

## Modélisation chimio-mécanique d'un milieu poreux fissuré : application à la réaction sulfatique interne

A. Socié<sup>1,3</sup>, F. Perales<sup>1,3</sup>, F. Dubois<sup>2,3</sup>, Y. Monerie<sup>2,3</sup>

<sup>1</sup> IRSN, {adrien.socie,frederic.perales}@irsn.fr

<sup>2</sup> LMGC, Univ. Montpellier, CNRS, {yann.monerie,frederic.dubois}@umontpellier.fr

<sup>3</sup> MIST lab., IRSN-CNRS-Univ. Montpellier

---

**Résumé** — Ce travail présente une modélisation chimio-mécanique du béton reposant sur le couplage entre le transport réactif et la réponse mécanique du système afin d'évaluer l'évolution des paramètres apparents du béton. Ce modèle repose sur une représentation d'un milieu poreux fissuré, dont la fissuration est traitée par un modèle de Zone Cohésives Frottantes. Il est étudié en particulier les réactions de gonflements dont les pores et les fissures sont mis sous pression. Une application à la Réaction Sulfatique Interne (RSI) est présentée mettant en avant l'impact de la granulométrie sur le gonflement du béton.

**Mots clés** — Modèles de Zone Cohésives Frottantes, Micro-poro-mécanique, Transport réactif

---

### 1 Contexte et état de l'art

Dans le cadre de l'extension de la durée de vie des centrales nucléaires, différents travaux de recherche sont réalisés par l'Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire (IRSN) afin d'évaluer le vieillissement des infrastructures nucléaires et des matériaux qui les composent notamment sur le vieillissement des matériaux cimentaires des enceintes de confinement. Les dégradations de ces matériaux sont dues à des pathologies liées aux conditions environnementales et à la microstructure du béton. Un état avancé de dégradation peut conduire à l'apparition d'un réseau de fissures augmentant la perméabilité apparente du béton et réduisant les propriétés de confinement de l'enceinte. Les processus de fissuration et leurs conséquences mécaniques sont ici étudiés à l'échelle d'une collection de granulats : échelle dite mésoscopique.

L'objectif de ce travail est la compréhension à l'échelle mésoscopique de l'impact d'une dégradation chimique telle que la Réaction Sulfatique Interne (RSI) sur le coefficient de diffusion et la ténacité apparente du matériau.

La RSI est une pathologie endogène issue d'une exposition à des températures supérieures à 65°C au jeune âge et un milieu à forte humidité relative. À cause d'un échauffement important durant l'hydratation du béton, une espèce solide, l'ettringite, est dissoute et les ions la constituant sont en partie adsorbés par la matrice de la pâte de ciment (C-S-H). L'environnement induit le lessivage des alcalins entraînant la désorption des ions. Une fois en solution, l'ettringite précipite dans les pores du matériau durci entraînant des gonflements locaux dans la pâte de ciment et une fissuration du matériau par déformations différentielles. Les fissures créées constituent alors le lieu privilégié d'une nouvelle précipitation d'ettringite [6]. La RSI est une réaction dont le potentiel de gonflement dépend de la composition du matériau ainsi que de l'échauffement thermique initial [20]. Néanmoins, les gonflements et donc la précipitation d'ettringite dans le béton mature ne peuvent avoir lieu dans un milieu adiabatique [12]. Ainsi, il est nécessaire de prendre en compte chacun des phénomènes : transport d'espèces, chimie et mécanique.

Deux familles de modélisation permettent d'évaluer l'impact du gonflement sur les structures cimentaires :

1. les modélisations thermo-hydro-mécaniques : le comportement dépend de la saturation du milieu [14]. Le gonflement dépend d'une valeur de saturation seuil.

2. les modélisations thermo-chimio-mécaniques : elles sont basées soit sur une approche thermodynamique chimique afin de quantifier la pression de cristallisation [8] [20], soit sur une approche cinétique chimique [21].

Ces modèles reposent sur un découplage du transport réactif (diffusion et résolution chimique) et mécanique. D'après les travaux de [20], [14] et [15], cette approche doit être améliorée afin de prendre en compte l'impact de la fissuration sur les processus de transport.

La modélisation présentée ici repose sur un couplage faible du transport réactif et de la réponse mécanique afin d'évaluer l'évolution des paramètres apparents du béton.

