HAL
open science

Effets de la variabilité des propriétés de matériaux cimentaires sur les transferts hygrothermiques : développement d'une approche probabiliste

Nabil Issaadi

To cite this version:

Nabil Issaadi. Effets de la variabilité des propriétés de matériaux cimentaires sur les transferts hygrothermiques : développement d'une approche probabiliste. Matériaux. Université de La Rochelle; École Royale Militaire (Bruxelles), 2015. Français. NNT : 2015LAROS028 . tel-01374744

HAL Id: tel-01374744

https://theses.hal.science/tel-01374744

Submitted on 1 Oct 2016

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

UNIVERSITÉ DE LA ROCHELLE

École Doctorale Sciences et Ingénierie en Matériaux, Mécanique, Énergétique et Aéronautique (SI-MMEA)

Laboratoire des Sciences de l'Ingénieur pour l'Environnement (LaSIE)
UMR CNRS 7356

ÉCOLE ROYALE MILITAIRE DE BRUXELLES

Département de Mécanique

THÈSE

présentée par

NABIL ISSAADI

pour l'obtention du grade de Docteur de l'Université de La Rochelle
et de l'École Royale Militaire de Bruxelles
Discipline : Génie Civil

Effets de la variabilité des propriétés de matériaux cimentaires sur les transferts hygrothermiques : développement d'une approche probabiliste

Soutenue le 02 Décembre 2015

Devant le jury composé de :

M. Didier DEFER	Professeur, Université d'Artois, Président
M. Rachid BENNACER	Professeur, École Normale Supérieure de Cachan, Rapporteur
M. Frédéric DUPRAT	Professeur, INSA de Toulouse, Rapporteur
M. Ameur El Amine HAMAMI	Maître de conférences, Université de La Rochelle, Examinateur
M. Rafik BELARBI	Professeur, Université de La Rochelle, Directeur de thèse
M. Abdelkarim AÏT-MOKHTAR	Professeur, Université de La Rochelle, Co-directeur de thèse
M. Walter BOSSCHAERTS	Professeur, École Royale Militaire de Bruxelles, Co-directeur de thèse

Remerciements

Je tiens à remercier la région Poitou-Charentes pour avoir financé ce travail de thèse. Je remercie aussi l'Agence Nationale de la Recherche qui m'a permis, à travers le projet HygroBat "Vers une méthode de conception HYGRO-thermique des BATiments performants", de bénéficier de moyens qui m'ont facilité ce travail, notamment la partie expérimentale.

J'adresse mes sincères remerciements à M. Abdelkarim. AÎT-MOKHTAR, Directeur du LaSIE pour m'avoir accueilli au sein de son laboratoire. Je le remercie vivement pour avoir participé à l'encadrement quotidien de ma thèse. J'ai beaucoup appris à ses côtés, en termes de rigueur et de culture scientifique. Je mesure la chance que j'ai eu de croiser sa route et de l'avoir comme professeur et encadrant.

Je remercie aussi M. Walter BOSSCHAERTS, Professeur et Chef de Département de Mécanique de l'École Royale Militaire de Bruxelles d'avoir accepté de participer à l'encadrement de cette thèse en cotutelle entre les deux établissements. Je le remercie de m'avoir aussi bien accueilli au sein de son laboratoire à l'École Royale Militaire.

Les mots semblent faire défaut quand il s'agit d'exprimer ma reconnaissance à l'endroit de mon directeur de thèse et directeur du département Génie Civil et Mécanique de l'Université de La Rochelle, Rafik BELARBI. Je le remercie de m'avoir encadré et pour la confiance qu'il m'a accordé. Je lui exprime toute ma gratitude pour ses qualités humaines et sa disponibilité et qui malgré les sollicitations en tous genres, il n'en n'est pas moins, abordable, généreux de son savoir comme de son temps, ne ménageant ni sa gentillesse ni ses efforts. Je lui dois plus que beaucoup.

Je remercie M. Rachid BENNACER, professeur à l'École Normale Supérieure de Cachan et M. Frédéric DUPRAT, professeur à l'Institut Nationale des Sciences Appliquées de Toulouse pour avoir accepté de rapporter et de juger mon travail. Je remercie M. Didier DEFER, Professeur à l'université d'Artois, pour avoir accepté d'examiner et de juger mon travail. Mes remerciements vont aussi à mon ami et collègue M. Ameur HAMAMI, Maitre de Conférences à l'université de La Rochelle, pour sa collaboration et son aide précieuse où nous avons bataillé pour construire le voile expérimentale. Je le remercie aussi d'avoir accepté de faire partie des membres de jury.

Je tiens à remercier vivement Mme Armelle NOUVIAIRE, assistante ingénieur au LaSIE, qui a contribué d'une façon active à la caractérisation expérimentale des matériaux.

Je souhaite remercier toutes les personnes qui m'ont soutenu et grâce à qui, directement ou indirectement, ce travail de thèse a été mené à bien. Je pense au personnel du LaSIE, du département de Génie Civil de l'université de La Rochelle, de l'École doctorale SIMMEA, du laboratoire et département de mécanique de l'École Royale Militaire de Bruxelles qui contribuent au bon fonctionnement et à l'ambiance chaleureuse qui règnent en ces lieux. Une pensée particulière à mes collègues et amis A. YOUNSI, M. BENAMOUR, R. DJEDJIG, R. CHERIF, M. OULEGHLOU, A. BENABED, K. ABAHRI, S. OULBOUKHITINE, A. TRABELSI, M. TAHLAITI, K. ABDELLI, P. T. NGUYEN, F. BENNAI et, bien sûr, sans oublier mon ami, collègue, frère et compagnons des meilleurs et des pires instants de ces trois années de thèse, M.Y. FERROUKHI.

Mes remerciements vont aussi à ma famille à qui je dois pratiquement tout ce que je suis aujourd'hui. Je ne pourrai pas rendre à mes parents une infime partie de ce qu'ils m'ont apporté.

Je tiens enfin à remercier ma femme, ma chère TASSADIT, pour qui les mots seraient superflus. Merci pour son amour et son soutien.

A mes chers parents qui m'ont tant donné ;

A mes frères : Nadjib, Khaled et Houssem ;

A mes neveux : Hani et Mehdi et ma nièce : Rana ;

A ma très chère femme Tassadit ;

Résumé

Ce travail concerne la modélisation numérique et expérimentale de la variabilité des propriétés thermo-hydriques de matériaux cimentaires en vue de l'évaluation de son impact sur la prédiction du comportement hygrothermique de parois de bâtiments.

Une approche probabiliste qui prend en compte la variabilité spatiale des propriétés de matériaux lors des transferts couplés de chaleur et d'humidité a été développée. Elle est basée sur la génération, par la décomposition modale de Karhunen-Loève, de champs aléatoires spatialement corrélés. Une implémentation d'un modèle de transfert hygrothermique dans un code de simulation numérique a été ensuite réalisée en adoptant cette démarche stochastique. Cette dernière, qui considère comme variables d'entrée des champs aléatoires, permet de quantifier l'incidence de cette variabilité sur le comportement hygrothermique d'une paroi de bâtiment. Une étude préalable, dédiée à l'évaluation de l'incidence de la variabilité aléatoire du coefficient de diffusion, a été entreprise en considérant une variabilité de ±30% pour un mortier et de ±20% pour un BHP suivant une loi de distribution normale. Aussi, nous avons relevé un certain nombre d'incertitudes possibles de la teneur en eau à saturation tout en montrant leurs effets sensibles sur le résultat de la prédiction du comportement hygrothermique. Ces études ont permis de mettre en exergue l'importance de la prise en compte des incertitudes sur les données du matériau lors des simulations numériques des transferts hygrothermiques.

Sur le plan expérimental, une campagne d'évaluation de la variabilité spatiale des paramètres les plus influents a été menée. Cette campagne a été réalisée sur un voile de dimension 2x1,2 m fabriqué au laboratoire. À l'issue de ce programme expérimental, l'espérance, la variance et la longueur de corrélation des propriétés étudiées (porosité à l'eau, perméabilité à la vapeur, isotherme de sorption et perméabilité au gaz) ont été déterminées. Ces trois paramètres sont indispensables pour la bonne mise en œuvre de la décomposition de Karhunen-Loève. Aussi, une autre campagne de caractérisation expérimentale a été menée sur des pâtes de ciment, mortiers et béton. Elle a été divisée en trois grandes parties selon les propriétés étudiées :

(i) les propriétés microstructurales et d'hydratation où l'on retrouve les mesures des porosités à l'eau et au mercure ainsi que les distributions de la taille des pores et une analyse de l'effet du taux d'hydratation de matériaux cimentaires sur leurs propriétés hygrothermiques.

(ii) les propriétés hydriques : dans cette partie, une analyse sous différents angles (évolution en fonction de l'âge des matériaux, en fonction de la température, effet des constituants des matériaux, etc.) a été réalisée sur les isothermes de sorption et sur la perméabilité à la vapeur d'eau.

(iii) les propriétés thermiques où des mesures de conductivités thermiques et de chaleurs spécifiques ont été effectuées.

Les résultats de l'étude ont mis en exergue les limites des approches déterministes suite à leurs confrontations avec les résultats obtenus par l'approche probabiliste, mise en œuvre dans le cadre du présent travail.

Abstract

This study deals with the experimental and the numerical modeling of the variability properties of cement based materials to evaluate their effects on the prediction of hygrothermal behavior of building envelops.

A probabilistic approach taking into account the spatial variability of the materials properties during the coupled heat and mass transfer has been developed. It is based on the generation of spatially correlated random fields by the Karhunen Loève decomposition. The stochastic model's program has been implemented in a numerical simulation code. Using this tool that considers the input variables as random fields, the impact of this variability on the hygrothermal behavior of building envelops was quantified. A prior study dealing with the assessment of the effect of the diffusion coefficient random variability was carried out by considering a variation of ±30% for mortar and ±20% for high performance concrete (HPC) according to a normal distribution. Also, we have identified some possible uncertainties of the water content at saturation and showed their significant impact on the prediction of hygrothermal behavior of the material. These studies highlight the importance of considering the data uncertainties of building materials during numerical simulation of hygrothermal transfers.

At the experimental level, the spatial variability of the most influential parameters was evaluated. It was carried out by manufacturing a concrete wall in lab. At the end of this experimental program, the expected value, standard deviation and the correlation length of the studied properties (water porosity, water vapor permeability, sorption isotherm and gas permeability) were determined. These three parameters are important for the successful implementation of Karhunen Loeve decomposition. Also, another experimental program was conducted on cement pastes, mortars and concrete. It was divided into three parts according to the studied properties:

(i) Hydrations and microstructural properties which include the measurement of water and mercury porosity, the pore size distributions and an analysis of some techniques for stopping cement hydration.

(ii) Hydric properties: where an analysis of the sorption and the water vapor permeability was performed considering their evolution with materials ages, temperature …

(iii) Thermal properties where measurement of specific heat and thermal conductivity were performed.

The result of the study highlighted the limits of deterministic approaches after their confrontation with the obtained results using the probabilistic one developed in this work.

Table des matières

Remerciements 3
Résumé 7
Abstract 9
Table des matières 11
Table des illustrations 13
Liste des Tableaux 19
Introduction générale 21
Chapitre I Analyse Bibliographique 25
I.1. Milieux poreux 26
I.2. Propriétés de transferts et de stockage dans les matériaux cimentaires 28
I.2.1. Microstructure : Propriété complexe gouvernant le transfert 28
I.2.2. Teneur en eau et degré de saturation 31
I.2.3. Isotherme d'adsorption et de désorption de la vapeur d'eau 32
I.2.4. Perméabilité à la vapeur d'eau-Coefficient de diffusion d'humidité 36
I.2.5. Propriétés thermiques 41
I.3. Méthodes expérimentales de caractérisation des matériaux cimentaires 47
I.3.1. Caractérisation de la microstructure (degré d'hydratation) 47
I.3.2. Mesure des isothermes de sorption 56
I.3.3. Mesure de la perméabilité à la vapeur 61
I.3.4. Mesure de la conductivité thermique 66
I.3.5. Mesure de la chaleur spécifique 73
I.4. Approches et modèles de prédiction du comportement hygrothermique des matériaux poreux de construction 78
I.4.1. Approche déterministe : modèles macroscopiques de transfert couplé de chaleur et d'humidité 78
I.4.2. Approche prenant en compte la variabilité des propriétés de transfert des matériaux cimentaires et des conditions environnementales 84
I.5. Bilan 90
Chapitre II Caractérisation expérimentale des matériaux étudiés 93
II.1. Matériaux étudiés 94
II.2. Propriétés Microstructurales et d'hydratation 95
II.2.1. Porosimétrie à l'eau 95
II.2.2. Porosimétrie au mercure 97

II.2.3. Taux d'hydratation 99

II.3. Propriétés hydriques 105
II.3.1. Isothermes d'adsorption et de désorption 107
II.3.2. Capacité de stockage d'humidité C_m 115
II.3.3. Courbe de rétention d'eau (CRE) 116
II.3.4. Modélisation des isothermes d'adsorption et de désorption 120
II.3.5. Perméabilité à la vapeur d'eau 123

II.4. Propriétés thermiques 127
II.4.1. Conductivité thermique 127
II.4.2. Chaleur spécifique Cp 131

II.5. Conclusion 139

Chapitre III Modélisation des transferts couplés de chaleur et d'humidité : Applications et analyses 141

III.1. Modélisation des transferts couplés de chaleur, d'air et d'humidité 142
III.1.1. Hypothèses du modèle 142
III.1.2. Équations de bilan 142

III.2. Étude paramétrique 146

III.3. Applications : 154
III.3.1. Effet de l'âge des matériaux sur le séchage 154
III.3.2. Effet de la prise en compte du palier de saturation sur le séchage 156
III.3.3. Analyse des méthodes de pré-conditionnement avant l'essai de carbonatation accélérée 157

III.4. Conclusion 178

Chapitre IV Effet de la variabilité des propriétés des matériaux poreux de construction sur leur comportement hygrothermique 181

IV.1. Effet de la variabilité aléatoire des propriétés du matériau sur le séchage 182
IV.1.1. Effet de la variabilité du coefficient de diffusion 183
IV.1.2. Effet de la variabilité de la teneur en eau à saturation 189

IV.2. Évaluation et incidence de la variabilité spatiale des propriétés du matériau sur les transferts hygrothermiques 196
IV.2.1. Campagne expérimentale : évaluer la variabilité spatiale du matériau 196
IV.2.2. Variabilité spatiale des propriétés du matériau étudié 200
IV.2.3. Identification de la longueur de corrélation 217
IV.2.4. Génération de champs aléatoires 221
IV.2.5. Simulation des transferts à l'échelle de la paroi : Prise en compte de la variabilité spatiale 225

IV.3. Conclusion 238

Références 243

Table des illustrations

Figure I. 1. Représentation schématique d'un milieu poreux 26
Figure I. 2. Tortuosité d'un pore 28
Figure I. 3. Exemple de microstructure d'une pâte de ciment ordinaire (MEB) [13, 14] 29
Figure I. 4. Diagramme schématique d'une courbe de sorption [21] 33
Figure I. 5. Classification des isothermes de sorption selon l'IUPAC 34
Figure I. 6. Perméabilité à la vapeur d'un contreplaqué et d'un isolant de cellulose [38] 37
Figure I. 7. Perméabilité à la vapeur d'eau vs masse volumique sèche [42] 38
Figure I. 8. Perméabilité à la vapeur vs porosité [42] 39
Figure I. 9. Variation du coefficient de diffusion d'humidité (diffusivité) en fonction de la teneur en eau de la pâte de ciment pour différents rapport E/C (0,35 et 0,4) [43] 40
Figure I. 10. Variation de la diffusivité en fonction de l'humidité relative du mortier pour différents rapports E/C (0,4 ; 0,6 et 0,8) [44] 40
Figure I. 11. Conductivité thermique en fonction de : (a) âge, (b) rapport E/C, (b) volume des agrégats et (c) type de ciment [49] 43
Figure I. 12. Évolution de la conductivité thermique en fonction de la teneur en eau du mortier [50] 44
Figure I. 13. Domaines d'utilisation des principales techniques de caractérisation texturale des matériaux poreux [68] 48
Figure I. 14. Technique de séchage "D-drying" [70] 48
Figure I. 15. Porosité à l'eau de la pâte de ciment CEM I en fonction du rapport E/C et de la technique de séchage utilisée [73] 50
Figure I. 16. Diamètre mesuré par la porosimètre [15] 53
Figure I. 17. Principe d'acquisition d'une image 3D par microtomographie aux rayons X [92] 56
Figure I. 18. Système de mesure des isothermes de sorption [93] 57
Figure I. 19. Enceinte de contrôle de l'humidité relative par solutions salines saturées [4] 58
Figure I. 20. Schéma simplifié du DVS [95] 60
Figure I. 21. Schéma représentatif de la coupelle [20] 62
Figure I. 22. Représentation des résistances à la vapeur d'eau introduites dans la méthode de la coupelle [20] 63
Figure I. 23. Schéma du matériau modélisé [94] 65
Figure I. 24. Vue d'ensemble sur les méthodes expérimentales de mesure 66
Figure I. 25. Principe de la méthode de comparaison [17, 98] 67
Figure I. 26. Schéma de principe du dispositif de la boite chaude gardée 69
Figure I. 27. (a) Schéma de montage de la méthode fil chaud ; 69
Figure I. 28. (a) Schéma du montage de la méthode flash ; 71
Figure I. 29. Schéma de montage de la DSC à flux de chaleur [106] 74

