline dans l'échantillon par rapport aux conditions aux limites et aux conditions hydriques, tandis que la consommation d'alcalis dans l'échantillon est évaluée à partir de l'échelle précédente (Figure 3-2).



### 3.2.1 Échelle du granulat

Si l'on examine un granulat réactif inclus dans une matrice de ciment, noté  $g$  et de contour noté  $\partial g$ , il est possible d'exprimer la quantité d'ions alcalins équivalents ayant pénétré dans le granulat à un moment  $t$  donné par l'équation suivante :

$$Q_{Na\ eq.}^{agg}(t) = \int_0^t \int_{\partial g} \overline{\phi_{Na\ eq.}^{agg}}(M, t) \cdot \bar{n} dA dt \quad 3-1$$

Où  $Na^{eq}$  est défini comme étant une sommation partielle des ions sodium et potassium ( $[Na^{eq}] = [Na] + 0.658[K]$ ) et  $\overline{\phi_{Na\ eq.}^{agg}}(M, t)$  est le flux instantané des alcalis traversant la surface du granulat  $g$  en un point quelconque  $M$  du granulat.

$$\overline{\phi_{Na\ eq.}^{agg}}(M, t) = K_{Na}([Na^{eq}]_M^+ - [Na^{eq}]_M^-) \cdot \bar{n} \quad 3-2$$

Les ions alcalins à l'extérieur du granulat se diffusent progressivement dans le granulat et réagissent avec la silice dissoute à l'intérieur pour former des gels RAS.  $[Na^{eq}]_M^+$  et  $[Na^{eq}]_M^-$  doivent valider l'équation locale de conservation de l'élément  $Na^{eq}$  (3-3) en un point quelconque  $M$  du granulat. L'équation du bilan massique pour la RAS qui se produit dans un granulat peut être représentée comme suit :

$$\frac{\partial}{\partial t}(p_{agg} S_r [Na^{eq}]_M) = -div[-D_{agg} \cdot \overline{grad}([Na^{eq}]_M)] + S_{Na}^{agg} \quad 3-3$$

Où :

- $p_{agg}$  : la porosité du granulat se situant entre 1 % et 2 % sur la base des recherches menées par Maekawa et al. (2008);
- $S_r$  : le degré de saturation dans le granulat (%);
- $[Na^{eq}]_M$  : la concentration d'alcalis dans une position quelconque  $M$  du granulat ( $mol/m^3$ );
- $D_{agg}$  : le coefficient de diffusion ( $m^2/s$ );

- $K_{Na}$  : coefficient de convection surfacique des alcalis ( $mol/(m^2 \cdot s)$ ).
- $S_{Na}^{agg}$  : un terme source volumique ( $mol/(m^3 \cdot s)$ ).

Ce dernier terme source représente le taux de fixation des alcalis, qui est exprimé sous forme de cinétique linéaire en fonction d'une constante de vitesse de réaction  $k$  et de  $C_{thr}$  le « seuil » de concentration alcaline nécessaire au déclenchement de la RAS (Poyet et al. (2009) et Takahashi et al. (2021)):

$$S_{Na}^{agg} = -k \cdot ([Na^{eq}]_M - C_{thr}) \quad 3-4$$

La valeur seuil pour l'alcali donnée dans la littérature est 0,325 mol/L à 20 °C, 0,275 mol/L à 38 °C et 0,222 mol/L à 55 °C, selon les recherches de Kim et al. (2015).

La connaissance de  $Q_{Na}^g(t)$  demande celle de  $\overline{\phi_{Na}^{agg}}(M, t)$  qui requiert, à son tour, la détermination de  $[Na^{eq}]_M$  en tout point du granulat. Cependant, étant donné l'hétérogénéité du milieu, la concentration  $[Na^{eq}]_M$  se présente comme un champ aléatoire difficile à évaluer.

Pour résoudre ce problème, Poyet (2003) opte pour une approche d'homogénéisation en supposant que les granulats réactifs sont sphériques, isotropes, homogènes, et que la réaction se produit de manière isotrope et uniforme. En conséquence, il y a une symétrie sphérique à l'intérieur et à l'extérieur des granulats réactifs. Les régions de concentrations égales sont des sphères concentriques avec une surface  $A(r) = 4\pi r^2$  de centre  $O_g$  et de rayon  $r$  (voir Figure 3-3)

Ainsi, il n'est plus nécessaire d'utiliser la concentration locale réelle  $[Na^{eq}]_M$ , mais la concentration homogénéisée  $[Na^{eq}]_{agg}$  définie à la distance  $r$  du centre du granulat :

$$[Na^{eq}]_{agg} = \frac{1}{4\pi r^2} \int_{A(r)} [Na^{eq}]_M(r) dA \quad 3-5$$

Donc, en repère de coordonnées sphériques, on aura :

$$[Na^{eq}]_{agg}(r, \theta, \varphi, t) = [Na^{eq}]_{agg}(r, t) \quad 3-6$$

Suite à l'homogénéisation, l'équation de bilan local (3-3) devient :

$$\frac{\partial (p_{agg} \cdot S_r \cdot [Na^{eq}]_{agg}(r, t))}{\partial t} = -div \left( D_{agg} \cdot \overrightarrow{grad} ([Na^{eq}]_{agg}(r, t)) \right) - k \cdot ([Na^{eq}]_{agg}(r, t) - C_{thr}) \quad 3-7$$

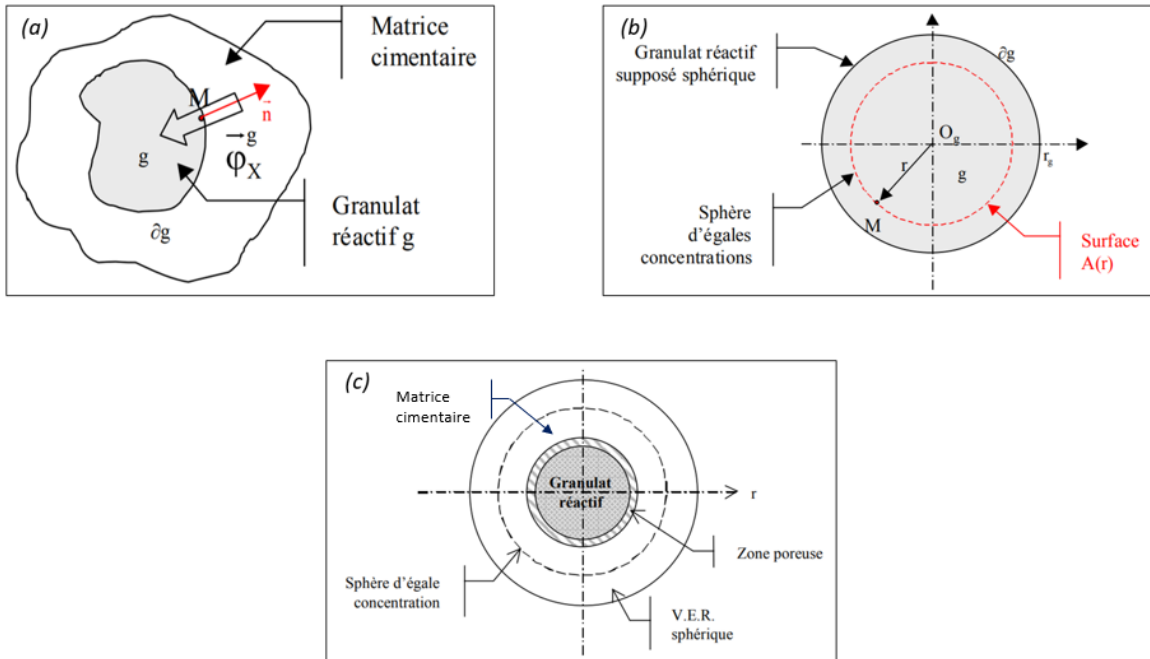


**Figure 3-3 : Hypothèses simplificatrices dans le granulat: (a) granulat réactif au sein d'une matrice cimentaire, (b) granulat réactif supposé sphérique, (c) exemple de V.E.R. pour une seule classe granulaire réactive (modifiée de Poyet (2003))**

Nous pouvons donc nous ramener à l'étude d'un volume élémentaire (V.E.R) du matériau réel, comme illustré à la Figure 3-3. D'après la relation (3-7), l'équation de bilan à l'échelle du granulat devient :

$$\frac{\partial (p_{agg} \cdot S_r \cdot [Na^{eq}]_{agg})}{\partial t} = \frac{1}{r^2} \frac{d}{dr} \left( D_{agg} r^2 \frac{d[Na^{eq}]_{agg}}{dr} \right) - k \cdot ([Na^{eq}]_{agg} - C_{thr}) \quad 3-8$$

Les conditions aux limites suivantes sont définies pour l'équation (3-8) :

- La concentration d'alcalis à la surface du granulat est la même que la concentration d'alcalis dans la pâte de ciment autour du granulat ( $[Na^{eq}]_{agg}(r = R_{agg}, t) = [Na^{eq}]_c$ ).
- Le gradient de concentration ( $\frac{d[Na^{eq}]_{agg}}{dr}(r = 0, t) = 0$ ) est nul au centre du granulat.

### 3.2.2 Échelle du spécimen

À l'échelle du spécimen, une diffusion des alcalis vers l'extérieur par gradient de concentration est favorisée par les conditions de température et d'humidité relative élevées souvent recommandés dans les méthodes d'essai d'expansion normalisées. Certaines normes suggèrent de mettre les spécimens sous conditions de température et d'humidité élevées, soit à environ 95% d'humidité relative et une température de 38°C.

Tel que vu dans le chapitre de revue de littérature, deux approches différentes ont été utilisées dans la littérature pour la diffusion des alcalis à l'échelle du spécimen. La première approche, exposée par Multon & Sellier (2016), considère la diffusion globale des alcalis avec un coefficient de diffusion constant, tout en prenant en compte la consommation des alcalis par les granulats dans le contexte de la réaction de la RAS. La deuxième approche, proposée par Morenon (2017) dans sa modélisation de la réaction sulfatique interne (RSI), modélise le lessivage des alcalis en tenant compte d'un coefficient de diffusion  $D_C$  dépendant du degré de saturation ( $S_r$ ), conformément à la loi de Bažant & Najjar (1972), décrite par les équations (3-9) à (3-11) ci-dessous.

$$p_c S_r \frac{d[Na^{eq}]_c}{dt} = -div(\overline{\Phi_{Na}^c}) + S_{\Sigma Na_f}^c \quad 3-9$$

$$\overline{\Phi_{Na}^c} = -D_C(S_r) grad([Na^{eq}]_c) \quad 3-10$$

$$D_C(S_r) = D_0 \frac{1}{1 + a(1 - S_r)^b} \quad 3-11$$

Où :

- $p_c$  : la porosité du béton (%);
- $S_r$  : le degré de saturation (%);
- $[Na^{eq}]_c$  : la concentration d'alcalis dans la solution interstitielle du béton ( $mol/m^3$ );
- $D_0$  : le coefficient de diffusion pour un degré de saturation de 1.0 ( $m^2/s$ );
- $S_{\Sigma Na_f}^c$  : le terme source, en  $mol/(m^3 \cdot s)$ , représentant la somme des alcalis pénétrant dans les particules de granulats à chaque pas de temps déterminé par le calcul local. Ce terme s'exprime tel que :

$$V_{\text{béton}} \cdot S_{\Sigma Na_f}^c = \sum_{agg} N_{agg} \cdot 4\pi R_{agg}^2 \cdot D_{agg} \frac{\partial [Na^{eq}]_{agg}}{\partial r} (r = R_{agg}, t) \quad 3-12$$

Le calibrage des paramètres  $a$ ,  $b$  et  $D_0$  de l'équation (3-11) a été réalisé à l'aide d'éprouvettes immergées dans l'eau ( $a = 625$ ,  $b = 4$ ), conformément à l'étude de Martin et al. (2013). Une analyse des alcalis dans la solution a été effectuée à différentes échéances pour permettre une calibration précise. L'effet de la variation du coefficient de diffusion des alcalis en fonction du degré de saturation pour les paramètres de calibration utilisés par Morenon (2017) est illustré à la Figure 3-4. Pour sa part, le terme source  $S_{\Sigma Na_f}^c$ , présent dans l'équation (3-9) et défini par l'équation (3-12), permet le couplage des phénomènes entre l'échelle du granulat et celle de l'éprouvette, tel qu'indiqué sur Figure 3-2. La Figure 3-4 montre entre autres la faible variation du coefficient de diffusion pour des valeurs élevées du degré de saturation qui représenteraient les conditions hydriques des éléments d'ouvrages hydrauliques ou des spécimens dans les contenants hermétiques pour des conditions des essais CPT. Il est donc envisageable pour ces cas particuliers d'utiliser un coefficient de diffusion constant dans l'analyse chimique et qui correspondrait au coefficient moyen calculé pour les valeurs possibles de degré de saturation.

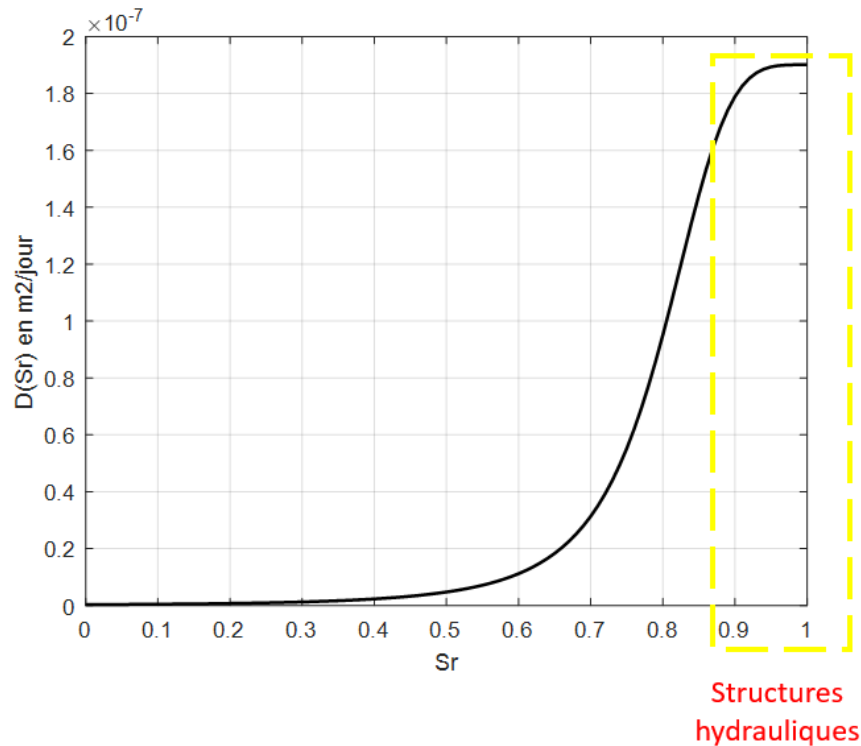


**Figure 3-4 : Variation du coefficient de diffusion  $D_c$  en fonction de  $S_r$  (Bažant et Najjar, 1972)**

### 3.2.3 Méthodologie générale de modélisation

Une nouvelle méthodologie a été développée dans l'environnement Abaqus pour la modélisation numérique du lessivage des alcalis (Figure 3-5). Cette approche utilise les modules d'analyses poro-mécaniques et thermiques disponibles dans le logiciel Abaqus-Standard.

Tout d'abord, une analyse hydrique transitoire est effectuée avec le module poro-mécanique disponible dans Abaqus-Standard. La méthodologie détaillée dans Ben Ftima et al. (2023) est utilisée, avec quelques ajustements concernant l'introduction de la déformation volumétrique induite par le gonflement, tel qu'il sera discuté ultérieurement. Ensuite, ce champ de degré de saturation est importé vers l'analyse chimique. En effet, dans l'équation (3-10) précédente, le coefficient de diffusion des alcalis ( $D_c$ ) dépend du degré de saturation, conformément à la méthodologie de Morenon (2017) et aux travaux de Bažant & Najjar (1972).

Il n'y a pas de module spécifique au calcul chimique dans Abaqus, mais l'équation de diffusion (3-9) établie précédemment peut être résolue par une analogie à l'équation de transfert thermique.

Le module d'analyse transitoire thermique disponible dans Abaqus-Standard est donc utilisé (Figure 3-5). Le champ thermique  $T(x, y, z, t)$  issu de cette analyse représente donc par définition le champ de la concentration d'alcalis dans la solution interstitielle du béton  $[Na^{eq}]_c(x, y, z, t)$  exprimé en  $mol/L$ .

En parallèle, le terme source de consommation négative (terme  $S_{\Sigma Na_f}^c$  dans l'équation (3-9)) est intégré dans Abaqus via une sous-routine DFLUX programmée en langage Fortran. Telle que sera détaillée dans la section suivante, cette sous-routine procède à un calcul de la consommation d'alcalis à l'échelle de tous granulats.

En utilisant cette méthodologie, il est possible de simuler de manière réaliste le mouvement des ions alcalins dans le spécimen et d'estimer par la suite la proportion qui en sort et, ainsi, le lessivage.

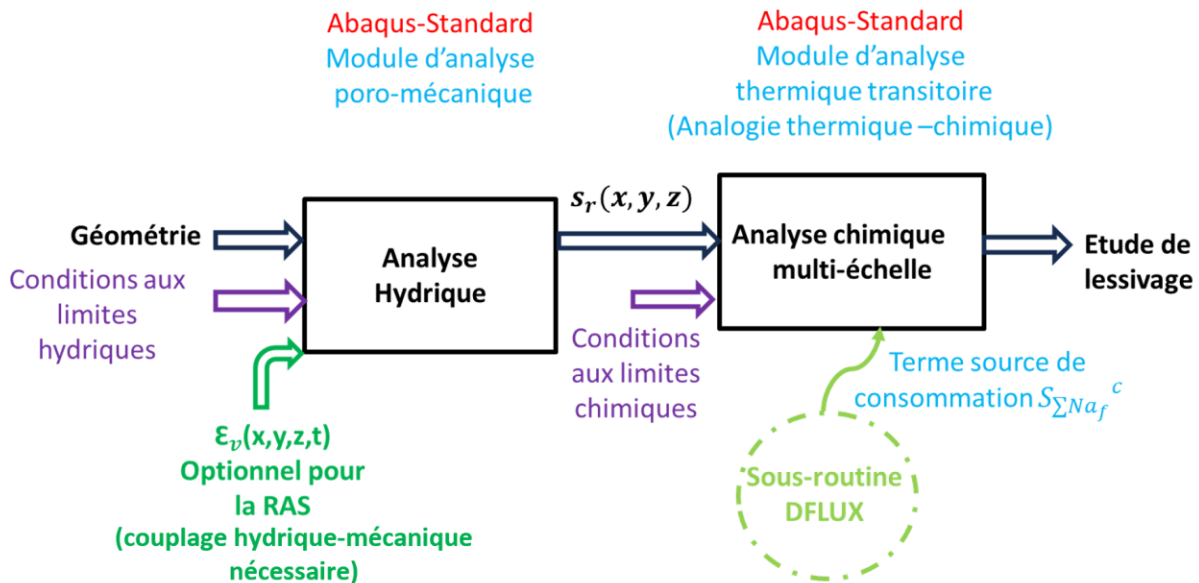


**Figure 3-5 : Méthodologie développée pour modéliser le lessivage des alcalis**

### 3.3 Calcul du terme source de consommation – résolution numérique par méthode des différences finies

La méthodologie décrite précédemment repose sur la programmation d'une sous-routine (DFLUX) pour le calcul du terme source  $S_{\Sigma Na_f}^c$  (3-12) à chaque incrément de temps, et qui représente la quantité d'alcalis consommés par l'ensemble des granulats du spécimen. Par analogie avec les analyses thermiques transitoires, ce terme source représenterait la chaleur d'hydratation générée par unité de temps et par unité de volume de béton (en  $J/(m^3 \cdot s)$ ). Il y a deux façons possibles d'estimer ce terme. Idéalement, il serait plus intéressant de développer une formule analytique théorique qui serait la solution exacte de l'équation différentielle (3-8). À notre connaissance, une telle solution analytique n'a jamais été développée dans la littérature. Nous suggérons dans l'annexe A une tentative de résolution analytique qui, malheureusement et faute de temps, n'a pas pu être exploitée pour les applications finales. La deuxième façon retenue pour estimer le terme source est l'utilisation de la méthode des différences finies pour la résolution numérique de l'équation différentielle (3-8), basée sur la discrétisation spatiale du granulat sphérique pour chaque granulat. Cette méthode implique donc une complexité additionnelle en termes d'analyse et rallongerait le temps de calcul.

#### 3.3.1 Discrétisation des équations

En analyse numérique, la méthode des différences finies est une technique courante de recherche de solutions approchées d'équations aux dérivées partielles. Elle consiste à discrétiser l'espace (dans notre cas  $r_i \in [0, R]$  pour un granulat donné de rayon  $R$ ) et le temps ( $t_j \in [0, T]$  où  $T$  est le temps total de l'analyse) pour approximer les dérivées partielles de la fonction inconnue  $C(r, t)$ , et résoudre par la suite un système d'équations qui permet d'estimer ponctuellement la fonction aux points du grillage ( $r_i, t_j$ ) (voir Figure 3-6). On aura à résoudre le système suivant :

$$\frac{\partial C}{\partial t} = D \frac{\partial^2 C}{\partial r^2} + \frac{2D}{r} \frac{\partial C}{\partial r} - k(C - C_{thr}) \quad 3-13$$

Il s'agit de l'équation de diffusion en dimension 1 connue sous le nom de la deuxième loi de Fick, exemple typique des problèmes paraboliques modélisant la diffusion d'une substance dans un milieu combiné avec un terme de consommation négative. Les paramètres  $k$ ,  $D$  et  $C_{thr}$  de

l'équation (3-13) sont définis similairement aux paramètres qui se retrouvent dans les équations (3-3) & (3-4) si on pose  $D = \frac{D_{agg}}{p_{agg} \cdot S_r}$  et  $k = \frac{k_{agg}}{p_{agg} \cdot S_r}$ . Les conditions aux limites dans ce cas sont

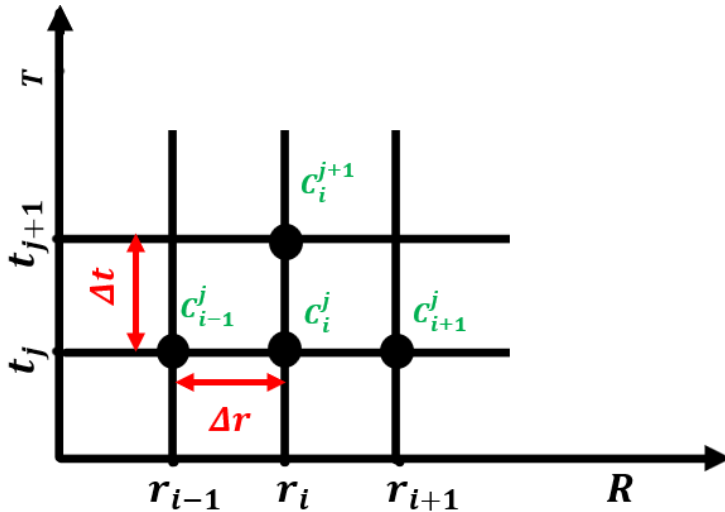
$$C(r = R, t) = [Na^{eq}]_{agg} \text{ et } \frac{\partial C}{\partial t}(r = 0, t) = 0$$

Nous désignons la solution exacte par  $C(r, t)$  et son approximation  $C_i^j$  à  $(r_i, t_j)$ . On définit  $\Delta r$  et  $\Delta t$  comme étant les incréments dans les directions  $r$  et  $t$ , ainsi que  $N_r$  et  $N_t$  le nombre de discrétisations dans les directions  $r$  et  $t$ , de façon que  $r_i$  et  $t_j$  puisse être décrit tel que :

$$\begin{cases} r_i = i \Delta r \quad \forall i \in \{0, 1, \dots, N_r - 1\} \text{ où } \Delta r = \frac{R}{N_r - 1} \\ t_j = j \Delta t \quad \forall j \in \{0, 1, \dots, N_t - 1\} \text{ où } \Delta t = \frac{T}{N_t - 1} \end{cases} \quad 3-14$$

En particulier,  $r_0 = 0, r_{N_r-1} = R, t_0 = 0$  et  $t_{N_t-1} = T$ . En approximant ainsi l'équation (3-13), on obtient :

$$\frac{\partial C}{\partial t}(r_i, t_j) = D \frac{\partial^2 C}{\partial r^2}(r_i, t_j) + \frac{2D}{r_i} \frac{\partial C}{\partial r}(r_i, t_j) - k(C(r_i, t_j) - C_{thr}) \quad 3-15$$



$$\begin{aligned} C(r_i, t_j) &= C(i\Delta r, j\Delta t) = C_i^j \\ C(r_{i+1}, t_j) &= C((i+1)\Delta r, j\Delta t) = C_{i+1}^j \\ C(r_{i-1}, t_j) &= C((i-1)\Delta r, j\Delta t) = C_{i-1}^j \\ C(r_i, t_j) &= C(i\Delta r, j\Delta t) = C_i^j \end{aligned}$$

Figure 3-6 : Maillage pour différences finies

### 3.3.2 Approximations des dérivées

Le principe de la méthode des différences finies est de remplacer les dérivées par des différences finies en utilisant une expansion en série de Taylor dans lesquelles on néglige les termes d'ordres supérieures à partir d'un ordre choisi.

Soit  $f$  une fonction définie sur un voisinage d'un point  $a$  et  $m$  fois dérivable en  $a$ , la formule de Taylor-Young est exprimée par :

$$f(r) = f(a) + \sum_{n=1}^m \frac{(r-a)^n}{n!} \frac{d^n f(a)}{dr^n} + O[(r-a)^m] \quad 3-16$$

Par opérations sur la formule de Taylor (3-16), les approximations usuelles des dérivées premières et secondes peuvent se résumer dans le Tableau 3-1 et Tableau 3-2 avec l'ordre de l'approximation :

**Tableau 3-1 : Approximation de la dérivée première**

| Nom de l'approx. | Expression de l'approximation $\frac{\partial f}{\partial r}$    | Notation avec l'indice de $\frac{\partial f}{\partial r}(r_i, t_j) \simeq \frac{\partial f}{\partial r} _i^j$ | Ordre de l'approx. |
|------------------|------------------------------------------------------------------|---------------------------------------------------------------------------------------------------------------|--------------------|
| Arrière          | $\frac{f(r) - f(r - \Delta r)}{\Delta r}$                        | $\frac{f_i^j - f_{i-1}^j}{\Delta r}$                                                                          | $O[\Delta r]$      |
| Avant            | $\frac{f(r + \Delta r) - f(r)}{\Delta r}$                        | $\frac{f_{i+1}^j - f_i^j}{\Delta r}$                                                                          | $O[\Delta r]$      |
| Centrée          | $\frac{f(r + \Delta r) - f(r - \Delta r)}{2\Delta r}$            | $\frac{f_{i+1}^j - f_{i-1}^j}{2\Delta r}$                                                                     | $O[\Delta r^2]$    |
| Avant Gear       | $\frac{-f(r + 2\Delta r) + 4f(r + \Delta r) - 3f(r)}{2\Delta r}$ | $\frac{-f_{i+2}^j + 4f_{i+1}^j - 3f_i^j}{2\Delta r}$                                                          | $O[\Delta r^2]$    |
| Arrière Gear     | $\frac{3f(r) - 4f(r - \Delta r) + f(r - 2\Delta r)}{2\Delta r}$  | $\frac{3f_i^j - 4f_{i-1}^j + f_{i-2}^j}{2\Delta r}$                                                           | $O[\Delta r^2]$    |

**Tableau 3-2 : Approximation de la dérivée seconde**

| Nom de l'approximation | Expression de l'approximation<br>$\frac{\partial^2 f}{\partial r^2}$ | Notation avec l'indice de<br>$\frac{\partial^2 f}{\partial r^2}(r_i, t_j) \simeq \frac{\partial^2 f}{\partial r^2} \Big _i^j$ | Ordre de l'approximation |
|------------------------|----------------------------------------------------------------------|-------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|--------------------------|
| Centrée                | $\frac{f(r + \Delta r) - 2f(r) + f(r - \Delta r))}{\Delta r^2}$      | $\frac{f_{i+1}^j - 2f_i^j + f_{i-1}^j}{\Delta r^2}$                                                                           | $O[\Delta r^2]$          |

### 3.3.3 Méthode de résolution

#### Méthode explicite

À partir de l'équation différentielle (3-13), on peut utiliser la méthode explicite en temps (« *Forward difference method* ») pour approximer la solution de notre équation aux dérivées partielles.