## 2 Modélisation chimio-poro-mécanique

Une modélisation chimio-poro-mécanique est mise en œuvre. Dans cette partie, le modèle et les hypothèses choisies sont présentés.

Le béton est un matériau multi phasiques composé d'inclusions rigides, de granulats et d'une matrice poreuse, la pâte de ciment (FIGURE 1). Les pores saturés sont sujets à des réactions hydro-chimiques de précipitation créant ainsi de nouvelles phases solides. La matrice de la pâte de ciment, est un milieu poreux dont le comportement mécanique est visco-élastique [11] et comporte un grand nombre de sites de sorption. Ainsi, le béton est modélisé par une approche micro-poro-mécanique [11] [23], dont les coefficients apparents dépendent de la fraction volumique des phases solides et des pores.

Le béton est considéré mature dans un milieu immergé. Les hypothèses du modèle sont :

- un comportement micro-poro-mécanique de la matrice,
- la mécanique n'a pas d'impact sur la thermodynamique chimique du système,
- la diffusion est principalement impactée par la fissuration et la microstructure,
- le transport au sein de la matrice et dans les fissures est uniquement fickien [9],
- la cinétique du transport réactif est guidée par les phénomènes de transport, les réactions chimiques étant considérées comme instantanées.

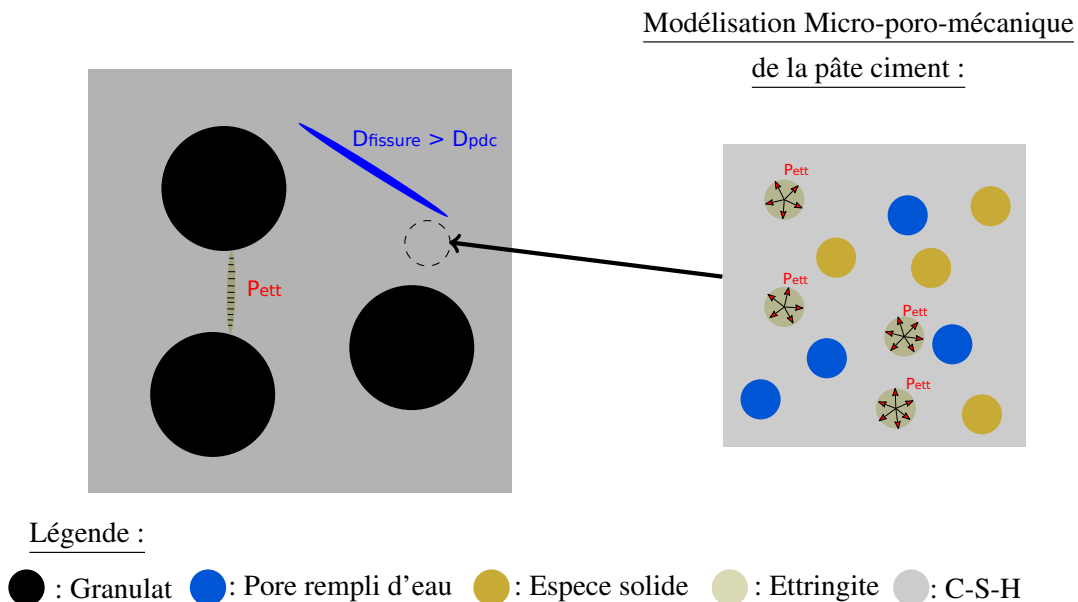


FIGURE 1 – Modèle chimio-mécanique

### 3 Résolution numérique du système

#### 3.1 Résolution du système

La résolution repose sur un couplage faible :

1. **diffusion** : loi de Fick dans un milieu poreux (1),
2. **chimique** : connaissant les ions en solution la quantité d'ettringite précipitées est estimée,
3. **mécanique** : le gonflement de la matrice est obtenu par un modèle poro-mécanique, le volume d'ettringite est un paramètre du modèle de pression. La fissuration est traitée par un modèle de zones cohésives prenant en compte une pression post-rupture.

La résolution de chaque phénomène est indépendante. Les simulations sont effectuées à l'aide de la plateforme numérique Xper (eXtented cohesive zone models and PERiodic homogenization) [16] [18].