Figure I. 30. Schéma de montage de la DSC à compensation de puissance [107] 75
Figure I. 31. Thermogramme obtenu par la méthode par pallier [106] 76
Figure I. 32. Schéma de montage d'un calorimètre adiabatique [108] 77
Figure I. 33. (a) distribution statistique de la teneur en eau à l'équilibre du béton A1 [94, 118, 120] ;(b) Distribution de la porosité du béton A2 après un séchage à 105°C [118] 85
Figure I. 34. Exemple d'un problème de probabilité [126] 88

Figure II. 1. Banc de saturation 96
Figure II. 2. Porosité accessible à l'eau des différents matériaux à 7 et 28 jours d'âge avec les écart-types de chaque mesure 96
Figure II. 3. Comparaison des valeurs de porosité déterminées par l'essai de porosité à l'eau et par intrusion de mercure, pour différents matériaux testés 98
Figure II. 4. Distributions de la taille des pores obtenues par intrusion au mercure du béton (a) et du mortier 1 et L30 (b) 99
Figure II. 5. Distributions de la taille des pores obtenues par intrusion au mercure des pâtes de ciment (a) et comparaison du béton, mortier 1 et pâte 1 (b) 99
Figure II. 6. Représentation schématique d'un appareil d'ATG (type Setaram- SETSYS Évolution 16/18) [15] 101
Figure II. 7. Évolution de la masse de l'échantillon au cours d'une ATG de la pâte de ciment 1 en fonction des techniques d'arrêt d'hydratation utilisées 102
Figure II. 8. Évolution de la masse de l'échantillon au cours d'une ATG du mortier 1 en fonction des techniques d'arrêt d'hydratation utilisées 102
Figure II. 9. Dérivée des pertes de masse dTG de la pâte de ciment 1 en fonction des techniques d'arrêt d'hydratation utilisées 103
Figure II. 10. Degré d'hydratation des pâtes de ciment 1 et mortier 1 à l'âge de 7 jours 104
Figure II. 11. Diagramme schématique d'une courbe d'isotherme d'adsorption et de désorption [21] 105
Figure II. 12. Belsorp Aqua 3 107
Figure II. 13. Représentation schématique d'un porte échantillon 107
Figure II. 14. Comparaison des isothermes d'adsorption et de désorption de la vapeur d'eau à 20°C à 7 et 28 jours de : (a) pâte de ciment 1, (b) pâte de ciment L30, (c) mortier1 et (d) mortier L30 109
Figure II. 15. Comparaison des isothermes d'adsorption et de désorption à 20 °C de la pâte 1 et L30, du mortier 1 et L30 à 28 jours 110
Figure II. 16. Comparaison des isothermes d'adsorption et de désorption à 20°C à 7jours, 28 jours et 1an de : (a) pâte de ciment L30, (b) mortierL30 110
Figure II. 17. Comparaison des isothermes d'adsorption et de désorption à 20°C de : (a) pâte de ciment 1 et L30 (28j et 1an), (b) mortier 1 et L30 (28j et 1an) 111
Figure II. 18. Comparaison des isothermes d'adsorption et de désorption à 20°C de la pâte de ciment 1, mortier 1 et du béton REF1 112
Figure II. 19. Isotherme d'adsorption et de désorption à 20°C du gravier 112
Figure II. 20. Comparaison des isothermes de sorption à 20°C de : (a)Pâte1 et (b) pâte L30 avec différents rapport E/C=0,3 ; 0,35 et 0,4 à 28 jours 113
Figure II. 21. Effet du dosage en eau sur la distribution de la taille des pores des pâtes de ciment et mortiers ordinaires [15] 114
Figure II. 22. Effet de la température sur l'adsorption et la désorption de la vapeur d'eau du béton REF1 114
Figure II. 23. Capacité de stockage d'humidité à 7 jours et 28 jours à 20°C de la pâte de ciment 1 et L30 (a)et du mortier 1 et L30 (b) 115

Figure II. 24. Capacité de stockage d'humidité de la pâte 1 et L30 en fonction du rapport E/C (0,3 ; 0,35 et 0,4) 116
Figure II. 25. Extracteur à membrane 117
Figure II. 26. Courbe de rétention d'eau en fonction du rapport E/C de la pâte de ciment 1 (a) et de la pâte de ciment L30 (b) à l'âge 28 jours 117
Figure II. 27. Courbe de désorption complète de la vapeur d'eau de la pâte de ciment 1 à 28 jours d'âge 119
Figure II. 28. Courbe de désorption complète de la vapeur d'eau de la pâte de ciment L30 à 28 jours d'âge . 119
Figure II. 29. Classification des isothermes d'adsorption physique donnée par l'IUPAC [23] 120
Figure II. 30. Isotherme de sorption de la pâte 1 à l'âge 7 jours (a) et 28 jours (b) 122
Figure II. 31. Comparaison de l'isotherme de désorption de la pâte 1 123
Figure II. 32. Dispositif expérimental de mesure de la perméabilité à la vapeur d'eau par la méthode de la coupelle de type Gintronic Gravitest 124
Figure II. 33. Schéma représentatif d'une coupelle 124
Figure II. 34. Évolution du flux de vapeur en fonction du temps de : (a) la pâte de ciment 1 et (b) du mortier 1 en fonction de l'âge 126
Figure II. 35. Dispositif de mesure de la conductivité thermique en régime permanent (λ-Meter EP 500) 128
Figure II. 36. Comparaison de la conductivité thermique en fonction de la température de la pâte1 et pâteL30 à 28 jours d'âge 129
Figure II. 37. Comparaison de la conductivité thermique en fonction de la température du mortier1 et mortierL30 à 28 jours d'âge 129
Figure II. 38. Évolution de la conductivité thermique en fonction de la teneur en eau du mortier L30 à 3 mois d'âge 130
Figure II. 39. Principe de mesure de la chaleur spécifique par DSC 132
Figure II. 40. Évolution du Cp en fonction de la température et de l'âge de la pâte1 (a), pâte L30 (b), mortier 1 (c) et mortier L30 (d) 133
Figure II. 41. Comparaison de la chaleur spécifique des différents matériaux testés à l'âge 30 jours 133
Figure II. 42. Comparaison de la chaleur spécifique des matériaux à substitution du ciment par du laitier à l'âge 30 jours et à 1 an 134
Figure II. 43. Dispositif de mesure de la chaleur spécifique : calorimètre Calvet BT 2.15 135
Figure II. 44. Comparaison de l'évolution du Cp en fonction de la température des différents matériaux testés à un âge > 90 jours 136
Figure II. 45. Comparaison des valeurs de Cp obtenues par DSC et par calorimétrie Calvet 137
Figure II. 46. Comparaison des valeurs de Cp obtenues par DSC et par calorimétrie Calvet après un pré-conditionnement par séchage à 105°C des matériaux âgés de plus d'un an 138
Figure II. 47. Évolution de la chaleur spécifique du mortier 1 en fonction de la teneur en eau et de la température 138

Figure III. 1. Configuration étudiée 146
Figure III. 2. Profils de teneur en eau et d'humidité du mortier après 10h de transfert 148
Figure III. 3. Profil hydrique à différents échéances de temps 148
Figure III. 4. Évolution des profils hydriques et d'humidité en fonction du coefficient de diffusion après 10h de transfert 149
Figure III. 5. Évolution des profils hydriques et d'humidité en fonction du coefficient de diffusion avec une variabilité plus importante après 10h de transfert 149

Figure III. 6. Évolution des profils hydriques et d'humidité en fonction de la masse volumique après 10h de transfert 150
Figure III. 7. Évolution des profils hydriques et d'humidité en fonction de la chaleur spécifique après 10h de transfert 151
Figure III. 8. Évolution des profils hydriques et d'humidité en fonction de la conductivité thermique après 10h de transfert 152
Figure III. 9. Évolution des profils hydriques et d'humidité en fonction de la variation combinée des paramètres d'entrée après 10h de transfert 152
Figure III. 10. Description schématique des conditions aux limites et initiales 155
Figure III. 11. Comparaison des profils de teneur en eau à l'issue d'un séchage de 5 heures du mortier 1 (a), pâte1 (b), mortier L30 (c) et pâte L30 (d) à 7 et 28 jours d'âge 155
Figure III. 12. Comparaison des profils de teneur en eau à l'issue de 5 heures de séchage de la pâte1 avec et sans palier de saturation à 28 jours d'âge 157
Figure III. 13. Comparaison de l'évolution de la teneur en eau au milieu de l'échantillon ($x=0,1m$) en fonction du temps de séchage pour la pâte 1 à 28 jours d'âge 157
Figure III. 14. Distributions de la taille des pores obtenues par intrusion de mercure du BHP A1 et du béton C15 [94] 160
Figure III. 15. Isotherme de désorption des matériaux : (a) BHP A1, (b) béton C15 [94] et (C) béton courant BO [39] 161
Figure III. 16. Capacité de stockage d'humidité C_m des matériaux : (a) BHP A1, (b) du béton C15 et (c) du béton BO 162
Figure III. 17. Coefficient de diffusion hydrique du BHP A1 (a), du béton C15 (b) [94] et du béton BO [39] .. 162
Figure III. 18. Schéma représentatif de la configuration étudiée (phase 1) et les conditions aux limites externes associées 164
Figure III. 19. Profils hydriques après pré-conditionnement des matériaux A1 (a,b), C15 (c,d) et BO (e,f) selon le protocole 1 (a,c,e) et le protocole 2 (b,d,f) 166
Figure III. 20. Comparaison des Profils de degré de saturation après séchage des matériaux A1, C15 et BO selon le protocole 1 (a) et le protocole 2 (b) 167
Figure III. 21. Profils hydriques à l'issue de la phase 2 de A1 (a,b), C15 (c,d) et BO (e,f) selon le protocole 1 (a,c,e) et le protocole 2 (b,d,f) 168
Figure III. 22. Comparaison des Profils de degré de saturation à l'issu de la phase2 des matériaux A1, C15 et BO selon le protocole 1 (a) et le protocole 2 (b) 169
Figure III. 23. Évolution de la teneur en eau au cours des deux phases 1 et 2 selon les deux protocoles de pré-conditionnement 1 et 2 170
Figure III. 24. Évolution du coefficient de diffusion du dioxyde de carbone en fonction de la teneur en eau d'un mortier de chaux [176] 172
Figure III. 25. Évolution du degré de saturation des trois matériaux jusqu'à obtention du degré de saturation optimum (SR=50%) au centre de l'échantillon 173
Figure III. 26. Profil de degré de saturation à l'issue du pré-conditionnement proposé (3 mois pour béton A1 ; 45 jours pour béton C15 et 60 heures pour béton BO) 174
Figure III. 27. Évolution du degré de saturation des trois matériaux au cours de l'essai de carbonatation pendant 14 jours 175
Figure III. 28. Profil de degré de saturation à l'issue de 14 jours d'essai de carbonatation 175
Figure III. 29. Photo du dispositif expérimental de suivi de l'humidité relative dans le matériau 176
Figure III. 30. Évolution de l'humidité relative au centre de l'échantillon après séchage selon le protocole 1 177

Figure III. 31. Évolution de l'humidité relative au centre de l'échantillon après séchage selon le protocole 2. 177

Figure IV. 1. Configuration étudiée 184
Figure IV. 2. Distribution normale et sa courbe cumulative du coefficient de diffusion d'humidité..... 184
Figure IV. 3. Évolution du degré de saturation à $x = 0{,}05\ m$, $x = 0{,}025\ m$ et $x = 0{,}005\ m$ au cours du séchage (simulation déterministe) 185
Figure IV. 4. Histogramme du temps de séchage nécessaire pour atteindre SR=30% 185
Figure IV. 5. Évolution du temps de séchage en fonction de la valeur du coefficient de diffusion d'humidité 186
Figure IV. 6. Effet de la variabilité du coefficient de diffusion sur l'évolution de HR à x=0.05 m pendant 24 heures de séchage..... 187
Figure IV. 7. Effet de la variabilité du coefficient de diffusion sur l'évolution de HR à x=0.05 m pendant le temps de séchage déterministe (2.38 h)..... 187
Figure IV. 8. Histogramme du temps de séchage nécessaire pour atteindre SR=60% à x=0,025 m du BHP A1 188
Figure IV. 9. Histogramme du temps de séchage nécessaire pour atteindre SR=30% obtenue avec 1000 réalisations de Dm 189
Figure IV. 10. Isotherme d'adsorption du mortier obtenue par le fit du modèle GAB avec différentes teneurs en eau à saturation..... 191
Figure IV. 11. Isotherme d'adsorption du mortier obtenue par le fit du modèle GDW avec différentes teneurs en eau à saturation..... 192
Figure IV. 12. (a) Profil de teneur en vapeur à l'issu du séchage ; (b) son évolution à différentes profondeurs dans l'échantillon 192
Figure IV. 13. Effet de la variabilité de la teneur en eau à saturation sur les profils de teneur en eau massique 193
Figure IV. 14. Effet de la variabilité de la teneur en eau à saturation sur le profil de degré de saturation à l'issue du séchage..... 193
Figure IV. 15. Effet de la variabilité de la teneur en eau à saturation sur l'évolution du degré de saturation au cours du séchage 194
Figure IV. 16. Effet de la variabilité de la teneur en eau à saturation sur le temps de séchage..... 195
Figure IV. 17. Effet combiné de la variabilité du coefficient de diffusion et de la teneur en eau à saturation du mortier sur le temps de séchage nécessaire pour atteindre SR=30% 195
Figure IV. 18. Position des carottes dans le voile expérimental..... 197
Figure IV. 19. Résistance à la compression 198
Figure IV. 20. Évolution de la masse de l'échantillon au cours d'une ATG du béton prélevé du voile expérimental 199
Figure IV. 21. Distribution de la taille des pores du béton voile 199
Figure IV. 22. Porosité accessible à l'eau suivant les lignes verticales du voile..... 200
Figure IV. 23. Distribution de la porosité et les lois de distribution associées 202
Figure IV. 24. Perméabilité à la vapeur d'eau suivant les lignes verticales du voile..... 203
Figure IV. 25. Distribution de la perméabilité à la vapeur..... 204
Figure IV. 26. Schéma de principe de la méthode de perméabilité au gaz [15]..... 205
Figure IV. 27. Perméabilité apparente de l'échantillon B2 en fonction de l'inverse de P_m – Perméabilité intrinsèque..... 207
Figure IV. 28. Perméabilité intrinsèque suivant les deux lignes verticales (B & E) 208

Figure IV. 29. Répétabilité des mesures de la perméabilité intrinsèque des échantillons prélevés suivant la ligne verticale B 209
Figure IV. 30. Répétabilité des mesures de la perméabilité intrinsèque des échantillons prélevés suivant la ligne verticale E 209
Figure IV. 31. Reproductibilité des mesures de la perméabilité intrinsèque suivant les deux lignes verticales B et E 211
Figure IV. 32. Distribution de la perméabilité intrinsèque suivant les deux lignes verticales B et E et les lois de distribution associées 212
Figure IV. 33. Variabilité des isothermes de sorption et de désorption suivant la ligne verticale A à 20°C 213
Figure IV. 34. Variabilité des isothermes de sorption et de désorption suivant la ligne verticale C à 20°C 214
Figure IV. 35. Dispersion de la teneur en eau au voisinage des humidités relative HR=5 ; 30 ; 50 ; 70 et 95% sur la ligne A 215
Figure IV. 36. Isothermes de désorption de la vapeur d'eau mesurées sur des échantillons de BHP de 5mm et 10mm d'épaisseur [94] 216
Figure IV. 37. Identification des longueurs de corrélation à partir des variogrammes pour (a & b) la porosité, (c) la perméabilité à la vapeur et (d) la perméabilité à l'air 218
Figure IV. 38. Identification des longueurs de corrélation à partir des variogramme pour la sorption et la désorption suivant la ligne A et en fonction de HR 219
Figure IV. 39. Identification des longueurs de corrélation à partir des variogrammes pour la sorption et la désorption suivant la ligne C et en fonction de HR 220
Figure IV. 40. Histogramme des longueurs de corrélations en sorption et en désorption suivant les deux lignes A et C en fonction de l'humidité relative 221
Figure IV. 41. Représentation de vecteurs propres pour une longueur de corrélation de 0,5 m 224
Figure IV. 42. Configuration étudiée 226
Figure IV. 43. Évolution de la pression de vapeur et de l'humidité relative dans le cas d'une simulation déterministe 227
Figure IV. 44. Évolution de la pression de vapeur suivant une coupe surfacique du voile à une profondeur x=0,1m et une coupe suivant l'épaisseur à une hauteur de 1 m (déterministe) 227
Figure IV. 45. Champ aléatoire de perméabilité à la vapeur d'eau 228
Figure IV. 46. Points de suivi 229
Figure IV. 47. Comparaison de l'évolution de HR en différents points de suivis 229
Figure IV. 48. Évolution de la pression de vapeur suivant une coupe surfacique du voile à une profondeur x=0,1m et une coupe suivant l'épaisseur à une hauteur de 1 m 230
Figure IV. 49. Trois réalisations du champ de perméabilité à la vapeur 231
Figure IV. 50. Organigramme de la démarche de prise en compte de la variabilité spatiale 232
Figure IV. 51. Distribution de la teneur en eau aux différents points de suivi pour Lc=0,3m 234
Figure IV. 52. Distribution du degré de saturation aux différents points de suivi pour Lc=0,3 et calage des lois de distribution log-normal et aux valeurs extrêmes généralisées (GEV) 235
Figure IV. 53. Distribution de SR au point 1 pour les trois cas de longueur de corrélation 237
Figure IV. 54. Distribution de SR au point 9 pour les trois cas de longueur de corrélation 237