Les formules de discrétisation mentionnées dans les tableaux Tableau 3-1 et Tableau 3-2 ci-dessus peuvent être utilisées pour calculer approximativement les dérivées dans les directions r et t. La concentration en chaque position du pas de temps suivant est donc évaluée directement à partir de celle du temps présent, telle que :

$$\frac{\partial C}{\partial t}(r_i, t_j) \simeq \frac{\partial C}{\partial t} \Big|_i^j = \frac{C_i^{j+1} - C_i^j}{\Delta t} \quad 3-17$$

Communément, on applique des différences finies d'ordre 2 (ou plus) pour approximer les dérivées positionnelles premières et secondes, telles que :

$$\frac{\partial C}{\partial r}(r_i, t_j) \simeq \frac{\partial C}{\partial r} \Big|_i^j = \frac{C_{i+1}^j - C_{i-1}^j}{2\Delta r} \quad 3-18$$

$$\frac{\partial^2 C}{\partial r^2}(r_i, t_j) \simeq \frac{\partial^2 C}{\partial r^2} \Big|_i^j = \frac{C_{i+1}^j - 2C_i^j + C_{i-1}^j}{\Delta r^2} \quad 3-19$$

En utilisant l'équation approximée (3-15), et en la combinant avec les différences finies (3-17) à (3-19), on obtient :

$$\frac{C_i^{j+1} - C_i^j}{\Delta t} = D \left( \frac{C_{i+1}^j - 2C_i^j + C_{i-1}^j}{\Delta r^2} \right) + \frac{2D}{r_i} \left( \frac{C_{i+1}^j - C_{i-1}^j}{2\Delta r} \right) - k(C_i^j - C_{thr}) \quad 3-20$$

En posant la substitution  $\sigma = \frac{D\Delta t}{\Delta r^2}$  dans l'équation (3-20), en isolant le terme de concentration temporel prochain ( $C_i^{j+1}$ ) et en regroupant les termes positionnels ( $C_{i+1}^j$ ,  $C_i^j$  et  $C_{i-1}^j$ ), on obtient une forme simplifiée :

$$C_i^{j+1} = \left( \sigma + \frac{\sigma\Delta r}{r_i} \right) C_{i+1}^j + (1 - 2\sigma - k\Delta t) C_i^j + \left( \sigma - \frac{\sigma\Delta r}{r_i} \right) C_{i-1}^j + k\Delta t C_{thr} \quad 3-21$$

**Tableau 3-3 : Conditions aux limites de l'équation de convection-diffusion**

|                           |                                               |                                                                                                                                                                                                                                                                                                      |
|---------------------------|-----------------------------------------------|------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|
| Condition<br>initiale     | $C(r, 0) = 0$                                 | $\forall i \in \{0, 1, \dots, N_r - 1\}$<br>$C(r_i, t_0 = 0) = C_i^0 = 0$                                                                                                                                                                                                                            |
| Conditions<br>aux limites | $C(R, t) = C^0$                               | $\forall j \in \{0, 1, \dots, N_t - 1\}$<br>$C(r_{Nr-1} = R, t) = C_{Nr-1}^j = C^0$                                                                                                                                                                                                                  |
|                           | $\frac{\partial C}{\partial r}(r = 0, t) = 0$ | <p>Par la formule de Avant Gear (Tableau 3-1) :</p> $\frac{\partial C}{\partial r}(r_0 = 0, t_j) = \frac{\partial C}{\partial r} \Big _0^j = \frac{-C_2^j + 4C_1^j - 3C_0^j}{2\Delta r} = 0$ <p>Donc <math>\forall j \in \{0, 1, \dots, N_t - 1\} \quad C_0^j = \frac{-C_2^j + 4C_1^j}{3}</math></p> |

Sous cette forme, on peut facilement voir que l'équation (3-21) donne en fait un système de  $N_r$  équations linéaires. Les conditions frontières du Tableau 3-3 s'insèrent dans la résolution en modifiant la première et la dernière des équations du système. Ce système d'équations linéaires ainsi que les conditions frontières peuvent facilement se traduire sous forme d'une matrice tri-diagonale, telle que

$$\begin{aligned}
 \underbrace{\begin{bmatrix} C_1^{j+1} \\ C_2^{j+1} \\ \vdots \\ C_{Nr-2}^{j+1} \\ C_{Nr-1}^{j+1} \end{bmatrix}}_{\bar{C}^{j+1}} &= \underbrace{\begin{bmatrix} 1 - 2\sigma/3 - k\Delta t & -2\sigma/3 & 0 & \dots & \dots & 0 \\ -4\sigma\Delta r/3r_1 & -4\sigma\Delta r/3r_1 & 0 & \dots & \dots & 0 \\ \sigma - \frac{\sigma\Delta r}{r_2} & 1 - 2\sigma & \sigma + \frac{\sigma\Delta r}{r_2} & \ddots & \ddots & \vdots \\ 0 & \ddots & \ddots & \ddots & \ddots & \vdots \\ \vdots & \ddots & \ddots & \ddots & \ddots & 0 \\ \vdots & \ddots & \ddots & \ddots & \ddots & 0 \\ \vdots & \ddots & \ddots & \ddots & \ddots & 0 \\ 0 & \dots & \dots & 0 & 0 & 1 \end{bmatrix}}_{\overline{MMR}} \underbrace{\begin{bmatrix} C_1^j \\ C_2^j \\ \vdots \\ C_{Nr-2}^j \\ C^0 \end{bmatrix}}_{\bar{C}^j} + \underbrace{\begin{bmatrix} k\Delta t C_{thr} \\ k\Delta t C_{thr} \\ \vdots \\ k\Delta t C_{thr} \\ 0 \end{bmatrix}}_{\bar{d}} \quad 3-22
 \end{aligned}$$

En termes de matrice, nous pouvons obtenir les valeurs  $\bar{C}^{j+1}$  au temps  $t + \Delta t$  en calculant une multiplication matricielle de  $\overline{MMR}$  par  $\bar{C}^j$  et en additionnant le vecteur  $\bar{d}$ . Puisque le schéma de la méthode est explicite, on peut aussi calculer de manière itérative chacune des équations linéaires du système individuellement afin de déterminer les prochaines valeurs (au sens du temps) directement à partir des valeurs connues, au lieu de résoudre par calcul matriciel. Toutefois, étant donné le caractère explicite de cette méthode, elle pourrait diverger et donner des valeurs aberrantes de concentration dans le temps si le critère de stabilité n'est pas respecté. La stabilité en temps nécessite que  $1 - 2\sigma - k\Delta t > 0$ , ce qui se réduit à la relation :

$$\Delta t < \frac{\Delta r^2}{2D + \Delta r^2 k} \quad 3-23$$

### **Méthode implicite**

La méthode implicite en temps (« *Backward difference method* ») utilise généralement les mêmes équations de différences finies vues précédemment ((3-17) à (3-19)), en utilisant le temps futur  $t + \Delta t$  comme référence, telles que :

$$\frac{\partial C}{\partial t}(r_i, t_{j+1}) \simeq \left. \frac{\partial C}{\partial t} \right|_i^{j+1} = \frac{C_i^{j+1} - C_i^j}{\Delta t} \quad 3-24$$

$$\frac{\partial C}{\partial r}(r_i, t_{j+1}) \simeq \left. \frac{\partial C}{\partial r} \right|_i^{j+1} = \frac{C_{i+1}^{j+1} - C_{i-1}^{j+1}}{2\Delta r} \quad 3-25$$

$$\frac{\partial^2 C}{\partial r^2}(r_i, t_{j+1}) \simeq \left. \frac{\partial^2 C}{\partial r^2} \right|_i^{j+1} = \frac{C_{i+1}^{j+1} - 2C_i^{j+1} + C_{i-1}^{j+1}}{\Delta r^2} \quad 3-26$$

En utilisant l'équation de convection-diffusion approximée (3-15) ainsi que celles des différences finies (3-24) à (3-26), on obtient :

$$\frac{C_i^{j+1} - C_i^j}{\Delta t} = D \left( \frac{C_{i+1}^{j+1} - 2C_i^{j+1} + C_{i-1}^{j+1}}{\Delta r^2} \right) + \frac{2D}{r_i} \left( \frac{C_{i+1}^{j+1} - C_{i-1}^{j+1}}{2\Delta r} \right) - k(C_i^{j+1} - C_{thr}) \quad 3-27$$

En regroupant les termes de concentration au temps prochain  $t + \Delta t$ , en isolant le terme de concentration au temps présent  $t$  et posant la substitution  $\sigma = \frac{D\Delta t}{\Delta r^2}$ , on obtient :

$$\left( -\sigma - \frac{\sigma\Delta r}{r_i} \right) C_{i+1}^{j+1} + (1 + 2\sigma + k\Delta t) C_i^{j+1} + \left( -\sigma + \frac{\sigma\Delta r}{r_i} \right) C_{i-1}^{j+1} = C_i^j + k\Delta t \cdot C_{thr} \quad 3-28$$

Contrairement à l'équation (3-21) de la méthode explicite en temps, l'équation (3-28) possède plus qu'une seule variable indépendante et nécessite donc une résolution matricielle. En développant l'équation (3-28) sous forme de système d'équations linéaires pour un nombre de positions  $N_r$  et en intégrant les conditions frontières énumérées dans le Tableau 3-3, on obtient :

$$\underbrace{\begin{bmatrix} -\frac{3}{2\Delta r} & \frac{2}{\Delta r} & -\frac{1}{2\Delta r} & 0 & \dots & 0 \\ -\sigma - \frac{\sigma\Delta r}{r_1} & \frac{1+2\sigma}{k\Delta t} & -\sigma + \frac{\sigma\Delta r}{r_1} & 0 & & \vdots \\ 0 & \ddots & \ddots & \ddots & \ddots & \vdots \\ \vdots & \ddots & \ddots & \ddots & \ddots & 0 \\ \vdots & & \ddots & -\sigma - \frac{\sigma\Delta r}{r_{Nr-2}} & \frac{1+2\sigma}{k\Delta t} & -\sigma + \frac{\sigma\Delta r}{r_{Nr-2}} \\ 0 & \dots & \dots & 0 & 0 & 1 \end{bmatrix}}_{\overline{MML}} \underbrace{\begin{bmatrix} C_0^{j+1} \\ C_1^{j+1} \\ C_2^{j+1} \\ \vdots \\ C_{Nr-2}^{j+1} \\ C_{Nr-1}^{j+1} \end{bmatrix}}_{\bar{C}^{j+1}} = \underbrace{\begin{bmatrix} 0 \\ C_1^j \\ C_2^j \\ \vdots \\ C_{Nr-2}^j \\ C_0^j \end{bmatrix}}_{\bar{C}^j} + \underbrace{\begin{bmatrix} 0 \\ k\Delta t C_{thr} \\ k\Delta t C_{thr} \\ \vdots \\ k\Delta t C_{thr} \\ 0 \end{bmatrix}}_{\bar{d}} \quad 3-29$$

Pour un intervalle de temps  $\Delta t$  quelconque, on peut résoudre  $\bar{C}^{j+1}$  en inversant la matrice  $\overline{MML}$  tel que  $\bar{C}^{j+1} = \overline{MML}^{-1} (\bar{C}^j + \bar{d})$ .

### **Schéma semi-implicite (de Crank-Nicolson)**

Le schéma de Crank-Nicolson est une combinaison des schémas explicite et implicite. La particularité du schéma de Crank-Nicolson réside dans la façon dont il gère la discrétisation temporelle. Il prend une moyenne pondérée de la variable indépendante à un rayon  $r_i$  quelconque à deux instants différents  $t_j$  et  $t_{j+1}$ , combinant ainsi les avantages des schémas implicites et explicites.

$$C\left(r_i, t_{j+\frac{1}{2}}\right) = \frac{C_i^{j+1} + C_i^j}{2} \quad 3-30$$

En utilisant la même logique qu'à l'équation (3-30), les dérivées partielles par rapport au rayon  $r_i$  à  $t_{j+\frac{1}{2}}$  dans le schéma de Crank-Nicolson sont exprimées comme une moyenne pondérée des dérivées positionnelles aux instants  $t_j$  et  $t_{j+1}$ , telles que :

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{\partial C}{\partial r} \left( r_i, t_{j+\frac{1}{2}} \right) = \frac{C_{i+1}^{j+1} - C_{i-1}^{j+1}}{2\Delta r} + \frac{C_{i+1}^j - C_{i-1}^j}{2\Delta r} \\ \frac{\partial^2 C}{\partial r^2} \left( r_i, t_{j+\frac{1}{2}} \right) = \frac{1}{2} \left( \frac{C_{i+1}^{j+1} - 2C_i^{j+1} + C_{i-1}^{j+1}}{2\Delta r^2} + \frac{C_{i+1}^j - 2C_i^j + C_{i-1}^j}{2\Delta r^2} \right) \end{array} \right. \quad 3-31$$

Le schéma de Crank-Nicolson présente des avantages notables. Il offre une stabilité numérique supérieure aux schémas explicites, préservant efficacement l'énergie dans certaines applications. Cependant, sa résolution nécessite parfois une complexité calculatoire plus élevée que les schémas explicites purs. Malgré cela, le schéma de Crank-Nicolson demeure un choix équilibré, alliant stabilité et préservation des propriétés physiques.

En reprenant l'équation (3-15) de convection-diffusion approximée, et en utilisant les équations (3-30) et (3-31) de la méthode de Crank-Nicolson, on obtient :

$$\begin{aligned} & \left( \frac{-D}{2\Delta r^2} - \frac{D}{2\Delta r \cdot r_i} \right) C_{i+1}^{j+1} + \left( \frac{1}{\Delta t} + \frac{D}{\Delta r^2} + \frac{k}{2} \right) C_i^{j+1} + \left( \frac{-D}{2\Delta r^2} + \frac{D}{2\Delta r \cdot r_i} \right) C_{i-1}^{j+1} \\ &= \left( \frac{D}{2\Delta r^2} + \frac{D}{2\Delta r \cdot r_i} \right) C_{i+1}^j + \left( \frac{1}{\Delta t} - \frac{D}{\Delta r^2} - \frac{k}{2} \right) C_i^j + \left( \frac{D}{2\Delta r^2} - \frac{D}{2\Delta r \cdot r_i} \right) C_{i-1}^j + kC_{thr} \end{aligned} \quad 3-32$$

Pour obtenir une forme similaire aux méthodes précédentes, on peut multiplier l'équation (3-32) par  $2\Delta t$  et substituer  $\sigma = \frac{D\Delta t}{\Delta r^2}$  pour obtenir :

$$\begin{aligned} & \left( -\sigma - \frac{\sigma\Delta r}{r_i} \right) C_{i+1}^{j+1} + (2 + 2\sigma + k\Delta t) C_i^{j+1} + \left( -\sigma + \frac{\sigma\Delta r}{r_i} \right) C_{i-1}^{j+1} \\ &= \left( \sigma + \frac{\sigma\Delta r}{r_i} \right) C_{i+1}^j + (2 - 2\sigma - k\Delta t) C_i^j + \left( \sigma - \frac{\sigma\Delta r}{r_i} \right) C_{i-1}^j + 2k\Delta t C_{thr} \end{aligned} \quad 3-33$$

Comme pour les autres méthodes, l'équation 3-33 et les conditions frontières présentées au Tableau 3-4 nous permet de construire un système matriciel d'équations linéaires tel que  $\overline{MML} \bar{C}^{j+1} = \overline{MMR} \bar{C}^j + \bar{d}$ . Pour des intervalles de rayon  $\Delta r$  et de temps  $\Delta t$  quelconques, on peut résoudre  $\bar{C}^{j+1}$  en inversant la matrice  $\overline{MML}$  tel que  $\bar{C}^{j+1} = \overline{MML}^{-1} (\overline{MMR} \bar{C}^j + \bar{d})$ .

**Tableau 3-4 : Conditions aux limites de l'équation de diffusion : méthode Crank-Nicolson**

|                        |                                               |                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                          |
|------------------------|-----------------------------------------------|----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|
| Condition initiale     | $C(r, t = 0) = 0$                             | $\forall i \in \{0, 1, \dots, N_r - 1\}$<br>$C(r_i, t_0 = 0) = C_i^0 = 0$                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                |
| Conditions aux limites | $C(R, t) = C^0$                               | $\frac{C_{Nr-1}^{j+1} + C_{Nr-1}^j}{2} = C^0 \Rightarrow \frac{1}{2}C_{Nr-1}^{j+1} = -\frac{1}{2}C_{Nr-1}^j + C^0$                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                       |
|                        | $\frac{\partial C}{\partial r}(r = 0, t) = 0$ | <p>Par la formule Avant Gear (Tableau 3-1) :</p> $\frac{\partial C}{\partial r}(r_0, t_{j+\frac{1}{2}}) = \frac{1}{2} \left( \frac{-3C_0^{j+1} + 4C_1^{j+1} - C_2^{j+1}}{2\Delta r} + \frac{-3C_0^j + 4C_1^j - C_2^j}{2\Delta r} \right)$ $\frac{-3C_0^{j+1} + 4C_1^{j+1} - C_2^{j+1}}{4\Delta r} + \frac{-3C_0^j + 4C_1^j - C_2^j}{4\Delta r} = 0$ $\frac{-3C_0^{j+1} + 4C_1^{j+1} - C_2^{j+1}}{4\Delta r} = \frac{3C_0^j - 4C_1^j + C_2^j}{4\Delta r}$ |

$$\begin{aligned}
& \underbrace{\begin{bmatrix} -\frac{3}{4\Delta r} & \frac{1}{\Delta r} & -\frac{1}{4\Delta r} & 0 & \dots & 0 \\ -\sigma - \frac{\sigma\Delta r}{r_1} & \frac{2+2\sigma}{+k\Delta t} & -\sigma + \frac{\sigma\Delta r}{r_1} & 0 & & \vdots \\ 0 & \ddots & \ddots & \ddots & \ddots & \vdots \\ \vdots & \ddots & \ddots & \ddots & \ddots & 0 \\ \vdots & & \ddots & -\sigma - \frac{\sigma\Delta r}{r_{Nr-2}} & \frac{2+2\sigma}{+k\Delta t} & -\sigma + \frac{\sigma\Delta r}{r_{Nr-2}} \\ 0 & \dots & \dots & 0 & 0 & 1/2 \end{bmatrix}}_{\overline{MML}} \underbrace{\begin{bmatrix} C_0^{j+1} \\ C_1^{j+1} \\ C_2^{j+1} \\ \vdots \\ C_{Nr-2}^{j+1} \\ C_{Nr-1}^{j+1} \end{bmatrix}}_{\bar{C}^{j+1}} = \underbrace{\begin{bmatrix} \frac{1}{4\Delta r} & \frac{-1}{\Delta r} & \frac{3}{4\Delta r} & 0 & \dots & 0 \\ \sigma + \frac{\sigma\Delta r}{r_1} & \frac{2-2\sigma}{-k\Delta t} & \sigma - \frac{\sigma\Delta r}{r_1} & 0 & & \vdots \\ 0 & \ddots & \ddots & \ddots & \ddots & \vdots \\ \vdots & \ddots & \ddots & \ddots & \ddots & 0 \\ \vdots & & \ddots & \sigma + \frac{\sigma\Delta r}{r_{Nr-2}} & \frac{2-2\sigma}{-k\Delta t} & \sigma - \frac{\sigma\Delta r}{r_{Nr-2}} \\ 0 & \dots & \dots & 0 & 0 & -1/2 \end{bmatrix}}_{\overline{MMR}} \underbrace{\begin{bmatrix} C_0^j \\ C_1^j \\ C_2^j \\ \vdots \\ C_{Nr-2}^j \\ C_{Nr-1}^j \end{bmatrix}}_{\bar{C}^j} + \underbrace{\begin{bmatrix} 0 \\ 2k\Delta t C_{thr} \\ 2k\Delta t C_{thr} \\ \vdots \\ 2k\Delta t C_{thr} \\ C^0 \end{bmatrix}}_{\bar{d}} \quad 3-34
\end{aligned}$$

### 3.3.4 Validation

Dans l'étude menée par Takahashi et al. (2021), une approche analytique a été développée pour tenir compte de l'effet de la taille des granulats dans l'expansion RAS, également connu sous le terme d'effet 'pessimum', en prenant en compte le bilan des alcalis dans les granulats de différentes tailles. Les auteurs ont effectué une analyse paramétrique sur le coefficient de diffusion des alcalis et le taux de formation du gel pour étudier l'impact de chacun sur l'évolution de la diffusion et de la consommation des alcalis à l'échelle du granulat. Les résultats de cet article vont être utilisés pour valider la méthodologie développée dans les sections précédentes.

La Figure 3-7 illustre le profil des concentrations d'alcalis dans des granulats de 240  $\mu\text{m}$  de rayon. Les résultats présentés dans la Figure 3-7 pour deux scénarios : un scénario A (Figure 3-7(a)) dans lequel la diffusion des alcalis dans le granulat est rapide par rapport au taux de formation du gel RAS; un scénario B (Figure 3-7(b)): dans lequel la diffusion des alcalis dans le granulat est plus lente par rapport au taux de formation du gel RAS. Dans les deux cas, la concentration d'alcalis dans les granulats augmente progressivement au fil du temps en raison de la diffusion. La concentration d'alcalis dans les granulats est plus élevée lorsque la vitesse de diffusion est élevée et que la vitesse de réaction est basse (Figure 3-7 (a)).

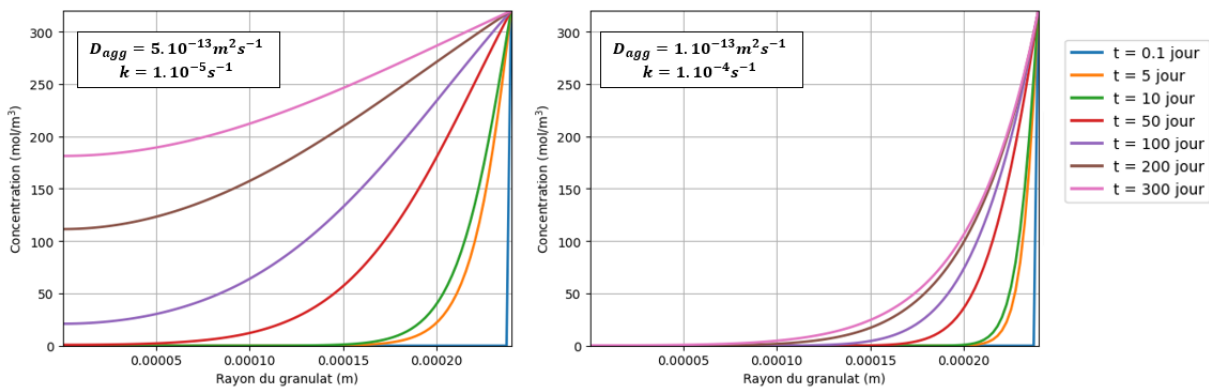


**Figure 3-7: Concentration alcaline dans le granulat obtenue dans Takahashi et al. (2021) pour deux scénarios : (a) scénario A : diffusion rapide + réaction lente; (b) scénario B : diffusion lente + réaction rapide.**

En utilisant les paramètres montrés dans le Tableau 3-5 et en appliquant les trois méthodes - implicite, explicite et Crank-Nicolson développées précédemment, on obtient les résultats de la Figure 3-8.

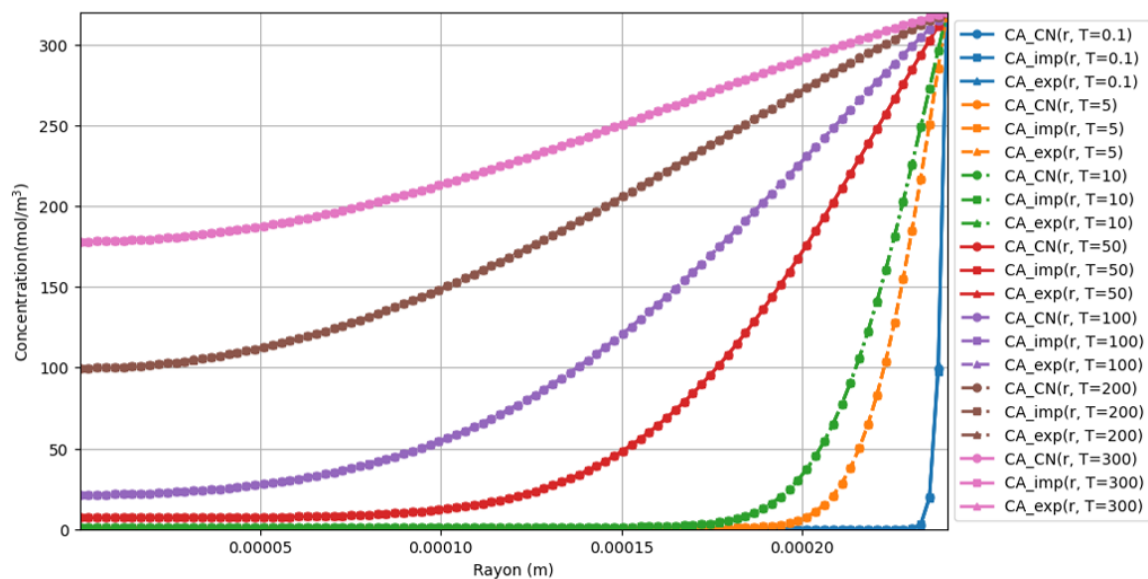
Malgré les différences dans les conditions de stabilité, les trois méthodes produisent des résultats identiques (courbes superposées) et similaires à ceux de Takahashi et al. (2021) (comparer la Figure 3-8 avec la Figure 3-7).

**Tableau 3-5 : Paramètres utilisés pour résoudre l'équation de diffusion dans les granulats (exemple de Takahashi et al. (2021), scénarios A/B)**

|                                                                                                        |                                                                                         |
|--------------------------------------------------------------------------------------------------------|-----------------------------------------------------------------------------------------|
| Constante de réaction $k$                                                                              | $10^{-5} \text{ s}^{-1}/10^{-4} \text{ s}^{-1}$                                         |
| Porosité $p_{agg}$                                                                                     | 1.9 %                                                                                   |
| Coefficient de diffusion des alcalis dans le granulat $D_{agg}$                                        | $5.10^{-13} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}/1.10^{-13} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ |
| Rayon du granulat $R_{agg}$                                                                            | 240 $\mu\text{m}$                                                                       |
| La valeur seuil de concentration alcaline au-dessous de laquelle l'expansion est négligeable $C_{thr}$ | $275 \text{ mol} \cdot \text{m}^{-3}$                                                   |

En effet dans les deux cas, la concentration d'alcalis dans les granulats augmente progressivement au fil du temps en raison de la diffusion. La concentration d'alcalis dans les granulats est plus élevée lorsque la vitesse de diffusion est élevée et que la vitesse de réaction est basse (Figure 3-8(a)).