#### 3.2 Résolution du transport réactif

##### 3.2.1 Transport d'espèces

Le milieu est immergé. La loi de Fick dans un milieu poreux s'écrit pour une espèce chimique  $i$  :

$$\frac{\partial \phi C_i}{\partial t} = \nabla \cdot (D_i \nabla C_i) + r_i + \underline{\Phi}_{fissure} \quad (1)$$

où  $\phi [-]$  est la porosité,  $C_i [mol.L^{-1}]$  est la concentration de l'espèce  $i$  aqueuse,  $D_i [m^2.s^{-1}]$  est le coefficient de diffusion effectif de l'espèce,  $r_i [mol.L^{-1}.s^{-1}]$  est le terme source correspondant à l'impact de la chimie et  $\underline{\Phi}_{fissure}$  est le flux normal traversant les fissures [2]. Ce flux représente l'impact résistif des fissures sur le transport des espèces chimiques. L'évolution du coefficient de diffusion en fonction de l'ouverture de fissure suit le modèle proposé par [9]. Dans ce modèle, le coefficient de diffusion dépend de l'ouverture de fissure  $u_N$ . Le transport des espèces chimiques est considéré équivalent à celui dans l'eau pour une ouverture de fissure de  $100 \mu m$  ( $u_{ref}$ ).

$$\left\{ \begin{array}{l} \underline{\Phi}_{fissure} = D_{fissure} \frac{(C_i^+ - C_i^-)}{l_c} \underline{n} \\ \left\{ \begin{array}{l} D_{fissure} = D_{eau} \frac{u_N}{u_{ref}} \quad \text{Si } u_N < u_{ref} \\ D_{fissure} = D_{eau} \quad \text{Si } u_N > u_{ref} \end{array} \right. \end{array} \right. \quad (2)$$

où  $D_{eau}$  est le coefficient de diffusion de l'espèce dans l'eau et vaut environ  $10^{-9} m^2.s^{-1}$ ,  $l_c$  est la longueur caractéristique permettant le calcul du gradient (voir [2]) et  $C_i^+$  et  $C_i^-$  représentent les concentrations des espèces entre les deux lèvres de la fissure.

Le flux tangentiel prenant en compte le transport réactif dans les fissures est en cours de développement.

##### 3.2.2 Hydrochimie

Un milieu géochimique est composé de  $N_{species}$  espèces en solution de concentration  $\underline{C}$ , de  $N_{solid}$  espèces solides de concentration  $\underline{L}$ , et de  $N_{sorbed}$  espèces fixées de concentration  $\underline{S}$  (FIGURE 2). Trois réactions principales sont prises en compte [19] :

1. **réaction aqueuse**. Des ions réagissent entre eux créant un nouvel ion/molécule aqueuse :

$$F_i^{aq}(\underline{C}) = K_{aq,i} \prod_{j=1}^{N_{species}} C_j^{AQ_{i,j}} \quad (3)$$

où  $K_{aq,i}$  est la constante thermodynamique de réaction et  $\underline{AQ}$  est la matrice de stœchiométrie.

2. **réactions de sorption** entre les concentrations en solution  $C_i$ , les sites de sorption (modélisé par les constantes thermodynamiques  $K_s$ ), et les concentrations fixées  $S_i$  :

$$F_i^{Sp}(\underline{C}, \underline{S}) = K_{sp,i} \prod_{j=1}^{N_{species}} C_j^{A_{i,j}} \prod_{j=1}^{N_{sorbed}} S_j^{B_{i,j}} \quad (4)$$

où  $\underline{A}$  et  $\underline{B}$  sont les matrices de stœchiométries des réactions.

3. **réactions de précipitation/dissolution**. La réaction doit assurer l'équilibre thermodynamique :

$$F_i^S(\underline{C}) = 1 - K_{sol,i} \prod_{j=1}^{N_{species}} C_j^{E_{i,j}} = 0 \quad (5)$$

où  $K_{sol,i}$  est la constante thermodynamique de précipitation, et  $\underline{E}$  est la matrice stœchiométrique. De plus, la concentration de solide doit rester positive. Ces deux équations sont réécrites de façon à se ramener à un problème de complémentarité [19] :

$$\Psi(F_i^S(\underline{C}), L_i) = F_i^S(\underline{C}) \times L_i = 0 \quad F_i^S \geq 0 \quad \text{et} \quad L_i \geq 0 \quad (6)$$

Le système est résolu en cherchant le minimum des fonctions  $\Psi$ .