Liste des Tableaux

Tableau I. 1. Classification des matériaux selon Quenard [5] 26
Tableau I. 2. Résultat expérimentaux de perméabilité à la vapeur d'une plaque de contreplaqué et de plâtre [40] 37
Tableau I. 3. Perméabilité à la vapeur d'une plaque de contreplaqué en fonction de la norme adoptée [40] 38
Tableau I. 4. Valeurs tirées de la littérature de la conductivité thermique des pâtes de ciments [48] 42
Tableau I. 5. Évolution de la chaleur spécifique au cours de l'hydratation [67] 46
Tableau I. 6. Effet relatif de quelques paramètres sur les propriétés thermique du béton [58] 46
Tableau I. 7. Principales techniques de caractérisation texturale des matériaux poreux [68] 47
Tableau I. 8. Diverses recommandations de pré-conditionnement avant la mesure des propriétés de transport des matériaux cimentaires [71] 49
Tableau I. 9. Conclusions sur l'effet des techniques de séchage sur la microstructure [72] 50
Tableau I. 10. Humidité relative des solutions salines saturées 58
Tableau I. 11. Erreur relative sur la mesure de la perméabilité à la vapeur sans prise en compte de la part advective du flux de vapeur et la non uniformité de la pression totale [37] 64
Tableau I. 12. Propriété de transport de la brique et du plâtre : valeurs moyennes et écart type [119] 86

Tableau II. 1. Caractéristiques du ciment et du Laitier 94
Tableau II. 2. Composition chimique en oxydes du ciment CEM-I 52,5N (en % massique) 94
Tableau II. 3. Composition du béton REFI [kg/m^3] [131] 94
Tableau II. 4. Valeurs de la succion et de l'humidité relative issues de la relation de Kelvin (équation II. 7) . 118
Tableau II. 5. Paramètres associés aux modèles GAB et GDW pour les différents matériaux étudiés 121
Tableau II. 6. Résultat d'essai de perméabilité à la vapeur d'eau 127
Tableau II. 7. Résultats des essais de conductivité thermique sur des matériaux à un âge ≥28 jours 130
Tableau II. 8. Capacité calorifique des constituants d'un béton [160] 137

Tableau III. 1. Complément explicatif de la légende de la Figure III. 9 153
Tableau III. 2. Écart relatif de la teneur en eau à x=0,1 m pour différentes combinaisons des paramètres d'entrée après 10h de transfert 154
Tableau III. 3. Passage de la perméabilité à la vapeur au coefficient de diffusion d'humidité 147
Tableau III. 4. Compositions et propriétés des matériaux [94, 118, 120] 160
Tableau III. 5. Données d'entrées du modèle 163
Tableau III. 6. Conditions initiales et aux limites de la phase 1 164
Tableau III. 7. Conditions aux limites de la phase2 165
Tableau III. 8. Différents états hydriques du matériau à différentes hygrométries 171

Tableau IV. 1. Teneur en eau à saturation du mortier 1 et du BHP A1 190
Tableau IV. 2. Paramètres associés aux modèles GAB et GDW 191
Tableau IV. 3. Composition du béton voile 197
Tableau IV. 4. Données statistiques de la porosité à l'eau en fonction de la ligne de prélèvement 201
Tableau IV. 5. Données statistique associées à chaque loi de distribution 202
Tableau IV. 6. Données statistiques de la perméabilité à la vapeur en fonction de la ligne de prélèvement 203
Tableau IV. 7. Données statistique associées à chaque loi de distribution 204
Tableau IV. 8. Données statistiques de la perméabilité à l'air en fonction de la ligne de prélèvement 208
Tableau IV. 9. Moyennes et écarts type de la perméabilité intrinsèque mesurée suivant les deux lignes verticales B et E 210
Tableau IV. 10. Données statistiques associées à chaque loi de distribution 212
Tableau IV. 11. Paramètres associés aux modèles GAB et GDW pour les échantillons prélevés suivant la ligne A 233
Tableau IV. 12. Variabilité de la teneur en eau à saturation 233
Tableau IV. 13. Moyenne, Cdv et valeurs identifiées des paramètres pour les lois de distribution log-normal et aux valeurs extrêmes généralisées 236

Introduction générale

Qu'il s'agisse de logements ou de bureaux, le secteur du bâtiment présente un fort potentiel d'économie d'énergie et une importante exposition aux risques climatiques. C'est pourquoi il est un secteur d'action prioritaire tant pour la rénovation du parc existant que pour la construction de bâtiments neufs performants pour la réduction de la demande énergétique par les usages et les équipements. Le bâtiment est un objet de préoccupation en matière de santé, de consommation énergétique et d'impacts environnementaux. Un accroissement de 38% du nombre de logements en France a été enregistré entre 1982 et 2010 avec une évolution de 22% de la consommation énergétique finale du résidentiel-tertiaire entre 1973 et 2011 [1]. De plus, un programme de 400 000 logements à rénover par an a été lancé depuis 2013 [1]. Le secteur du bâtiment est classé quatrième émetteur de gaz à effet de serre (GES) en France, il est à l'origine de 20% des émissions et de 44% de la consommation d'énergie, deux tiers (2/3) de ces consommations concernent le résidentiel [1]. Dans ce secteur, il existe différentes voies d'action avec comme objectifs, non seulement l'amélioration des performances énergétiques et environnementales des bâtiments, mais aussi une meilleure estimation de la durabilité des ouvrages.

Parmi les huit défis sociétaux définis au niveau national, le présent travail s'insère dans le défi 6 : « Mobilité et systèmes urbains durables ». En effet, la thématique abordée, liée à l'étude des transferts couplés de chaleur, d'air et d'humidité à des échelles différentes, matériaux, parois modèles d'enveloppes et bâtiments entiers, permettra d'offrir des solutions durables dans la construction et la rénovation du parc immobilier. Cette thématique contribue également au défi 2 « Une énergie, propre, sûre et efficace ». Ainsi, la prise en compte des transferts hydriques dans le bilan énergétique des bâtiments a une grande répercussion sur la performance énergétique des bâtiments et sur le confort des occupants. Les études menées par le LaSIE dans le cadre du programme « annexe 41 » de l'agence internationale de l'énergie ont montré que la prise en compte des transferts hydriques à l'échelle des parois permettent de réaliser des économies potentielles d'énergie dépassant 30 % [2]. Ce projet peut aussi s'inscrire dans le défi 4 « Santé et bien-être » du fait que l'humidité constitue un des principaux polluants dans le bâtiment. Car, la présence

excessive de l'eau sous ses différentes formes peut engendrer des pathologies dans le bâtiment et dans les ambiances. L'humidité migrant à travers l'enveloppe du bâtiment peut induire une mauvaise qualité de l'air intérieur et un niveau d'hygrométrie élevé qui favorisent la croissance fongique et peut affecter la santé humaine [3]. En outre, les phénomènes d'interaction entre les COV (composantes organiques volatiles) et les matériaux est largement tributaire de l'humidité. Elle peut être également une cause d'allergies et de maladies respiratoires.

Notre travail s'inscrit dans cette préoccupation sociétale. Il vise une meilleure compréhension des mécanismes de transfert couplés de chaleur, d'air et d'humidité au sein des matériaux des enveloppes de bâtiments et à l'interface matériaux de construction-ambiance.

Aujourd'hui, un des enjeux majeurs est d'identifier les paramètres les plus influents qui définissent le comportement global du bâtiment (neuf et ancien) soumis à des sollicitations dynamiques extérieures et intérieures en vue d'en proposer une conception adaptée. La connaissance d'une telle réponse est importante tant sur le plan de la prédiction de la qualité des ambiances habitables que sur l'évaluation de la durabilité des structures.

Sur le plan scientifique, plusieurs modèles de transferts couplés de chaleur et d'humidité existent aujourd'hui (Philip & De Vries 1957, Luikov 1980, Belarbi et al. 2008, etc.). La finesse de prédiction du comportement hygrothermique des matériaux de construction en utilisant ces modèles repose entre-autre sur la qualité des données d'entrée. Elles sont majoritairement issues de la caractérisation expérimentale des propriétés des matériaux. Cela qualifie l'importance de cette étape de caractérisation dans le processus de prédiction du comportement du matériau étudié.

L'objectif principal de cette thèse est l'étude de l'effet de la variabilité des propriétés les plus influentes sur la prédiction du comportement hygrothermique des matériaux poreux de construction. La démarche proposée pour atteindre cet objectif s'appuie sur les points suivants :

- Une meilleure prise en compte des phénomènes couplés de chaleur et d'humidité dans l'enveloppe du bâtiment grâce à l'utilisation des modèles dont les hypothèses et les paramètres d'entrée sont bien identifiés.

- Une évaluation expérimentale des propriétés de transfert, que ce soit thermiques ou hydriques, des matériaux tout en mettant l'accent sur les facteurs affectant leur mesures. Cette phase permet d'alimenter les modèles théoriques à travers la détermination de leurs paramètres d'entrée.

- Une élaboration d'un outil de prise en compte de la variabilité spatiale des propriétés qui est basée sur une approche probabiliste. Cette étape nécessite une vaste campagne expérimentale d'évaluation de la variabilité pour déterminer les paramètres statistiques des lois d'évolution de la propriété considérée, à savoir l'espérance, la variance et la longueur de corrélation.

- Une mise en œuvre d'une démarche probabiliste en mettant en exergue les limites des approches déterministes lorsqu'on ne peut pas réduire la variabilité et ce qu'apporte cette approche performantielle.

A cet effet, nous avons organisé le manuscrit en quatre chapitres :

Le premier chapitre présente un état de l'art sur les concepts, les modèles et les techniques expérimentales en lien avec les transferts hygrothermiques dans le domaine des matériaux et du bâtiment. Dans ce chapitre, nous avons constaté l'importance de l'investigation expérimentale qui constitue une étape clé d'une bonne prédiction du comportement hygrothermique. Aussi, il a été conclu que le recours aux démarches probabilistes est une solution à privilégier afin de limiter les incertitudes et de prendre en compte les différentes variabilités.

Le second chapitre est consacré à la caractérisation expérimentale de certains matériaux poreux de construction. Il est divisé en trois grandes parties selon les propriétés étudiées : (i) propriétés microstructurales et d'hydratation où l'on retrouve les mesures de porosité à l'eau et au mercure ainsi que les distributions de la taille des pores des matériaux étudiés et une analyse de quelques méthodes d'arrêt d'hydratation afin d'appréhender le caractère évolutif des matériaux à base de ciment ; (ii) propriétés hydriques : dans cette partie, une analyse sous différents angles (évolution en fonction de l'âge des matériaux, en fonction de la température, effet des constituants des matériaux sur le taux de sorption, etc.) est réalisée sur les isothermes de sorption et sur la perméabilité à la vapeur d'eau ; (iii) propriétés thermiques où des mesures de la conductivité thermique et de la chaleur spécifique ont été entreprises.

Le troisième chapitre expose les modèles de transferts couplés de chaleur et d'humidité adoptés lors de la prédiction du comportement hygrothermique des matériaux poreux de construction. Ces modèles diffèrent entre eux principalement par le choix des moteurs de transfert et, par conséquent, par les dispositifs expérimentaux nécessaires pour l'évaluation des paramètres d'entrée de ces modèles. Une étude paramétrique est alors entreprise afin d'analyser la sensibilité de ces modèles. En guise d'applications, nous avons tout d'abord étudié l'effet sur le séchage de l'évolution des isothermes de sorption et de la perméabilité à la vapeur en fonction de l'âge des matériaux étudiés. Par la suite, l'effet sur le séchage de la

considération du palier de saturation des isothermes de désorption obtenue par rétention d'eau est mis en évidence. Enfin, nous avons analysé deux techniques de séchage utilisées en guise de pré-conditionnement d'échantillons afin d'optimiser les cinétiques de carbonatation lors d'essais accélérés en laboratoire.

Le quatrième et dernier chapitre est dédié à l'incidence de la variabilité des propriétés des matériaux sur le comportement hygrothermique de ceux-ci. Ce chapitre est composé de deux grandes parties. La première concerne l'étude de l'effet de la variabilité aléatoire du coefficient de diffusion en considérant une distribution selon une loi normale de ce dernier lors de la prédiction. De plus, nous avons montré l'importance de la prise en compte de la variabilité de la teneur en eau à saturation. La deuxième partie de ce chapitre est consacrée en premier lieu à l'évaluation expérimentale de la variabilité spatiale des propriétés d'un béton ordinaire de laboratoire (porosité à l'eau, perméabilité à l'air, isotherme de sorption et perméabilité à la vapeur) et dans un second lieu, nous nous sommes attachés à l'élaboration d'un outil de prise en compte de cette variabilité dans le processus de prédiction du comportement hygrothermique. Cet outil est basé sur une approche probabiliste qui est alimentée par les résultats expérimentaux obtenus lors de la campagne expérimentale d'évaluation de cette variabilité.

Chapitre I

Analyse Bibliographique

Le présent chapitre constitue une synthèse et une analyse des travaux bibliographiques relatifs aux mécanismes de transferts couplés de chaleur, d'air et d'humidité au sein des matériaux poreux de construction et à l'interface matériaux – ambiance. Les paramètres affectant les prédictions de comportement hygrothermique des matériaux poreux de construction en général et des matériaux cimentaires en particulier sont étudiés. Trois parties constituent ce chapitre :

- La première est consacrée à un état de l'art sur les propriétés de transfert et de stockage thermo-hydrique des matériaux cimentaires ;
- La deuxième est dédiée aux différentes techniques expérimentales utilisées pour la caractérisation de ce type de matériau ;
- La troisième et dernière partie constitue une synthèse des approches et des modèles de prédiction du comportement hygrothermique des matériaux poreux de construction.

I.1. Milieux poreux

Un milieu poreux se compose d'une matrice solide et de son complément géométrique (Figure I. 1), l'espace poreux où peuvent se trouver une ou plusieurs phases fluide (liquide, gaz, vapeur) susceptibles de s'écouler et d'échanger entres elles et (ou) avec la matrice solide de la matière et de l'énergie. Le milieu poreux constitue un ensemble macroscopiquement hétérogène et anisotrope.

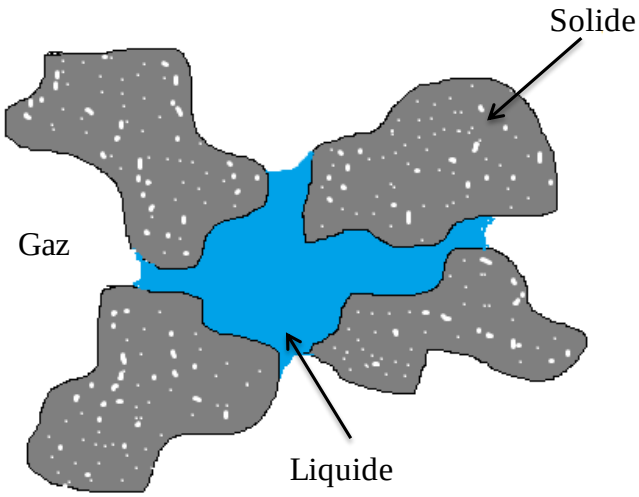


Figure I. 1. Représentation schématique d'un milieu poreux

La morphologie de l'espace poreux est l'élément structurant de la distribution spatiale des phases fluides en son sein, avec tout ce qui en découle pour les phénomènes de transport et de transfert [4]. Il existe plusieurs familles de matériaux poreux. Ils peuvent être classés selon leur capacité de stockage de l'humidité en deux types. D'une part, nous retrouvons la famille non hygroscopique caractérisée par une très faible capacité d'adsorption et de stockage de l'humidité environnante. D'autre part, la famille hygroscopique qui caractérise les matériaux ayant la possibilité de fixer une quantité mesurable d'humidité de l'air environnant. Les matériaux peuvent aussi être classés selon le diamètre des pores à l'aide de la loi de Kelvin. Quenard [5] propose la classification donnée par le Tableau I. 1.

Tableau I. 1. Classification des matériaux selon Quenard [5]

Matériau hygroscopique	Matériau non-hygroscopique
Rayon des pores < 1000 A°	Rayon des pores > 1000 A°
Diffusion de KNUDSEN	Diffusion moléculaire libre
Adsorption et condensation capillaire importante	Adsorption et condensation capillaire faible
0 < HR < 98,9 %	HR > 98,9 %

Les matériaux hygroscopiques peuvent aussi être classés en plusieurs catégories. Duforestel [6] a proposé dans ses travaux de recherche une classification en deux catégories : matériau à forte ou à faible adsorption.

Un milieu poreux est généralement caractérisé par :

- Sa porosité qui est un indicateur de durabilité des matériaux et un paramètre très important de caractérisation de leurs microstructures. Elle correspond au volume des interstices pouvant contenir du fluide rapporté au volume total du matériau. Le système poral, considéré comme un réseau communiquant ou non de pores et de conduits de faibles dimensions, peut être décomposé en plusieurs classes de porosité. C'est la raison pour laquelle on parle parfois de "porosité résiduelle" ou "porosité fermée" pour la partie du système poral constituée de pores occlus, dépourvus de communications avec le reste des espaces lacunaires et avec l'extérieur. Ce type de porosité n'intervient pas dans le phénomène de transport mais il a un impact sur la résistance mécanique du matériau. De plus nous retrouvons les pores communiquant formant alors la "porosité effective" ou "porosité ouverte" notée ε qui prend en compte que le volume des pores accessible dit connectés. La description du système poral peut être affinée en prenant en considération la distribution de la taille des pores. Il est ainsi possible d'établir une courbe donnant la proportion volumique du système poral constituée de pores de diamètre apparent inférieur à un diamètre donné.

- Son Volume Élémentaire Représentatif (V.E.R) qui est souvent utilisé lors de la modélisation des phénomènes de transfert à l'échelle macroscopique contrairement à l'échelle microscopique qui est associée au diamètre du pore. Celle-ci est définie en moyenne sur un certain volume du milieu poreux (VER) [7].