(a)



(b)

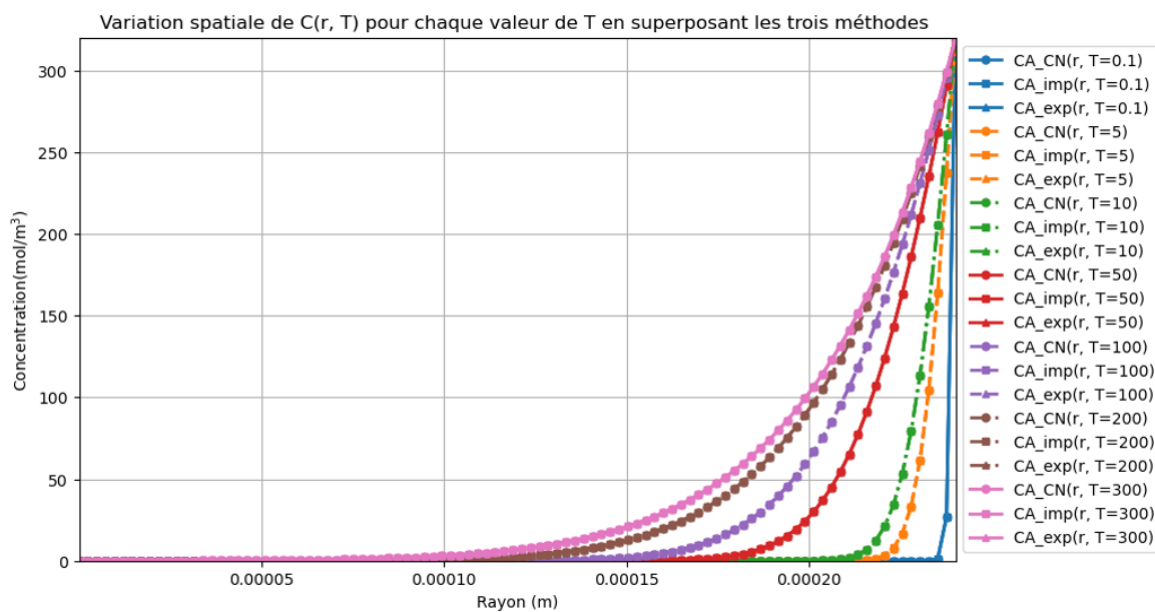


**Figure 3-8 : Concentration alcaline dans le granulat obtenue dans Takahashi et al. (2021)**  
**Résolue avec les trois méthodes de différences finies : (a) scénario A : diffusion rapide +**  
**réaction lente et (b) scénario B : diffusion lente + réaction rapide**

## 3.4 Modélisation par éléments finis

Cette section détaille l'implémentation de l'approche multi-physiques et multi-échelles développée dans ce travail, pour la méthodologie générale décrite précédemment dans la Figure 3-5.

### 3.4.1 Modélisation multi-physiques

#### Approche de modélisation hydrique dans Abaqus et paramètres d'entrée

L'écoulement du fluide interstitiel est régi par la loi de conservation de l'eau liquide et la loi de Darcy. L'approche utilisée ici est similaire à celle décrite dans Ben Ftima et al. (2023), où la loi de Darcy, est étendue au cas d'un milieu partiellement saturé. Les concepts de dépendance de la perméabilité au degré de saturation et à la courbe capillaire sont utilisés pour cet objectif, comme le montre la Figure 3-9. L'expression de la loi de Darcy est la suivante :

$$v_w = \frac{-1}{S_r p_c g \rho_w} \hat{k}(S_r) \text{grad}(P_w) \quad 3-35$$

Avec :

- $v_w$  : la vitesse relative du fluide par rapport à la phase solide ( $m/s$ );
- $S_r$  : le degré de saturation (%);
- $p_c$  : la porosité du béton (%);
- $g$  : l'accélération de la pesanteur ( $m/s^2$ ).
- $\rho_w$  : la densité de l'eau ( $1000 \text{ kg}/m^3$ );
- $\hat{k}$  : la perméabilité intrinsèque du matériau ( $m^2$ );
- $P_w$  : la pression de l'eau ( $Pa$ ), qui est, en utilisant les conventions de la Figure 3-9(a), positive lorsque le béton est complètement saturé et négative lorsqu'il est partiellement saturé.

Des valeurs négatives de la pression présentent des effets capillaires dans le milieu ( $P_c = -P_w$ ), dont le lien avec le degré de saturation, appelé courbe capillaire (comme le montre la Figure 3-9(a)), peut être obtenu expérimentalement

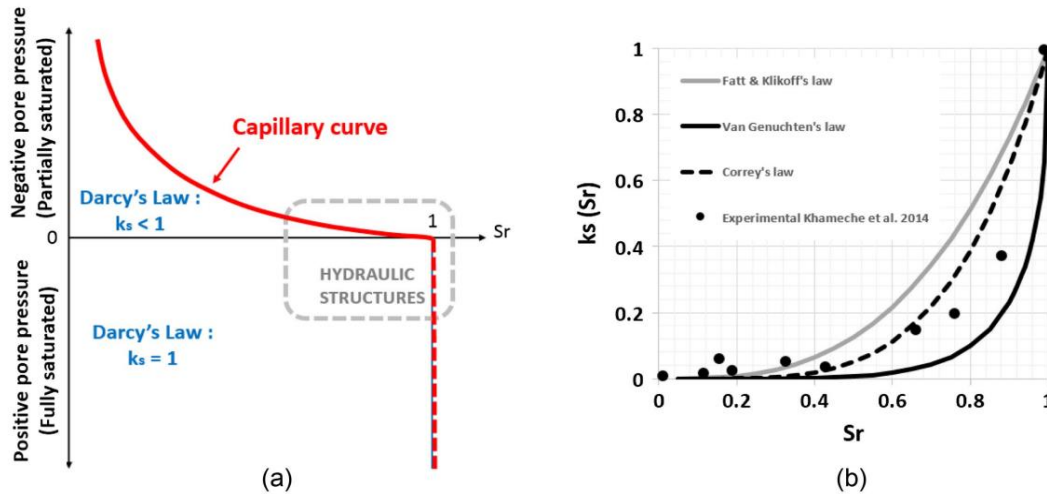


**Figure 3-9 : Analyse de la pression interstitielle : (a) relation pression interstitielle-degré de saturation et (b) relation perméabilité-degré de saturation (Ben Ftima et al., 2023)**

Dans l'étude de Ben Ftima et al. (2023), la courbe capillaire a été établie en utilisant les résultats expérimentaux menés par Baroghel-Bouny et al. (1999). Le modèle semi-empirique, développé par ces derniers auteurs, relie la pression capillaire au degré de saturation du béton selon la relation (3-36), avec des paramètres spécifiques  $a = 18.62$  MPa et  $b = 2.27$  établis pour un béton normal.

$$P_c = a(S_r^{-b} - 1)^{1-\frac{1}{b}} \quad 3-36$$

La perméabilité dépend de la saturation de l'eau liquide, en supposant la relation suivante :

$$\hat{k}(S_r) = k_s(S_r) \cdot k_c \quad 3-37$$

Où  $k_s$  donne la dépendance de saturation et  $k_c$  est la perméabilité du béton quand il est entièrement saturé.

Plusieurs relations ont été suggérées dans la littérature pour les milieux partiellement saturés (principalement développés dans la mécanique des sols). L'équation (3-38) donne trois lois suggérées :

$$k_s(S_r) = S_r^3 \text{ Fatt and Flikoff's 1959 law} \quad 3-38$$

$$k_s(S_r) = \sqrt{S_r} \left( 1 - \left( 1 - S_r^{\frac{1}{m}} \right)^m \right)^2 \text{ Van Genuchten's 1980 law} \quad 3-39$$

$$k_s(S_r) = \left( \frac{S_r - 0.05}{1 - 0.05} \right)^4 \text{ Correy's 1957 law} \quad 3-40$$

Le coefficient  $m$  de l'équation (3-39) est relié au coefficient  $b$  de l'isotherme de désorption dans le modèle semi-empirique (3-36) de Baroghel-Bouny et al. (1999) :  $b = 1/m$ .

La Figure 3-9(b) compare trois lois aux résultats expérimentaux de Kameche et al. (2014) sur du béton ordinaire provenant de l'étude de Ben Ftima et al. (2023). Les points expérimentaux se situent entre les lois de Van Genuchten (1980) et de Correy (1957).

Dans leur validation, Ben Ftima et al. (2023) ont utilisé les données expérimentales de Multon & Toutlemonde (2010) sur des échantillons cylindriques ( $\emptyset$  160 x 320 mm). Les simulations numériques, basées sur des segments de quart de cylindre, ont mesuré la déformation moyenne le long de l'axe. Pour l'analyse hydrique transitoire, des conditions limites de pression capillaire ont été appliquées, considérant une pression capillaire nulle « dans l'eau » et une pression capillaire correspondant à 95 % d'humidité relative dans l'air.

Le résultat de l'analyse hydrique transitoire est le degré de saturation. Pour estimer la prise de masse, Ben Ftima et al. (2023) ont introduit une relation reliant le degré de saturation à la prise de masse (3-41), en supposant que la consommation en eau due à la réaction d'hydratation du béton est négligeable, et que la porosité et la masse volumique du béton restent constantes :

$$Sr_t = \frac{1}{p_c} * \frac{\rho_c}{\rho_w} * \frac{Pdp}{1 + Pdp} + Sr_0 * \frac{1}{1 + Pdp} \quad 3-41$$

Avec,

- $Sr_t$  : le degré de saturation à l'instant  $t$  (%);
- $Sr_0$  : le degré de saturation à l'instant 0 (%);
- $p_c$  : la porosité du béton (%);
- $Pdp$  : la prise de poids entre l'instant 0 et l'instant  $t$  (kg);
- $\rho_c$  : la densité du béton ( $2400 \text{ kg/m}^3$ );
- $\rho_w$  : la densité de l'eau ( $1000 \text{ kg/m}^3$ ).

Les prédictions du modèle ont concordé de manière assez précise avec l'expansion de RAS (Figure 3-10(a)) et les variations de masse (Figure 3-10(b)), validant ainsi son comportement.

L'application de cette méthodologie aux résultats expérimentaux de Martin et al. (2013) a toutefois permis d'identifier certaines lacunes dans le cas de gonflement excessif du béton, par exemple celui dû à la RSI. En fait, Morenon (2017) mentionne dans son travail que le comportement hydrique réel des éprouvettes de Martin et al. (2013) n'a pas été correctement reproduit dans sa modélisation, Morenon (2017) a obtenu une sous-estimation de la prise de masse par rapport aux données expérimentales.

En utilisant la méthodologie de calcul hydrique de Ben Ftima et al. (2023), l'équation 3-41 pour le calcul de la prise de masse à partir du degré de saturation, et les paramètres d'entrée utilisés par Morenon (2017) donnés au Tableau 3-6, on obtient les résultats de la Figure 3-11 avec nos analyses.

**Tableau 3-6 : Paramètres d'entrées pour l'expérience de Morenon (2007)**

|                                                    |                   |        |
|----------------------------------------------------|-------------------|--------|
| Degré de saturation initiale                       | $Sr_0$            | 0,87   |
| Porosité initiale du béton                         | $p_{c,0}$         | 0,1698 |
| Indice de vide initiale du béton                   | $e_0$             | 0,2045 |
| Pression capillaire initiale équivalente de $Sr_0$ | $P_c(Sr_0)$ (MPa) | 10712  |

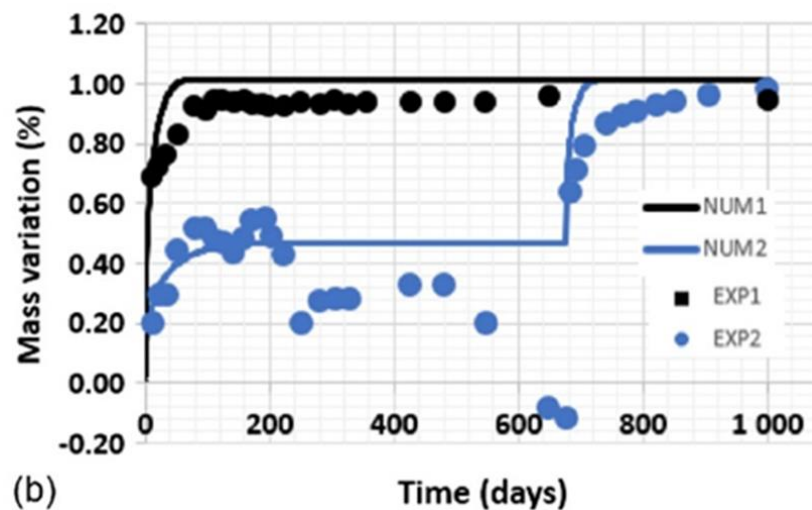
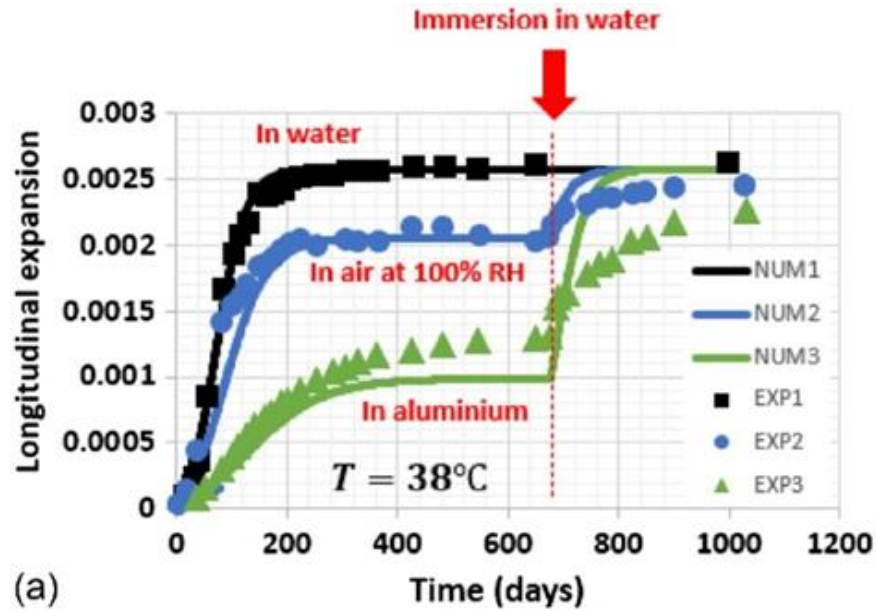


Figure 3-10 : Vérification du modèle [à l'aide des résultats expérimentaux de Multon & Toutlemonde (2010)] : (a) Expansion longitudinale en fonction du temps et (b) Variation de masse en fonction du temps

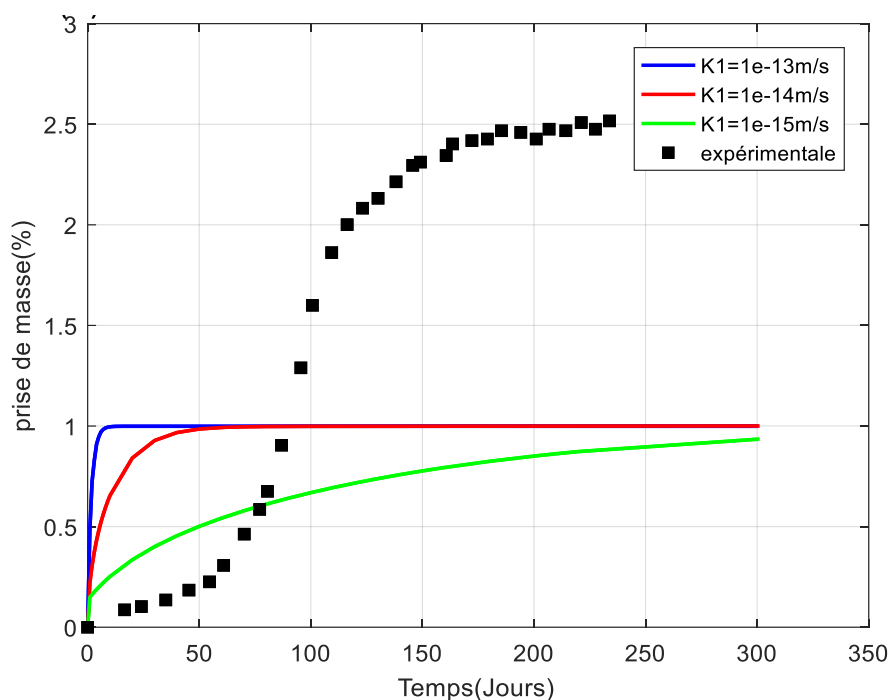


**Figure 3-11 : Reproduction des résultats de Martin et al. (2013) avec la méthodologie de calcul hydrique originale de Ben Ftima et al. (2023) (loi de Van Genuchten utilisée)**

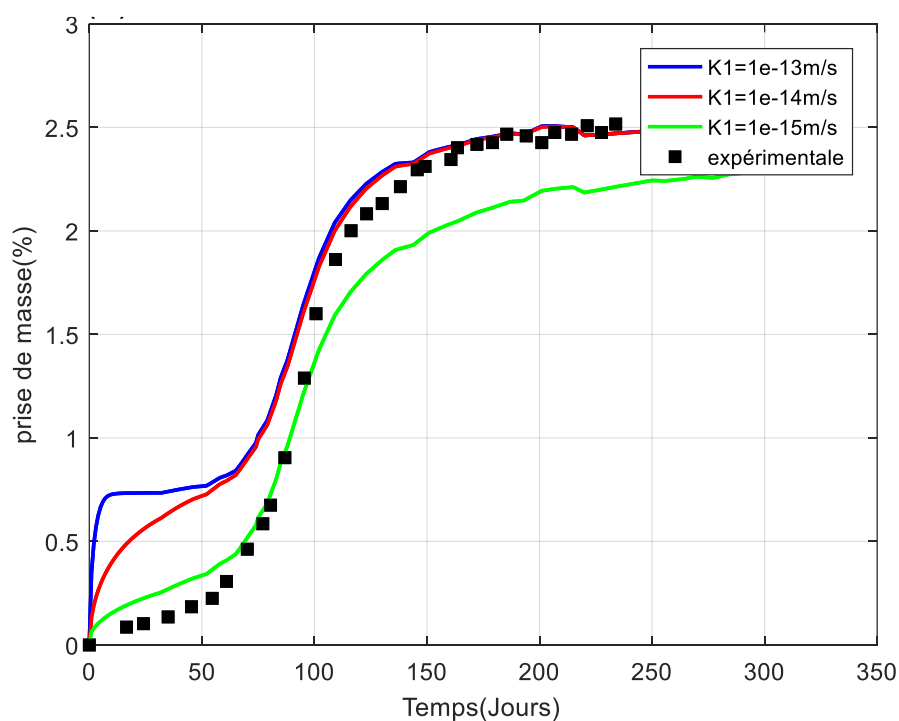


**Figure 3-12 : Reproduction des résultats de Martin et al. (2013) avec la méthodologie de calcul hydrique modifiée de Ben Ftima et al. (2023) (loi de Van Genuchten utilisée)**

Les résultats indiquent une sous-estimation de la prise de masse par rapport aux résultats expérimentaux et ce peu importe le coefficient de perméabilité utilisé ( $K_1$ ,  $K_2$ ,  $K_3$ ). Des études paramétriques en utilisant les lois autres que celle Van Genuchten ramènent à la même conclusion. Après investigation, il s'est avéré que l'équation (3-41) n'était pas adéquate pour le cas d'expansion significative du béton (1.8 % pour le cas de RSI versus 0.25 % pour la RAS). En effet, pour avoir une prise de masse du même ordre que l'expérimental (2.5 %), l'utilisation de cette équation ramène à des valeurs de degré de saturation supérieures à 1.

Il a été démontré que dans le cas des bétons présentant une expansion significative, les gonflements altèrent le comportement hydrique, entraînant des prises de masse asymptotiques supérieures à celles d'un matériau sain équivalent (Martin et al., 2013). Un 'effet d'éponge' résulterait d'une expansion significative de béton, qui fait que pour des niveaux avancés d'expansion, la prise de masse est principalement due au remplissage des vides créés par l'expansion par de l'eau (Martin et al. (2013)).

L'équation suivante a été suggérée par Martin et al. (2013) pour décrire ce phénomène, et elle fait intervenir la déformation volumétrique du béton :

$$Sr_t = Sr_0 + \frac{\rho_c \cdot p dp - \varepsilon_v}{p_c} \quad 3-42$$

Avec

- $\rho_c$  : densité du béton ( $2300 \text{ kg/m}^3$ );
- $\varepsilon_v$  : déformation volumétrique du béton (%);
- $p_c$  : porosité du béton (%).

Par conséquent, pour obtenir la variation correcte du degré de saturation et une prise de masse similaire, l'analyse hydrique doit incorporer la déformation volumétrique subie par le spécimen. Ainsi, un couplage entre l'analyse hydrique et une analyse mécanique est nécessaire, tel qu'indiqué dans la Figure 3-5. Ce couplage n'existait pas dans la méthodologie initialement suggérée par Ben Ftima et al. (2023), où les degrés de liberté translationnels de l'analyse poro-mécanique étaient bloqués pour permettre une analyse pure d'écoulement en milieu poreux.

Pour l'objectif de valider les résultats de Morenon (2017), un gradient thermique équivalent à la déformation volumétrique mesurée expérimentalement a été appliqué, et les degrés de libertés mécaniques ont été activés.

Les résultats avec cette nouvelle approche sont montrés à la Figure 3-12, et mettent en évidence une nette amélioration du modèle avec une bonne correspondance avec la prise de masse expérimentale. L'examen de cette figure montre que la perméabilité réelle du spécimen évoluerait entre  $10^{-15}$  au début de l'essai (avant fissuration) et  $10^{-14}$  à la fin de l'essai (après fissuration).

### **Analyse chimique**

Tel que discuté précédemment dans la section 3.2.3, une analogie thermique est considérée pour la modélisation du lessivage. Le tableau suivant donne la correspondance entre les variables d'état et les paramètres requis par l'analyse dans le contexte de cette analogie.

**Tableau 3-7 : Analogie thermique-chimique : comparaison des paramètres**

| Transfert thermique   |                                                                                                                              | Diffusion chimique   |                                                                                                                               |
|-----------------------|------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|----------------------|-------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|
| <i>Variable</i>       | Description                                                                                                                  | <i>Variable</i>      | Description                                                                                                                   |
| $T$                   | Température ( $K$ )                                                                                                          | $C$                  | Concentration ( $mol/m^3$ )                                                                                                   |
| $\rho$                | Densité ( $kg/m^3$ )                                                                                                         | $1$                  | unité                                                                                                                         |
| $c_p$                 | Chaleur spécifique ( $J/(kg \cdot K)$ )                                                                                      |                      |                                                                                                                               |
| $\lambda_{thr}$       | Conductivité thermique ( $W/(m \cdot K)$ )                                                                                   | $D$                  | Diffusivité ( $m^2/s$ )                                                                                                       |
| $\bar{J}_{thermique}$ | La densité de flux thermique<br>( $W/m^2$ )<br>Loi de Fourier :<br>$\bar{J}_{thermique} = -\lambda \cdot \overline{grad}(T)$ | $\bar{J}_{massique}$ | La densité de flux massique<br>( $mol/(s \cdot m^2)$ )<br>Loi de Fick :<br>$\bar{J}_{massique} = -D \cdot \overline{grad}(C)$ |
| $\Phi_{thermique}$    | Flux thermique ( $W$ )                                                                                                       | $\Phi_{massique}$    | Flux massique ( $mol/s$ )                                                                                                     |

### Condition aux limites du spécimen

La simulation de la condensation de l'eau en surface externe des spécimens représente un défi majeur dans la modélisation du lessivage. Les gouttelettes d'eau qui se forment en surface, caractérisées par une concentration nulle en alcalis, génèrent un gradient de concentration, favorisant ainsi la migration des alcalis du béton vers la surface du spécimen.

La revue de littérature conduite au chapitre 2, nous rapporte deux conditions aux limites différentes qui ont été utilisées pour la surface externe du spécimen : une condition de convection utilisée par Multon & Sellier (2016) et une condition de concentration nulle utilisée par Morenon (2017). C'est la condition de concentration nulle qui a été choisie dans ce travail, pour deux raisons principales :

- i. La condition de convection nécessiterait deux paramètres supplémentaires à identifier/calibrer: le coefficient de convection et la concentration à l'infini;
- ii. La condition de concentration nulle des alcalis, sur une fine couche de gouttelettes situées à la frontière du spécimen nous paraît physiquement plus réaliste.

### Calcul du lessivage par post-traitement du modèle EF

Le lessivage des alcalis, qui mesure la quantité d'alcalis sortie d'un spécimen par rapport à la quantité initiale présente, peut être évalué de deux manières distinctes, à partir d'une analyse chimique par éléments finis.

La première méthode repose sur une intégration sur le volume du spécimen, calculant la différence entre la concentration initiale et la concentration à un instant  $t$ . Formellement, cette approche s'exprime comme l'intégrale de la différence de concentration sur le volume du spécimen. Cependant, cette méthode est valide uniquement en l'absence de consommation dans le spécimen, car cette différence quantifie la perte d'alcalis dans le spécimen, qui, en cas de consommation, serait équivalente à la quantité d'alcalis consommées et la quantité lessivée d'alcalis.

La seconde méthode repose sur une intégration temporelle du flux sortant par les surfaces extérieures du spécimen. Cette approche offre une évaluation directe de la quantité lessivée d'alcalis au fil du temps, en intégrant le flux sortant par les surfaces exposées extérieures. Cette méthode demeure valable même en présence de consommation d'alcalis dans le spécimen.

Méthode 1 : Calcul du % d'alcalis lessivés par intégration manuelle sur les concentrations

Le pourcentage des ions qui ont quitté le spécimen est le rapport de la quantité d'alcalis libérée du spécimen par rapport à la quantité totale d'alcali initialement présente.

Soit

$$\%AL = \frac{n_{Na}^-(t)}{n_{Na}^0} \quad 3-43$$

Tel que  $n_{Na}^-(t)$  est la quantité d'alcalis sortants du spécimen ( $mol$ ), et  $n_{Na}^0$  est la quantité d'alcalis présents initialement dans le spécimen ( $mol$ ).

La quantité molaire d'alcalis restants à l'instant  $t$  est définie telle que :

$$n_{Na}^r(t) = \iiint [Na](t) dV = \sum_{i=1}^N [Na]_i^r V_i \quad 3-44$$

En combinant les équations (3-43) et (3-44), on peut obtenir :

$$\%AL = \frac{n_{Na}^-(t)}{n_{Na}^0} = \frac{n_{Na}^0 - n_{Na}^r(t)}{n_{Na}^0} = \frac{\sum_{i=1}^N ([Na]_{initiale} - [Na]_i^r) \cdot V_i}{[Na]_{initiale} \cdot V_{spécimen}} \quad 3-45$$

Où

$[Na]_i^r$  : la concentration restante pour chaque élément  $i$  du spécimen ( $mol/m^3$ );

$V_i$  : le volume de l'élément fini  $i$  du spécimen dans le modèle numérique ( $m^3$ );

$N$  : le nombre d'éléments finis du modèle numérique;

$[Na]_{initiale}$  : la concentration en alcalis à l'instant initiale dans le spécimen ( $mol/m^3$ ).

Méthode 2 : Calcul du % d'alcalis lessivés par intégration numérique temporelle du flux sortant par les surfaces du spécimen

Un flux massique mesure une puissance échangée à travers une surface  $S$ . En notant  $dQ$  la quantité de matière échangée pendant  $dt$  par une surface  $S$ , le flux thermique s'exprime par :

$$\phi_{massique} = \frac{dQ_{massique}}{dt} \left( \frac{\text{mol}}{s} \right) \quad 3-46$$

La densité de flux massique  $\bar{j}$  est décrite par la loi de Fick, où elle est égale au produit du coefficient de diffusion ( $D$ ) et du gradient de concentration. En d'autres termes, la densité de flux massique représente la quantité de matière échangée par unité de temps à travers une surface unitaire

$$\vec{j} = -D \cdot \overline{\text{grad}}(C) \quad 3-47$$

Dans le contexte d'Abaqus, par analogie entre les deux analyses thermiques et de diffusion massique (Tableau 3-7), la densité de flux est souvent notée HFL, représentant « *Heat flux per unit area leaving the surface* » ( $\text{mol}/(s \cdot m^2)$ ) et le flux massique (analogie avec flux thermique (3-46)) dans Abaqus représente la variable « *Heat over an area* » noté SFO :  $\phi_{mass.}(t) = \frac{dQ}{dt} = \iint \bar{j} dS$  ( $\text{mol}/s$ ). Dans Abaqus, il suffit de définir la surface d'intérêt pour avoir la variation temporelle la quantité de matière échangée par unité de temps.