La résolution du système chimique doit s'effectuer en considérant l'ensemble des réactions tout en assurant les lois de conservations de masse de la concentration totale aqueuse  $(\underline{C})_{tot}$  et totale fixée  $(\underline{S})_{tot}$  :

$$\left\{ \begin{array}{l} (C_i)_{tot} = C_i + \sum_{ks=1}^{N_{aq}} A_{ks,i} F_i^{aq}(\underline{C}) + \sum_{u=1}^{N_{sorbed}} A_{u,i} F_i^{Sp} + \sum_{jsol=1}^{N_{solid}} E_{jsol,i} L_i \\ (S_i)_{tot} = S_i + \sum_{u=1}^{N_{sorbed}} B_{u,i} F_i^{Sp} \end{array} \right. \quad (7)$$

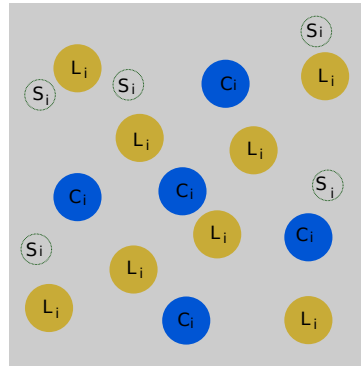
où  $N_{aq}$  est le nombre de réaction aqueuse. Au début de la résolution, les concentrations totales des espèces aqueuses et fixées sont évaluées à partir des concentrations fixées et solides de l'itération précédente et la concentration aqueuse obtenue à l'itération actuelle par le calcul de transport. Ces concentrations totales sont notées respectivement  $\underline{T}_C$  et  $\underline{T}_S$ . La résolution chimique revient à la résolution du problème non linéaire (8). Ce problème est écrit de manière logarithmique et résolu par un algorithme de Newton semi-smooth (voir [19]).

$$\left\{ \begin{array}{l} \underline{T}_C - (\underline{C})_{tot} = 0 \\ \underline{T}_S - (\underline{S})_{tot} = 0 \\ \Psi(\underline{F}^S(\underline{C}), \underline{L}) = 0 \\ \forall i \quad C_i \geq 0, \quad S_i \geq 0 \quad \text{et} \quad L_i \geq 0 \end{array} \right. \quad (8)$$

### 3.3 Mécanique

La fissuration est modélisée par une approche cohésive-volumique [16]. Le comportement du matériau est découpé en une partie volumique durcissante décrivant le comportement sans endommagement et un comportement surfacique adoucissant décrivant la fissuration.

Le matériau est modélisé par un prenant en compte la fissuration avec pression post rupture et la viscoporo-élasticité de la pâte de ciment (FIGURE 3).



Légende :

● : Pore rempli d'eau ● : Espece solide ● : C-S-H

FIGURE 2 – Schéma de la modélisation chimique d'une pâte de ciment :  $C_i$  concentration des espèces aqueuses,  $S_i$  concentration des espèces fixées sorbées et  $L_i$  concentration des espèces solides

### 3.3.1 Modélisation visco-poro-mécanique de la matrice cimentaire

Le modèle visco-poro-mécanique modélise l'impact de la pression dans une matrice visco-élastique. Ce modèle exprime la contrainte de la matrice en fonction de la déformation appliquée sur le Volume Élémentaire Représentatif,  $\underline{\varepsilon}$  et de la contrainte agissant dans les pores (Biot). Cette dernière dépend de la pression exercée par l'ettringite au sein des pores,  $P_{ett}$  [MPa], et du coefficient de Biot,  $b$  :

$$\underline{\underline{\sigma}} = \mathbb{C} : \underline{\underline{\varepsilon}} + \mathbb{V}_M : (\mathbb{C} + \mathbb{C}_M) \dot{\underline{\underline{\varepsilon}}} - bP_{ett}\underline{\underline{I}} \quad (9)$$

où  $\mathbb{C}$ ,  $\mathbb{C}_M$  et  $\mathbb{V}_M$  sont respectivement le tenseur élastique, le tenseur élastique de Maxwell et le tenseur visqueux de Maxwell. La visco-élasticité est ici représentée par le modèle de Zener. L'équation de pression prend en compte uniquement les pressions positives. Ce modèle a été appliqué à la RSI par [20] [21] [15] :