- Sa surface spécifique qui est aussi appelée "Aire massique" et représente la surface porale interne par unité de masse du matériau ou de volume, qui est accessible aux molécules. Elle constitue une grandeur importante en physique et en chimie, notamment dans les domaines de la catalyse, de l'adsorption et de la séparation de phases gazeuses ou liquides. C'est un des paramètres essentiels de caractérisation des matériaux poreux. Il existe plusieurs techniques permettant d'atteindre directement ou indirectement cette propriété et, parmi elles, nous retrouvons la méthode basée sur la théorie de BET [8], qui utilise les isothermes d'adsorption et de désorption d'un gaz.

- Sa tortuosité qui représente le rapport entre la longueur de la moyenne des lignes de courant du fluide traversant un échantillon "L_e" et son épaisseur L (Figure I. 2). La

tortuosité vaut 1 pour des pores droits et perpendiculaires à la surface et augmente indéfiniment pour des pores fermés. Le béton a une tortuosité d'environ 2,5 [9].

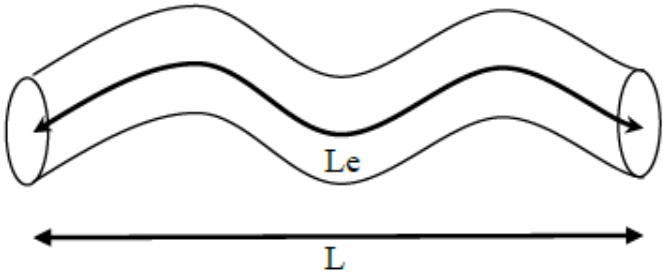


Figure I. 2. Tortuosité d'un pore

Dans nos travaux de recherche, nous nous sommes focalisés sur l'étude des matériaux cimentaires considérés comme une typologie des milieux poreux avec un caractère évolutif dans le temps de sa microstructure.

I.2. Propriétés de transferts et de stockage dans les matériaux cimentaires

Une des exigences actuelles dans le domaine du bâtiment est d'assurer une durée de vie maximale des ouvrages en béton armé. La présence anormale d'humidité est considérée parmi les facteurs altérant la durabilité des constructions [10]. Elle a également un effet sur la qualité des ambiances habitables et sur le confort des occupants. Par conséquent, la maitrise des transferts de chaleur et d'humidité dans les parois de bâtiment est une étape importante non seulement vis-à-vis de la durabilité des constructions et la réduction de la facture énergétique mais aussi pour conserver la santé humaine en limitant la croissance des micro-organismes. Afin d'éviter toutes ces anomalies, une connaissance fine des propriétés de transfert et de stockage des matériaux poreux de construction est une étape importante pour arriver à cette fin. Dans cette partie du chapitre, nos travaux de recherches se sont focalisés sur les matériaux cimentaires qui seront par la suite présentés en détails dans le chapitre II.

I.2.1. Microstructure : Propriété complexe gouvernant le transfert

Avant d'évoquer les transferts hygrothermiques, il parait opportun de bien connaitre et de définir l'environnement où ces phénomènes de transport et de stockage ont lieu. La première caractéristique à définir de notre matériau est sa microstructure et ses paramètres. Elle est le paramètre qui gouverne tous les phénomènes de transfert d'humidité, de chaleur, d'agents agressifs et de polluants.

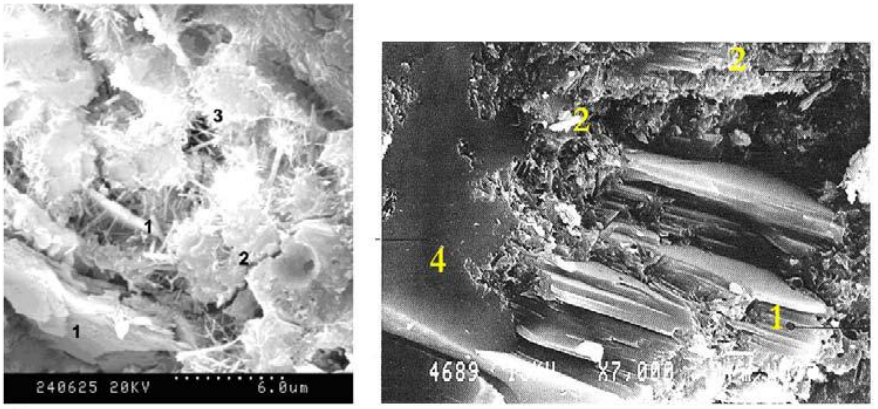
Selon leur type, les matériaux cimentaires présentent des microstructures différentes. Cette dernière se forme au cours du phénomène d'hydratation ou au cours de son avancement. Elle engendre des modifications microstructurales importantes qui aboutissent finalement à des formes de microstructures complexes caractérisant le matériau et lui conférant sa solidité et sa résistance mécanique.

La microstructure d'un matériau cimentaire est composée de plusieurs éléments cristallisés [11, 12] :

- Les silicates de calcium hydratés (C-S-H) : ils sont de formes minéralogiques stables, quasi-insolubles. Ils représentent la plus grande partie des hydrates dans la pâte de ciment hydraté (50 à 70%). C'est la partie qui influence en majorité la plupart des propriétés de la pâte de ciment, notamment mécanique et de durabilité. Le gel de C-S-H est poreux, sa porosité représente environ 28% du volume total du gel.

- La portlandite Ca $(OH)_2$: elle est présente en forte quantité environ 20 à 30% de la pâte ciment. elle se présente sous forme d'empilements massifs de cristaux (plaquettes) bien orientées. Elle n'a que peu d'importance du point de vue de la résistance mécanique. Elle est très sensible à un abaissement de pH de la solution interstitielle.

- Les sulfo-aluminates de calcium : ils présentent environ 7 à 10% de la pâte de ciment. Elle se structure généralement sous deux formes : Ettringite (trisulfoaluminate) en aiguilles prismatiques et en Monosulfoaluminates en plaquettes hexagonales.



1- Cristaux $Ca(OH)_2$ 3- Pore
2- C-S-H 4- Grain de ciment anhydre

Figure I. 3. Exemple de microstructure d'une pâte de ciment ordinaire (MEB) [13, 14]

La microstructure des matériaux cimentaires a un caractère évolutif dans le temps lors de la phase d'hydratation. Les mécanismes conduisant à l'hydratation peuvent être classés en trois ou quatre principales phases [12, 15] :

- Période d'hydratation immédiate : stade de dissolution des constituants du clinker au sein de l'eau de gâchage. Elle est marquée par un premier pic de dégagement de chaleur. Sa durée est de l'ordre d'une quinzaine de minutes ;
- Période dormante : 2 à 6 heures après le gâchage, caractérisée par un ralentissement global du processus d'hydratation ;
- Période de prise : elle constitue une période de forte accélération de l'hydratation marqué par un pic de dégagement de chaleur plus important que le premier. Pendant cette phase la pâte de ciment commence à se rigidifier. Elle s'accompagne d'une contraction volumique de la pâte et d'une auto-dessiccation due à une dépression dans les capillaires ;
- Période de durcissement : plusieurs couches d'hydrates épaisses se forment, les cinétiques d'hydratation diminuent mais sans s'annuler, à cause d'un bilan volumique d'hydratation négatif dû à la contraction Le Chatelier.

Parmi les facteurs influençant le processus d'hydratation, nous retrouvons :

- La composition chimique et la granulométrie de ciment ;
- Les conditions thermiques et hydriques du milieu ;
- La proportion d'eau de gâchage (rapport Eau sur Ciment (E/C)) ;
- La présence d'ajouts et d'adjuvants ;
- Le malaxage.

Les différents composés de la pâte de ciment hydratée et l'arrangement des hydrates forment la « matrice poreuse ». Les espaces que forment les vides et les parties solides sont des paramètres à prendre en considération car ils influencent le développement de la résistance. De manière générale, il existe trois catégories de pores dans la pâte de ciment hydratée : les bulles d'air, les pores capillaires et les pores des hydrates (ou pores de gels).

La classification au jeune âge (quelques heures) de l'état de l'eau dans la matrice cimentaire a été proposée par Powers et Brownyard [16] qui en dénombrent trois types [17] :

- L'eau chimiquement liée ou eau de constitution ;
- L'eau de capillarité ou eau libre, contenue dans les espaces intergranulaires formant la porosité capillaire ;

- Enfin, l'eau physiquement liée ou eau adsorbée en couche moléculaire sur la surface solide des pores, sous l'action des forces de Van der Waals et des liaisons hydrogène.

I.2.2. Teneur en eau et degré de saturation

Teneur en eau : c'est une propriété importante dans le domaine des transferts d'humidité et de durabilité. Elle permet de quantifier la quantité d'eau dans un milieu donné. Elle peut être définie par le rapport de poids d'eau contenu dans ce matériau au poids du même matériau sec. On définit généralement, une teneur en eau massique ou volumique.

La teneur en eau massique $u(kg/kg)$ représente le rapport entre la masse d'eau liquide $m_l(kg)$ contenue dans le matériau et la masse de sa matrice solide $m_s(kg)$.

$$u = \frac{m_l}{m_s} \quad [kg/kg] \qquad \text{I. 1}$$

Elle peut être aussi massique par unité volumique en considérant le volume total de l'échantillon $V_t(m^3)$.

$$u_v = \frac{m_l}{V_t} \quad [kg/m^3] \qquad \text{I. 2}$$

La teneur en eau volumique θ_l (m^3/m^3) est définie par le rapport du volume d'eau liquide $V_l(m^3)$ contenu dans l'échantillon au volume total $V_t(m^3)$.

$$\theta_l = \frac{V_l}{V_t} \quad [m^3/m^3] \qquad \text{I. 3}$$

Comme indiqué précédemment, la mesure de la teneur en eau d'un matériau nécessite la connaissance de sa masse sèche. Elle est obtenue nécessairement par séchage. Dans le cas des matériaux cimentaires et si l'échantillon en question sera destiné à d'autres test expérimentaux, le choix de la technique et de la température de séchage est important. L'objectif est d'assurer un séchage total du matériau sans modification de la microstructure par microfissure qui par conséquent, modifie les propriétés de ce dernier. Une analyse bibliographique des techniques de séchage existantes et de leur effet sur la microstructure des matériaux cimentaires est abordée dans la deuxième partie de ce chapitre.

Baroghel-Bouny propose de considérer que l'échantillon est sec après stabilisation de sa masse dans une ambiance à 3% d'humidité relative [18].

Degré de saturation "SR" : c'est le rapport entre la teneur en eau du matériau $u(kg/kg)$ à un état donné et sa teneur en eau à saturation $u_{sat}(kg/kg)$. SR est compris entre 0 et 1.

$$SR = \frac{u}{u_{sat}} \; [-] \qquad \text{I. 4}$$

La teneur en eau à saturation est obtenue lorsque tous les pores du matériau sont totalement remplis.

I.2.3. Isotherme d'adsorption et de désorption de la vapeur d'eau

L'activité de l'eau dans un produit dépend principalement de sa teneur en eau et de sa température. La courbe, représentant pour une température donnée, la variation de la teneur en eau en fonction de l'humidité relative du milieu à l'équilibre est appelée :

- Isotherme d'adsorption si le matériau est placé dans des humidités croissante. Dans ce cas, la teneur en eau de ce matériau augmente ;
- Isotherme de désorption si l'humidité relative environnante diminue et la teneur en eau du matériau diminue également.

L'isotherme de sorption est un instrument commode, préférable à la caractéristique capillaire, pour l'étude de l'équilibre et des transferts dans de nombreux matériaux finement divisés, dans lesquels le transport de vapeur est susceptible en outre de jouer un rôle appréciable [4]. La Figure I. 4 montre les différents régimes de stockage de la vapeur d'eau en fonction de l'humidité relative environnante. Le régime hygroscopique (Régions A-C) : il exprime la teneur en eau à l'équilibre du matériau à partir de son état sec jusqu'à environs 98% d'humidité relative, dans cette région le transfert est régi principalement par l'adsorption. A noter que, d'après Daïan [4], L'adsorption devient le phénomène dominant lorsque le « diamètre de pore » approche de quelques épaisseurs moléculaires, c'est à dire pour des taux de saturation de la vapeur inférieurs à 0,5 environ. Dans le cas d'une eau à température ambiante, cette valeur correspond à une pression capillaire de l'ordre de 100 MPa.

Selon la théorie B.E.T., due à [8], qui est une généralisation d'une théorie monomoléculaire plus ancienne de Langmuir [19], les molécules d'eau se déposent sur le solide en plusieurs couches superposées, en recouvrant à chaque fois une surface inférieure à celle de la couche précédente. L'énergie de liaison à partir de la deuxième couche est égale à la chaleur latente de vaporisation [20]. La teneur en eau volumique est alors déterminée en connaissant la surface de solide disponible (surface spécifique), le nombre de couches déposées et l'épaisseur d'une couche monomoléculaire par la relation I.5.

$$\theta = \frac{C.e_m.S_0.HR}{(1-HR)(1+(C-1)HR)} \qquad \text{I. 5}$$

Avec $e_m[m]$ est l'épaisseur d'une couche moléculaire ; S_0 $[m^2]$ est la surface spécifique du solide ; HR est l'humidité relative et C $[-]$ est un coefficient dépendant de la température et de l'énergie de liaison des molécules au solide. Il s'exprime sous la forme :

$$C = \exp(\frac{E_l - L_m}{RT}) \qquad \text{I. 6}$$

Avec E_l $[J/mol]$ est l'énergie de liaison de la première couche de molécules ; L_m $[J/mol]$ est la chaleur latente molaire de vaporisation ; R $[J/mol]$ est la constante des gaz parfaits et T $[K]$ est la température absolue.

Nous retrouvons, ensuite, la région de sorption capillaire (zone D) qui se termine à la saturation du matériau. Dans cette zone, la sorption se fait par capillarité. Ce phénomène résulte des propriétés particulières de mouillabilité de l'eau par rapport aux solides constituant la matrice poreuse. Il en résulte des formations d'interfaces courbes entre le fluide mouillant (eau) et le fluide non-mouillant gazeux (l'air humide). L'analyse des conditions d'équilibre d'une telle interface montre que la pression capillaire P_c est la différence entre la pression de l'air P_a et la pression du liquide P_l (I.7). Elle est aussi appelée pression de succion qui peut être exprimée théoriquement si l'on considère des pores capillaires de forme cylindrique selon la loi de Laplace (I.8). Elle est exprimée en fonction de la tension superficielle $\sigma(T)$ du couple air-liquide, des rayons de courbures $R_1[m]$ et $R_2[m]$ de l'interface ainsi que de l'angle de mouillage β qui est défini par la tangente entre la phase solide et l'interface, du point de contact fluide-solide.

$$P_c = P_a - P_l \qquad \text{I. 7}$$

$$P_c = \sigma . cos\beta . (\frac{1}{R_1} + \frac{1}{R_2}) \qquad \text{I. 8}$$

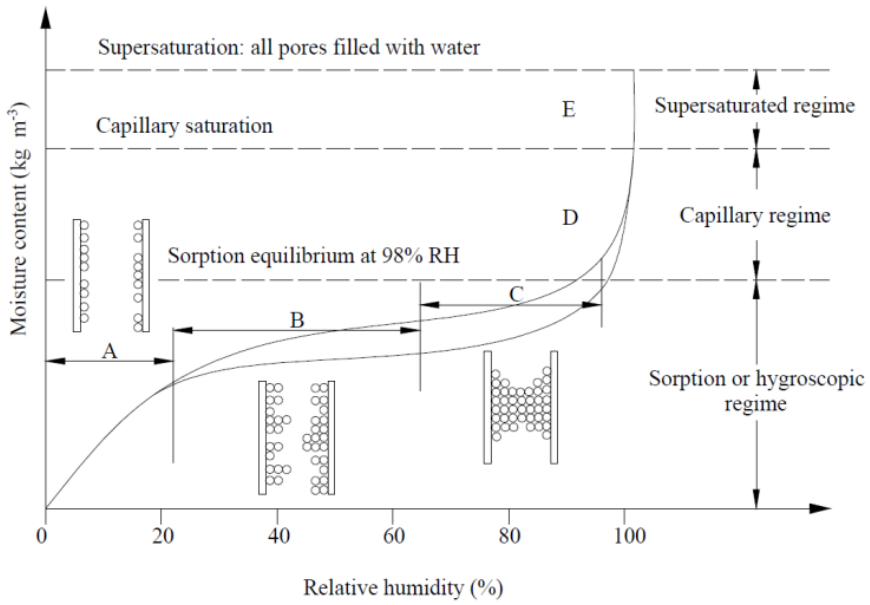


Figure I. 4. Diagramme schématique d'une courbe de sorption [21]

La succion totale dans le domaine hygroscopique est souvent exprimée par la pression de succion obtenue par la loi de Kelvin dont l'expression est la suivante (I.9):

$$P_c = \frac{R.T.\rho_l}{M} \ln(HR) \qquad \text{I. 9}$$

Avec $R[J/mol.K]$ est la constante molaire des gaz parfaits $(R = 8{,}31443\, J/mol.K)$; $g[m/s^2]$ est l'accélération due à la pesanteur ; ρ_l $[kg/m^3]$ est la masse volumique de l'eau ; M $[kg/mol]$ est la masse molaire de l'eau ; *HR [%]* est l'humidité relative et T $[K]$ est la température thermodynamique.

Enfin, la troisième et dernière région est dite "super-saturée". Ce régime ne peut être atteint dans le régime capillaire. Dans la pratique, ce régime se produit par diffusion sous un gradient de température, et dans le laboratoire, par succion sous pression [21]. Dans cette région, l'humidité relative est toujours à 100% quel que soit la teneur en eau du matériau.