Pour quantifier la quantité d'alcalis sortie à chaque instant, il faut à chaque instant du début jusqu'au temps final d'analyse, réaliser un post-traitement en intégrant numériquement temporellement la variation SFO, pour avoir la quantité de matière sortie à chaque instant et on la divise par la quantité d'alcali initiale puis on pourra avoir la variation du % lessivée en fonction du temps (3-48).

$$\% \text{lessivé}(t) = \frac{n_{Na}^-(t)}{n_{Na}^0} = \frac{\int_0^t \phi_{massique}(T) dT}{n_{inoitiale}} \quad 3-48$$

La Figure 3-13 suivante montre la coïncidence des résultats de lessivage obtenus avec les deux méthodes de calcul décrites précédemment. Le modèle utilisé est l'analyse chimique d'un quart de cylindre sans le terme de source pour la considération de la consommation des alcalis par les granulats réactifs.

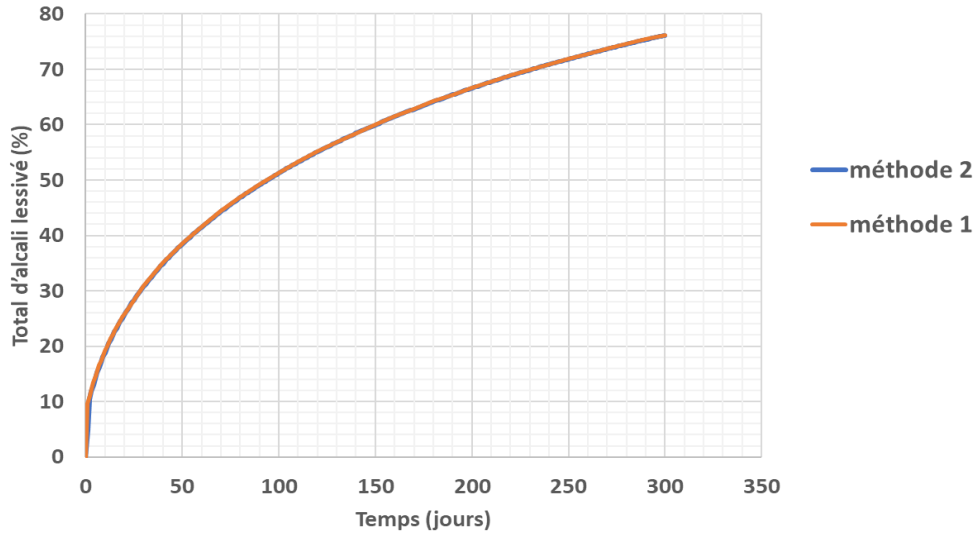


Figure 3-13 : Vérification de la méthode de calcul de lessivage par les deux méthodes

### 3.4.2 Modélisation multi-échelles

#### Implémentation

Le bilan des alcalis à l'échelle du béton s'exprime par l'équation (3-9) où le terme source  $S_{\Sigma Na_f}^c$  dépend du résultat de la diffusion/consommation à l'échelle du granulat. Dans Abaqus, ce terme source défini à l'équation 3-12 est introduit sous forme de flux par unité de volume, comme-ci :

$$Flux_{béton}^{Abaqus} = \frac{S_{\Sigma Na_f}^c}{V_{béton}} \quad 3-49$$

La formulation du béton est définie par le nombre de classes granulaires choisies, le rayon représentatif et le pourcentage de présence dans le béton de chaque classe granulaire. Le volume total d'une classe granulaire  $V_{agg}$  de rayon  $R_{agg}$  est défini comme le produit du pourcentage massique de présence  $\%R_{agg}$  (valant le rapport de pourcentage de présence volumique dans le cas où on suppose que la densité des granulats est constante) de cette classe par le volume total du béton  $V_{béton}$ . Ce volume de classe  $V_{agg}$  peut aussi être défini comme le produit du volume d'un granulat  $V_{granulat}$  par le nombre de granulats équivalents de la même classe  $N_{agg}$ , tel que :

$$V_{agg} = \%R_{agg} \cdot V_{béton} = V_{granulat} \cdot N_{agg} \quad 3-50$$

En isolant  $N_{agg}$  dans l'équation 3-50, on obtient :

$$N_{agg} = \frac{V_{agg}}{V_{granulat}} = \frac{\%R_{agg} \cdot V_{béton}}{V_{granulat}} = \frac{\%R_{agg} \cdot V_{béton}}{4\pi R_{agg}^3/3} \quad 3-51$$

En combinant les équations 3-12, 3-49 et 3-51, on obtient le flux par unité de volume qui doit être fourni à Abaqus :

$$Flux_{béton}^{abacus} = \sum_{agg} \frac{3 \cdot \%R_{agg}}{R_{agg}} D_{agg} \frac{\partial [Na^{eq}]_{agg}}{\partial r} (r = R_{agg}, t) \quad 3-52$$

Tel que décrit dans la Figure 3-5, un code Fortran a été programmé dans Abaqus dans la sous-routine utilisateur nommée DFLUX, conçue initialement par le développeur du logiciel pour l'introduction d'un terme de flux volumétrique non conventionnel lors d'une analyse thermique transitoire. Cette sous-routine a été programmée dans ce projet pour calculer à chaque incrément de temps le terme source donné par l'équation 3-52. Faute de temps, c'est uniquement la méthode explicite des différences finies (décrite à la section 3.3.3) qui a été programmée dans la version actuelle de DFLUX.

Le code se concentre sur la représentation précise du processus de lessivage des alcalis dans le béton, en mettant en œuvre une intégration rigoureuse des phénomènes à différentes échelles, du granulat à l'échelle globale de l'éprouvette. Voici un résumé des étapes clés du code :

1. Au démarrage, le code récupère divers paramètres d'entrée tels que le rayon moyen de chaque classe granulaire  $R_{agg}(m)$ , le pourcentage de chaque classe granulat  $\%R_{agg}(\%)$  associé aux rayon moyen, le coefficient de diffusion  $D_{agg}(m^2s^{-1})$ , la constante de réaction  $k$ , la porosité du granulat  $p_{agg}(\%)$ , et le degré de saturation  $S_r(\%)$ . La valeur seuil de concentration alcaline au-dessous de laquelle l'expansion est négligeable  $C_{thr}(mol \cdot m^{-3})$ . Ces paramètres sont essentiels pour la modélisation du lessivage des alcalis.
2. Le code itère ensuite sur chaque classe granulaire :
  - a. Vérification de la condition de stabilité au cours du premier incrément de l'analyse (3-23);
  - b. Récupération des concentrations  $C_i^j$  de l'incrément en cours ( $j$ ) et pour chaque position ( $i$ ) dans le granulat;

- c. Une boucle spatiale est ensuite effectuée à l'intérieur de chaque granulat représentatif. L'équation de diffusion dans le granulat est résolue moyennant l'équation 3-8, et les concentrations sont actualisées à chaque position radiale;
- d. Mise à jour des concentrations  $C_i^{j+1}$  de l'incrément en cours ( $j$ ) et pour chaque position ( $i$ ) dans le granulat (3-22);
- e. Sauvegarde des concentrations  $C_i^{j+1}$ ;
- f. Le gradient des alcalis à la frontière du granulat, représenté par le terme  $\frac{\partial [Na^{eq}]_{agg}}{\partial r} (r = R_{agg}, t)$  de l'équation 3-8 est calculé pour chaque classe granulaire de rayon  $R_{agg}$ .

3. Calcul du flux cumulatif en considérant toutes les classes granulaires (3-12).

### **Vérification**

Afin de vérifier la bonne implémentation du code, un essai adiabatique fictif est considéré, afin de comparer la solution numérique obtenue par Abaqus à la solution analytique exacte, obtenue par résolution directe de l'équation différentielle.

Dans ce cas particulier, il est possible de résoudre l'équation différentielle manuellement pour déduire l'évolution de la concentration en fonction du temps, en connaissant la courbe théorique du flux dégagé en fonction du temps.

Le bilan des alcalis dans le béton est exprimé dans l'équation (3-9). Dans le cas adiabatique le flux externe des alcalis est nul ( $\phi_{Na}^c = 0$ ). L'équation (3-9) devient :

$$\frac{d[Na^{eq}]_c}{dt} = \frac{S_{\Sigma Na_f}^c}{p_c S_r} \quad 3-53$$

Donc on peut connaître la variation de la concentration des alcalis dans le béton  $[Na^{eq}]_c$  en fonction du temps en connaissant l'expression du terme source, qui est calculée par la diffusion interne des alcalis et leurs consommations dans les granulats par l'équation (3-12).

De l'équation (3-53), on peut déduire la variation de la concentration analytiquement :

$$[Na^{eq}]_c(t) = \frac{\int_0^t S_{\Sigma Na_f^c}(T) dT}{p_c S_r} \quad 3-54$$

Le terme source qui caractérise la consommation des alcalis dans les granulats réactifs est défini par plusieurs paramètres. Les données d'entrée comprennent la concentration à la limite externe du granulat, notée  $C_0$ , la teneur du granulat dans le béton pour chaque classe granulaire  $\%R_{agg}$ ,  $R_{agg}$  le rayon moyen pour chaque classe granulaire, et  $D_{agg}$  le coefficient de diffusion des alcalis dans les granulats, ainsi que tous les paramètres de l'équation bilan des alcalis au niveau d'un granulat ( $p_{agg}$ ,  $S_r$ ,  $k$ ,  $D_{agg}$ ) pour déterminer le flux à la limite de chaque granulat  $\frac{\partial [Na^{eq}]_{agg}}{\partial r}(r = R_{agg}, t)$ .

À titre d'exemple d'application, on considère un prisme de béton mesurant 70 x 70 mm ayant la même formulation du béton de Lindgard et al. (2013), le Tableau 3-8 fournit les paramètres d'entrée de  $R_{agg}$  et  $\%R_{agg}$ . Pour les paramètres du bilan des alcalis au niveau de chaque classe granulaire réactive (Cataclasite), on utilise ceux de l'article de Multon & Sellier (2016) (Tableau 3-9).

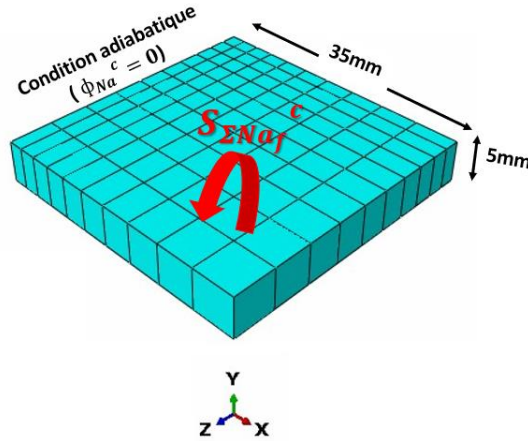


**Figure 3-14 : Géométrie, maillage et condition adiabatique pour vérifier l'implémentation de la sous-routine**

**Tableau 3-8 : Formulation du béton employé dans l'expérience de Lindgard et al. (2013)**

| Matériaux             |             | Ø (mm)  | kg/m <sup>3</sup> | Pourcentage (%)   |       |
|-----------------------|-------------|---------|-------------------|-------------------|-------|
| Ciment                |             |         | 400               | %C                | 16,5  |
| Granulats             | Granite     | 0 - 4   | 735               | %R <sub>agg</sub> | 30,4  |
|                       | Cataclasite | 4 - 8   | 185               |                   | 7,6   |
|                       |             | 8 - 11  | 365               |                   | 15,1  |
|                       |             | 11 - 16 | 550               |                   | 22,7  |
| Eau                   |             |         | 180               | %Eau              | 7,4   |
| Contenu en alcalis    |             |         | 3,7               | %Alcalis          | 0,2   |
| Masse totale du béton |             |         | 2418,7            |                   | 100,0 |

**Tableau 3-9 : Paramètres de modélisation employés par Multon & Sellier (2016)**

|                                                                   |                        |                |
|-------------------------------------------------------------------|------------------------|----------------|
| Concentration initiale en alcalis dans le béton $C_0$             | 560                    | $mol/m^3$      |
| Coefficient de diffusion des alcalis dans le béton $D_c$          | $6.048 \cdot 10^{-7}$  | $m^2/semaine$  |
| Coefficient de diffusion des alcalis dans les $D_{agg}$ granulats | $8.165 \cdot 10^{-10}$ | $m^2/semaine$  |
| Coefficient de consommation des alcalis $k$                       | 0.0175                 | $semaine^{-1}$ |

Par calcul analytique, en recourant à la méthode de différences finies pour résoudre les équations différentielles des trois classes granulaires, et en utilisant les informations fournies par le Tableau 3-8 et Tableau 3-9, on détermine le terme source (Figure 3-15). Par la suite, il est possible de déterminer le profil de concentration en fonction du temps (3-54).

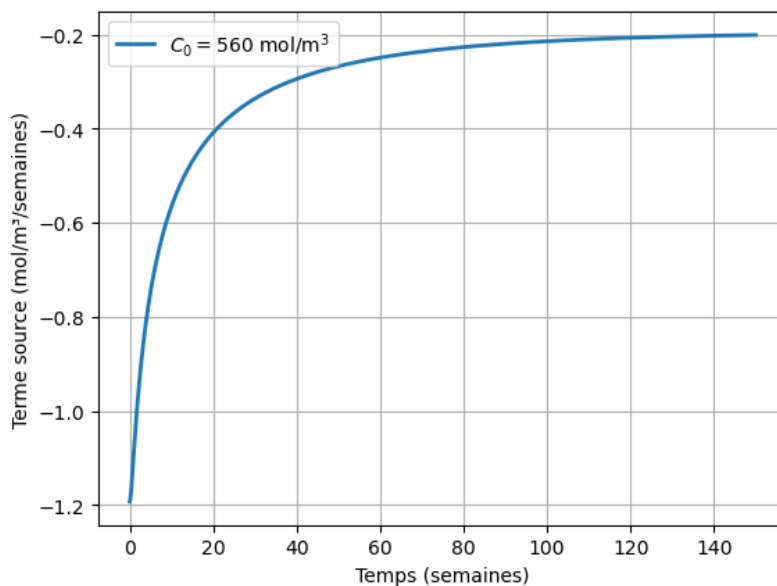


**Figure 3-15 : Terme source calculé par la méthode explicite en utilisant les paramètres de Lindgard et al. (2013) et de Multon & Sellier (2016)**

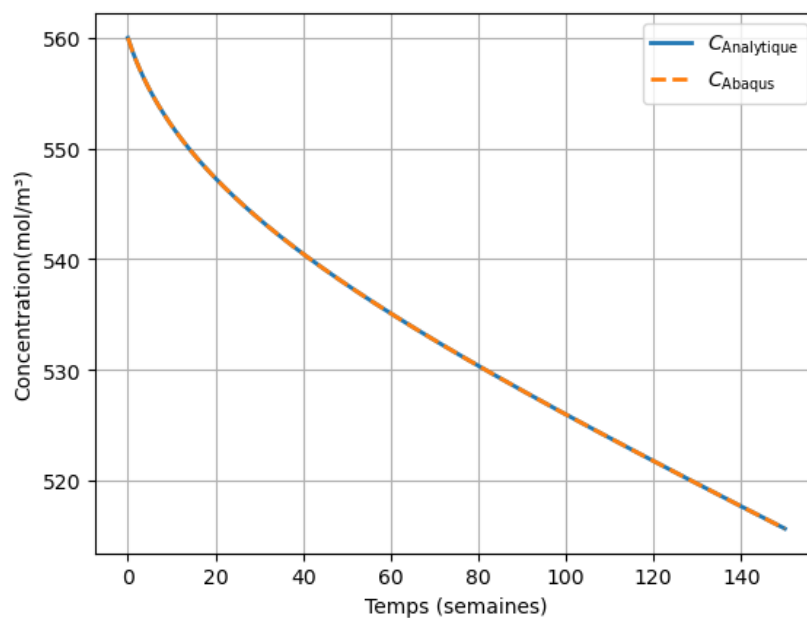


**Figure 3-16 : Vérification de l'implémentation de la sous-routine pour le cas adiabatique : les profils de concentration théorique et numérique se superposent**

D'autre part, nous implémentons la sous-routine avec les mêmes paramètres et en appliquant une concentration initiale identique à  $C_0$  dans le modèle Abaqus. La Figure 3-16 montre les résultats superposés entre le calcul analytique et la simulation numérique réalisée par Abaqus.

### 3.5 Exemples de validation

#### 3.5.1 Description des essais

Les essais de la campagne expérimentale de Lindgard et al. (2013) décrite dans le chapitre de revue de littérature sont considérés pour la validation de la méthodologie suggérée. Plus précisément, les deux prismes de dimensions 100 x 100 x 450 mm et 70 x 70 x 280 mm qui ont été exposés à une température de 38°C et à une humidité relative de 95 % seront considérés. Une quantité de 3,75  $kg/m^3$  d'alcalis a été incorporée dans le mélange de béton. Le lessivage des alcalis a été mesuré au fil du temps à partir de l'eau au fond des contenants de stockage et du revêtement intérieur des contenants. Les quantités de lessivage après un an pour ces trois séries étaient d'environ 20 %, 48 % et 80 %, respectivement.

#### 3.5.2 Description des modèles

On applique notre approche de modélisation de lessivage des alcalis en supposant un coefficient de diffusion constant pour un degré de saturation de 0.87 et en utilisant les mêmes paramètres de l'article de (Sellier & Multon, 2016) (Tableau 3-9). Pour les données d'entrée pour la considération de la consommation des alcalis, on emploie la formulation du béton employé dans Lindgard et al. (2013) (Tableau 3-8).

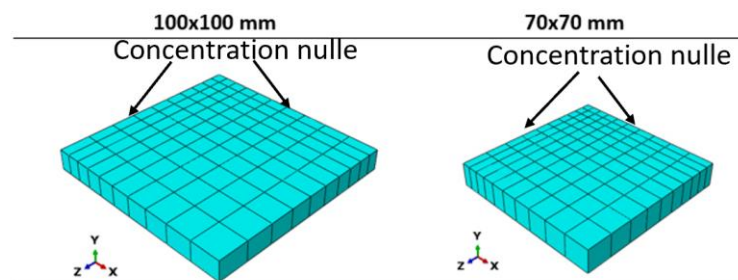


**Figure 3-17 : Géométrie, maillage et conditions aux limites des modèles numériques**

La Figure 3-17, illustre la géométrie, le maillage, et les conditions aux limites employées pour l'analyse chimique (Figure 3-5). En raison de la double symétrie, seulement le quart du spécimen est modélisé. En négligeant le transfert dans la direction longitudinale du spécimen, seulement une tranche est modélisée.

La sous-routine dédiée à la simulation de la consommation des granulats et à la liaison entre les deux échelles granulaires est conçue pour calculer le terme source négatif en prenant en compte la consommation des alcalis au sein des granulats réactifs. Il est important de noter que la condition de couplage multi-échelles est assurée par la similitude des concentrations à la limite du granulat et dans la solution poreuse du béton. Une variation de la concentration à l'échelle du béton entraîne automatiquement une modification du terme source, comme illustré dans la figure ci-dessous qui représente un tracé du terme source pour différentes valeurs de concentrations  $C_0$  maintenues constantes.

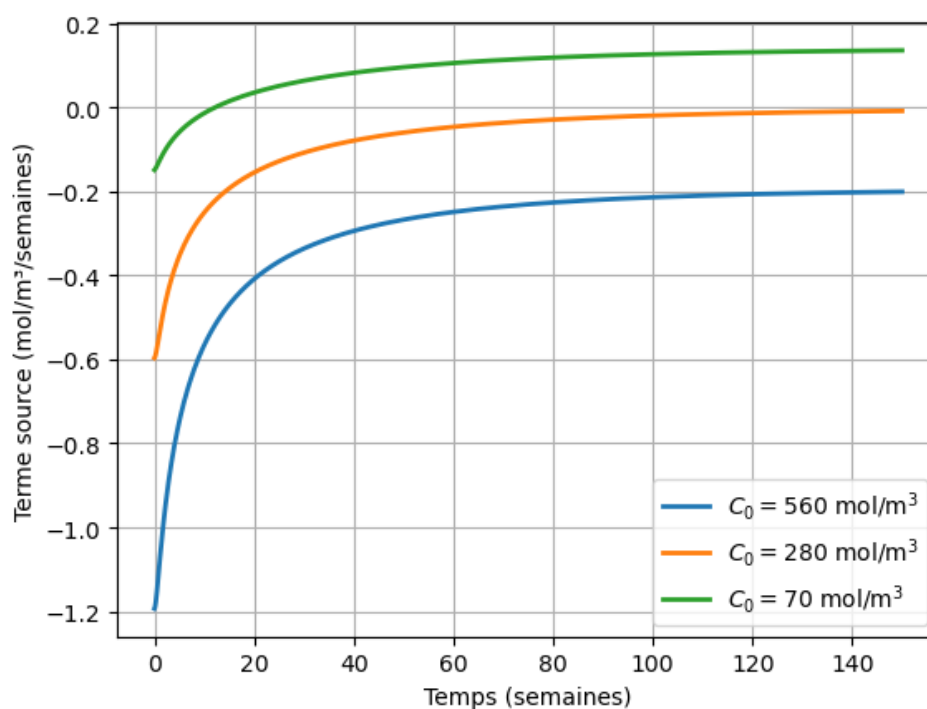


**Figure 3-18 : Variation du terme source avec la variation de  $[Na^{eq}]_{agg}(r = R) = C_0$**

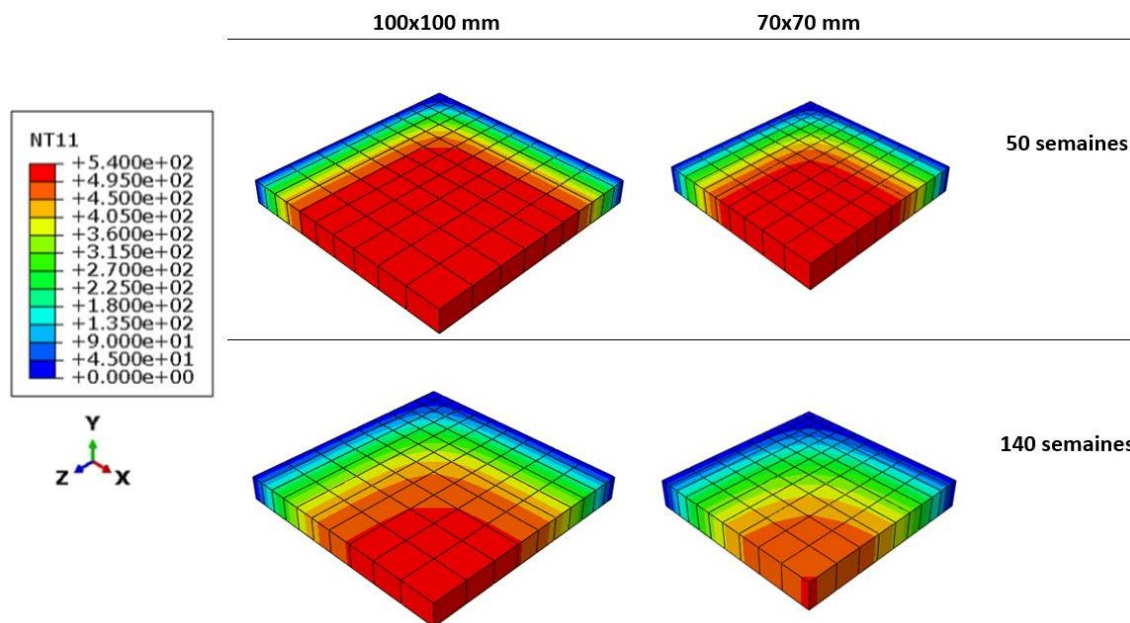


**Figure 3-19 : Profil des alcalis ( $\text{mol/m}^3$ ) dans les prismes 100 x 100 mm et 70 x 70 mm dans les conditions de lessivage (CPT) de l'expérience de Lindgard et al. (2013) pour une durée de 50 semaines et 100 semaines**

Afin de vérifier la stabilité du modèle, un pas de temps de  $5 \cdot 10^{-3}$  semaines est employé assurant la stabilité pour tous les classes des granulats réactifs. Chaque granulat est discrétisé en 50 points radialement. Pour la durée totale de 140 semaines, l'analyse chimique dure quelques minutes.

La Figure 3-19 présente les résultats de l'analyse menée, qui montre clairement une différence de concentration en alcalis pour les deux spécimens, plus claire à la fin de la période de 140 semaines. Dans cette figure, la température donnée par Abaqus (variable NT11), représente la concentration en  $\text{mol/m}^3$  des alcalis dans la solution poreuse du spécimen. Le lessivage apparaît plus prononcé pour le petit spécimen, ce qui concorde donc avec les résultats expérimentaux. Finalement, la Figure 3-20 montre le résultat final du lessivage pour chacun des spécimens. Malgré toutes les simplifications et hypothèses faites, il semble y avoir une corrélation acceptable entre les résultats numériques prédictifs et les résultats expérimentaux. À notre connaissance, il s'agit de la première reproduction numérique du lessivage dans la littérature, qui ne fait recours à aucune calibration des conditions aux limites.

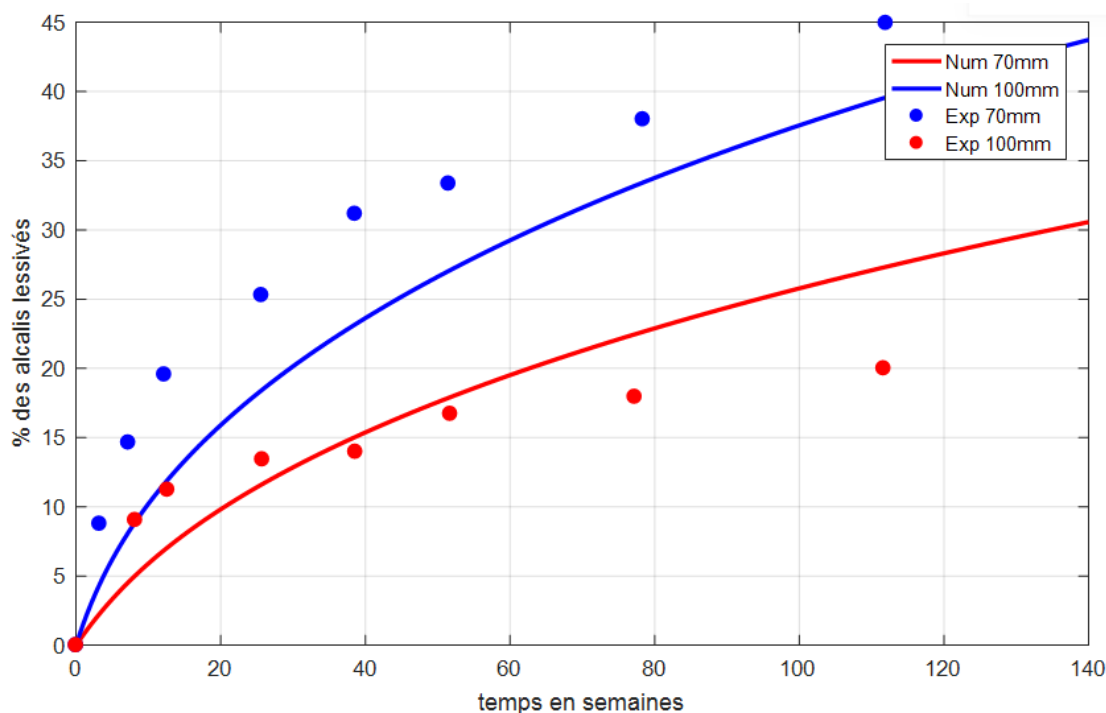


**Figure 3-20 : Résultat numérique du lessivage et comparaison aux résultats expérimentaux de Lindgard et al. 2013**

### 3.6 Discussions

La concordance entre les prédictions numériques et expérimentales n'est pas parfaite, mais il fallait s'y attendre d'après notre revue de littérature. En effet, il est clair que la condition aux limites aux bords de spécimen (concentration nulle) n'est qu'une simplification de la réalité. Les phénomènes de condensation capillaire et d'effet de capacité de puits (*sink effect*) ne sont pas considérés avec cette condition. Une modélisation plus complexe de cette condition pourrait aboutir à de meilleures prédictions, mais nous pensons qu'avant d'entreprendre une telle démarche, il est indispensable de faire un petit pas en arrière et d'avoir un regard plus critique sur les valeurs de coefficients de diffusion et de consommation des alcalis dans les granulats, pris les mêmes que dans l'étude de Multon et Sellier (2016). Selon notre compréhension, ces valeurs relatives à l'échelle mésoscopique de l'échantillon ont été obtenues par calage avec l'expansion et le lessivage expérimentaux des spécimens; qui sont des résultats à une échelle plus élevée (celle du spécimen

de béton). D'après les principes bien établis de vérification et validation (V&V, Thacker et al. 2004), cette façon de faire limiterait la capacité prédictive du schéma numérique. Il est recommandé dans le contexte d'une simulation multi-échelles d'utiliser des données expérimentales, idéalement de la même échelle. Pour le cas des coefficients de diffusion et de consommation des alcalis dans les granulats, cette échelle serait l'échelle mésoscopique. Ce point fondamental constitue la motivation principale pour les analyses par spectroscopie LIBS du prochain chapitre.