$$P_{ett} = N \langle \phi_{ett} - \langle \phi_{0ett} + btr(\underline{\underline{\varepsilon}}) \rangle_+ \rangle_+ \quad (10)$$

où la pression d'ettringite dépend du module de Biot  $N$ , la fraction volumique d'ettringite  $\phi_{ett}$ , et la fraction volumique de pores connectés  $\phi_{0ett}$ ,  $\langle x \rangle_+ = (x + |x|) / 2$

### 3.3.2 Modélisation pression post-rupture

Un modèle cohésif permet de traduire la fissuration du milieu par déformation différenciée ainsi que l'impact de la mise sous pression des fissures. Le modèle cohésif avec gonflement post-rupture, basé sur les modèles de [3] et [17], prend en compte les composantes normale et tangente du saut de déplacement sur les lèvres de la fissure  $[\underline{u}]$  et introduit progressivement une pression post rupture  $P$ . Pour une fissure, le vecteur contrainte cohésif  $\underline{R}^{adh}$  dépend d'une variable d'intensité adhésive surfacique  $\beta$  ( $\beta = 1$  : interface saine,  $\beta = 0$  : interface rompue) via un tenseur d'élasticité surfacique endommageable  $\underline{\underline{K}}(\beta)$  (avec  $\alpha \geq 0$ ) :

$$\underline{R}^{adh} = \underline{\underline{K}}(\beta) \cdot [\underline{u}] - (1 - \beta)^\alpha P \underline{n} \quad (11)$$

où  $\underline{n}$  est la normale.

## 4 Application

Le gonflement libre d'une éprouvette  $11 \times 22$  cm de béton atteinte de RSI est étudié. Le gonflement est dû aux conditions limites chimiques. Le modèle chimique considère une fonction de désorption et une réaction de précipitation. Le coefficient de diffusion dans l'inclusion est plus faible que dans la matrice. La concentration en alcalin (sodium) est imposée au bord du domaine et les déplacements verticaux sont bloqués au bas de l'éprouvette (FIGURE 4 a)). Les paramètres diffusifs et poro-élastiques de la matrice

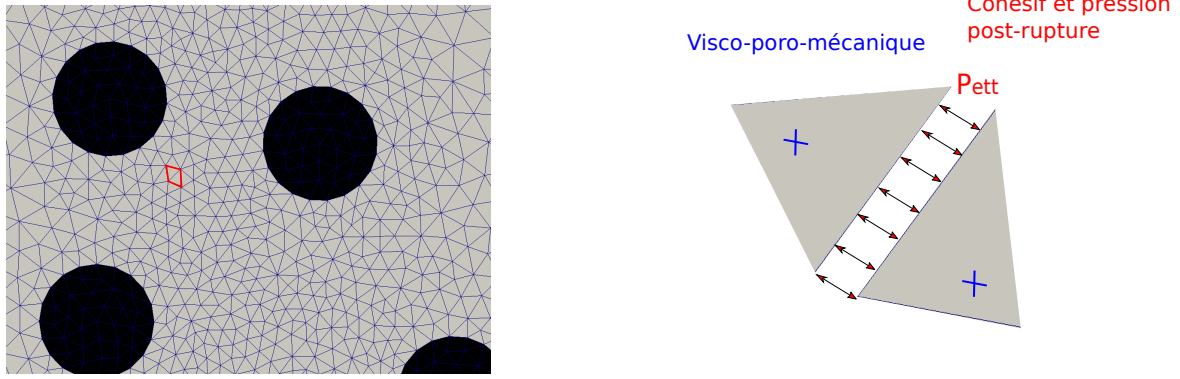


FIGURE 3 – Méthode cohésive-volumique : les mailles volumiques portent les comportements visco-poro-mécanique et les interfaces entre les mailles portent les modèles d'endommagement surfacique et les pressions d'ettringite post-rupture

sont estimés par homogénéisation analytique en considérant un mortier sain composé de 50% de sable et une pâte de ciment de rapport eau sur ciment de 0.3. Des simulations en poro-élasticité et en visco-poro-élasticité sont comparés. Les paramètres visco-élastiques sont estimés à partir de paramètre de la littérature [7]. Le maillage utilisé est un maillage de type Delaunay isotrope homogène dont la taille des mailles est de 2 mm et les calculs sont effectués sur 48 processeurs. La pression post rupture n'est pas prise en compte. La variable d'étude est la fraction volumique de granulats pour une distribution mono disperse de 6 mm de rayon.