De plus, les isothermes d'adsorption et de désorption peuvent être classées selon l'allure de la courbe représentant ce phénomène. Basé sur les travaux de Brunauer, Demming, Demming et Teller (BDDT) [22] et Selon la classification de l'International Union of Pure and Applied Chemistry (IUPAC) [23], il existe six formes d'isotherme de sorption (Figure I. 5).

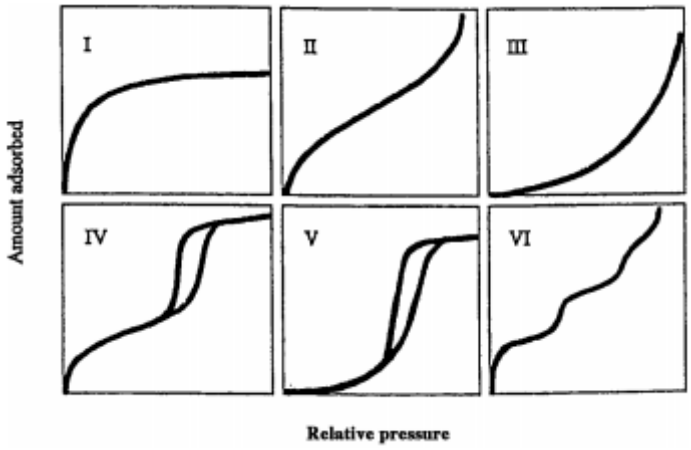


Figure I. 5. Classification des isothermes de sorption selon l'IUPAC [23]

- Isotherme de type I : caractérisée par une horizontale traduisant une saturation du matériau malgré l'augmentation de l'humidité relative environnante. Elle est obtenue pour des matériaux poreux ayant uniquement des micropores qui se remplissent à des pressions d'autant plus basses que leur largeur est plus faible.

- Isotherme de type II et III : caractérisée par une augmentation très progressive de l'adsorption. Ces isothermes sont obtenues pour des matériaux non poreux et macroporeux. Dans ce cas, l'adsorption est multimoléculaire.

- Isotherme de type IV et V : elles ont la même allure que les isothermes de type II et III, respectivement, dans la plage des humidités les plus faibles. De plus, elles sont

caractérisées par un pallier de saturation dans la plage des fortes humidités relatives. Ces types d'isothermes sont obtenus pour des matériaux mésoporeux dans lesquels se produit une condensation capillaire. Dans ce cas, nous observons généralement une hystérésis de la désorption par rapport à la sorption.

- Isotherme de type VI : l'adsorption dans ce cas se manifeste par une formation une à une des couches adsorbés caractérisé à chaque fois par un point d'inflexion qui caractérise le passage à la couche suivante. Dans ce cas, le matériau étudié est non poreux.

La courbe d'isotherme d'adsorption et de désorption de la vapeur d'eau constitue une carte d'identité hydrique du matériau [18]. D'après quelques résultats de la littérature [18], [24], [25] et [26], il faut s'attendre à un changement de la microstructure des matériaux cimentaires lors des essais de désorption dans la plage des humidités relatives les plus faibles et ont fixé la valeur de HR=40% comme limite. D'après Baroghel-Bouny [18], l'étude de l'isotherme de sorption permet aussi une analyse de la structure porale du matériau et l'évaluation de la porosité des C-S-H des matériaux cimentaires. Cet auteur a étudié les deux premières courbes de désorption de différents types de pâtes de ciment, il a observé un changement de microstructure dans certains de ses échantillons caractérisés par une teneur en eau plus importante lors de la deuxième désorption dans les plages des humidités relatives les plus faible (plus particulièrement entre 33 et 12% d'humidité relative). Dans ce même article [18], Baroghel-Bouny a conclu que la présence des granulats dans les matériaux cimentaires n'a pas d'impact sur l'isotherme d'adsorption et de désorption. Jennings *et al.* [27] ont exploité les isothermes de sorption pour suivre l'évolution de la microstructure des pâtes de ciment qui se produit au cours du séchage, pour comprendre le retrait dû au séchage et dans le développement d'une nouvelle méthode pour connaitre le rapport Eau/Ciment (E/C) des matériaux. Wu *et al.* [28] ont conclu qu'il n'existe presque aucun effet de la désorption sur la microstructure des matériaux cimentaires. Ce constat a été fait en comparant une courbe d'isotherme de désorption d'une pâte de ciment après un cycle de sorption désorption avec la courbe originale.

En ce qui concerne l'effet de la température sur le comportement en sorption, Les isothermes d'adsorption mesurées par Daïan [4] à 20 et 55°C montrent qu'à une humidité relative donnée, la quantité adsorbée diminue quand la température s'accroît. En revanche, cette différence est très faible. Radjy *et al.* [29] ont mesurée l'isotherme d'adsorption d'une pâte de ciment durcie à 0 et 60 °C et l'isotherme de désorption à 0 et 40 °C. Leurs résultats ne montrent aucun effet de la température sur le taux de sorption. Ishida *et al.* [30] ont étudié les isothermes de sorption d'une pâte de ciment durcie à un âge de 80 jours à 20, 40 et 60°C. Une fine différence est enregistrée dans le comportement en adsorption. En revanche,

une différence plus prononcée des isothermes de désorption a été observée [30]. Ils ont conclu aussi, qu'en plus de la diminution du taux de sorption avec l'augmentation de la température, la forme de la courbe de sorption change aussi. Un comportement similaire, c.à.d. pas d'effet prononcé de la température, est enregistré dans [28], [31] et [32]. Poyet [31] a observé pour un béton à haute performance maintenu à 60% d'humidité relative, que l'augmentation de température de 30 à 80°C a conduit à une réduction de la teneur en eau (en masse) à l'équilibre de 3% à environ 1%. Le changement du comportement en sorption des matériaux cimentaires en fonction de la température peut être attribué à deux mécanismes différents [28, 33, 34, 35] : (i) le grossissement de la structure porale, par exemple, la dissolution de l'ettringite et l'altération des C-S-H; et (ii) la dépendance en température des propriétés physiques de l'eau (densité et tension superficielle).

I.2.4. Perméabilité à la vapeur d'eau-Coefficient de diffusion d'humidité

Dans le domaine de la construction, la perméabilité à la vapeur d'eau est une des propriétés les plus utilisée. En effet, dans le domaine technique et notamment en Génie Civil lorsque l'on cherche à apprécier les risques de condensation dans les parois, on utilise la perméabilité à la vapeur des matériaux [36]. Elle nous informe sur les propriétés "d'étanchéité/fuite" d'un matériau vis-à-vis d'un fluide et dans notre cas de la vapeur d'eau. C'est la quantité de gaz transmise à travers une surface par unité de temps, de pression et d'épaisseur.

Vu la complexité des mécanismes mis en œuvre lors de la mesure de cette propriété, elle est toujours sujette à de nombreuses critiques de la part de la communauté scientifique. Tant sur son appellation, d'après Daïan [4], Cette dénomination a le mérite d'exister, mais elle est doublement impropre. Il ne s'agit pas d'une «perméabilité» car la vapeur transite par diffusion et non par filtration. De plus, dans les conditions d'équilibre local, le transport de vapeur condensable s'accompagne toujours d'un flux couplé de liquide. Le coefficient mesuré par cette méthode est donc global et ne peut être attribué au transport de vapeur seul [4]. Souvent, certains auteurs l'appel "diffusivité". Et tant sur sa méthode de détermination, Duforestel [37] évoque dans son mémoire d'HDR que lors de la mesure de cette propriété, les expérimentateurs ne se soucient pas de la précision de la mesure et se contentent d'une mesure approximative. Dans ces travaux, Duforestel a insisté sur la méthode de mesure la plus courante qui est "la méthode des coupelles", il a à cet effet évoqué la problématique de la pression totale. Ce volet expérimental va être discuté dans la suite de ce chapitre quand nous aborderons les différentes techniques de mesures de la perméabilité à la vapeur.

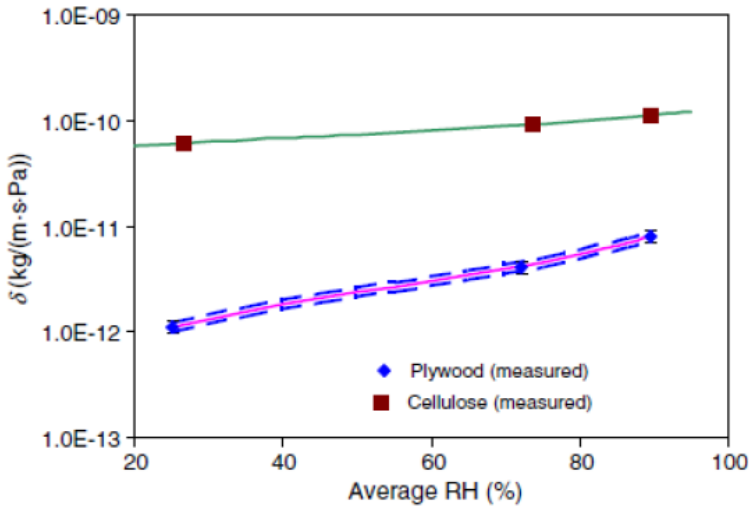


Figure I. 6. Perméabilité à la vapeur d'un contreplaqué et d'un isolant de cellulose [38]

Trechsel [39] a montré que la perméabilité à la vapeur d'eau ne dépend pas seulement de la nature du matériau mais également de la pression de vapeur appliquée sur le matériau. La Figure I. 6 présente l'évolution de la perméabilité à la vapeur en fonction de l'humidité relative de deux types de matériaux : Une plaque de contreplaqué et un isolant de cellulose [38]. Ce résultat montre que la perméabilité à la vapeur dépend de l'humidité relative du matériau testé et de son pouvoir hygroscopique. McLean & Galbraith [40] ont en effet conclu que la perméabilité à la vapeur des matériaux non-hygroscopiques est peu affectée par l'humidité relative contrairement aux matériaux fortement hygroscopique. Le Tableau I. 2 résume les résultats de perméabilité à la vapeur d'une plaque de contreplaqué et de plâtre en fonction des conditions d'humidité en amont et en aval de l'échantillon [40]. De ce résultat, nous distinguons une grande variabilité en fonction de l'humidité relative de la perméabilité à la vapeur du contreplaqué en comparaison avec celle du plâtre. Clarke et Yaneskeb [41] suggère de présenter les résultats de perméabilité à la vapeur en fonction de l'humidité relative environnante et ont proposé de séparer les données de la perméabilité à la vapeur de la zone hygroscopique des autres gammes d'humidité relative.

Tableau I. 2. Résultat expérimentaux de perméabilité à la vapeur d'une plaque de contreplaqué et de plâtre [40]

Conditions		Perméabilité à la vapeur : plaque de contreplaqué ($kg.m.N^{-1}.s^{-1} \times 10^{-12}$)		Perméabilité à la vapeur : plaque de plâtre ($kg.m.N^{-1}.s^{-1} \times 10^{-11}$)	
HR intérieure (%)	HR extérieure (%)	Moyenne sur 5 résultats	Écart type	Moyenne sur 5 résultats	Écart type
0	60	1,02	0,21	2,13	0,05
45	60	1,35	0,14	1,18	0,04
90	60	3,49	0,61	2,28	0,06
100	60	6,87	0,55	2,66	0,07
100	80	11,5	0,72	2,48	0,2

De plus, cette propriété varie en fonction de la norme expérimentale adoptée lors des essais. Le Tableau I. 3 présente une comparaison des résultats de perméabilité à la vapeur en fonction des normes internationales. Des écarts importants, allant de $0{,}94 \times 10^{-12}$ à $3{,}50 \times 10^{-12}$, sont enregistrés quant à l'évaluation de cette grandeur.

Tableau I. 3. Perméabilité à la vapeur d'une plaque de contreplaqué en fonction de la norme adoptée [40]

Norme	Régime	HR (%)	Perméabilité à la vapeur ($kg.m.N^{-1}.s^{-1} \times 10^{-12}$)
Britannique	Coupelle sèche	75	1,25
		88	1,70
Française	Coupelle sèche	88,5	1,70
Allemande	Coupelle sèche	50	0,94
	Coupelle humide	50	3,50

La perméabilité à la vapeur des matériaux cimentaires évolue avec l'évolution de leur microstructure. Kearsley et Wainwright [42] ont mesuré la perméabilité à la vapeur d'eau de plusieurs bétons cellulaires en fonction de leurs masses volumiques sèches (Figure I. 7) et leurs porosités (Figure I. 8). Les résultats obtenus montrent que plus la porosité du matériau testé est élevée (ou la masse volumique est faible) plus la perméabilité à la vapeur augmente.

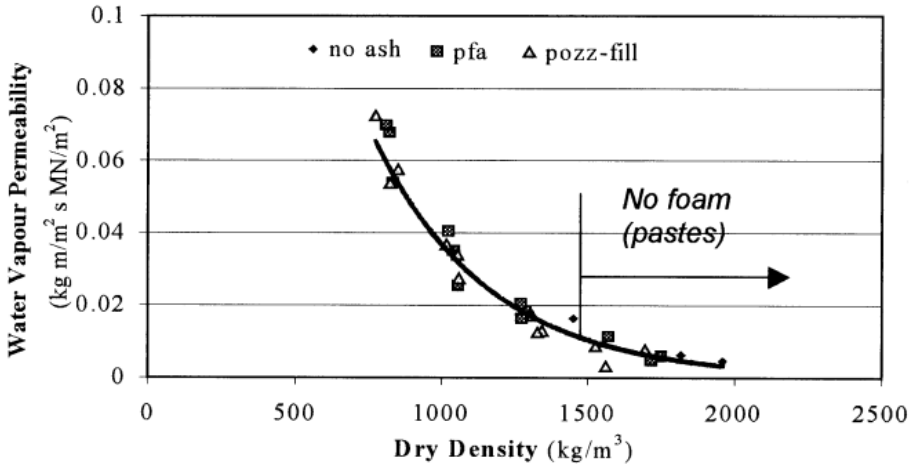


Figure I. 7. Perméabilité à la vapeur d'eau vs masse volumique sèche [42]

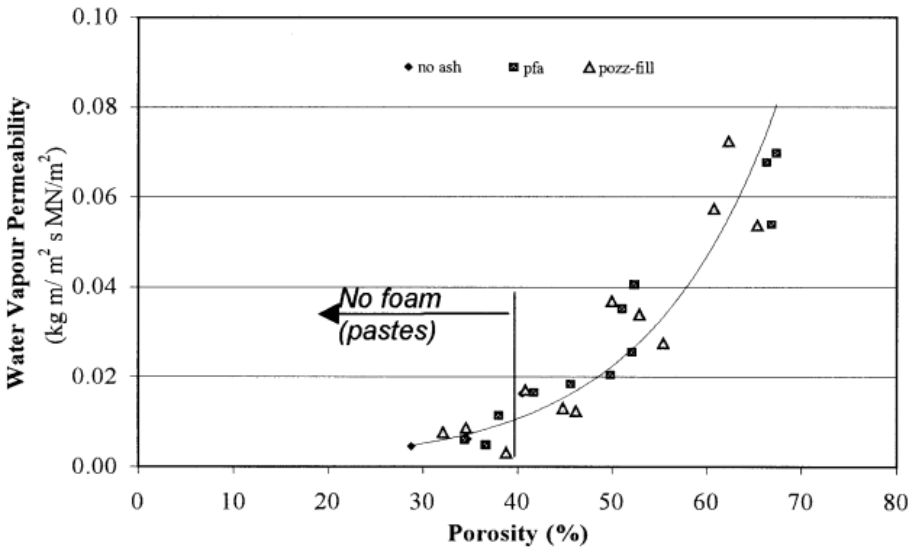


Figure I. 8. Perméabilité à la vapeur vs porosité [42]

Bray [43] a entrepris des mesures de perméabilité à la vapeur d'eau sur des pâtes de ciment avec deux différents rapports E/C (0,35 et 0,45) et en fonction de la teneur en eau du matériau (Figure I. 9). Il a, en effet, observé que la diffusivité est maximum dans les teneurs en eau les plus faibles. De plus, Nilsson [44] a mesuré la diffusivité sur trois mortiers avec trois rapport E/C (0,4 ; 0,6 et 0,8) et en fonction de l'humidité relative (Figure I. 10). Ces mesures ont été réalisées suivant la méthode de la coupelle. Les échantillons avaient une épaisseur de 5 et 10 mm et le diamètre maximal des agrégats utilisés était de 1mm. Les matériaux ont été conservés dans l'eau avant d'être placés dans les coupelles. La durée de la mesure était de six mois pour balayer toutes les gammes d'humidités relatives. Ce résultat illustre que dans la plage d'hygrométrie allant de 40 à 90%, et pour les matériaux avec un E/C de 0,4 et 0,6, l'effet de ce dernier est quasi négligeable. La comparaison des deux résultats de la Figure I. 9 et la Figure I. 10 dévoilent des effets différents du rapport E/C sur les pâtes de ciment et des mortiers. La forme des courbes d'évolution de la diffusivité en fonction de l'état hydrique du matériau diffère. De ce fait, l'effet du rapport E/C sur la perméabilité à la vapeur est évident.