## CHAPITRE 4 ANALYSE PAR SPECTROSCOPIE LIBS

### 4.1 Introduction

L'exploration minutieuse de la microstructure des échantillons de granulats à l'aide de la spectroscopie d'émission atomique avec excitation laser ou LIBS offre une fenêtre unique sur les complexités internes de ces matériaux. Ce chapitre présente les différents algorithmes développés dans ce projet pour le post-traitement des résultats LIBS. L'application est faite sur deux échantillons de béton atteints par la RAS, minutieusement choisis de la campagne expérimentale de Chérueil (2021). Les deux échantillons présentent le même degré d'expansion en fin de la période d'entreposage de 1200 jours dans la chambre climatique, mais ils proviennent de spécimens de tailles différentes. L'idée est donc d'explorer la présence de l'effet d'échelle en comparant la composition des microstructures des deux échantillons avec la technologie LIBS.

### 4.2 Méthodologie

#### 4.2.1 Contexte de l'étude sur la RAS dans le béton et Importance de l'analyse des données LIBS dans cette étude

Un programme expérimental d'envergure ((Lemery, 2018), (Chérueil, 2021) et (Berton, 2022)) a débuté il y a six ans et a impliqué la reconstitution de mélanges de béton de masse avec granulats réactifs et représentatifs des mélanges de béton utilisés dans la construction d'une installation hydroélectrique existante affectée par la RAS. Un des mélanges ciblés par cette étude et désigné par B76, a une taille maximale de granulats de 76 mm et a été utilisé dans la construction du barrage en contreforts localisé dans la rive gauche de l'aménagement. Les proportions du mélange de béton reconstitué sont données dans le Tableau 4-1.

**Tableau 4-1 : Proportions et caractérisation du mélange en étude**

|     | W/C  | Cement<br>(kg/m <sup>3</sup> ) | Type of<br>cement | Water<br>(kg/m <sup>3</sup> ) | Sand<br>(kg/m <sup>3</sup> ) | 6-20 mm<br>(kg/m <sup>3</sup> ) | 20-40 mm<br>(kg/m <sup>3</sup> ) | 40-76 mm<br>(kg/m <sup>3</sup> ) | Na <sub>2</sub> O <sub>eq</sub><br>(kg/m <sup>3</sup> ) | Comp. str.<br>f <sub>c</sub> (MPa) |
|-----|------|--------------------------------|-------------------|-------------------------------|------------------------------|---------------------------------|----------------------------------|----------------------------------|---------------------------------------------------------|------------------------------------|
| B76 | 0.57 | 224                            | Low<br>Heat       | 128                           | 691                          | 440                             | 293                              | 612                              | 3.0                                                     | 24.0                               |

Plus de 15 grands blocs de béton ont été coulés (Figure 4-1(a)), mesurant 600 mm x 600 mm x 400 mm, dans le cadre d'essais de fendage en coin visant à caractériser l'énergie de fissuration du béton.

Trois de ces blocs ont été spécifiquement conçus avec des goujons en acier pour contrôler l'expansion. Des dalles de béton ont également été fabriquées avec le même mélange, et des carottes cylindriques ( $\varnothing$  150 mm) ont été prélevées et conservées dans des conteneurs étanches. Les blocs et les carottes ont été entreposés dans des conditions environnementales spécifiques à une température de 38°C et dans des conditions variables d'humidité relative atteignant 95%. Pour des détails supplémentaires sur les conditions hydriques, il est recommandé de se référer au mémoire de Chérueil (2019). Les essais de fendage en coin ont été réalisés à différents intervalles au cours de la campagne expérimentale, avec des entailles initiales de longueurs variables (Figure 4-1(b)), puis des carottes cylindriques ( $\varnothing$  150 mm) ont été extraites de chaque bloc pour effectuer l'analyse pétrographique par DRI (*Damage Rating Index*). Une fois la DRI finalisée, deux échantillons différents ont été sélectionnés pour effectuer une spectroscopie LIBS : un en provenance d'un spécimen cylindrique dénommé B76-CAR-2 et un issu d'une carotte extraite du bloc dénommé B76-BLOCK-3.

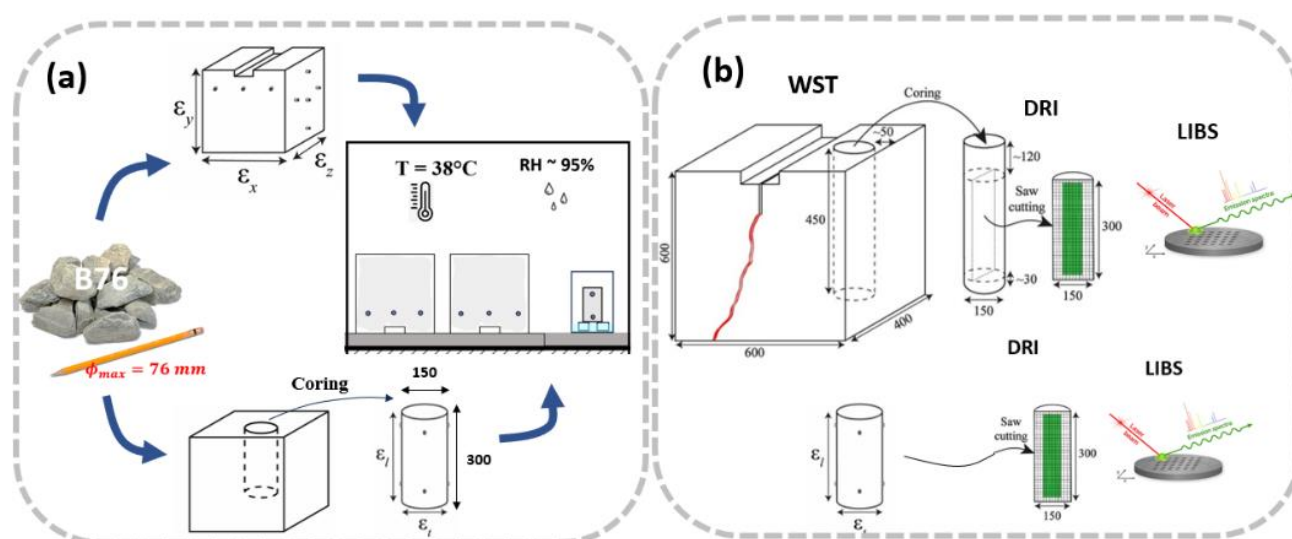


**Figure 4-1 : Méthodologie de la campagne expérimentale : (a) avant les essais de fendage ; (b) après les essais de fendage**

Les deux spécimens B76-CAR-2 et B76-BLOCK-3 ont été choisis pour cette étude, car ils ont atteint à peu près la même expansion volumétrique à la fin de la période de stockage de 1200 jours de  $\varepsilon_v \approx 0.52\%$  (Figure 4-2) et un niveau d'endommagement interne similaire (indice de DRI autour de 200). En raison de l'effet d'échelle chimique, l'expansion des blocs semble encore se poursuivre, alors qu'elle atteint sa valeur asymptotique pour cylindres (Figure 4-3).

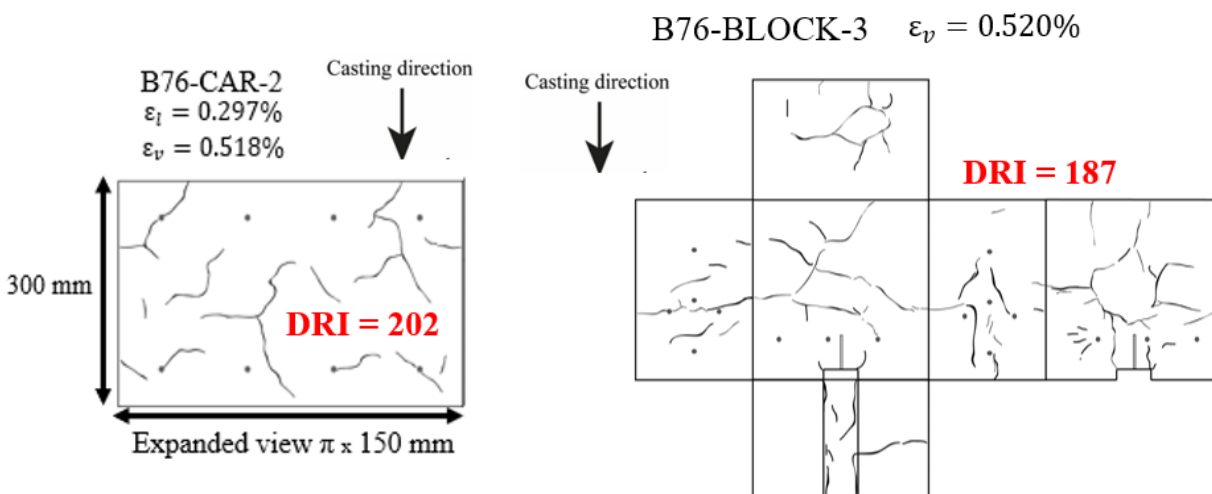


Figure 4-2 : Comparaison des spécimens B76-CAR-2 et B76-BLOCK-3 : profils de fissuration, expansions et DRI (vues développées) (tiré de Chérueil et Ben Ftima (2023))

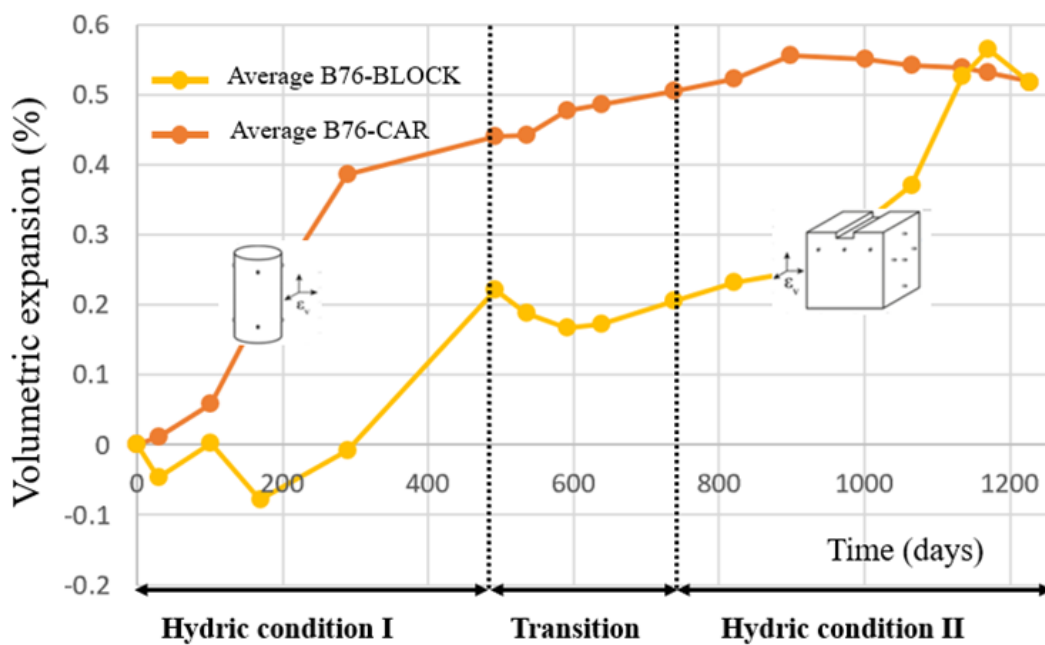


Figure 4-3 : Comparaison de l'expansion des spécimens B76-BLOCK-3 et B76-CAR-2

La Figure 4-4 montre les échantillons choisis et les surfaces scannées avec le LIBS. Le cadrillage de 1 cm x 1 cm qui apparaît sur les photos résulte du traçage qui a été fait lors de l'analyse DRI.

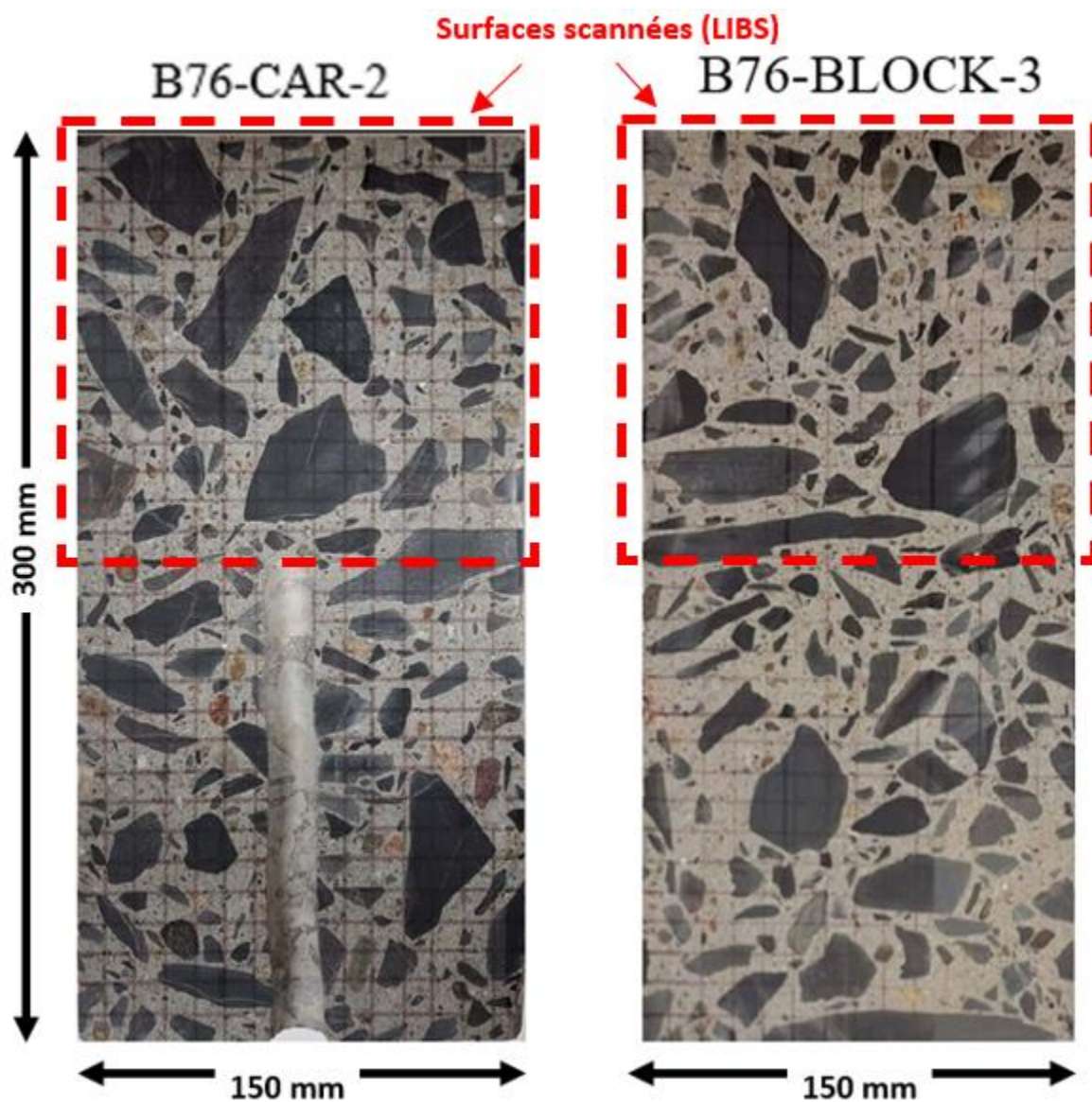


**Figure 4-4 : Échantillons choisis pour le LIBS après une durée d'essai d'expansion durant 1200 jours et après l'analyse par DRI**

### 4.2.2 Objectif principal de cette étude

L'objectif principal de cette étude repose sur une analyse approfondie de la composition chimique des deux échantillons via la technologie LIBS, se penchant particulièrement sur les concentrations en alcalis et en silice réactive.

Le scan des deux échantillons a été réalisé sur la plateforme *Coriosity* de la compagnie ELEMISSION. Le scan a été réalisé avec une résolution de 200  $\mu\text{m}$ . Les éléments clés examinés au cours de cette étude incluent le sodium (*Na*), le potassium (*K*), le calcium (*Ca*) et le silicium (*Si*), tous jouant un rôle crucial dans la réaction alcali-silice (RAS). Les données reçues (en format .csv) donnent l'information respective sur le pic caractéristique de la longueur d'onde de l'élément chimique par point de scan. Ainsi, une matrice d'intensités par position (x,y) est donnée, contenant plus de 1 million d'éléments par échantillon. De plus, l'intensité de la ligne spectrale de chaque élément est divisée par la plus grande valeur trouvée parmi tous les pixels. Pour permettre la comparaison entre les deux échantillons, la plus grande valeur entre les échantillons est utilisée dans cette normalisation, ce qui donne une variable scalaire entre 0 et 1 pour chaque position.

Comme l'analyseur LIBS CORIOSITY peut effectuer des balayages sur une surface maximale de  $40 \times 40 \text{ mm}^2$ , alors que notre échantillon mesure  $150 \times 300 \text{ mm}^2$ , le scan a été effectué par morceaux. Le spécimen a été divisé en 4 sections horizontalement et 8 sections verticalement. En connaissant la localisation des différents éléments de scan et leurs positions, des opérations ont été effectuées sur les fichiers .csv pour obtenir la matrice finale de pixels de taille  $696 \times 1500$ .

Un code programmé en *Python* a été développé pour cette étape préliminaire de post-traitement et pour l'affichage des images reconstituées des concentrations relatives des éléments chimiques (un pixel par point de scan). Un code de couleur a été utilisé pour générer des images de concentration relative pour les éléments chimiques de notre intérêt : *Na*, *K* et *Si* en faisant correspondre un pixel à chaque point de mesure. La couleur rouge (valeur 1) indique une forte concentration locale de l'élément, tandis que la couleur bleue (valeur 0) indique l'absence de l'élément.

La Figure 4-5 présente des exemples de résultats post-traités (intensités relatives codées en couleur) comparés pour les deux carottes, avec des courbes de niveau pour les alcalins totaux (en équivalent  $\text{Na}_2\text{O}_{eq}$ ) et le silicium.

La quantité d'alcalis totale est la somme des alcalis présents dans le ciment et des alcalis ajoutés dans l'eau de gâchage, et est quantifiée en  $Na_2O_{eq}$ . Le calcul de la quantité de  $Na_2O_{eq}$  se fait avec l'équation 4-1, qui fait appel à des facteurs de conversion basés sur les rapports des masses molaires des différents composants.

$$Na_2O_{eq} = Na_2O + 0,658 \cdot K_2O \quad 4-1$$

Pour représenter graphiquement le  $Na_2O_{eq}$ , la somme des pixels des éléments  $Na$  et  $K$  est utilisée conformément à la relation (4-1) avec une normalisation pour garantir que les valeurs des pixels soient comprises entre 0 et 1 (Figure 4-5).

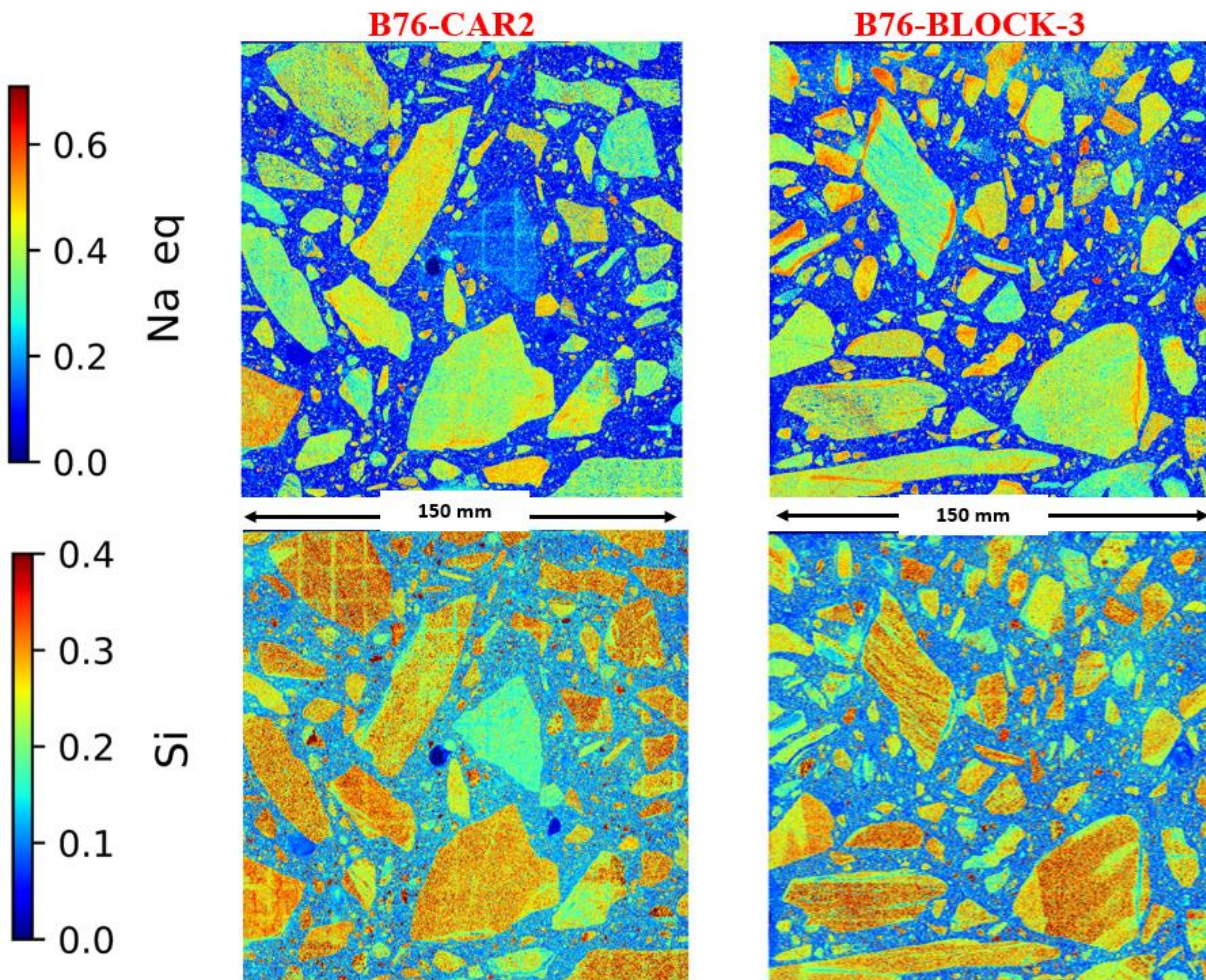


Figure 4-5 : Image mapping de  $Na^{eq}$  et  $Si$  dans les deux spécimens étudiés

La première observation captivante de la Figure 4-5 réside dans la capacité des cartographies LIBS à révéler la microstructure interne des échantillons, mettant en lumière les formes des granulats et même les fissures. Bien que la différence de concentration en silicium entre les deux spécimens soit difficile à discerner, il est qualitativement possible de déceler un profil alcalin distinct au sein des granulats.

Concernant l'échantillon extrait de B76-CAR-2, la distribution des alcalis semble être plus diffuse, s'étendant à travers les granulats, tandis que pour l'échantillon de B76-BLOCK-3, elle se concentre davantage au niveau des fissures induites par la RAS, près des limites externes des granulats.

Cette figure démontre des profils de distribution des alcalins différents entre les deux échantillons. Pour l'échantillon B76-CAR-2 (impacté par les effets d'échelle), un profil presque uniforme est observé, alors que pour l'échantillon B76-BLOCK-3, une distribution moins diffuse est observable, avec des concentrations aux voisinage des fissures se formant proche des frontières externes des granulats. Une autre constatation est que les alcalis sont en quantité très faible dans le ciment, ce qui peut être attribué soit au lessivage des ions alcalins dans la solution poreuse du ciment, soit au processus de traitement de surface qui a eu lieu lors des opérations de sciage (avec jet d'eau) et ponçage de surface en préparation aux analyses DRI. Les éléments chimiques alcalins se trouvant dans le granulat ont été moins probablement affectés (soit par le lessivage, soit par les opérations de préparations pour la DRI) puisqu'ils sont liés aux éléments de silice dans les gels de RAS formés.

Afin de confirmer de manière quantitative ces tendances, des algorithmes de post-traitement avancé de données LIBS ont été développés.

### 4.2.3 Post-traitement avancé des données

Dans le cadre de cette étude, les algorithmes de post-traitement avancé des données LIBS ont été réalisés en utilisant un ensemble de bibliothèques *Python* spécialisées dans le traitement d'images, la manipulation de données scientifiques et de géométrie :

- La bibliothèque *NumPy* a été utilisée pour effectuer des opérations matricielles complexes nécessaires à la manipulation des données.

- La bibliothèque *OpenCV* (*Open Source Computer Vision*) a joué un rôle central en facilitant des opérations de traitement d'images telles que la lecture des images et les opérations morphologiques.
- La bibliothèque *Pandas* a été utilisée pour faciliter la manipulation et l'organisation des données tabulaires.
- La bibliothèque *Scikit-image* a été utilisée pour la détection précise des contours, la segmentation d'images, le seuillage, ainsi que l'application de différents filtres, contribuant ainsi à améliorer la qualité de l'analyse d'images.
- La bibliothèque *Shapely* a été particulièrement utile pour l'association précise des contours à des polygones, fournissant des fonctionnalités avancées de manipulation géométrique. Elle a été utilisée de manière spécifique pour créer des zones tampons autour des contours détectés, facilitant ainsi la modélisation progressive de la concentration du granulat depuis la limite externe jusqu'au centre, à travers l'utilisation de la fonction *buffer*.

Les bibliothèques sélectionnées ont été utilisées de manière stratégique, tirant parti de leurs fonctionnalités spécialisées pour élaborer des algorithmes efficaces dédiés à l'analyse spatiale approfondie des données LIBS. Les algorithmes de post-traitement des données LIBS ont d'abord impliqué des transformations matricielles complexes pour la séparation entre ciment et granulats, puis chaque contour reconnu de granulat a été précisément associé à un polygone, ce qui a permis une représentation géométrique précise de chaque granulat.