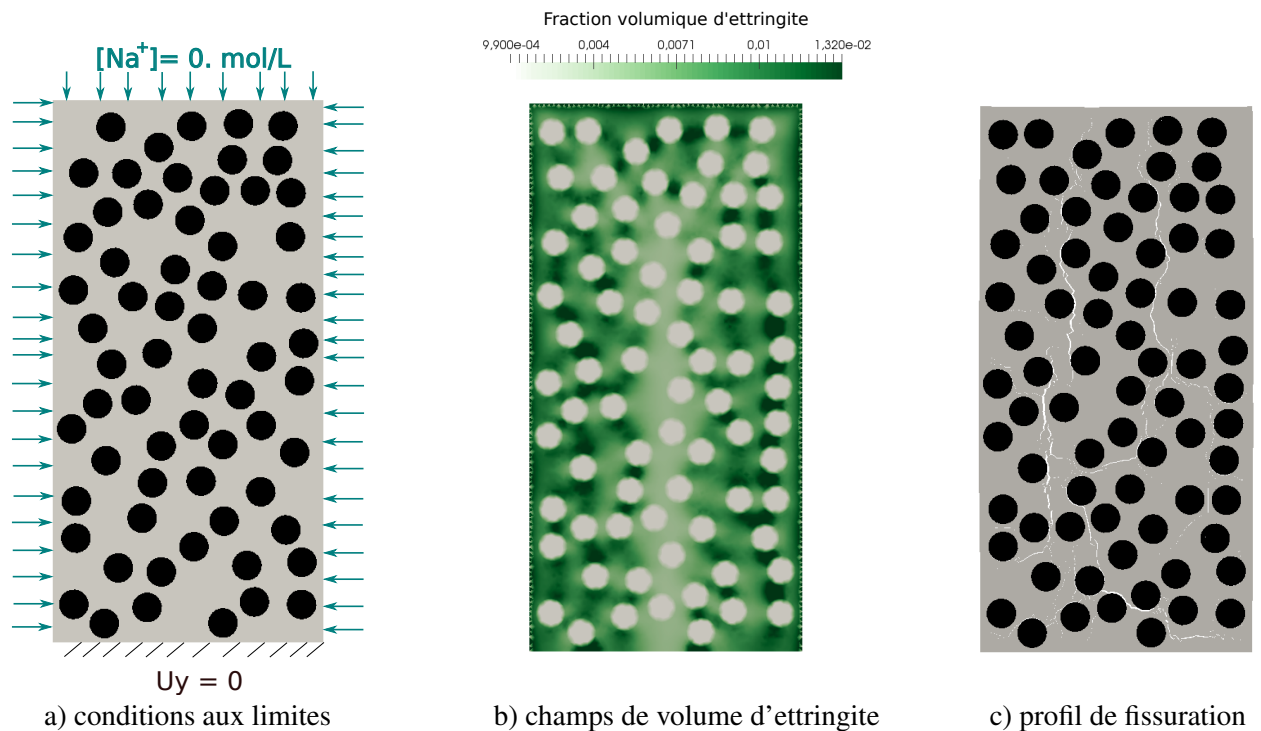


FIGURE 4 – Résultat de simulation visco élastique,  $f_g = 0.35$

La FIGURE 4 b) montre que le champ de fraction volumique d'ettringite dépend localement de la présence d'inclusions et qu'un gradient d'ettringite est crée entre le bord et le centre de l'éprouvette. Ce résultat est en accord avec les simulations de [21], dont la précipitation de l'ettringite dépend de la concentration en alcalins. La précipitation localisée de l'ettringite au niveau de l'interface matrice/granulats visible au début de la réaction n'est cependant pas retrouvée [6].