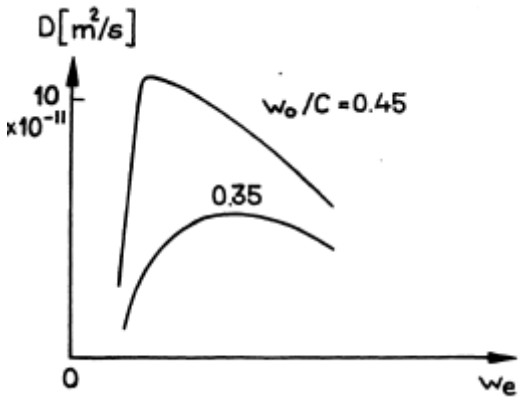


Figure I. 9. Variation du coefficient de diffusion d'humidité (diffusivité) en fonction de la teneur en eau de la pâte de ciment pour différents rapport E/C (0,35 et 0,4) [43]

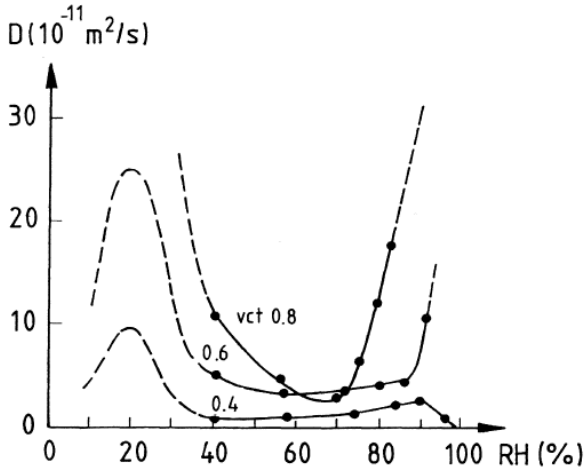


Figure I. 10. Variation de la diffusivité en fonction de l'humidité relative du mortier pour différents rapports E/C (0,4 ; 0,6 et 0,8) [44]

Il est aussi possible de déduire le coefficient de diffusion d'humidité à partir de la perméabilité à la vapeur d'eau. Pendant l'essai de perméabilité à la vapeur, l'évolution du débit massique traversant l'échantillon a été suivi jusqu'à l'état stationnaire, ce qui correspond à un débit massique constant $\dot{m}_{i+1} = \dot{m}_i$ où $\dot{m}_{i+1}$ est le taux de flux massique à l'instant t_{i+1}. Le débit massique à l'équilibre est ensuite introduit dans la relation suivante pour obtenir le flux de vapeur :

$$j_{vi} = \frac{\dot{m}_i}{A} \qquad \text{I. 10}$$

Avec,

$j_{vi}[kg/m^2s]$ représente la densité du flux de vapeur à l'instant t_i ;

$\dot{m}_i[kg/s]$ est le taux de flux massique a l'instant t_i ;

A $[m^2]$ est la surface de l'échantillon.

Le flux de vapeur à l'équilibre $j_{veq}[kg/m^2s]$ dans des conditions isothermes s'écrit :

$$j_{veq} = -\delta_v \nabla u_v \qquad \text{I. 11}$$

δ_v $[m^2/s]$ est le coefficient de diffusion d'humidité ;

$u_v[kg/m^3]$ est la teneur en vapeur.

La densité de flux de vapeur peut encore s'écrire en termes de gradient de pression ou en fonction de l'humidité relative comme suit :

$$j_{veq} = -\delta_p \nabla p_v = -\delta_p p_{vsat} \frac{\partial HR}{\partial x} \qquad \text{I. 12}$$

δ_p $[kg/m.s.Pa]$ est la perméabilité à la vapeur d'eau ;

p_v $[Pa]$ est la pression de vapeur ;

p_{vsat} $[Pa]$ est la pression de vapeur saturante.

Donc, la relation entre la perméabilité à la vapeur d'eau et le coefficient de diffusion d'humidité est :

$$\delta_p = \frac{\delta_v}{r.T} \qquad \text{I. 13}$$

Où $r = 462\, J/kg.K$

I.2.5. Propriétés thermiques

Il existe dans la littérature de nombreuses données relatives aux propriétés thermiques des matériaux cimentaires. Ces propriétés peuvent être affectées par un certain nombre de paramètres comme la composition du matériau, son âge, la température, l'état hydrique et les conditions de conservation. Les deux prochains paragraphes passent en revue les valeurs de la conductivité thermique et de la chaleur spécifique ainsi que les facteurs les plus influents sur leurs évolutions.

I.2.5.1. Conductivité thermique λ

La conductivité thermique est une grandeur physique caractérisant le comportement d'un matériau lors du transfert thermique par conduction. Elle représente l'aptitude d'un matériau à conduire la chaleur par unité de largeur et par degré de différence de température. Elle s'exprime en $W.m^{-1}.K^{-1}$. Plus sa valeur est faible, plus le matériau est isolant (conduction faible). La conductivité thermique est le facteur de proportionnalité qui apparaît dans la loi de Fourier. Cette dernière établit que le flux de chaleur est proportionnel au gradient de température. En effet, dans le cas d'une plaque soumise à une température T_1 dans une de ses faces, il est enregistré un temps pour l'obtention d'un équilibre thermique. La face opposée aura une température T_2 plus petite que T_1. Il existe alors un flux de chaleur noté q perpendiculaire à la surface de la plaque qui s'exprime sous la forme suivante en fonction du gradient de température :

$$q = -\lambda \frac{\Delta T}{\Delta x} = -\lambda\, grad\, T \qquad \text{I. 14}$$

Rappelons que la conductivité thermique λ est très liée à la masse volumique : les matériaux légers sont souvent des matériaux isolants alors que les matériaux lourds sont plutôt conducteurs [20]. De plus ; elle dépend fortement de la teneur en eau du matériau étudié.

Les premières études de ce phénomène menées notamment sur le béton cellulaire ont montré une dépendance quasi-linéaire de la conductivité thermique en fonction de la teneur en eau [45].

En 1965, Missenard [46] qui à partir des résultats obtenus sur bétons et ciments purs, dans différents laboratoires a abouti aux conclusions suivantes [12] :

- La conductivité thermique du béton dépend de celle de ses constituants et de leur proportion dans le mélange ;
- La conductivité thermique du béton diminue lorsque le rapport E/C augmente. D'après Barbu *et al.* [47] , un accroissement de 30% de la proportion d'eau modifie la conductivité thermique des bétons de 3% ;
- L'ajout de plastifiant, dans des proportions habituelles, se traduit par une augmentation minime de la conductivité thermique, pour des bétons bien vibrés, de l'ordre de 2 à 4%.

Le Tableau I. 4 [48] résume quelques valeurs tirée de la littérature concernant la conductivité thermique d'une pâte de ciment, avec un rapport E/C=0,4, mesurée à l'état saturé. D'après Kim *et al.* [49], la différence entre la conductivité thermique de deux pâtes de ciment avec un E/C de 0,25 et 0,4 est de seulement 0,058 W m^{-1} K^{-1}. Malgré le caractère hétérogène et complexe de la microstructure des matériaux cimentaire, les différences relevées dans le Tableau I. 4 sont importantes. Elles peuvent s'expliquer par la présence d'artefacts expérimentaux non identifiés vu que les dosages des différents matériaux ainsi que les conditions d'essai demeurent les mêmes.

Tableau I. 4. Valeurs tirées de la littérature de la conductivité thermique des pâtes de ciments [48]

Auteur	Échantillon	T (°C)	Conductivité thermique (W m^{-1} K^{-1})
Khan [50]	Pâte de ciment saturé (E/C=0,4)	20 et 40	1,16 et 1,13
Bentz [51]	Pâte de ciment saturé (E/C=0,4)	23	0,94
Milovanovic *et al.* [52]	Pâte de ciment saturé (E/C=0,4)	20	1,81
Bouguerra *et al.* [53]	Pâte de ciment saturé (densité=2100 kg/m^3)	20	2,85

L'examen de quelques investigations trouvées dans la littérature [54], [55], [56] et [50] révèle que le type d'agrégat, la porosité et la teneur en eau ont une forte influence sur la conductivité thermique du béton. D'après Harmathy [55], c'est la conductivité thermique des agrégats qui définit la qualité d'isolation du béton et c'est le caractère minéralogique des agrégats qui définit la conductivité thermique des bétons ordinaires. L'utilisation dans la

fabrication du béton, d'agrégats avec une faible conductivité thermique conduit a des bétons de faible conductivité thermique et l'inverse est aussi vrai [54]. Kim *et al.* [49] ont étudié l'évolution de la conductivité thermique en fonction de l'âge, du volume des agrégats, du rapport E/C et du type de matériau cimentaire (Figure I. 11). Ils ont conclu de ce résultat, d'une part, qu'il n'y a pas d'effet de l'âge du matériau sur sa conductivité thermique, et d'autre part, que l'effet le plus prononcé est dû à la fraction volumique des agrégats et sa teneur en eau. Bastian et Khelidj [57] ont observé que la conductivité thermique d'un béton de rapport E/C proche de 0,60, mesurée à partir de la fin du malaxage et jusqu'à 28 jours, ne variait pas non plus de façon significative au cours du temps.

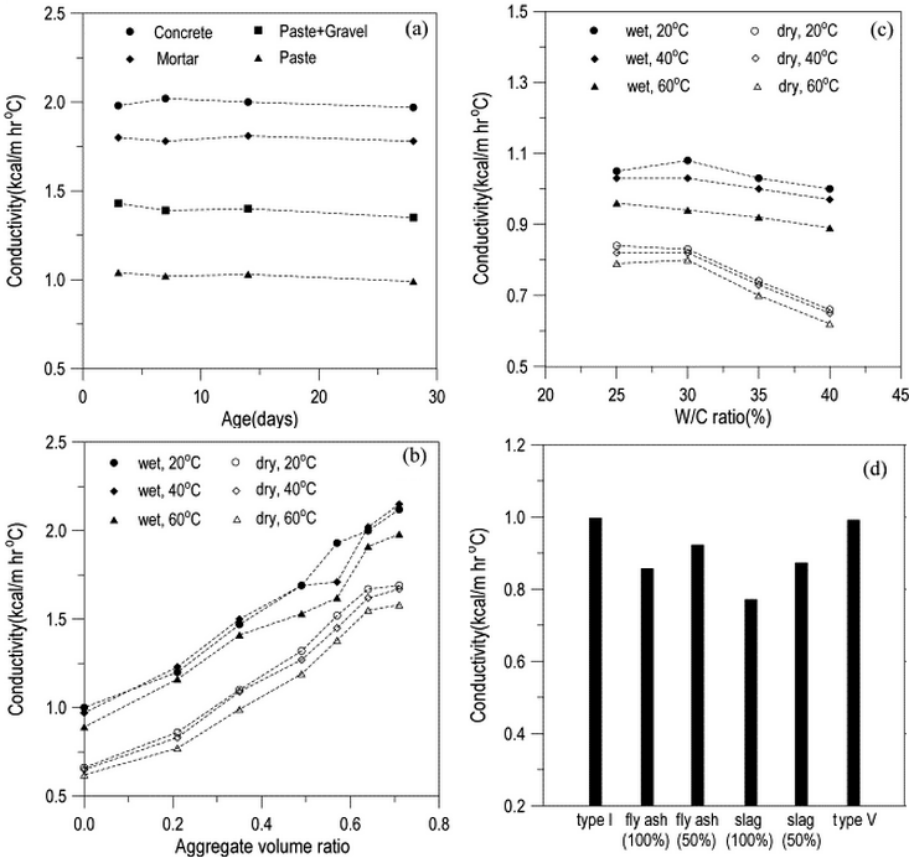


Figure I. 11. Conductivité thermique en fonction de : (a) âge, (b) rapport E/C, (b) volume des agrégats et (c) type de ciment [49]

Selon Missenard [46], la conductivité thermique du ciment pur augmente avec la température, de 10 à 15% entre 15°C et 70°C pour une série de ciments français [12]. Kim *et al.* [49] ont observé qu'à un âge donné, une augmentation de la température de 20 à 60°C se traduisait par une diminution de l'ordre de 10 à 20% de la conductivité thermique des pâtes de ciment et de bétons.

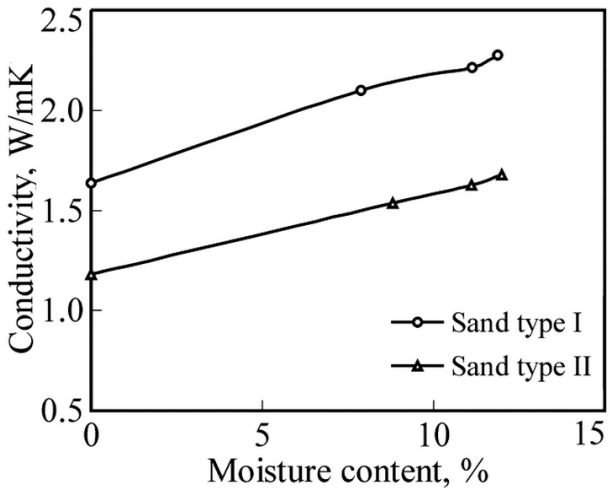


Figure I. 12. Évolution de la conductivité thermique en fonction de la teneur en eau du mortier [50]

De plus, la conductivité thermique augmente avec l'augmentation de la teneur en eau. Il a été rapporté que la conductivité thermique du béton à l'état humide est de 70% plus grande qu'à l'état sec [54]. D'après Khan [50], l'effet de la teneur en eau sur la conductivité thermique du béton est plus important entre l'état sec jusqu'à 50% de degré de saturation, au-delà l'effet est moins prononcé. La Figure I. 12 [50] illustre l'effet de la teneur en eau d'un mortier fabriqué avec deux sables différents sur sa conductivité thermique. En effet, la conductivité thermique d'un matériau est fortement liée à celle de ses constituants et de leur nature.

La conductivité thermique peut aussi être affectée par la norme et le dispositif expérimental utilisé pour sa détermination. Ce volet va être discuté dans la deuxième partie de ce chapitre qui traitera les techniques de caractérisation.

I.2.5.2. Chaleur spécifique C_p

La chaleur spécifique d'un matériau est la quantité de chaleur nécessaire pour élever de 1K la température d'une unité de masse de ce même matériau. Elle est exprimée en $J.\ kg^{-1}.K^{-1}$. Il existe aussi ce que nous appelons "la capacité massique ou capacité calorifique C" qui traduit l'aptitude du matériau à absorber une quantité de chaleur (Q) et à s'échauffer (élévation de sa température) de ΔT.

$$C = \frac{Q}{\Delta T} \qquad \text{I. 15}$$

Dans la pratique, et pour définir une propriété du matériau indépendante de sa masse (m), on utilise la chaleur spécifique C_p.

$$C_p = \frac{C}{m} \qquad \text{I. 16}$$

Il existe plusieurs facteurs affectant la valeur de la chaleur spécifique. En 1946, Löfquist [58] a constaté une faible diminution de la chaleur spécifique d'un mortier de ciment au cours de son hydratation, de 1,18 kJ. $kg^{-1}.K^{-1}$ à un âge de 3 jours jusqu'à 1,16 kJ. $kg^{-1}.K^{-1}$. En 1970, Brown et Javaid [59] ont mesuré une diminution plus importante. Ils ont, en effet, constaté que la chaleur spécifique du béton au cours de son hydratation diminue linéairement avec le temps d'environ 20%. Maréchal [60] [61], a observé des fluctuations mineures de la chaleur spécifique au cours de l'hydratation. La décroissance linéaire observée par Brown et Javaid a été réfuté en 1982 par Reinhardt *et al.* [62] qui ont représenté une évolution linéaire de la chaleur spécifique du béton en fonction de son degré d'hydratation.

$$c = c_0(1{,}25 - 0{,}25r) \qquad \text{I. 17}$$

Avec c est la chaleur spécifique au cours de l'hydratation, c_0 est la chaleur spécifique du béton durci et r est le degré d'hydratation. L'origine de cette formule n'a pas été mentionnée par Reinhardt *et al.* En 1982, Hansen *et al.* [63] ont décrit un essai permettant de mesurer la chaleur spécifique au cours de l'hydratation, en prenant en compte la production de chaleur due à l'hydratation. Ils ont constaté à cet effet que la chaleur spécifique d'une pâte de ciment est de 1,92 kJ.$kg^{-1}.K^{-1}$ à 1,5h et diminue jusqu'à 1,65 kJ.$kg^{-1}.K^{-1}$ à 120h. Ils ont exprimé la chaleur spécifique en fonction du logarithme du temps. En 1991, Van Breugel [64] a supposé une diminution linéaire de la chaleur spécifique en fonction du degré d'hydratation, basé sur une chaleur spécifique fictive du ciment hydraté.

$$c = \frac{1}{\rho}[G_c c_{cf} r + G_c(1-r) + G_a c_a + G_w c_w] \qquad \text{I. 18}$$

Avec G_c, G_a et G_w représentent respectivement la fraction massique du ciment, des agrégats et de l'eau dans l'échantillon ; c_c, c_a et c_w sont respectivement la chaleur spécifique du ciment, des agrégats et de l'eau et c_{cf} est la chaleur spécifique fictive du ciment hydraté qui est exprimé en fonction de la température réelle T de l'échantillon sous la forme suivante :

$$c_{cf} = 0{,}0084\,T + 0{,}339\ \mathrm{kJ.kg^{-1}.K^{-1}} \qquad \text{I. 19}$$

Bentz [51] a mesuré la chaleur spécifique de deux pâtes de ciment à l'état frais. Il a de ce fait trouvé les valeurs de 1,55 J.$g^{-1}.K^{-1}$ pour la pâte de ciment avec un rapport E/C=0,3 et 1,73 J.$g^{-1}.K^{-1}$ pour la pâte de ciment avec un rapport E/C=0,4. La chaleur spécifique d'une pâte de ciment à l'état frais à 23°C peut être estimée en connaissant celle de l'eau [65] (4,18 J.$g^{-1}.K^{-1}$ à 23°C) et celle du ciment en poudre (0,75 J.$g^{-1}.K^{-1}$) [66] suivant la formule suivante [67]:

$$C_p^{(freshpaste)} = 4{,}18\,M_f^{water} + 0{,}75 M_f^{cem} = 0{,}75 + 0{,}43\,M_f^{water} \qquad \text{I. 20}$$

Avec M_f^{water} est la fraction massique de l'eau dans la pâte de ciment, et $M_f^{cem} = 1 - M_f^{water}$ est la fraction massique du ciment anhydre.