Ensuite, une procédure d'indexation complexe a été utilisée pour attribuer une étiquette unique à chaque granulat. Enfin, une évaluation spatiale détaillée de la distribution des alcalins dans chaque granulat séparé a été réalisée. Toutes ces opérations seront détaillées dans les sections suivantes.

### 4.3 Création des masques binaires pour la distinction ciment/granulats

Les données LIBS relatives aux éléments chimiques ( $Na$ ,  $Si$ ,  $K$  et  $Ca$ ) provenant d'un échantillon de béton ont été analysées afin de générer une cartographie précise, permettant ainsi de discerner distinctement la zone correspondant au ciment de celle des granulats.

L'objectif principal de cette étude consiste à réaliser une segmentation claire de l'image en utilisant une méthode de seuillage d'image, en utilisant l'opération *ceil* (arrondi au plus proche entier supérieur). Cette approche de seuillage d'image est déployée dans le but d'isoler de manière efficiente les régions d'intérêt, facilitant ainsi la distinction visuelle entre les composants ciment et granulats au sein de l'échantillon de béton.

#### 4.3.1 Utilisation de l'opération *ceil* pour classier les points du béton

Pour générer un masque binaire distinguant les granulats (représentés par 1) du ciment (représenté par 0), la démarche s'appuie sur le pourcentage de présence des éléments chimiques comme fondement. Les éléments  $Na$ ,  $Si$ , et  $K$  sont principalement localisés dans les granulats, tandis que l'élément  $Ca$  est absent de ces derniers.

L'idée est d'obtenir une matrice de données reflétant la distribution des éléments selon la formule suivante :

$$data_{moyenne} = \frac{data_{Na} + data_K + data_{Si} - data_{Ca}}{4} \quad 4-2$$

Ensuite, l'application de l'opération *ceil*, qui arrondit la valeur moyenne à l'entier supérieur, est réalisée pour obtenir le masque binaire. Le raisonnement sous-jacent à cette approche est le suivant :

- La valeur moyenne fournit une estimation globale de la présence des éléments chimiques dans le béton.
- L'utilisation de l'opération *ceil* permet de classier les points du béton en deux catégories distinctes : présence dans les granulats (valeurs > 0) ou dans le ciment (valeurs ≤ 0).

Ce processus de création de masque binaire offre une approche efficace pour segmenter l'image, permettant ainsi une distinction visuelle claire entre les composants granulats (blanc) et ciment (noir) dans l'échantillon de béton comme l'illustre la Figure 4-6.

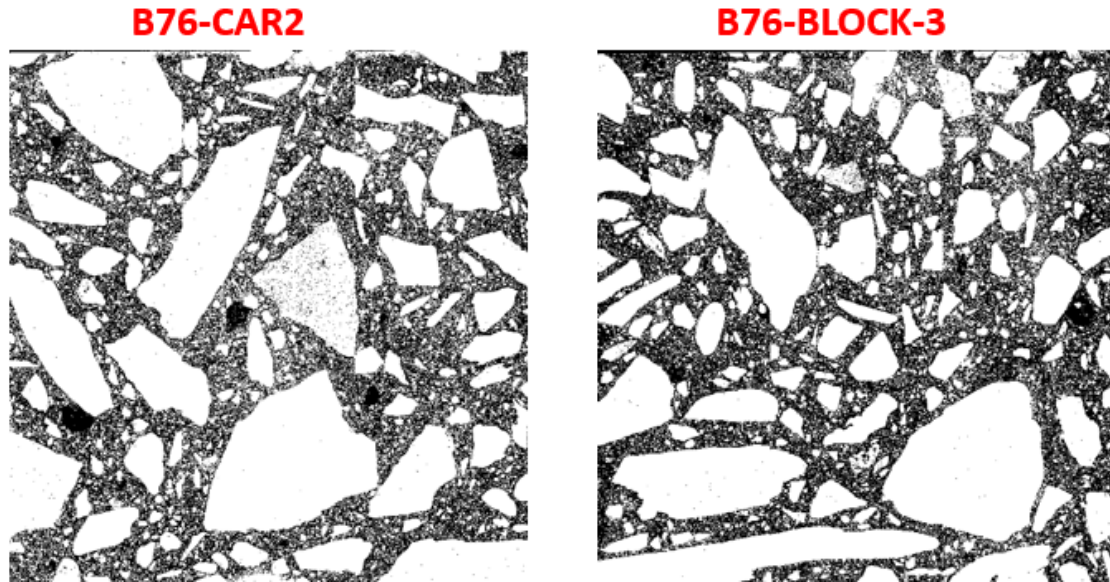


**Figure 4-6 : Segmentation des composants dans l'échantillon de béton : masque binaire distinguant granulat et ciment**

#### **4.3.2 Application de l'opération d'ouverture morphologique pour un masquage précis**

Suite à l'obtention du masque binaire, des imprécisions ont été observées dans certaines zones. Afin de régler ce problème tout en préservant les régions des granulats et du ciment, l'opération morphologique d'ouverture (*Morphological Opening*) a été employée. L'ouverture morphologique appliquée d'une manière systématique, consiste en une séquence d'érosion (*Erosion*) suivie de dilatation (*Dilatation*). L'érosion a été utilisée pour réduire les petites taches indésirables dans le masque binaire, tandis que la dilatation a permis de restaurer la forme globale des objets plus grands, préservant ainsi les caractéristiques des régions de granulats et de ciment de manière impartiale. Après application de l'opération morphologique d'ouverture, la qualité du masque a été améliorée et le bruit a été grandement réduit surtout de la pâte de ciment (Figure 4-7).

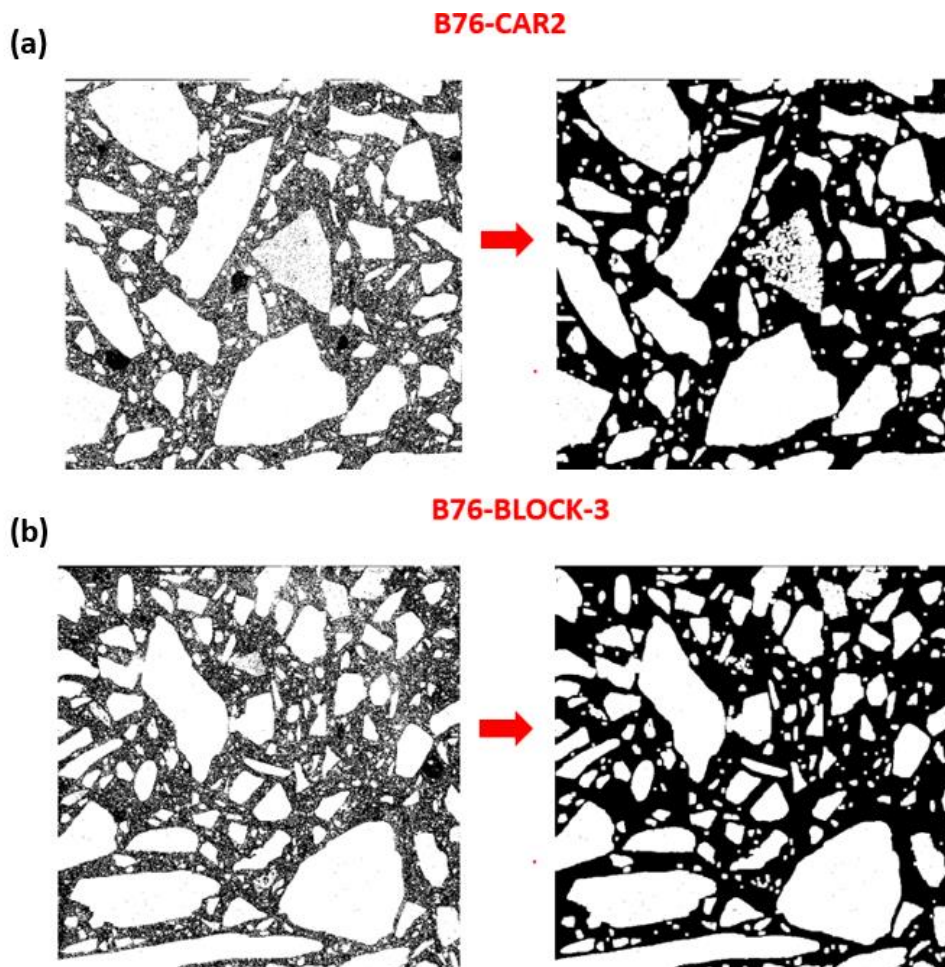


**Figure 4-7 : Amélioration du masque binaire : avant et après l'opération d'ouverture morphologique**

## **4.4 Analyses avancées avec le masque binaire**

### **4.4.1 Cartographie distincte des éléments chimiques dans le ciment et les granulats**

L'exploitation du masque binaire facilite la création de cartes de distribution, permettant une visualisation précise de la répartition de chaque élément chimique de manière distincte dans le ciment et les granulats. En utilisant le masque comme guide, il devient possible de générer des cartes spécifiques pour chaque élément chimique, mettant en évidence leur distribution respective au sein de ces deux zones spécifiques.

La cartographie sélective basée sur le masque permet une exploration visuelle approfondie des concentrations d'éléments individuels, contribuant ainsi à une compréhension plus approfondie des caractéristiques chimiques distinctes du matériau dans chaque zone.

La Figure 4-8 présente la distribution du  $Na^{eq}$  dans l'ensemble des spécimens, puis de manière distincte dans les granulats uniquement, et enfin dans le ciment. Cette représentation visuelle permet d'observer les variations de la concentration de  $Na^{eq}$  dans l'échantillon de béton, offrant une distinction claire entre la distribution globale, celle spécifique aux granulats, et celle limitée au ciment, mettant en exergue l'avancement de la réaction et la migration de tous les alcalis à l'intérieur du spécimen.

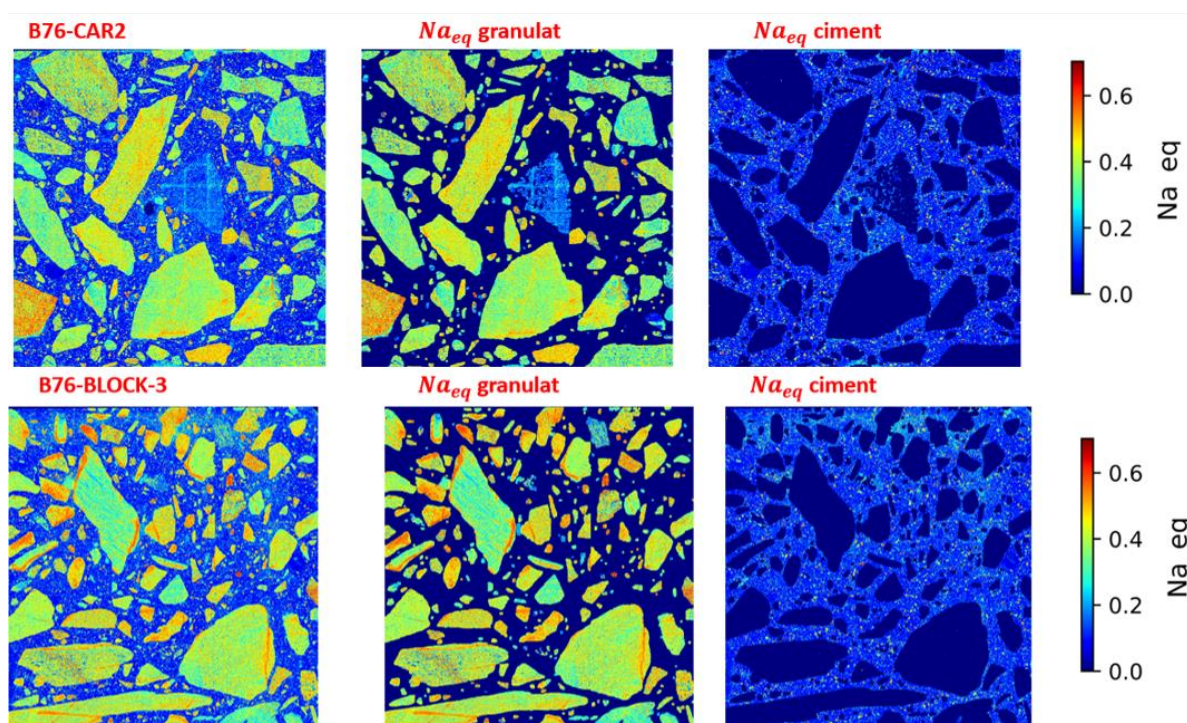


Figure 4-8 : Cartographie sélective de  $Na^{eq}$  : spécimen, granulats et ciment

#### 4.4.2 Cartographie statistique des concentrations d'éléments chimiques

Outre sa capacité à fournir une représentation visuelle claire, cet outil permet la réalisation d'analyses statistiques détaillées. Dans le contexte de l'étude du phénomène de lessivage des alcalis, notre intérêt se porte sur la représentation de la cartographie en largeur des alcalis dans le ciment. Cela est réalisé en créant une nouvelle matrice contenant uniquement les pixels associés aux alcalis dans la pâte de ciment à l'aide d'un masque binaire. Ensuite, pour tracer la distribution des alcalis

dans le ciment dans le contexte du lessivage, nous effectuons la sommation des pixels pour chaque colonne, divisée par la somme totale de la matrice des données existantes. Ceci est particulièrement pertinent, étant donné que le ciment est la principale source d'alcalis dans le béton. La Figure 4-9 montre la cartographie réalisée en largeur des deux spécimens B76-CAR-2 et B76-BLOCK-3.

On constate qu'il n'y a pas de signe visuel de lessivage, plus particulièrement pour l'échantillon en provenance du spécimen cylindrique. De plus, la quantité des alcalis dans le ciment est faible pour les deux spécimens. Les mêmes explications données dans la section 4.2.2 précédente peuvent être données ici. Ainsi, il est très probable que les opérations réalisées lors de la réalisation du DRI aient en quelque sorte 'pollué' les échantillons. Plus spécifiquement, on estime que la quantité d'alcalis dans la pâte de ciment a été lessivée par les opérations de sciage avec apport d'eau et polissage (Berton, 2022).

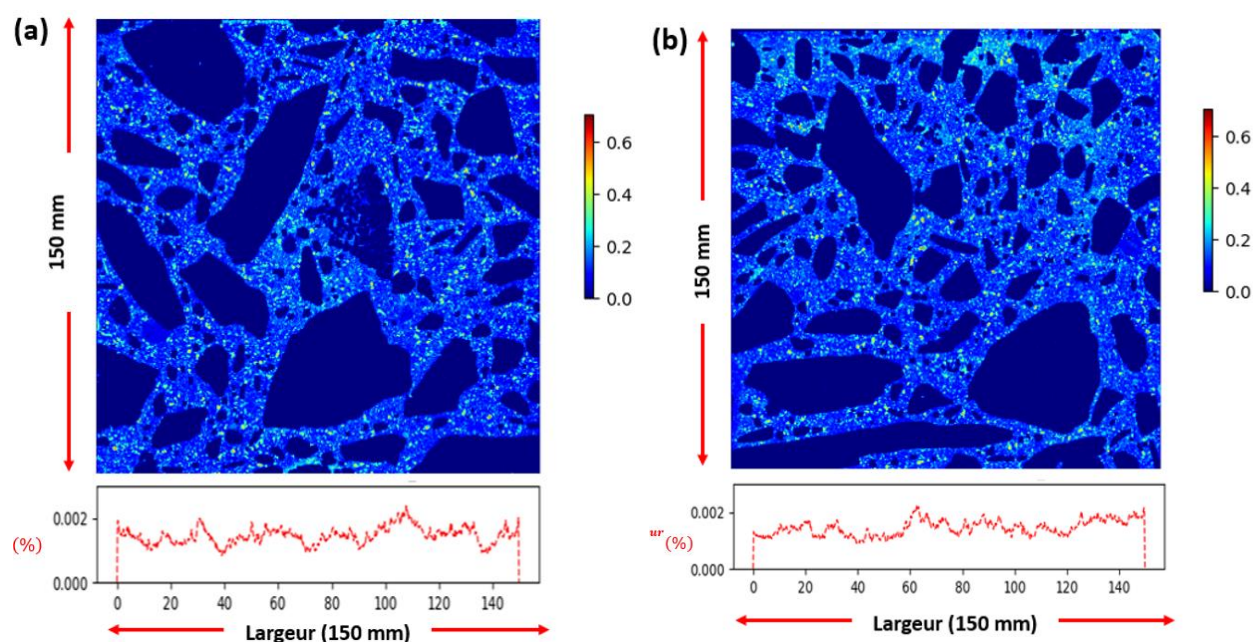


**Figure 4-9 : Cartographies de  $Na^{eq}$  en largeur dans les deux échantillons : B76-CAR-2 (à gauche) et B76-BLOCK-3 (à droite)**

## 4.5 Exploration des résultats LIBS dans les granulats

Afin de pouvoir étudier la cartographie des éléments chimiques dans les granulats et de réaliser des comparaisons aux distributions théoriques représentées Figure 3-8(a) et Figure 3-8(b) du chapitre précédent, des techniques de segmentation avancée et d'indexation de granulats sont utilisées au préalable pour isoler en premier lieu chacun des granulats.

Il est crucial de souligner que cette approche ne recourt pas à l'intelligence artificielle, mais se base exclusivement sur des opérations mathématiques avancées et sur les bibliothèques disponibles en Python. Le masque binaire établi précédemment constitue ainsi une donnée d'entrée essentielle aux algorithmes développés dans cette section.

Les différentes étapes de l'algorithme seront abordées de manière exhaustive dans cette section.

### 4.5.1 Segmentation avancée pour la détection des granulats

#### Opération de filtrage

Cette étape lisse les données et réduit le bruit, ce qui facilite l'identification des variations significatives associées aux limites des granulats. En ce qui concerne le choix du filtre, nous avons effectué une étude paramétrique sur plusieurs types de filtres disponibles en traitement d'image, tels que le filtre Gaussien, le filtre médian, et le filtre Laplacien.

Parmi ces filtres, le filtre Gaussien s'est révélé particulièrement efficace pour notre application. Il est couramment utilisé pour le lissage et la réduction du bruit, et il est bien adapté pour atténuer les variations indésirables dans le masque binaire.

#### Détection des contours des granulats

Dans cette étape du processus, la fonction *find\_contours* de la bibliothèque *Scikit-image* est utilisée pour extraire les contours des granulats à partir du masque binaire filtré. Cette fonction analyse le masque binaire filtré et identifie les positions où se produisent des transitions significatives entre les pixels, définissant ainsi les contours des objets. Les contours générés sont représentés sous forme d'ensemble de points décrivant les limites des granulats dans le masque binaire.

Pour améliorer la précision de cette identification, un processus de traitement des contours est appliqué. Ce processus examine attentivement tous les contours identifiés et élimine ceux qui sont

entièrement contenus à l'intérieur d'autres contours. L'objectif est de conserver uniquement les contours extérieurs, assurant ainsi une définition claire des limites individuelles des granulats.

Le résultat final de cette étape est un ensemble de contours extérieurs qui délimitent distinctement chaque granulat dans l'échantillon de béton (Figure 4-10).

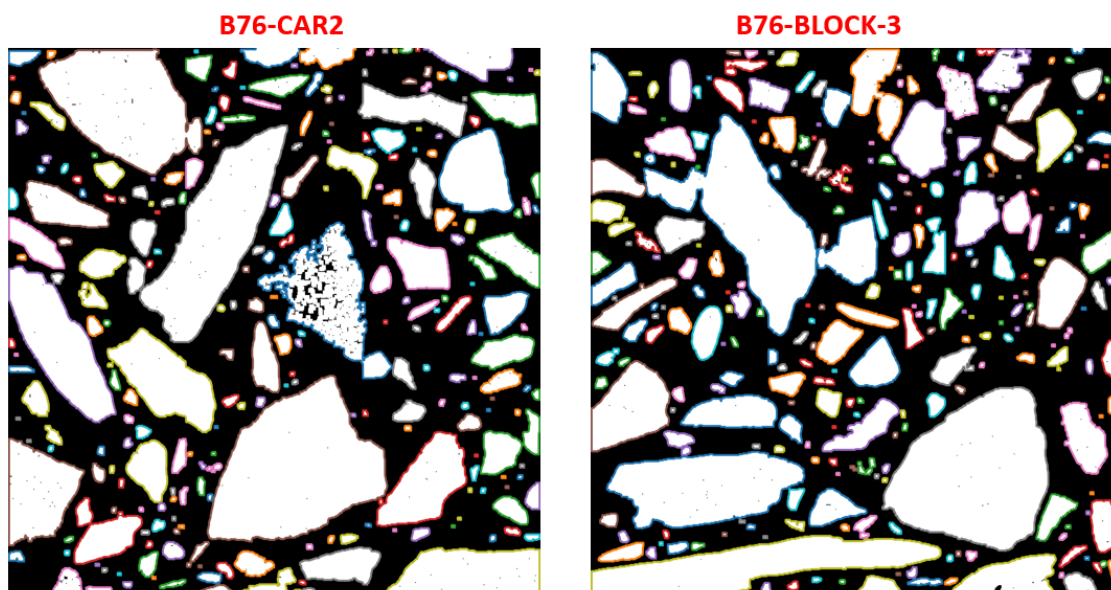


**Figure 4-10 : Présentation des résultats de segmentation avancée des granulats**

#### 4.5.2 Indexation des différents granulats

Le processus d'indexation des granulats dans le code s'articule autour d'une série d'opérations géométriques. Tout d'abord, chaque contour résultant du traitement du masque binaire est traité individuellement. À chaque contour détecté (granulat détecté), et en utilisant la bibliothèque *Shapely*, un objet *Polygon* est généré à partir des coordonnées (x, y) de chaque contour, facilitant ainsi les analyses géométriques ultérieures. Ensuite, l'aire de chaque granulat est calculée en utilisant la propriété *area* de l'objet *Polygon*. Une aire seuil est définie pour filtrer les granulats en fonction de leur taille, permettant uniquement la visualisation des granulats de taille significative, excluant ainsi les plus petits considérés comme du bruit visuel. Si l'aire calculée dépasse ce seuil prédéfini, un numéro d'indice est attribué à ce granulat spécifique. Enfin, pour une identification visuelle claire, le numéro d'indice attribué est positionné au centre du granulat dans l'image. Cette approche combinée d'analyse géométrique et de représentation visuelle permet d'obtenir les résultats finaux de Figure 4-11.

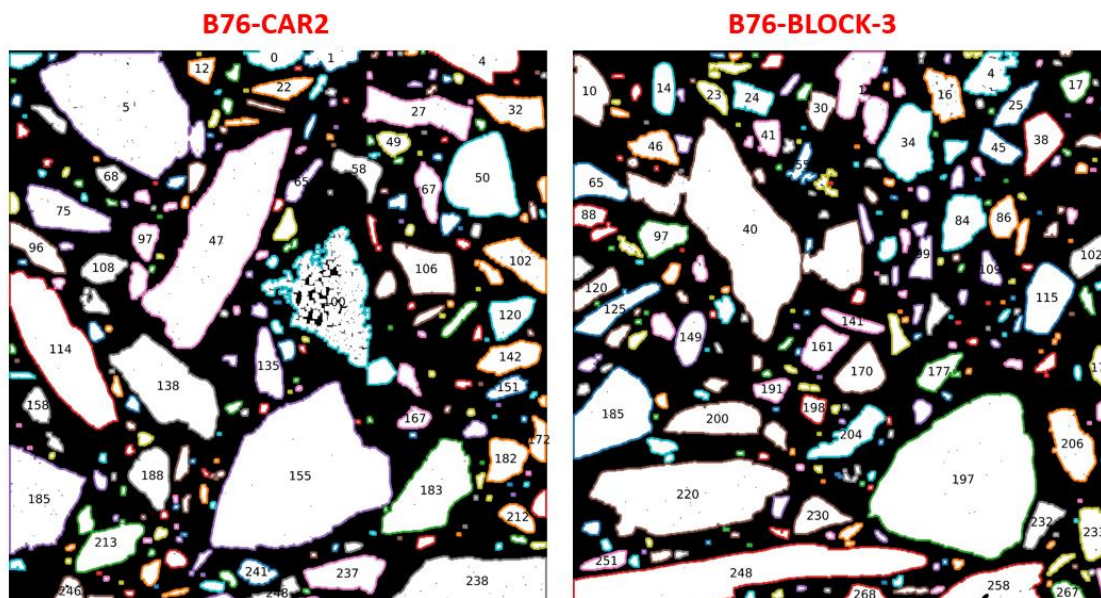


**Figure 4-11 : Résultats d'indexation des granulats**

### 4.5.3 Concentration d'éléments chimiques dans les granulats isolés

#### Isolation du granulat (masque granulat)

Ce processus permet de créer un masque délimitant précisément la région du granulat dans l'image, facilitant une exploration détaillée de ses propriétés chimiques et physiques par la suite. La Figure 4-12 montre l'isolation du granulat 155 de l'éprouvette B76-CAR-2.

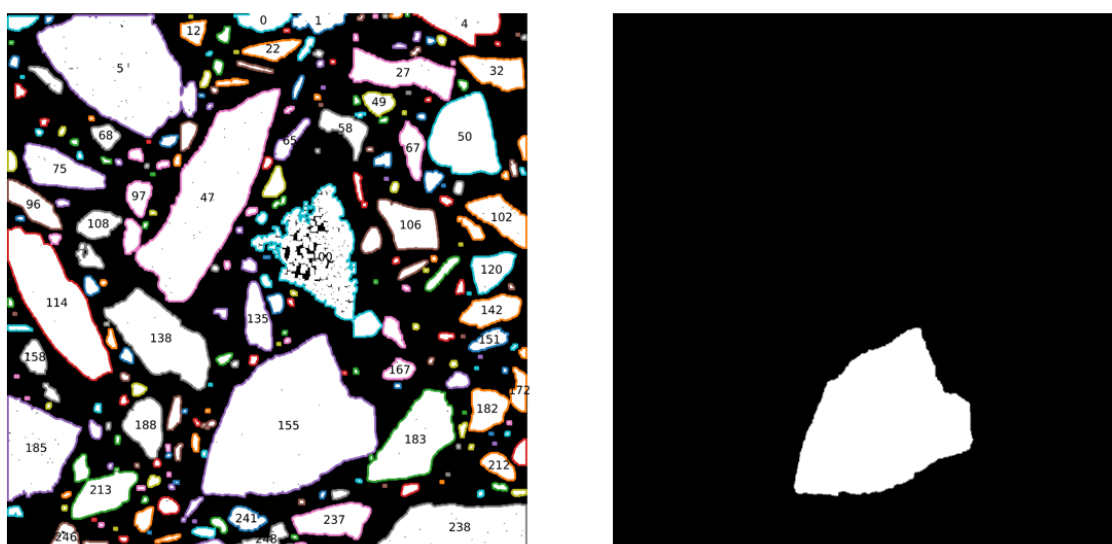


**Figure 4-12 : Création du masque du granulat 155**

### Présentation détaillée de la distribution spatiale d'un élément chimique dans le granulat

Lors de l'isolement du granulat à l'aide du masque, les informations sur les limites du contour sont enregistrées. Cette approche permet d'extraire les coordonnées, notamment la limite droite ( $x_{max}$ ), la limite gauche ( $x_{min}$ ), la limite supérieure ( $y_{max}$ ), et la limite inférieure ( $y_{min}$ ) du contour (Figure 4-13). En conséquence, la largeur et hauteur délimitatrices du contour, respectivement,  $w$  et  $h$ , sont calculées.

Pour la suite des calculs, on suppose que la concentration d'un élément chimique dans une zone donnée est proportionnelle à la somme de pixels de l'élément chimique divisée par la surface de la zone (Figure 4-13).