La FIGURE 4 c) montre une fissuration issue des déformations différenciées entre les granulats et la matrice et du gonflement de l'éprouvette. La zone interfaciale matrice/granulats, nommée auréole de transition, est une zone de faiblesse du matériau dû à une porosité locale plus importante que dans la matrice [10]. L'interface est ici considérée comme saine et les paramètres cohésifs sont équivalents à ceux de la matrice [2]. Par déformations différentielles, cette zone est le lieu privilégié pour l'initiation des fissures. Le gradient de gonflement dans l'éprouvette est ensuite moteur de la propagation des fissures. Ces fissures se propagent préférentiellement dans le sens vertical dû au gonflement en forme de tonneau de l'éprouvette et entre chaque inclusion due à la concentration locale des contraintes.

L'expansion latérale des éprouvettes, usuellement étudiées expérimentalement, est représentée pour différentes fractions volumiques d'inclusions pour des modèles poro-élastiques et visco-poro-élastiques (FIGURE 5). Pour les simulations poro-élastiques, la courbe est bien de forme sigmoïdale, forme typique des expansions d'éprouvettes atteintes de la RSI [14]. Cependant, l'impact de la partie visqueuse est trop important. L'expansion augmente lorsque la fraction volumique d'inclusion diminue, étant donné que la matrice est la zone d'expansion dans le modèle. Pour le mortier, matériau composé de pâte de ciment et de sable (inclusion de taille plus faible), Al Schamaa [1] observe une tendance inverse. Le mortier est un matériau, au contraire du béton, caractérisé par une forte fraction volumique d'auréoles de transition et une forte percolation de cette phase, impactant le comportement hydro-chimio-mécanique du matériau [22] [5]. Ainsi, les processus de transport ainsi que le champ de contrainte sont fortement impactés par cette zone pouvant expliquer la différence dans les résultats. L'autre explication est la non-prise en compte de la pression de cristallisation dans les fissures ainsi que la fissuration initiale due à l'échauffement au jeune âge [13].

Afin de mieux prendre en compte l'évolution de la cinétique de gonflement du béton, la modélisation du transport réactif dans les fissures est en cours de développement.

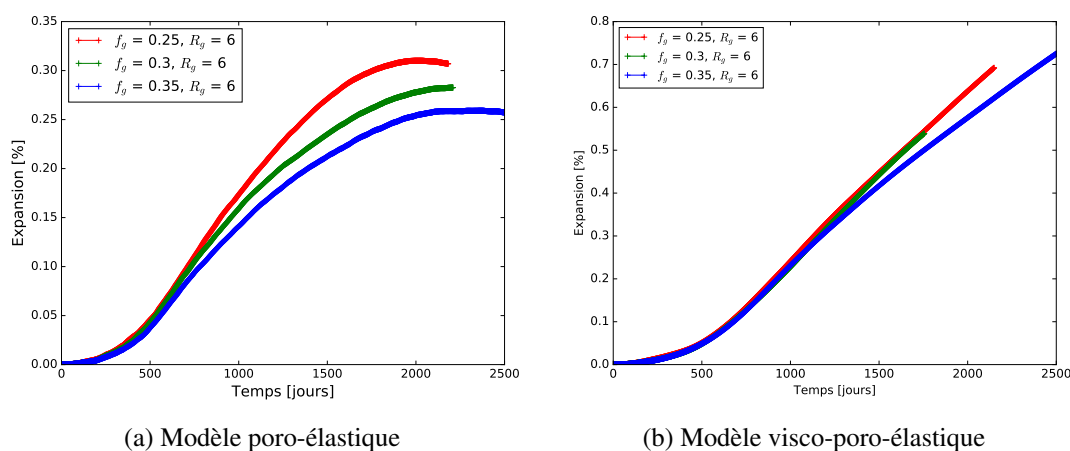


FIGURE 5 – Étude de l'expansion des éprouvettes au cours des dégradations pour différents taux de granulats