Tableau I. 5. Évolution de la chaleur spécifique au cours de l'hydratation [67]

Référence	[58]	[59]	[60] et [61]	[62]	[63]	[64]	[67]
Chaleur spécifique	-1%	-20%	Constante	-20%	-4%	-13%	-13%
Conductivité thermique		-30%	Max à 50h	-50%			-21%

Le Tableau I. 5, issu des travaux de De Schutter et Taerwe [67], résume les évolutions de la chaleur spécifique au cours de l'hydratation d'un béton classique réalisées avec 300 kg de ciment, 150 kg d'eau, 670 kg de sable et 1280 kg de gravier. Bastian et Khelidj [57] n'ont pas observé une modification fondamentale de la chaleur spécifique d'un béton entre la fin du coulage et 28 jours. Le Tableau I. 6 présente les effets relatifs du type d'agrégat, de la teneur en eau du matériau et de la température sur l'évolution de la conductivité thermique et de la chaleur spécifique du béton [58].

Tableau I. 6. Effet relatif de quelques paramètres sur les propriétés thermique du béton [58]

Conditions	Conductivité thermique	Chaleur spécifique
Type d'agrégats	42 %	8 %
Teneur en eau de 4 à 8%	Diminue jusqu'à 10 %	Augmentation de 12%
Température de 10 à 65°C	Augmentation de 12 % Diminution de 6 %	Augmentation de24%

Nous pouvons également définir à partir de ces deux propriétés (conductivité thermique et chaleur spécifique), deux autres caractéristiques thermophysiques : la diffusivité thermique et l'effusivité thermique.

- La diffusivité thermique (a) correspond au rapport de la conductivité thermique et de la chaleur spécifique Elle s'exprime en $m^2 .s^{-1}$. Ce paramètre caractérise la cinétique de réponse du milieu à une perturbation thermique.

$$a = \frac{\lambda}{C_p} \qquad \text{I. 21}$$

- L'effusivité thermique (b) mesure la propriété qu'a un corps d'arracher de la chaleur à un autre corps avec lequel il est mis en contact. Physiquement, elle représente la capacité d'un milieu à résister (en température) à une perturbation thermique. Elle s'exprime en $J. m^{-2} .s^{-1/2} .K^{-1}$.

$$b = \sqrt{\lambda\, C_p} \qquad \text{I. 22}$$

I.3. Méthodes expérimentales de caractérisation des matériaux cimentaires

I.3.1. Caractérisation de la microstructure (degré d'hydratation)

Comme souligné précédemment, la microstructure du matériau est le paramètre qui gouverne le transfert. Il existe plusieurs techniques de caractérisation de la microstructure d'un matériau cimentaire : par porosimétrie accessible à l'eau et par intrusion de mercure, par microscopie électronique à balayage (MEB), par tomographie aux rayons X et bien d'autres techniques. Le Tableau I. 7 [68] énumère les principales techniques de caractérisation de la texture des matériaux cimentaires. La technique doit être choisie naturellement en fonction du (ou des) paramètre(s) à mesurer, car si la plupart des méthodes donnent accès à l'ensemble des paramètres, chacune le fait, toutefois, avec plus ou moins de précision, suivant le paramètre considéré. Le choix est aussi conditionné par la gamme de taille de pores du matériau étudié (Figure I. 13) [68].

Tableau I. 7. Principales techniques de caractérisation texturale des matériaux poreux [68]

Catégorie	Technique
Analyse d'images	Microscopie Optique (visible, U.V,…) (P)
	M.E.B (P)
Diffraction	Diffusion des rayons X aux petits angles (S.A.X.S.) ou des Neutrons (S.A.N.S.)
Dynamique des fluides	Perméamétrie (ex : à air, "méthode de BLAINE")
Hydrostatique	Intrusion de Mercure
	Pycnométrie aux gaz (He) et aux liquides (P)
Calorimétrie	Thermoporométrie
	Microcalorimétrie d'adsorption
Adsorption/Condensation	Adsorption de gaz ou de vapeurs (N_2, He, Ar, Kr, H_2O,…)

(p) : porosimétrie uniquement

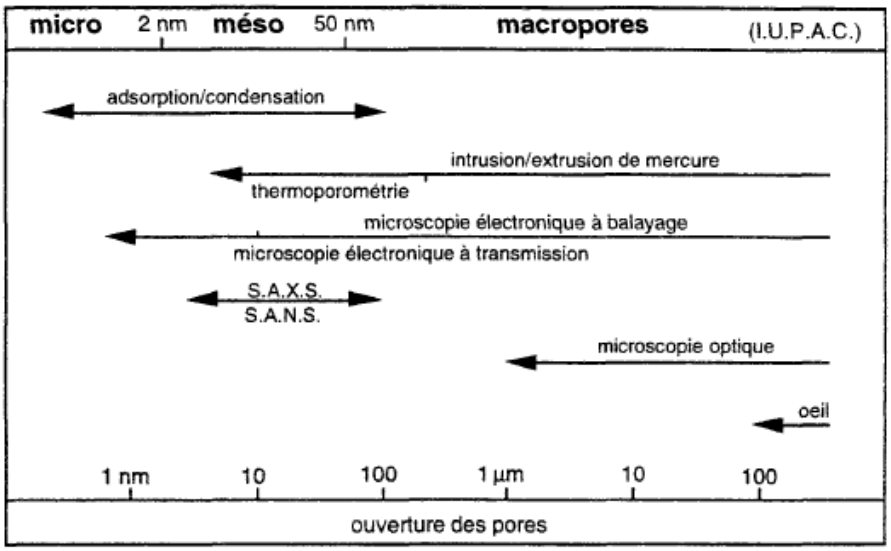


Figure I. 13. Domaines d'utilisation des principales techniques de caractérisation texturale des matériaux poreux [68]

Le problème majeur que présentent les méthodes classiques d'investigation est que l'eau résiduelle ainsi que les gaz et les vapeurs contenus dans les pores d'un matériau doivent être enlevés par un séchage et un dégazage préalables de l'échantillon avant la mesure proprement dite, afin que l'ensemble des pores soit accessible. Or, le résultat d'investigation de la microstructure d'un matériau cimentaire peut être très dépendant du prétraitement appliqué (durée et intensité du séchage, …), ce qui rend difficile l'interprétation des résultats obtenus.

La technique de séchage idéale des matériaux cimentaires est celle qui peut parfaitement éliminer toutes l'eau libre de l'échantillon sans endommager la microstructure du matériau. Celle-ci n'existe malheureusement pas [69]. Il existe plusieurs techniques de séchage, parmi elles, nous pouvons citer : le séchage en étuve, sous vide, par lyophilisation (freeze-drying), par solvants et la technique dite "D-drying" (Figure I. 14). D'après Aligizaki [70], cette dernière est la technique la plus adoptée et la plus rigoureuse des techniques de séchage par mise sous vide.

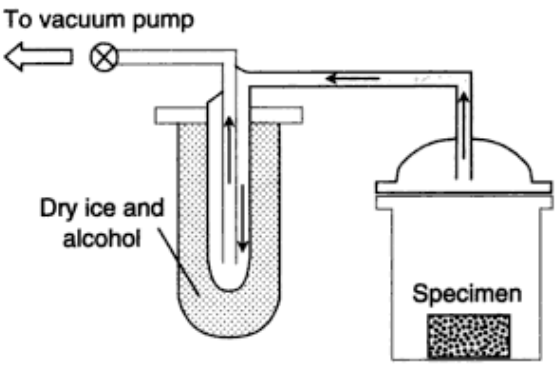


Figure I. 14. Technique de séchage "D-drying" [70]

Korpa et Trettin [69] ont conclu qu'un séchage en étuve sous vide pendant 3 heures crée des microfissures qui varient en fonction du degré de dégazage appliqué lors du séchage. De plus, Wu *et al.* [71] ont classé la cinétique de séchage parmi les paramètres les plus influant sur la formation des microfissures. Le Tableau I. 8 rappelle les différentes procédures de pré-conditionnement avant chaque mesure des propriétés de transport des matériaux cimentaires. Snoek *et al.* [72] ont étudié l'influence des différentes techniques de séchage sur les propriétés de sorption des matériaux cimentaires. Ils ont aussi déduit que l'élimination de l'eau chimiquement liée peut provoquer un rétrécissement de la microstructure. Ils rajoutent que toutes les techniques de séchage déshydratent plus ou moins les C-S-H et l'ettringite, ils provoquent une restructuration des C-S-H et par conséquent modifie la microstructure. Le Tableau I. 8 résume les conclusions sur l'effet des techniques de séchage sur la microstructure des matériaux cimentaires.

Tableau I. 8. Diverses recommandations de pré-conditionnement avant la mesure des propriétés de transport des matériaux cimentaires [71]

Recommandation	Propriété de transport	Pré-conditionnement
CEMBUREAU, 1989	Perméabilité à l'eau et aux gaz	HR 65%, 20°C sur 28 jours ; ou 105°C sur 7 jours, suivi de 20°C sur 3 jours.
RILEM TC 116-1999	Perméabilité au gaz et adsorption capillaire	50°C jusqu'à équilibre de la masse
CRD-C 163-92/1992	Perméabilité à l'eau	Séchage à l'air libre 23°C
NT BUILD 506/2006	Perméabilité à l'eau	Eau saturée de chaux
BS EN 772-15/2000	Perméabilité à la vapeur d'eau (béton)	-
BS EN 1015-19/1999	Perméabilité à la vapeur d'eau (mortier)	HR 95%, 20°C sur 2-5 jours, puis HR 50%, 20°C sur 23-26 jours
NT BUILD 369/1991	Diffusion liquide	40°C sur 7 jours
RILEM CPC18 :1988	Épaisseur de carbonatation	HR 65%, 20 °C
ASTM C1202 12/2012	Conductivité électrique	Saturation sous vide
BS 1881-122/2011	Pénétration de chlorure	Saturation sous vide
NT BUILD 368/1991	Adsorption capillaire	105°C sur 3 jours
BS EN 13057/2002	Adsorption capillaire	40°C sur 7 jours

Tableau I. 9. Conclusions sur l'effet des techniques de séchage sur la microstructure [72]

Technique de séchage	Pas de changement dans la microstructure
Freeze-drying	+
105 °C	– –
40 °C	+
Air drying	–
Vacuum dried	+
isopropanol	+ +
methanol	+ +

Les résultats expérimentaux obtenus par Gallé [73] sur les pâtes et bétons CEM I et CEM V ont montré que le séchage dans l'étuve à 105 ° C conduit à une surestimation de la porosité totale. Les porosités à l'eau obtenues après un séchage en étuve à 60 °C et un séchage sous vide sont très proches et permettent probablement une estimation plus réaliste de la porosité totale [73]. La Figure I. 15 illustre les résultats de porosité à l'eau, de la pâte de ciment CEM I en fonction des techniques de séchage utilisées.

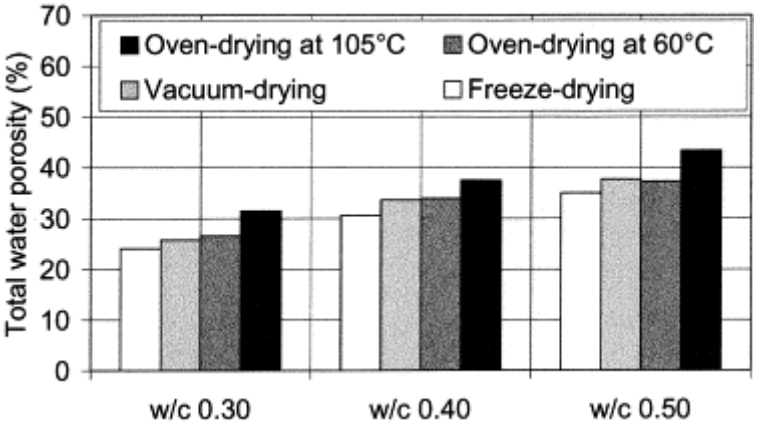


Figure I. 15. Porosité à l'eau de la pâte de ciment CEM I en fonction du rapport E/C et de la technique de séchage utilisée [73]

D'après Baroghel-Bouny [68], la porosité et la surface spécifique B.E.T (déterminées par adsorption d'azote) d'un solide microporeux peuvent aisément varier de ±30%, selon la procédure adoptée. Litvan [74], a mesuré des surfaces allant de 70 à 249 $m^2.g^{-1}$ sur de pâtes de ciment durcies [68, 75].

De telles variations peuvent avoir pour origines [68] :

- Un séchage insuffisant qui a pour conséquence de réduire l'accès du réseau poreux et conduit à des valeurs sous-estimées de la porosité et de la surface spécifique.

- Un séchage excessif sévère qui peut conduire à des modifications de la microstructure du matériau [76, 77]. Il peut ainsi engendrer des retraits momentanément irréversibles et donc un resserrement du réseau poreux [68], des microfissures ce qui influence d'éventuelles mesures de perméabilité [78], une altération des hydrates et une perte d'eau chimiquement liée [79].

- Des changements structuraux durant l'essai lui-même. Une création de contraintes non isotropes altérant la microstructure par élargissement de certains goulots du réseau poreux ou une compression du matériau peuvent être constatées lors de l'injection du mercure à des pressions élevées [68, 80, 78, 77].

Le choix de la température de séchage est une étape très importante. La température de 105°C est souvent adoptée pour sécher les pâtes de ciment durcies et les bétons. Cette température est en fait adoptée à l'origine uniquement pour les ciments anhydres [68]. Voici quelques conclusions et notes tirées des travaux de recherches de Baroghel-Bouny [68] :

- À une température de séchage T=105°C, la résistance à la flexion est plus faible [81] et les auteurs ont constaté une modification de la structure poreuse [82] ;

- À T=105 °C, on perd une partie de l'eau des hydrates ;

- À T=80 °C, on déshydrate le gypse et l'ettringite ;

- La température où commence la déshydratation des C-S-H est mal connue, elle dépend de HR, mais à T=105 °C, on est sûre de déshydrater aussi les C-S-H ;

- Une perte irréversible de surface spécifique ($\leq$ 8%) à été mesurée sur une pâte de ciment durcie, lors d'un séchage à T=105 °C, alors que lors d'un séchage à température ambiante, la perte de surface est réversible [83, 77] ;

Baroghel-Bouny a démontré que lors d'une analyse thermique différentielle de deux pâtes de ciment après un séchage à T=40°C et T=105°C, que les pics de C-S-H sont différents. Plus le matériau est séché à une température élevée, plus le pic de C-S-H est atténué. L'auteur a conclu qu'une température allant jusqu'à T=70 °C est sans dommage sur la microstructure des pâtes de ciment durcie et des bétons.

I.3.1.1. Porosimètrie à l'eau

Cette méthode permet une caractérisation de la porosité globale du matériau. Elle est connue par sa simplicité et sa rapidité de mise en œuvre. La procédure décrite ici est celle proposée par l'AFPC-AFREM [84]. Elle se base sur la saturation à l'eau (de masse volumique ρ_{eau}) sous vide du matériau testé. L'échantillon est saturé et pesé, soit M_{sat} sa masse humide. Le

volume total de l'échantillon $M_{éch}$ est obtenu par pesée hydrostatique. Il est ensuite séché à une température de 60°C, 80°C ou 105°C. La masse sèche de l'échantillon est notée M_{sec}. Enfin, la porosité à l'eau ε_{eau} est donc donnée par la relation suivante :

$$\varepsilon_{eau} = \frac{M_{sat} - M_{sec}}{\rho_{eau} V_{éch}} \qquad \text{I. 23}$$

I.3.1.2. Porosimètrie au mercure

La porosimétrie par injection (ou intrusion) de mercure constitue l'un des principaux outils d'investigation de la structure mésoporeuse et macroporeuse des matériaux. Cette technique simple et rapide permet la détermination des caractéristiques texturales et des matériaux poreux (poudres et solides) dont les pores (ouverts) ou ses espaces intergranulaires sont compris dans le domaine de mesure de l'appareil. Elle est basée sur la loi capillaire régissant la pénétration de liquide dans de petits pores. Cette loi, dans le cas d'un liquide non mouillant comme le mercure, et de pores cylindriques, est exprimée par l'expression de Laplace.

$$D = \left(\frac{1}{P}\right) 4\gamma \cos\varphi \qquad \text{I. 24}$$

Où : D est le diamètre de pore [m] ;

γ_{Hg} est la tension superficielle [N/m], $\gamma_{Hg} = 0{,}474\ N.m^{-1}$ entre T=20°C et T=25°C ;

φ est l'angle de contact en degrés entre le mercure et la paroi solide ; il varie de 117° à 145, selon la nature du solide et peut affecter la distribution poreuse de façon notable.

P est la pression exercée sur le mercure [MPa] ;

La technique de mesure consiste à mettre le matériau poreux à étudier sous vide en présence de mercure. La taille de l'échantillon est d'environ 1 à 2 cm^3. On applique une pression P_{Hg} que l'on augmente de façon incrémentale. Puis, on mesure le volume cumulé de mercure entrant dans les pores à chaque incrément. On en tire alors la relation : $V_p = V_p\ (P_{Hg})$.

On obtient ainsi la courbe d'intrusion de mercure en fonction du rayon des pores investis $V(r_p)$. Par différentiation logarithmique, on dispose aussi de la courbe de distribution poreuse qui met en évidence les modes poreux caractéristiques de la microstructure. Le point d'inflexion de la courbe $V(rp)$ permet d'identifier le rayon critique r_c de percolation du mercure, i.e. le rayon minimum des pores qui forment un chemin continu (dit amas infini) d'écoulement à travers toutes les régions de l'échantillon.