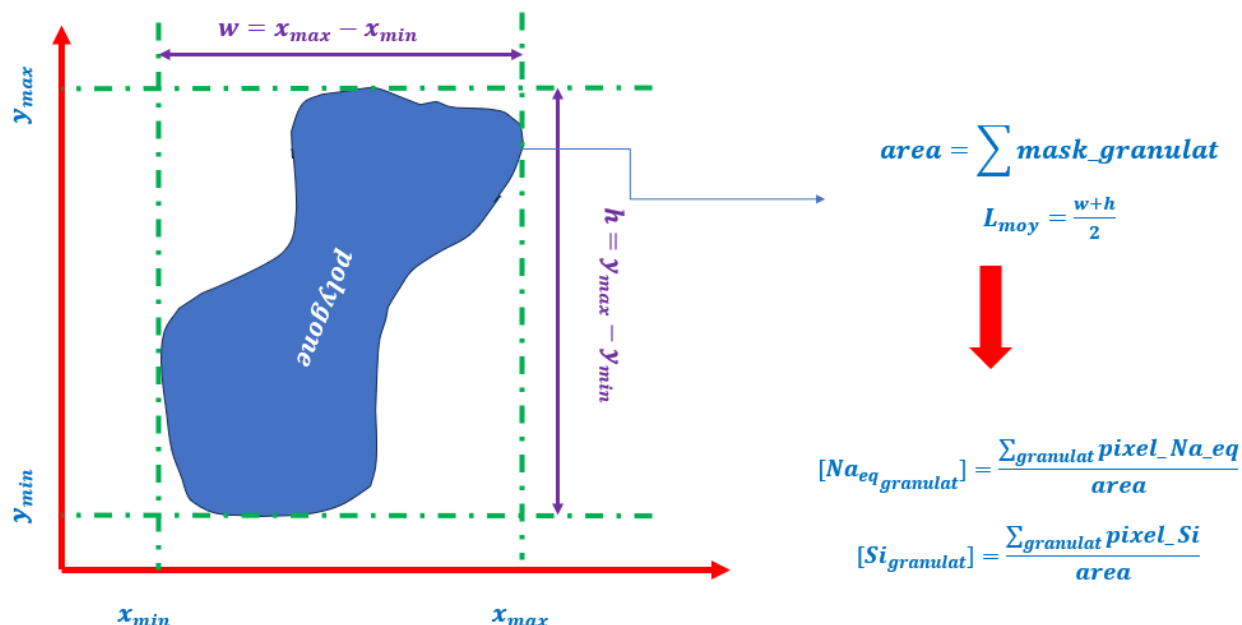


**Figure 4-13 : Schématisation de l'étape d'extraction d'informations pour une forme quelconque d'un granulat**

Une procédure originale a été développée afin de définir plusieurs zones internes dans le granulat, qui sont définies par des polygones homothétiques à la forme du contour externe (Figure 4-14). L'idée est donc de calculer la concentration des éléments dans ces zones afin d'étudier la distribution de concentration de l'élément chimique dans le granulat, en le parcourant de l'extérieur vers l'intérieur. Cette façon de faire permet de traiter n'importe quelle forme géométrique de granulat et élimine la limitation aux formes circulaires simplifiées souvent rencontrées dans la littérature.

Dans chaque zone interne délimitée entre deux polygones, la concentration pour un élément chimique donné est estimée en calculant le ratio entre la somme des pixels pour l'élément en question et l'aire de la zone (Figure 4-14). En parallèle, une dimension caractéristique moyenne ( $L_{moy} = \frac{w+h}{2}$ ) est calculée pour chaque zone, afin de pouvoir représenter graphiquement l'évolution de la concentration en fonction de la position relative de la zone dans le granulat, tel que schématiquement montré dans la Figure 4-14 pour l'exemple de la concentration en alcalis.

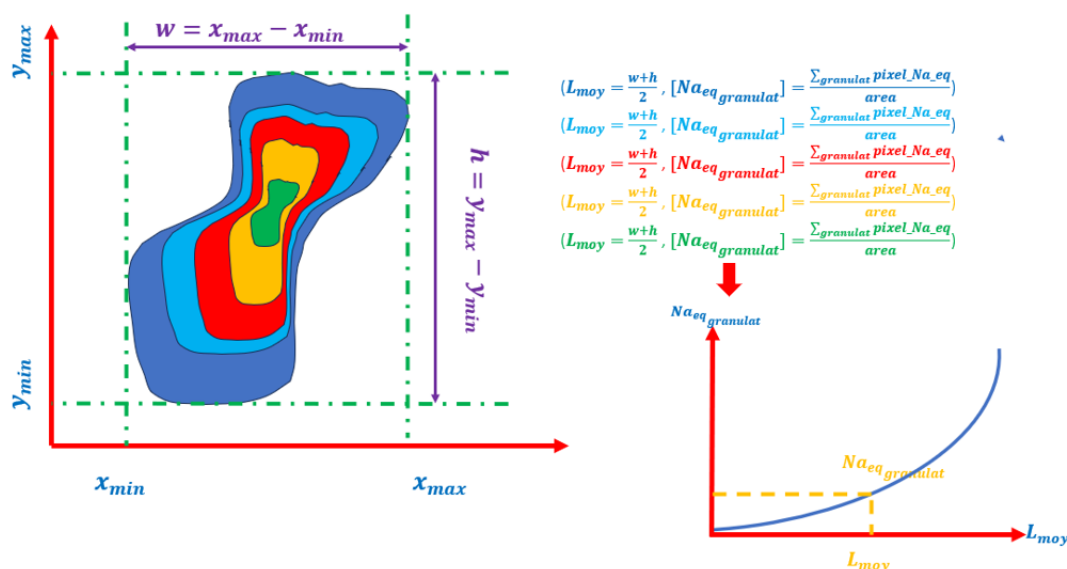


**Figure 4-14 : Procédure pour l'étude de la distribution spatiale d'un élément chimique dans le granulat**

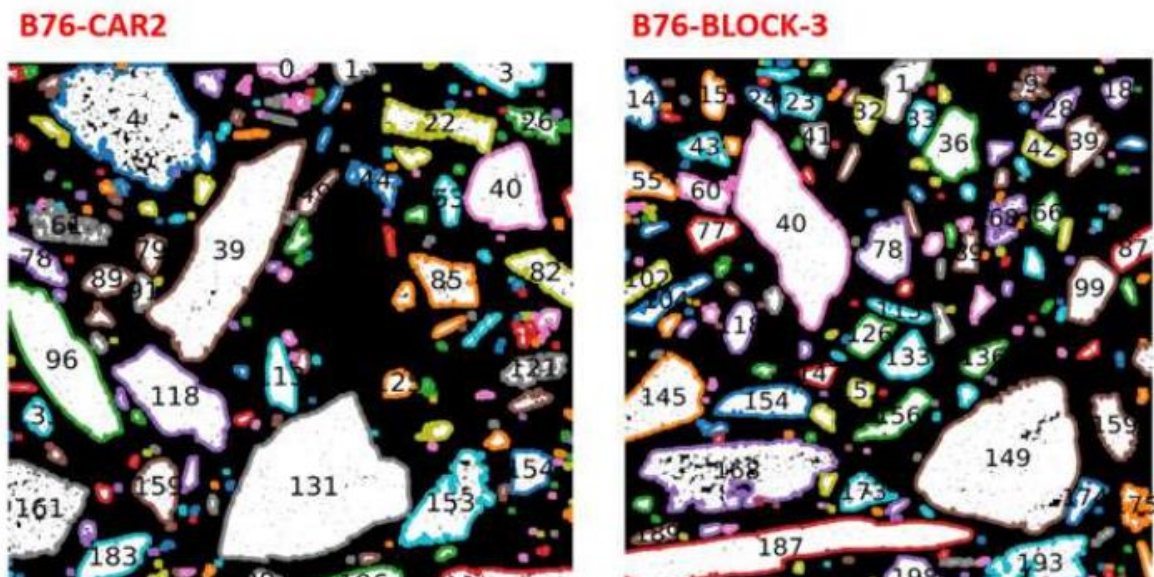
#### 4.5.4 Application

La procédure décrite précédemment est appliquée pour les granulats 39 et 40, respectivement des échantillons provenant de B76-CAR-2 et B76-BLOCK-3. Ces deux granulats (montrés à la Figure 4-15(a)) ont été choisis parce qu'ils ont des formes assez similaires.

La Figure 4-15(b) montre des résultats assez prometteurs pour l'exploitation des résultats LIBS et qui sont à notre connaissance présentés pour la première fois dans la littérature. En effet, il est possible d'évaluer quantitativement et qualitativement la différence de distribution entre les deux échantillons à l'échelle locale du granulat.

Le profil de distribution de silicium n'est pas très différent entre les deux spécimens, mais il révèle une tendance quasi- uniforme avec une légère décroissance en s'approchant de la frontière du granulat. Cette tendance suggère que le gel RAS quitte par perméation le granulat en s'allant vers la pâte de ciment qui l'entoure.

(a)



(b)

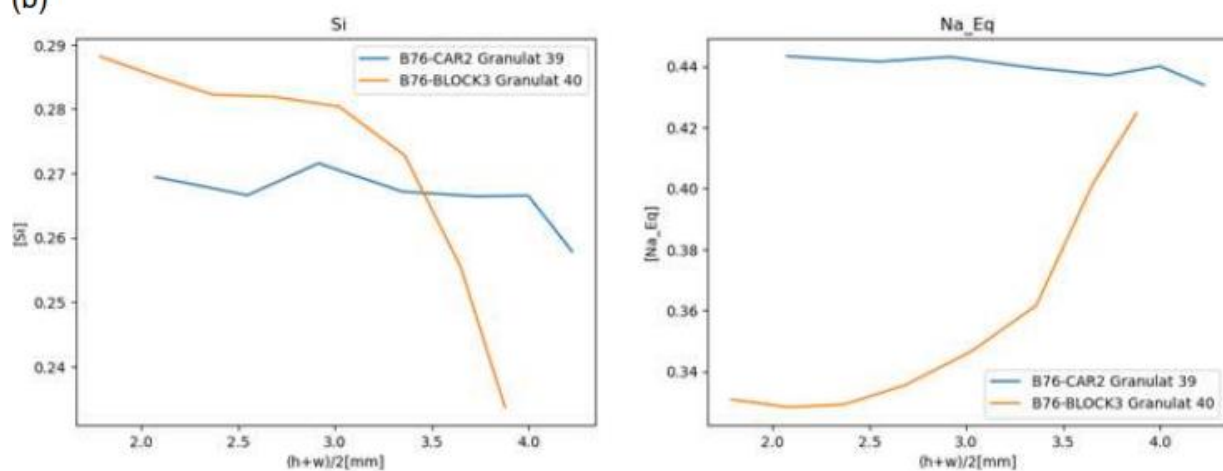


Figure 4-15 : Exploration des résultats LIBS dans les granulats : (a) Identification des granulats et (b) Comparaison des profils de distribution de  $Na^{eq}$  et  $Si$

Pour l'exemple des éléments alcalins, la figure démontre clairement des profils de distribution différents. Pour l'échantillon B76-CAR-2 (impacté par les effets d'échelle), un profil presque uniforme est observé, alors que pour B76-BLOCK-3, un gradient de concentration est identifié, avec des valeurs diminuant vers le centre de l'granulat. L'allure de ces distributions nous rappelle celle des résultats des de l'étude numérique de Takahshi et al. (2021) montrés à la Figure 3-8 du chapitre précédent.

Pour l'échantillon B76-CAR-2, l'expansion asymptotique a été atteinte avec la quantité d'alcalis laissée dans l'échantillon, après lessivage. Le profil correspond à un profil typique à la fin du processus de diffusion, avec une concentration stabilisée (voir Figure 3-8(a) à  $t = 300$  jours pour le scénario A).

En revanche, pour l'échantillon extrait du bloc, l'expansion RAS est toujours en cours, et le profil de concentration d'alcalis reflète un processus de diffusion en évolution, avec une réserve d'alcalis disponible. Le profil correspond à un profil typique pendant le processus de diffusion, avec un gradient de concentration encore présent (voir Figure 3-8(b) à  $t = 300$  jours pour le scénario B).

En combinant les analyses numériques à l'échelle du granulat développées au chapitre 3 précédent (section 3.3), et les distributions trouvées avec le LIBS, il est possible par analyse inverse de quantifier les intrants requis tel que le coefficient de diffusion dans le granulat ( $D_{agg}$ ) et la constante de réaction RAS ( $k$ ). D'après les principes bien établis de « Vérification & Validation » (V&V), cette approche serait beaucoup plus robuste que l'approche de calage basée sur les résultats d'expansion ou de lessivage à l'échelle du spécimen (par exemple utilisée dans Sellier et Multon (2016)) et donc une à une échelle plus élevée que celle du granulat. À notre connaissance, une telle démarche n'a jamais été entreprise dans la littérature pour le contexte de la RAS. Elle constitue la suite logique à ce projet de recherche.

## CHAPITRE 5 CONCLUSIONS

### 5.1 Conclusions

Cette étude fait partie d'un projet de recherche dont l'objectif à long terme est la prédiction du comportement futur d'un aménagement hydraulique existant atteint par la RAS, via des analyses numériques par éléments finis. La cinétique d'expansion libre du béton due à la RAS est un intrant important pour ces analyses. Elle pourrait théoriquement être caractérisée, pour un mélange donné, via un suivi d'expansion sur des spécimens de béton de tailles raisonnables et entreposés dans des chambres environnementales à haute humidité (ex : 95%) et à haute température (ex : 38°C) pour accélérer la réaction chimique et atteindre l'asymptote dans des délais raisonnables. Or, ces expansions ne sont pas représentatives de l'expansion réelle vue par l'ouvrage, en raison de la présence d'un effet d'échelle connu dans la littérature. Les objectifs ultimes de ce travail de maîtrise sont la compréhension de cet effet d'échelle sur l'expansion et le développement de modèles numériques permettant de le reproduire. Deux grands volets ont été parallèlement explorés dans ce travail, afin d'atteindre ces objectifs. Un premier volet purement analytique et numérique vise à développer une méthodologie de calcul multi-échelles et multi-physiques pour la modélisation du phénomène de lessivage des alcalins, reconnu comme une des principales causes de l'effet d'échelle. Un deuxième volet expérimental vise à l'exploration d'une technologie émergente de spectroscopie par émission atomique (LIBS) dans le contexte de caractérisation de l'effet d'échelle à l'échelle mésoscopique. À cet effet, deux échantillons différents ont été considérés, et sont issus de spécimens en béton reconstitué (granulat maximum de 76 mm) de l'aménagement hydraulique existant. Les deux spécimens choisis ont atteint un niveau d'expansion similaire après plus de 3 ans d'entreposage dans une chambre environnementale, mais sont de tailles différentes.

La revue de littérature conduite dans ce travail a identifié différentes théories interprétatives de l'effet d'échelle sur l'expansion libre due à la RAS, notamment la perméation du gel et le lessivage des alcalis. Bien que ces deux phénomènes coexistent en réalité et requièrent une approche couplée, par souci de simplicité, notre attention s'est exclusivement portée sur la modélisation du lessivage des alcalis. Cette décision a été motivée par l'importance relative du lessivage qui est relié à la source même de la réaction, et aussi par la disponibilité d'une base de données expérimentales sur l'impact du lessivage sur l'expansion. Nous avons recensé quelques tentatives dans la littérature pour la modélisation de l'effet d'échelle en expansion. Parmi ces tentatives, une seule étude,

conduite par Multon et Sellier (2016), a considéré une approche numérique multi-échelles (granulats/spécimen) et a été appliquée pour reproduire les résultats expérimentaux conduits par Lindgard et al. (2013). Selon notre compréhension de l'article, l'étude de Multon et Sellier (2016) a procédé à une analyse inverse pour la calibration des conditions aux limites des modèles, afin de reproduire le lessivage expérimental, puisque l'objectif ultime de cette étude était de reproduire un effet d'échelle sur l'expansion, en partant de conditions de lessivages déterminées. Toutefois, cette étude a grandement influencé l'approche multi-échelles et multi-physique utilisée dans ce travail.

## 5.2 Premier volet analytique/numérique

Dans ce travail, une nouvelle méthodologie a été élaborée dans l'environnement Abaqus pour la modélisation numérique du lessivage des alcalis. Cette méthodologie de calcul multi-échelles et multi-physiques repose sur deux analyses consécutives : (i) une première analyse hydrique pour calculer le champ de degré de saturation, requis pour l'étape suivante puisqu'il influence le coefficient de diffusion des alcalins. Le module de calcul poro-mécanique disponible dans Abaqus est utilisé pour cette étape. Des ajustements ont été fait par rapport à la méthodologie suggérée dans les travaux de Ben Ftima et al. (2023) pour inclure la déformation volumétrique du béton, jugée importante pour le cas de grands gonflements; (ii) une deuxième analyse chimique est ensuite réalisée pour modéliser le processus de diffusion des ions alcalins dans la solution poreuse du béton. Cette modélisation se fait à l'échelle locale de chaque classe granulaire et à l'échelle globale du spécimen. Le module d'analyse thermique transitoire disponible dans Abaqus est utilisé, en considérant une analogie thermique-chimique où la concentration locale en alcalis dans la solution poreuse jouerait le rôle de température. Cette deuxième analyse a nécessité la programmation d'une sous-routine DFLUX en Fortran permettant le calcul d'un terme source négatif représentant la consommation d'alcalis à l'échelle des granulats; et qui tient compte du processus de diffusion des ions alcalins dans les granulats. Cette sous-routine a nécessité une discrétisation par différences finis de chaque granulat représentatif d'une classe granulaire et assumé de forme sphérique. Une tentative afin de trouver une expression analytique directe du terme source a été amorcée, mais malheureusement, par faute de temps elle n'a pas pu être finalisée.

Différentes vérifications ont été faites au cours du développement de la méthodologie, et un exemple de validation final considérant deux spécimens de tailles différentes de la campagne d'essais de Lindgard et al. (2013) a été considéré (le même exemple considéré dans les études de Multon et Sellier (2016)).

À la lumière des développements, vérifications et applications réalisés dans ce premier volet numérique, les conclusions suivantes peuvent être émises :

- Dans le cas de spécimens en milieu très humide ou des éléments d'ouvrages hydrauliques où le degré de saturation se situe entre 0.87 et 1, le coefficient de diffusion des ions alcalins dans le béton ne varie pas significativement. Il est alors possible de réaliser l'analyse chimique (deuxième analyse de la méthodologie) en assumant un coefficient de diffusion des alcalins constant dès le début de l'analyse.
- La condition aux limites au bords du spécimen dans le modèle d'analyse chimique est assez complexe. Les travaux de Costa et al. 2015 ont clairement démontré que cette condition aux limites est reliée au phénomène de condensation capillaire qui dépend lui-même du volume de vapeur d'eau disponible dans le contenant du spécimen (« *sink effect* »). Nous pensons qu'une condition de convection a été considérée dans les exemples d'application des travaux de Multon et Sellier (2016), et qui selon notre compréhension a été ajustée pour chaque exemple pour retrouver la même courbe de lessivage expérimentale. Dans le cadre de ce travail, cette condition a été assurée d'une manière simple en imposant une concentration nulle d'alcalins, en assumant que les bords du spécimen sont recouverts par une fine couche de gouttelettes d'eau non chargées en ions alcalins. Cette condition a été maintenue constante pour les exemples d'application et sans aucun ajustement.
- Malgré toutes les hypothèses simplificatrices, l'application de la méthodologie sur deux spécimens de tailles différentes de la campagne expérimentale de Lindgard et al. (2013) a démontré une bonne corrélation acceptable entre les résultats de simulation et les résultats expérimentaux de lessivage. En particulier, il était possible de reproduire l'effet d'échelle sur le lessivage. La concordance entre les résultats numériques et expérimentaux n'est pas parfaite et elle n'est pas censée l'être en absence de considération de l'effet de capacité de puits ou « *sink effect* ». Nous pensons que la considération de cet effet entraînera un effet d'échelle additionnel sur le lessivage et qu'un développement additionnel est requis

- Dans ce contexte de méthodologie en cours de développement, nous pensons qu'il est important de ne pas recourir à toute sorte de calibration (ex : via une analyse inverse) à l'échelle macroscopique du spécimen (lessivage, expansion ou autre variable d'état globale) en vue de caractériser des intrants mésoscopiques requis pour l'analyse chimique multi-échelles.
- Ce dernier point constitue l'essence même du volet expérimental qui a été entrepris dans ce projet.

### 5.3 Deuxième volet expérimental

Deux échantillons ont été prélevés de deux spécimens (cylindre et gros bloc) en béton de masse réactif, reconstitué pour un aménagement hydraulique existant atteint par la RAS. Les deux spécimens présentaient un niveau d'expansion et un niveau d'endommagement interne (évalué par la DRI) similaires, à la fin d'une période d'entreposage de plus de 1200 jours en chambre environnementale à température et humidité relative contrôlées. Les deux échantillons ont été analysés par spectroscopie LIBS avec une résolution de balayage de 200  $\mu\text{m}$ , sur la plateforme *Coriosity* de l'entreprise ELEMISSION. Cette méthode a permis une cartographie rapide et simultanée de plusieurs éléments chimiques d'intérêts pour la RAS, notamment *Na*, *K* et *Si*. Des algorithmes sophistiqués de traitement d'image ont été développés dans *Python* pour l'exploitation des résultats LIBS dans le contexte d'investigation quantitative de la mésostructure des spécimens atteints par la RAS. Il a été entre autres possible avec ces algorithmes d'isoler les granulats de la pâte de ciment et d'explorer pour la première fois dans la littérature la distribution des ions alcalins dans les gros granulats réactifs et de forme quelconque.

À la lumière des développements et applications réalisées dans ce volet, il est possible de faire les conclusions suivantes :

- L'utilisation de la technologie d'exploration LIBS est très prometteuse dans le contexte de diagnostic et de caractérisation de béton atteint par la RAS.
- Les images LIBS générées pour les différents éléments chimiques permettent une visualisation de la mésostructure interne des échantillons, mettant en évidence les formes des granulats et la présence de fissures de RAS.

- L'exploitation des résultats LIBS avec les algorithmes avancés de traitement d'image, tels que ceux développés dans ce travail, nous pensons qu'il est possible de caractériser d'une manière plus directe (et donc plus robuste de point de vue V&V), les intrants importants requis pour les analyses numériques multi-échelles, tels que le coefficient de diffusion des alcalins et le temps caractéristique de consommation des alcalins dans les granulats.
- L'examen visuel et quantitatif des deux échantillons n'a pas révélé de différence notable des distributions des éléments alcalins au niveau de la pâte de ciment (avec des faibles concentrations par rapport aux granulats). Il est possible que les étapes de préparation de surface des échantillons pour la DRI aient en quelque sorte pollué les mesures LIBS et contribué à un lessivage des ions alcalins qui étaient présents dans la solution poreuse de la pâte.
- En comparant les deux échantillons, il a été possible d'identifier visuellement une différence de concentration des ions alcalins qui semblent être plus diffus dans les granulats de l'échantillon provenant du plus petit spécimen (cylindre), qui est probablement le plus affecté par l'effet d'échelle. Pour l'échantillon prélevé du gros bloc, la distribution des alcalis semble être plus localisée au niveau des fissures induites par la RAS, près des limites externes des granulats.
- Cette observation a été validée quantitativement en appliquant l'algorithme de post-traitement des données LIBS permettant de tracer les profils de concentration chimique à l'intérieur d'un granulat sélectionné. Les résultats révèlent des profils de distribution des alcalins très différents entre deux granulats de formes similaires pris des deux échantillons. Pour le granulat de l'échantillon prélevé du petit cylindre, on observe un profil d'alcalis quasi-uniforme qui correspond au profil typique à la fin du processus de diffusion avec une concentration stabilisée. En revanche, pour le granulat de l'échantillon prélevé du gros bloc, un gradient de concentration a été observé, avec des valeurs plus faibles vers le centre du granulat. Ce profil de concentration d'alcalis reflète un processus de diffusion en évolution, avec une réserve d'alcalis disponible.

## 5.4 Recommandations

- La condition aux limites utilisée aux bords du spécimen de béton dans les analyses chimiques pourrait être améliorée en considérant d'une manière plus détaillée le phénomène de condensation capillaire. Il serait judicieux par exemple d'explorer la corrélation établie par Costa et al. (2017), entre le ratio du volume du contenant hermétique sur volume de béton confiné et le pourcentage d'alcalis lessivés.
- Étant donné que les deux phénomènes de lessivage des alcalis et de perméation du gel coexistent, il sera nécessaire d'adopter une approche couplée dans le futur pour modéliser correctement l'effet d'échelle. Ceci nécessitera au préalable la réalisation de campagnes expérimentales conçues spécifiquement pour : (i) caractériser séparément les deux phénomènes; (ii) identifier et quantifier une éventuelle synergie entre les deux.
- Afin de voir si les profils de distribution des alcalis suivent la loi de diffusion de Fick, avec une consommation des alcalis, il serait nécessaire de mettre en œuvre un programme expérimental intégrant la dimension temporelle. Des analyses LIBS pourraient être effectuées de manière périodique sur des spécimens prélevés de chambre environnementale, et les données ainsi obtenues pourraient être utilisées pour alimenter le programme numérique. En utilisant le même code, il serait possible de représenter graphiquement la distribution des alcalis dans les granulats au fil du temps. La comparaison des résultats expérimentaux obtenus par le LIBS avec les prédictions du modèle permettra de valider la pertinence de la loi de Fick dans ce contexte spécifique.
- Pour les explorations futures de la RAS avec la technologie LIBS, il n'est pas recommandé de procéder à la DRI avant l'analyse LIBS. Il serait bien de concevoir une procédure de préparation de surface de l'échantillon qui n'altère pas sa composition chimique.