## Références

- [1] M. Al Schamaa. *Etude du risque de développement d'une réaction sulfatique interne et de ses conséquences dans les bétons de structure des ouvrages nucléaires*. PhD thesis, Université Paris-Est, 2012.
- [2] L. Bichet. *Mécanisme de transport dans la fissuration des matériaux hétérogènes : application à la durée de vie d'exploitation des centrales nucléaires*. PhD thesis, Université de Montpellier II, 2017.
- [3] M. Bisoffi-Sauve. *Etude des ouvrages maçonnés en pierre par la méthode des éléments discrets : caractérisation et modélisation du comportement cohésif des joints*. PhD thesis, Université de Bordeaux, 2016.
- [4] N. Blal. *Modélisation Micromécanique et identification inverse de l'endommagement par approches cohésives*. PhD thesis, Université de Montpellier II, 2013.
- [5] M. Bogdan. *Morphological multiscale modeling of cementitious materials - Application to effective diffusive properties prediction*. PhD thesis, école Normale Supérieur de Cachan, 2015.
- [6] X. Brunetaud. *Etude de l'influence de différents paramètres et de leurs interactions sur la cinétique et l'amplitude de la réaction sulfatique interne au béton*. PhD thesis, Ecole Centrale des Arts et Manufactures "Ecole Centrale Paris", 2005.
- [7] C. Dunant and K. Scrivener. Experimental evidence for the link between aggregates degradation and expansion and the formulation of the microstructural model. *Sweeling Concrete in Dams and Hydraulic Structures*, 2017.
- [8] R.J. Flatt and G.W. Scherer. Thermodynamics of crystallization stresses in def. *Cement and Concrete Research*, pages Vol 38 : 325 – 336, 2008.
- [9] A.E. Idiart. *Coupled analysis of degradation processes in concrete specimens at the meso-level*. PhD thesis, Universitat Politècnica de Catalunya, 2009.
- [10] M. Jebli. *Caractérisation à l'échelle locale des propriétés mécaniques de l'interphase pâte de ciment-granulat et application à la lixiviation*. PhD thesis, Université de Montpellier II, 2017.
- [11] T.T.H Le. *Modélisation multi-échelle des matériaux viscoélastiques hétérogènes : application à l'identification et à l'estimation du fluage propre d'enceintes de centrales nucléaires*. PhD thesis, Université Paris-Est, 2011.
- [12] N. Leklou. *Contribution à la connaissance de la réaction sulfatique interne*. PhD thesis, Université Paul-Sabatier Toulouse III, 2008.
- [13] M. Malbois, L. Divet, S. Lavaud, and J.M. Torrenti. Experimental study on effects of aggregates mineralogical composition and preservation conditions on def in concrete. *Sweeling Concrete in Dams and Hydraulic Structures*, 2017.
- [14] R.P. Martin, O.O. Metalssi, and F. Toutlemonde. 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*, pages 49 23–30, 2013.
- [15] P. Morenon. *Modélisation des réactions de gonflement interne des bétons avec prise en compte des couplages poro mécanique et chimiques*. PhD thesis, Université Toulouse 3 Paul Sabatier, 2017.
- [16] F. Perales. *Fissuration des matériaux à gradient de propriétés. Application au Zircaloy hydruré*. PhD thesis, Université de Montpellier II, 2005.
- [17] F. Perales, S. Bourgeois, A. Chrysochoos, and Y. Monerie. Two field multibody method for periodic homogenization in fracture mechanics of non linear heterogeneous materials. *Engineering Fracture Mechanics*, pages 75 : 3378 – 3398, 2008.
- [18] F. Perales, F. Dubois, Y. Monerie, R. Mozul, F. Babik, T. Dbouk, and R. Monod. Xper : une plateforme pour la simulation numérique distribuée d'interactions multiphysiques entre corps. *12e Colloque National en Calcul des Structures*, 2015.
- [19] S. Sabit. *Les méthodes numériques de transport réactif*. PhD thesis, Université de Rennes, 2014.
- [20] M. Salgues. *Modélisation des effets structuraux des réactions sulfatiques internes : Application aux barrages en béton*. PhD thesis, Université de Toulouse 3 Paul Sabatier, 2013.
- [21] A. Sellier and S. Multon. Chemical modelling of delayed ettringite formation for assessment of affected concrete structures. *Cement and Concrete Research*, 2018.
- [22] A. Tognevi. *Modélisation multi-échelle et simulation du comportement thermo-hydro-mécanique du béton avec représentation explicite de la fissuration*. PhD thesis, École Normale Supérieure de Cachan, 2012.
- [23] J.-F. Ulm, G. Constantinides, and F.H. Heukamp. Is concrete a poromechanics material ? -a multiscale investigation of poroelastic properties. *Materials and Structures/Concrete Science and Engineering*, 2004.