## RÉFÉRENCES

- Bažant, Z.P., Najjar, L.J., 1972. Nonlinear water diffusion in nonsaturated concrete. *Mat. Constr.* 5, 3–20. doi:10.1007/BF02479073
- Ben Ftima, M., Bernard, P., Chérueil, A., & Argouges, M. (2023). Concrete Hydraulic Structures Affected by Alkali–Aggregate Reaction: Numerical and Experimental Investigations. *Journal of Performance of Constructed Facilities*, 37(6), 04023059.
- Chérueil, A., & Ftima, M. B. (2023). Unrestrained ASR volumetric expansion for mass concrete structures: Review and experimental investigation using 3d laser scanning. *Construction and Building Materials*, 399, 132565.
- Ben Ftima, M., Chérueil, A., & Argouges, M. (2022, July). Multi-physical simulation of concrete hydraulic facilities affected by alkali-aggregate reaction: from material to structure. In *RILEM International Conference on Numerical Modeling Strategies for Sustainable Concrete Structures* (pp. 47-60). Cham: Springer International Publishing.
- Biot, M. A., (1963). “Theory of stability and consolidation of a porous media under initial stress.” *Journal of Mathematics and Mechanics*, 12(2), 521- 541.
- Blanks, R. F., & Meissner, H. S. (1946, April). The expansion test as a measure of alkali-aggregate reaction. In *Journal Proceedings* (Vol. 42, No. 4, pp. 517-540).
- Cabral, J. S., Menegatti, C. R., & Nicolodelli, G. (2023). Laser-induced breakdown spectroscopy in cementitious materials: A chronological review of cement and concrete from the last 20 years. *TrAC Trends in Analytical Chemistry*, 116948.
- CDA: Dams in Canada. 41, Ottawa (2019)
- Chen, X. (2022). Modélisation numérique et étude expérimentale des comportements couplés de transport hygro-thermo-chimio-électrique des matériaux cimentaires, Thèse de doctorat, Université Laval.
- Chérueil, A. (2020). Investigation Expérimentale via L’essai de Fendage, de L’effet de la ras sur L’énergie de Fissuration du Béton D’un Ouvrage Hydraulique (Mémoire de maitrise, Ecole Polytechnique, Montreal (Canada)).
- Chérueil, A., & Ftima, M. B. (2023). Unrestrained RAS volumetric expansion for mass concrete structures: Review and experimental investigation using 3d laser scanning. *Construction and Building Materials*, 399, 132565.
- Costa, U., Mangialardi, T., & Paolini, A. (2017). Minimizing alkali leaching in the concrete prism expansion test at 38° C. *Construction and Building Materials*, 146, 547-554
- Elakneswaran, Y. and Ishida, T., (2013). “Integrating physicochemical and geochemical aspects for development of a multi-scale modeling framework to performance assessment of cementitious materials.” In: N. Kringos, B. Birgisson, D. Frost, L. Wang Eds. *Multi-scale Modeling and Characterization of Infrastructure Materials*, RILEM Bookseries, 8, 63-78

- Eto, S., Matsuo, T., Matsumura, T., Fujii, T., & Tanaka, M. Y. (2014). Quantitative estimation of carbonation and chloride penetration in reinforced concrete by laser-induced breakdown spectroscopy. *Spectrochimica Acta Part B: Atomic Spectroscopy*, 101, 245-253.
- Figueira, R., Sousa, R., Coelho, L., Azenha, M., de Almeida, J., Jorge, P., & Silva, C. (2019). Alkali-silica reaction in concrete: Mechanisms, mitigation and test methods. *Construction and Building Materials*, 222, 903-931.
- Fournier B, Nkinamubanzi PC, Chevrier R, (2004). Comparative field and laboratory investigations on the use of supplementary cementing materials to control alkali-silica reaction in concrete, Tang Mingshu, Deng Min (Eds.), Proc. 12th Int. Conf. AlkaliAggregate Reaction in Concrete, vol. 1, International Academic Publishers/World Publishing Corporation, Beijing, pp. 528-537.
- Gao, X. X., Multon, S., Cyr, M., & Sellier, A. (2013). Alkali-silica reaction (RAS) expansion: pessimum effect versus scale effect. *Cement and Concrete Research*, 44, 25-33.
- Giebson, C., Volland, K., Ludwig, H. M., & Meng, B. (2017). Alkali-silica reaction performance testing of concrete considering external alkalis and preexisting microcracks. *Structural Concrete*, 18(4), 528-538.
- Gottlieb, C., Millar, S., Grothe, S., & Wilsch, G. (2017). 2D evaluation of spectral LIBS data derived from heterogeneous materials using cluster algorithm. *Spectrochimica Acta Part B: Atomic Spectroscopy*, 134, 58-68.
- GÜNTHER, T., BLASCHKE, J., SCHRÖDER, C., RAUH, M., DALICHOW, D., & WILSCH, G. Practical application of Laser-induced Breakdown Spectroscopy (LIBS) for the detection of chlorides in concrete structures.
- Gardette, V., Motto-Ros, V., Alvarez-Llamas, C., Sancey, L., Duponchel, L., & Busser, B. (2023). Laser-induced breakdown spectroscopy imaging for material and biomedical applications: recent advances and future perspectives. *Analytical chemistry*, 95(1), 49-69.
- Hayman,S.,Thomas,M., Use of fly qsh to prevent expansion due to prevent expansion due to alkali-silica reaction in concrete dams .Cadian Dam association.
- Hong, S., Lai, W. W. L., Wilsch, G., Helmerich, R., Helmerich, R., Günther, T., & Wiggengerhauser, H. (2014). Periodic mapping of reinforcement corrosion in intrusive chloride contaminated concrete with GPR. *Construction and Building Materials*, 66, 671-684.
- Ideker JH, Folliard KJ , Juenger MG, Thomas MDA, (2004). Laboratory and field experience with RAS in Texas, Tang Mingshu, Deng Min (Eds.), Proc. 12th Int. Conf. Alkali-Aggregate Reaction in Concrete, vol. 2, International Academic Publishers/ World Publishing Corporation, Beijing, pp. 1062-1070.
- Jolivet, L., Leprince, M., Moncayo, S., Sorbier, L., Lienemann, C. P., & Motto-Ros, V. (2019). Review of the recent advances and applications of LIBS-based imaging. *Spectrochimica Acta Part B: Atomic Spectroscopy*, 151, 41-53.
- Joo, H. E., & Takahashi, Y. (2021). Development of alkali-silica reaction model considering the effect of aggregate size. *Cement and Concrete Composites*, 122, 104149.

- Joo, H. E., & Takahashi, Y. (2023). Analytical and experimental studies on alkali-silica reaction mechanism: Aggregate cracking and chemical composition change of gel. *Cement and Concrete Composites*, 139, 105003.
- Kawabata, Y., Dunant, C., Yamada, K., & Scrivener, K. (2019). Impact of temperature on expansive behavior of concrete with a highly reactive andesite due to the alkali-silica reaction. *Cement and Concrete Research*, 125, 105888.
- Kim, T., Olek, J., & Jeong, H. (2015). Alkali-silica reaction: kinetics of chemistry of pore solution and calcium hydroxide content in cementitious system. *Cement and Concrete Research*, 71, 36-45.
- Labutin, T. A., Popov, A. M., Zaytsev, S. M., Zorov, N. B., Belkov, M. V., Kiris, V. V., & Raikov, S. N. (2014). Determination of chlorine, sulfur and carbon in reinforced concrete structures by double-pulse laser-induced breakdown spectroscopy. *Spectrochimica Acta Part B: Atomic Spectroscopy*, 99, 94-100.
- Lemery, J. (2018). Étude expérimentale via l'essai de fendage, de l'énergie de fissuration des bétons des ouvrages hydrauliques. (Mémoire de maîtrise, Ecole Polytechnique de Montréal (Canada)).
- Lindgård, J., Thomas, M. D., Sellevold, E. J., Pedersen, B., Andiç-Çakır, Ö., Justnes, H., & Rønning, T. F. (2013). Alkali-silica reaction (RAS)—performance testing: influence of specimen pre-treatment, exposure conditions and prism size on alkali leaching and prism expansion. *Cement and Concrete Research*, 53, 68-90.
- Martin, R.-P., Omikrine Metalssi, O., Toutlemonde, F., 2013. Importance of considering the coupling between transfer properties, alkali leaching and expansion in the modelling of concrete beams affected by internal swelling reactions. *Construction and Building Materials* 49, 23–30. doi:10.1016/j.conbuildmat.2013.08.008
- Maekawa, K., Ishida, T. and Kishi, T., (2008). “Multiscale modeling of structural concrete.” Oxon, UK: Taylor & Francis.
- Mateo, J., Quintero, M. C., Fernández, J. M., García, M. C., & Roderó, A. (2019). Application of LIBS technology for determination of Cl concentrations in mortar samples. *Construction and Building Materials*, 204, 716-726.
- Mateo, J., García, M. C., & Roderó, A. (2023). Using laser-induced breakdown spectroscopy for the study of chloride diffusion in mortar and concrete. *Construction and Building Materials*, 385, 131520.
- Millar, S., Kruschwitz, S., & Wilsch, G. (2019). Determination of total chloride content in cement pastes with laser-induced breakdown spectroscopy (LIBS). *Cement and Concrete Research*, 117, 16-22.
- Millar, S., Gottlieb, C., Günther, T., Sankat, N., Wilsch, G., & Kruschwitz, S. (2018). Chlorine determination in cement-bound materials with laser-induced breakdown spectroscopy (LIBS)—a review and validation. *Spectrochimica Acta Part B: Atomic Spectroscopy*, 147, 1-8.

- Morenon, P. (2017). Modélisation des réactions de gonflement interne des bétons avec prise en compte des couplages poro-mécaniques et chimiques (Doctoral dissertation, Université Paul Sabatier-Toulouse III).
- Multon, S., and F. Toutlemonde. 2010. "Effect of moisture conditions and transfers on alkali silica reaction damaged structures." *Cem. Concr. Res.* 40 (6): 924–934. <https://doi.org/10.1016/j.cemconres.2010.01.011>.
- Multon, S., & Sellier, A. (2016). Multi-scale analysis of alkali–silica reaction (RAS): impact of alkali leaching on scale effects affecting expansion tests. *Cement and Concrete Research*, 81, 122-133.
- Poyet, S. (2003). Etude de la dégradation des ouvrages en béton atteints par la réaction alcali-silice: approche expérimentale et modélisation numérique multi-échelles des dégradations dans un environnement hydro-chemo-mécanique variable (Doctoral dissertation, Marne-la-Vallée).
- Rivard, P., Bérubé, M. A., Ollivier, J. P., & Ballivy, G. (2003). Alkali mass balance during the accelerated concrete prism test for alkali–aggregate reactivity. *Cement and Concrete Research*, 33(8), 1147-1153.
- R.F. Blanks, H.S. Meissner, The expansion test as a measure of alkali-aggregate reaction, *J. Am. Concr. Inst.* 17 (5) (1946) 517–539
- Šavija, Branko, Erik Schlangen, José Pacheco, Steven Millar, Thorsten Eichler, and Gerd Wilsch. "Chloride ingress in cracked concrete: a laser induced breakdown spectroscopy (LIBS) study." *Journal of Advanced Concrete Technology* 12, no. 10 (2014): 425-442.
- Senesi, G. S., Harmon, R. S., & Hark, R. R. (2021). Field-portable and handheld laser-induced breakdown spectroscopy: Historical review, current status and future prospects. *Spectrochimica Acta Part B: Atomic Spectroscopy*, 175, 106013.
- Sinno, N., & Shehata, M. H. (2019). Effect of sample geometry and aggregate type on expansion due to alkali-silica reaction. *Construction and Building Materials*, 209, 738-747.
- Takahashi, Y., Ogawa, S., Tanaka, Y., & Maekawa, K. (2016). Scale-dependent RAS expansion of concrete and its prediction coupled with silica gel generation and migration. *Journal of Advanced Concrete Technology*, 14(8), 444-463.
- Thomas, M. (2011). The effect of supplementary cementing materials on alkali-silica reaction: A review. *Cement and concrete research*, 41(12), 1224-1231.
- Thomas, M., Fournier, B., Folliard, K., Ideker, J., & Shehata, M. (2006). Test methods for evaluating preventive measures for controlling expansion due to alkali–silica reaction in concrete. *Cement and Concrete Research*, 36(10), 1842-1856.
- T.N. Nguyen, L.F.M. Sanchez, J. Li, B. Fournier, V. Sirivivatnanon, Correlating alkali-silica reaction (RAS) induced expansion from short-term laboratory testings to long-term field performance: a semi-empirical model, *Cem. Concr. Compos.* 134 (2022) 104817
- Wang, K., Jansen, D. C. and Shah, S. P., (1997). "Permeability study of cracked concrete." *Cement and Concrete research*, 27, 381-393.

Weise, F., von Werder, J., Manninger, T., Maier, B., Fladt, M., Simon, S., ... & Meng, B. (2022). A multiscale and multimethod approach to assess and mitigate concrete damage due to alkali–silica reaction. *Advanced engineering materials*, 24(6), 2101346.

## ANNEXE A : TENTATIVE DE RESOLUTION ANALYTIQUE

L'équation bilan des alcalis dans le granulat caractérisant la diffusion et la consommation des alcalis gouvernées par les deux coefficients  $D_{agg}$  et  $k$ .

On suppose que la concentration à la limite du granulat est initialement égale à la concentration des alcalis dans la solution poreuse du béton. En fonction du temps, la concentration à la limite du granulat diminue progressivement en raison de la diffusion interne. Les ions se déplacent de la limite du granulat vers le centre, et leur concentration diminue également en raison de leur réaction avec la silice.

En conséquence, les conditions aux limites pour le problème seront les suivantes :

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{\partial(p_{agg} \cdot S_r \cdot [Na^{eq}]_{agg})}{\partial t} = \frac{1}{r^2} \frac{d}{dr} \left( D_{agg} r^2 \frac{d[Na^{eq}]_{agg}}{dr} \right) - k_{RAS} \cdot ([Na^{eq}]_{agg} - C_{thr}) \\ [Na^{eq}]_{agg}(R_{agg}, t = 0) = [Na^{eq}]_{c,0} > C_{thr} \\ \frac{\partial[Na^{eq}]_{agg}(0, t)}{\partial t} = 0 \\ [Na^{eq}]_{agg}(r, t) \text{ décroissnate en fonction du temps} \end{array} \right. \quad A-1$$

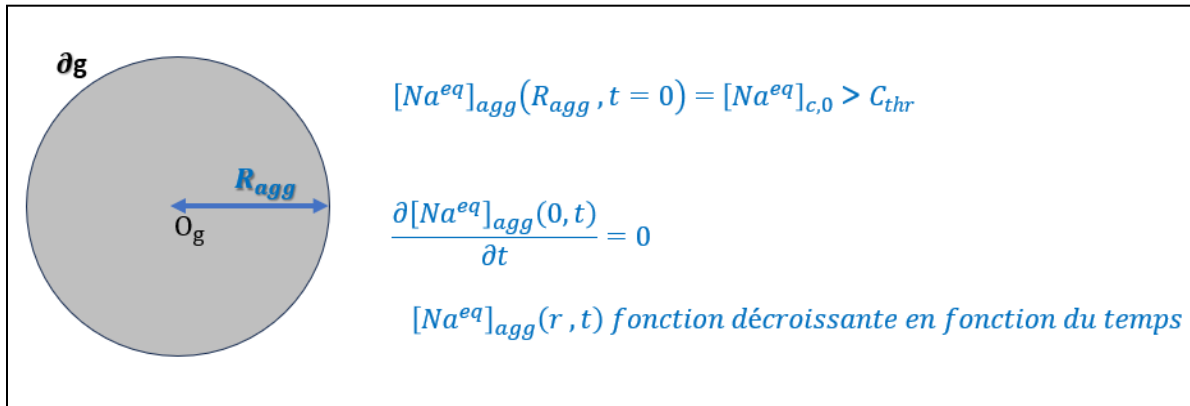


Figure A- 1: Conditions aux limites pour l'équation différentielle

La résolution analytique de l'équation A- 1 donne la solution suivante :

$$[Na^{eq}]_{agg}(r, t) = C_{thr} + (C_{0,béton} - C_{thr}) \cdot \frac{R}{r} \cdot \frac{\sinh\left(\frac{r}{v}\right)}{\sinh\left(\frac{R}{v}\right)} \cdot e^{-\frac{t}{\tau_{diffusion}}} \quad A- 2$$

Où

$$\frac{1}{v^2} = \frac{1}{D} \left( k - \frac{1}{\tau_{diffusion}} \right) \quad A- 3$$

On pose le changement de variable

$$Y(r, t) = X(r, t) - C_{thr} \text{ et } D = \frac{D_{agg}}{p_{agg} \cdot S_r} \text{ et } k = \frac{k_{RAS}}{p_{agg} \cdot S_r} \quad A- 4$$

Donc on aura

$$\frac{\partial [Na^{eq}]_{agg}(r, t)}{\partial t} = \frac{\partial Y(r, t)}{\partial t} \text{ et } \frac{\partial [Na^{eq}]_{agg}(r, t)}{\partial r} = \frac{\partial Y(r, t)}{\partial r} \text{ et } \frac{\partial^2 [Na^{eq}]_{agg}(r, t)}{\partial r^2} = \frac{\partial^2 Y(r, t)}{\partial r^2} \quad A- 5$$

D'où l'équation A- 1 devient

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{\partial(Y)}{\partial t} = \frac{1}{r^2} \frac{d}{dr} \left( D \cdot r^2 \frac{dY}{dr} \right) - k \cdot Y \\ Y(R_{agg}, t = 0) = [Na^{eq}]_{c,0} - C_{thr} = B > 0 \\ \frac{\partial Y(0, t)}{\partial t} = 0 \end{array} \right. \quad A- 6$$

Par la méthode de séparation des variables on pose :

$$Y(r, t) = G(t)F(r) \quad A- 7$$

On remplace ainsi dans l'équation différentielle

$$F(r)G'(t) = DG(t)F''(r) + \frac{2D}{r}G(t)F'(r) - k.G(t)F(r) \quad \text{A- 8}$$

On divise par  $Y(r, t)$

On aura

$$\underbrace{\frac{G'(t)}{G(t)}}_{\alpha_1(t)} = \underbrace{D \frac{F''(r)}{F(r)} + \frac{2D}{r} \frac{F'(r)}{F(r)} - k}_{\beta_1(r)} \quad \text{A- 9}$$

Donc on aura  $\alpha_1(t) = \beta_1(r)$  comme  $t$  et  $r$  deux variables indépendantes

Donc le seul cas pouvant vérifier (A- 9) est que  $\alpha_1(t) = \beta_1(r) = \text{constante}$

Dans la méthode de séparation des variables, on résout la partie temporelle et spatiale de manière séparée, en commençant par :

**Partie temporelle  $\alpha_1(t)$**  .

$$\frac{G'(t)}{G(t)} = \alpha = \text{constante} \quad \text{A- 10}$$

Donc la solution  $G(t) = e^{\alpha.t}$

On cherche une solution pour  $t > 0$ ,  $\alpha$  doit être nécessairement négative, car les alcalis à l'intérieur du granulat sont consommées donc la concentration décroît en fonction du temps. Si on choisit une constante positive, on aura une augmentation de la concentration en fonction du temps (fonction exponentielle) jusqu'à exiger que le granulat aura une concentration en alcali supérieure à  $C_{0,béton}$  chose qui est contradictoire avec le phénomène de diffusion combiné à un terme de consommation négatif.

$$G(t) = e^{-\frac{t}{\tau_{diffusion}}} \quad \text{A- 11}$$

### **Parte spatiale $\beta_1(r)$**

On a

$$D \frac{F''(r)}{F(r)} + \frac{2D}{r} \frac{F'(r)}{F(r)} = \frac{1}{\tau_{RAS}} - \frac{1}{\tau_{diffusion}} \quad \text{A- 12}$$

On multiplie par  $\frac{rF(r)}{D}$ , l'équation différentielle (A- 12) devient

$$D \frac{F''(r)}{F(r)} + \frac{2D}{r} \frac{F'(r)}{F(r)} = \frac{1}{\tau_{RAS}} - \frac{1}{\tau_{diffusion}} \quad \text{A- 13}$$

Équivalent à

$$F''(r) + 2F'(r) = \frac{1}{D} \left( \frac{1}{\tau_{RAS}} - \frac{1}{\tau_{diffusion}} \right) rF(r) \quad \text{A- 14}$$

On pose  $h(r) = rF(r)$

Donc l'équation A- 14 devient

$$h''(r) = \frac{1}{D} \left( \frac{1}{\tau_{RAS}} - \frac{1}{\tau_{diffusion}} \right) h(r) \quad \text{A- 15}$$

Donc la solution de cette équation différentielle du signe de  $\frac{1}{\tau_{RAS}} - \frac{1}{\tau_{diffusion}}$  donc on a prouvé mathématiquement qu'il y a une compétition entre la consommation des alcalis et la diffusion des alcalis dans les granulats

On a la consommation est plus importante que la diffusion

$$\text{Donc } \tau_{RAS} < \tau_{diffusion} \text{ d'où } \frac{1}{D} \left( \frac{1}{\tau_{RAS}} - \frac{1}{\tau_{diffusion}} \right) > 0$$

$$h''(r) = \frac{1}{D} \left( \frac{1}{\tau_{RAS}} - \frac{1}{\tau_{diffusion}} \right) h(r) \quad \text{A- 16}$$

Qui peut s'écrire

$$h''(r) = \frac{1}{v^2} h(r) \quad \text{A- 17}$$

$$\text{Tel que } \frac{1}{v^2} = \frac{1}{D} \left( \frac{1}{\tau_{RAS}} - \frac{1}{\tau_{diffusion}} \right) \quad \text{A- 18}$$

Avec les conditions limites et initiales

$$h(R) = R.F(R) = R.B \text{ et } h'(0) = R(0) = 0 \quad \text{A- 19}$$

La solution est de A- 18

$$h(r) = Ae^{\frac{r}{v}} + Be^{-\frac{r}{v}} \quad \text{A- 20}$$

On a

$$h'(r) = \frac{A}{v} e^{\frac{r}{v}} - \frac{B}{v} e^{-\frac{r}{v}} \quad \text{A- 21}$$

$$\text{on a } h(R) = Ae^{\frac{R}{v}} + Be^{-\frac{R}{v}} = R.B \quad \text{A- 22}$$

Donc

$$F(r) = \frac{h(r)}{r} = \frac{Ae^{\frac{r}{v}} + Be^{-\frac{r}{v}}}{r} = (A+B) \frac{\cosh(r)}{r} + (A-B) \frac{\sinh(r)}{r} \quad \text{A- 23}$$

G(r) est la variation spatiale de la concentration, il devra être une fonction bornée convergente

Comme

$$\lim_{r \rightarrow 0} \frac{\cosh(r)}{r} = \infty \text{ et } \lim_{r \rightarrow 0} \frac{\sinh(r)}{r} = 1$$

Alors on impose la condition  $A+B=0$  donc  $A=-B$

Donc

$$F(r) = Ae^{\frac{r}{v}} - Ae^{-\frac{r}{v}} = 2A \sinh\left(\frac{r}{v}\right) \quad \text{A- 24}$$

$$h(R) = 2A \sinh\left(\frac{R}{v}\right) = R \cdot B \quad \text{A- 25}$$

Et comme

$$\text{Ainsi } A = \frac{R \cdot B}{2 \sinh\left(\frac{R}{v}\right)} \quad \text{A- 26}$$

Donc

$$Y(r, t) = F(r)G(t) = \frac{h(r)}{r} G(t) = \frac{R \cdot B}{r} \frac{\sinh\left(\frac{r}{v}\right)}{\sinh\left(\frac{R}{v}\right)} e^{\frac{-t}{\tau_{diffusion}}} \quad \text{A- 27}$$

D'où

$$[Na^{eq}]_{agg}(r, t) = C_{thr} + (C_{0,béton} - C_{thr}) \frac{R}{r} \frac{\sinh\left(\frac{r}{v}\right)}{\sinh\left(\frac{R}{v}\right)} e^{\frac{-t}{\tau_{diffusion}}} \quad \text{A- 28}$$

Vérifions si la solution (A- 28) satisfait à la fois l'équation aux dérivées partielles et les conditions initiales et aux limites (A- 1) ;

**Vérification de la solution si elle satisfait l'équation différentielle :**

On a

$$\frac{\partial [Na^{eq}]_{agg}(r, t)}{\partial t} = \frac{-1}{\tau_{diffusion}} (C_{0,béton} - C_{thr}) \frac{R}{r} \frac{\sinh\left(\frac{r}{v}\right)}{\sinh\left(\frac{R}{v}\right)} e^{\frac{-t}{\tau_{diffusion}}} \quad \text{A- 29}$$

De plus on a

$$\frac{2D}{r} \frac{\partial [Na^{eq}]_{agg}(r,t)}{\partial r} = D(C_{0,béton} - C_{thr}) \frac{R}{\sinh\left(\frac{R}{v}\right)} e^{-\frac{t}{\tau_{diffusion}}} \left[ \frac{-2 \sinh\left(\frac{r}{v}\right)}{r^3} + \frac{2 \cosh\left(\frac{r}{v}\right)}{vr^2} \right] \quad A- 30$$

En outre on a

$$D \frac{\partial^2 [Na^{eq}]_{agg}(r,t)}{\partial r^2} = D(C_{0,béton} - C_{thr}) \frac{R}{\sinh\left(\frac{R}{v}\right)} e^{-\frac{t}{\tau_{diffusion}}} \left[ \frac{2 \sinh\left(\frac{r}{v}\right)}{r^3} - \frac{2 \cosh\left(\frac{r}{v}\right)}{vr^2} + \frac{\sinh\left(\frac{r}{v}\right)}{v^2 r} \right] \quad A- 31$$

Donc :

$$\begin{aligned} D \frac{\partial^2 [Na^{eq}]_{agg}(r,t)}{\partial r^2} + \frac{2D}{r} \frac{\partial [Na^{eq}]_{agg}(r,t)}{\partial r} - \frac{[Na^{eq}]_{agg}(r,t) - C_{thr}}{\tau_{RAS}} &= \\ &= (C_{0,béton} - C_{thr}) \left[ D \frac{R}{\sinh\left(\frac{R}{v}\right)} e^{-\frac{t}{\tau_{diffusion}}} \frac{\sinh\left(\frac{r}{v}\right)}{v^2 r} - \frac{R}{r} \frac{\sinh\left(\frac{r}{v}\right)}{\sinh\left(\frac{R}{v}\right)} \frac{1}{\tau_{RAS}} e^{-\frac{t}{\tau_{diffusion}}} \right] \\ &= (C_{0,béton} - C_{thr}) \frac{R}{\sinh\left(\frac{R}{v}\right)} e^{-\frac{t}{\tau_{diffusion}}} \frac{\sinh\left(\frac{r}{v}\right)}{r} \left( \frac{D}{v^2} - \frac{1}{\tau_{RAS}} \right) \\ &= (C_{0,béton} - C_{thr}) \frac{R}{\sinh\left(\frac{R}{v}\right)} e^{-\frac{t}{\tau_{diffusion}}} \frac{\sinh\left(\frac{r}{v}\right)}{r} \left( -\frac{1}{\tau_{diffusion}} \right) \\ &= \frac{\partial [Na^{eq}]_{agg}(r,t)}{\partial t} \end{aligned} \quad A- 32$$

Donc on a la solution (A- 28) vérifie bien l'équation différentielle

**Condition limite initiale :**  $[Na^{eq}]_{agg}(\mathbf{R}, 0) = C_{0,béton}$

A- 33

$$\text{On a } [Na^{eq}]_{agg}(\mathbf{R}, 0) = C_{thr} + (C_{0,béton} - C_{thr}) \frac{R \sinh(\frac{R}{v})}{R \sinh(\frac{R}{v})} e^0 = C_{0,béton}$$

**Condition limite du flux nul au centre du granulat**  $\frac{\partial x}{\partial r}(\mathbf{r} = 0, t) = 0$

On suppose que la concentration est une fonction continue et dérivable ainsi que sa dérivée est continue (de classe  $C^1$ ) donc

A- 34

$$\begin{aligned} \frac{\partial [Na^{eq}]_{agg}(\mathbf{r}, t)}{\partial r}(\mathbf{r} = 0, t) &= \lim_{r \rightarrow 0} \frac{\partial [Na^{eq}]_{agg}(\mathbf{r}, t)}{\partial r}(\mathbf{r}, t) \\ &= \lim_{r \rightarrow 0} (C_{0,béton} - C_{thr}) \frac{R}{\sinh(\frac{R}{v})} e^{-\frac{t}{\tau_{diffusion}}} \left[ \frac{-\sinh(\frac{r}{v})}{r^2} + \frac{\cosh(\frac{r}{v})}{vr} \right] \\ &= (C_{0,béton} - C_{thr}) \frac{R}{\sinh(\frac{R}{v})} e^{-\frac{t}{\tau_{diffusion}}} \lim_{r \rightarrow 0} \left[ \frac{-\sinh(\frac{r}{v})}{r^2} + \frac{\cosh(\frac{r}{v})}{vr} \right] \end{aligned}$$

On a

A- 35

$$\lim_{r \rightarrow 0} \frac{-\sinh(\frac{r}{v})}{r^2} + \frac{\cosh(\frac{r}{v})}{vr} = \lim_{r \rightarrow 0} \frac{-v \sinh(\frac{r}{v}) + r \cdot \cosh(\frac{r}{v})}{vr^2} = \lim_{r \rightarrow 0} \frac{p(r)}{g(r)}$$

Soit  $p(r) = -v \sinh(\frac{r}{v}) + r \cdot \cosh(\frac{r}{v})$  et  $g(r) = vr^2$

Comme p et g sont dérivables en 0 et  $p(0) = g(0) = 0$

Donc par la règle de l'Hôpital

$$\text{on a } \lim_{r \rightarrow 0} \frac{p(r)}{g(r)} = \lim_{r \rightarrow 0} \frac{p'(r)}{g'(r)} = \lim_{r \rightarrow 0} \frac{-\cosh(\frac{r}{v}) + \cosh(\frac{r}{v}) + \frac{r}{v} \sinh(\frac{r}{v})}{2vr} = \lim_{r \rightarrow 0} \frac{\sinh(\frac{r}{v})}{2v} = 0$$

Donc on a la solution vérifie bien l'équation différentielle vérifie bien le système (A- 1).