La porosimètrie au mercure présente, en plus de la nécessité d'un séchage préalable, des imperfections. Parmi celles-ci :

- Elle ne permet pas de détecter les pores présents dans le gel de C-S-H dont le diamètre est inférieur à 2 nm [85] ;

- Elle ne fournit qu'une représentation simplifiée de la microstructure puisque les pores sont assimilés à des pores cylindriques. Par ailleurs, cette technique donne uniquement accès aux diamètres d'entrée de pores et ne prend pas en compte les diamètres plus grands se trouvant justes après comme le montre la Figure I. 16 [15] ;

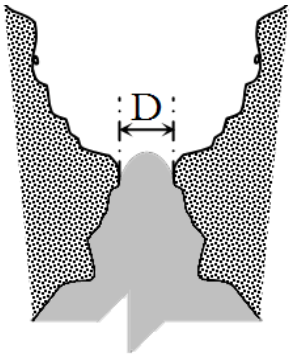


Figure I. 16. Diamètre mesuré par la porosimètre [15]

- Pignat *et al.* [86] montrent à l'aide d'images 3D, que la distribution porale déterminée par intrusion de mercure est différente de la distribution porale calculée par analyse d'image.

Il n'en demeure pas moins que la porosimétrie par intrusion de mercure est l'un des principaux outils de caractérisation des matériaux poreux, intéressant pour la comparaison de différents matériaux.

I.3.1.3. Estimation du degré d'hydratation

Le degré d'hydratation (α) ou degré d'avancement des réactions d'hydratation est un paramètre objectif permettant de caractériser l'évolution du matériau d'un point de vue mécanique.

Il est défini comme la fraction pondérale de matériau ayant réagi :

$$\alpha = \frac{masse\ de\ ciment\ hydraté}{masse\ initiale\ de\ ciment\ anhydre} = \frac{m_{c\ hyd}}{m_c}$$

Il est lié à l'évolution des résistances :

$\left.\begin{array}{l}\alpha = \alpha(\text{âge}) \\ f_c = f_c(\text{âge})\end{array}\right\}$ ➔ $f_c = f_c(\alpha)$ est une droite dépendant du rapport E/C et de la température [68, 87].

Le degré d'hydratation peut être déterminé expérimentalement d'une façon directe à partir de la quantité de ciment ayant ou n'ayant pas réagi à l'instant *t* ou d'une façon indirecte à partir du suivi de l'évolution d'une propriété commune aux différentes réactions d'hydratation (exothermique, accroissement de la quantité d'eau liée, etc.).

- Détermination directe

La détermination directe de α nécessite de connaitre les degrés d'hydratation de chaque constituant du clinker.

- *Par microscopie optique et électronique*

Ces techniques consistent à obtenir une image d'une section polie du matériau au cours d'hydratation, à partir de laquelle on quantifie par analyse d'image la proportion de chaque phase en présence (ciment anhydre, hydrates, granulats, porosité, etc.) [12].

- *Par Diffractométrie aux rayons X (DRX)*

Elle donne accès à la quantité de ciment non hydraté (le C_3S et le C_2S du clinker qui ont en effet une structure cristalline). On peut déterminer la quantité de C_3S résiduelle et en déduire le degré d'hydratation du C_3S et consécutivement celui du ciment, dans les matériaux considérés.

- *Par résonance magnétique nucléaire (RMN)*

La RMN permet de déterminer les quantités de silicates anhydres, de silice n'ayant pas réagi et de C-S-H présents dans l'échantillon.

Le degré d'hydratation peut aussi être estimé par la mesure de la chaleur d'hydratation, par analyse thermique et par suivi de la contraction Le Chatelier.

- Détermination indirecte

- *Détermination de (α) par les quantités d'eau chimiquement liées*

La relation entre la surface spécifique des produits d'hydratation et l'eau consommée par la réaction d'hydratation est quasiment linéaire après 24 heures [88, 16]. La quantité d'eau chimiquement liée est donc un paramètre pouvant être utilisé pour la détermination de (α).

$$\alpha = \frac{m_{el}(t)}{m_{el}(\infty)} \qquad \text{I. 25}$$

$m_{el}(t)$ est la quantité d'eau chimiquement liée d'un échantillon de matériau donné, à l'âge *t*. Il est possible d'accéder à cette quantité à partir des mesures thermogravimétriques (ATG).

$m_{el}(\infty)$ est la quantité d'eau chimiquement liée à t = ∞, dans le cas où la formulation du matériau contiendrait toute l'eau nécessaire à l'hydratation complète.

$m_{el}(\infty)$ = quantité d'eau (théorique) nécessaire à l'hydratation complète du ciment considéré. Elle est obtenue selon la composition chimique du ciment en utilisant la formule de Bogue.

C'est cette méthode de détermination du degré d'hydratation que nous avons adopté dans nos travaux de recherche. D'amples détails figurent dans le chapitre II.

En plus de toutes ses techniques, plusieurs chercheurs ont proposé des modèles mathématiques d'hydratation. Parmi les plus cités dans la littérature, nous retrouvons le modèle d'Avrami [89], de Knudsen [90] et de Papadakis [91].

I.3.1.4. Tomographie aux rayons X

La tomographie aux rayons X est une technique d'imagerie non destructive qui consiste à reconstruire le volume 3D d'un objet à partir d'une série de radiographies 2D. Son principe repose sur l'analyse multidirectionnelle de l'interaction d'un faisceau de rayons X avec la matière, par enregistrement avec des détecteurs du rayonnement transmis après traversée d'un objet.

Les données acquises lors de la prise de mesure (dont la durée varie d'une fraction de seconde à quelques heures selon l'installation) sont collectées suivant des orientations multiples dont le nombre et le pas sont fonction du type d'appareil et de la finesse de la résolution. A l'aide de ces données, une image numérique est calculée et reconstruite mathématiquement en niveaux de gris ou de couleurs dont chacun traduit point par point le coefficient d'atténuation local du faisceau incident. Celui-ci, après calibration et étalonnage, peut être traduit en échelle de densité (Figure I. 17).

La microtomographie à rayons X constitue un outil de choix car elle permet d'accéder à une vision interne de l'échantillon analysé de manière non destructive et sur une gamme d'échelles allant de quelques microns à quelques centimètres. Elle permet également de localiser très finement toute hétérogénéité, singularité, vide ou inclusion présents dans un objet. En plus de son caractère non destructif, la microtomographie à rayons X ne requiert pas de préparation particulière de l'échantillon et opère à pression atmosphérique.

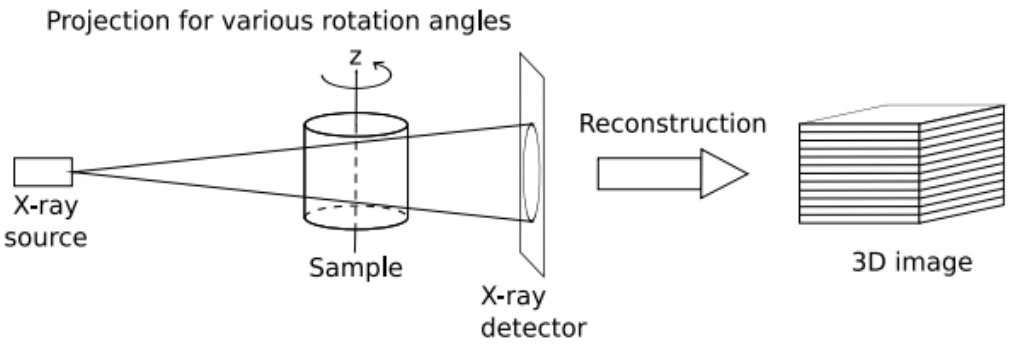


Figure I. 17. Principe d'acquisition d'une image 3D par microtomographie aux rayons X [92]

Après l'essai de microtomographie, il est possible d'extraire la morphologie 3D du réseau poreux (traitement d'image 3D), puis les propriétés par calcul sur la morphologie réelle.

I.3.2. Mesure des isothermes de sorption

La masse de la vapeur d'eau adsorbée par un matériau croit avec l'humidité relative de l'air ambiant pour une température et une humidité relative données.

Le matériau va pouvoir retenir en son sein une quantité d'eau condensée (sous forme "capillaire" et sous forme "adsorbée") suffisamment importante (forte porosité et surface interne hydrophile très étendue, respectivement), pour que l'on puisse déterminer sa teneur en eau, en fonction de l'humidité relative de l'air ambiant, à l'équilibre. Il existe plusieurs techniques pour arriver à cette fin. Ces techniques diffèrent dans la manière de régulation de l'humidité relative de l'air ambiant durant l'essai et la méthode choisie pour évaluer la teneur en eau correspondante à l'équilibre.

I.3.2.1. Contrôle thermique de l'humidité relative [4]

Le procédé est fondé sur la relation suivante :

$$P_{v\,sat}(T_r) = P_v = HR\ P_{v\,sat}(T) \qquad \text{I. 26}$$

Où $P_{v\,sat}$ est la pression de vapeur saturante ; T_r est la température de rosée qui est la température à laquelle il faut porter cette ambiance en conservant la pression partielle de la vapeur (P_v) (ainsi que la pression totale s'il s'agit d'un mélange gazeux) pour provoquer la condensation ; HR représente l'humidité relative du milieu ambiant.

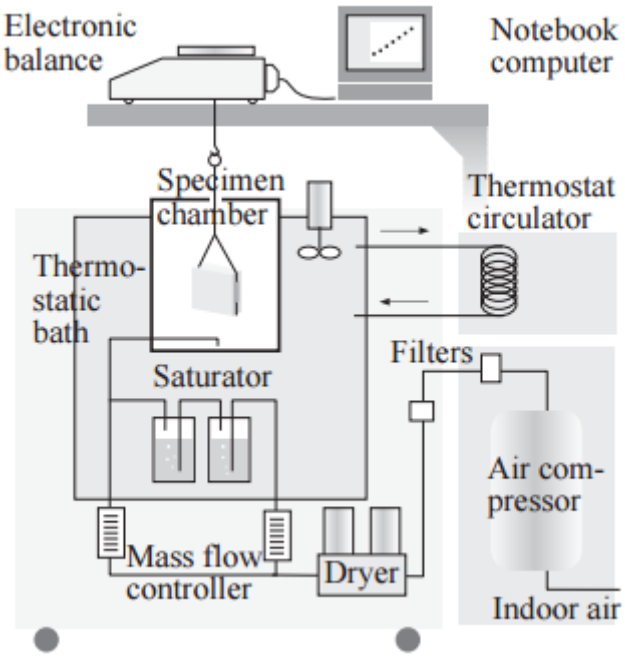


Figure I. 18. Système de mesure des isothermes de sorption [93]

Pour obtenir une ambiance à la température T et à l'humidité relative HR, on peut saturer l'air à la température de rosée correspondante T_r et l'échauffer ensuite à la température visée T. L'air doit être réchauffé à pression constante afin de conserver la pression partielle de la vapeur. La saturation de l'air se fait au contact d'un bain de liquide dont la température est régulée au niveau T_r. La température requise dans le saturateur peut être obtenue en refroidissant le bain par excès au moyen d'un serpentin où circule un fluide caloporteur refroidi par un réfrigérateur externe, tandis qu'une résistance asservie à la température du bain assure la régulation (Figure I. 18).

Un tel procédé se heurte généralement à deux difficultés majeures : la première est que le degré de saturation réel de l'air à la sortie du saturateur est incertain et difficilement contrôlable. La deuxième est une imprécision sur les températures du saturateur d'une part, de l'enceinte d'utilisation d'autre part qui peut entraîner d'importantes erreurs sur l'humidité relative obtenue lorsque la valeur visée est proche de l'unité.

I.3.2.2. Contrôle osmotique de l'humidité relative par solution saline saturée

La pression de vapeur régnant au contact d'une solution est inférieure à la pression de vapeur saturante du solvant pur, et donnée par :

$$\frac{P_v}{P_{v\,sat}} = HR = a_{solv} \qquad \text{I. 27}$$

Où a_{solv} est l'activité du solvant qui s'identifie dans certaines conditions à sa fraction molaire dans la solution. C'est le principe du contrôle osmotique de la pression de vapeur, ou de l'humidité relative.

Le plus souvent, il est exploité avec une solution saturée d'un corps pur, présent en excès à l'état solide dans la réserve de solution. Cela permet de contrôler la concentration, même si le solvant est amené à s'évaporer ou à se condenser dans la réserve de solution au cours du fonctionnement. Des tables (Tableau I. 10) donnent l'humidité relative des solutions salines aqueuses saturées les plus couramment utilisées pour le contrôle de l'humidité relative.

Tableau I. 10. Humidité relative des solutions salines saturées

Nom du sel	Humidité Relative (%) (T 20-25°C)
Gel de Silice	3
Chlorure de Lithium	11,3
Chlorure de Magnésium	33
Nitrate de Magnésium	53,5
Chlorure de Sodium	75,5
Chlorure de Baryum	90,4

Pour le contrôle de l'humidité relative à des niveaux très proches de l'unité (au-dessus de 0,98), il n'existe pas de gamme de sels adaptés. On peut procéder par saturation sous vide dans l'eau pour obtenir la teneur en eau à saturation.

Dans les dispositifs plus rudimentaires de contrôle de l'humidité relative, on se contente de placer la solution au fond d'un récipient (le cas échéant un dessiccateur à vide) et l'échantillon sur un support au-dessus de la surface (Figure I. 19). L'échantillon sera pesé périodiquement, jusqu'à ce que la stabilisation de sa masse indique qu'il a atteint l'équilibre.

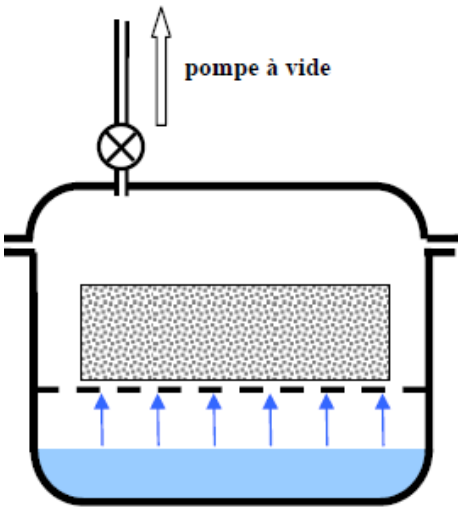


Figure I. 19. Enceinte de contrôle de l'humidité relative par solutions salines saturées [4]

Le transport de l'eau entre la solution et l'échantillon se fait par diffusion de vapeur à travers la lame d'air qui le sépare. C'est souvent le principal facteur de la durée d'équilibrage. D'après Daïan [4], le flux de vapeur échangé par diffusion pour une chute d'humidité relative donnée est inversement proportionnel à l'épaisseur de la lame d'air. Il est donc important que l'échantillon soit disposé le plus près possible de la surface de la solution (malgré les risques d'éclaboussure que cela peut comporter).

La durée d'équilibrage dépend aussi de la taille de l'échantillon. Plus le volume de l'échantillon est grand, plus la masse d'eau à transférer pour atteindre l'état d'équilibre est grande. Il convient donc de réduire autant que possible la taille de l'échantillon à analyser sans dépasser son VER.

De même, l'abaissement de la pression totale du mélange gazeux favorise la diffusion de la vapeur. Si l'air en est totalement éliminé, on passe même d'un processus de diffusion à un processus d'écoulement de la vapeur entre la solution et l'échantillon encore plus efficace [4]. Il est donc avantageux d'utiliser comme enceinte un dessiccateur à vide.

I.3.2.3. Dispositifs automatisés

L'humidité relative et la température peuvent être régulées automatiquement par une chambre climatique. Les mesures des teneurs en eau sont réalisées selon la norme ISO 12571 qui spécifie deux méthodes pour déterminer les propriétés de sorption hygroscopique des matériaux poreux de construction : la méthode aux dessiccateurs précédemment décrite et la méthode en chambre climatique.

Face à la lenteur de la méthode gravimétrique traditionnelle basée sur l'utilisation des solutions salines (ISO -12571, 2000), plusieurs dispositifs de mesure d'isothermes de sorption-désorption permettent de réduire le temps d'essai. Ces dispositifs peuvent être classés selon la technique de détermination de la teneur en eau, en deux catégories : méthodes gravimétriques et volumétriques.

➢ Méthodes gravimétrique : c'est des techniques basées sur des pesées de l'échantillon afin de déduire sa teneur en eau. Parmi ceux-ci nous pouvons cités, le DVS et le VSA.

- *Méthode dynamique DVS (Dynamic Vapor Sorption)*

Le DVS est principalement constitué d'une nacelle calibrée qui porte l'échantillon de quelques grammes. La nacelle est reliée à une balance de précision au 0,1 µg. L'humidité relative à l'intérieur de l'incubateur est générée en enrichissant de l'air sec avec de la vapeur d'eau jusqu'à atteindre l'humidité relative de consigne.

Ce dispositif permet de faire des mesures sur des échantillons de faible masse (quelques grammes). La masse adsorbée est alors encore plus faible et le temps nécessaire pour atteindre l'équilibre est plus court. De plus, l'air humide s'écoule autour de l'échantillon à une vitesse de 0,4 cm/s (convection forcée). Pour chaque palier d'humidité, une acquisition automatique de la masse des échantillons est effectuée jusqu'à atteindre l'équilibre qui est adopté par le critère $d_m/m_{sec} \leq 5 \times 10^{-6}$ (%) où le d_m est l'écart de masse correspondant à un écart de temps entre deux mesures successives [20] [94].

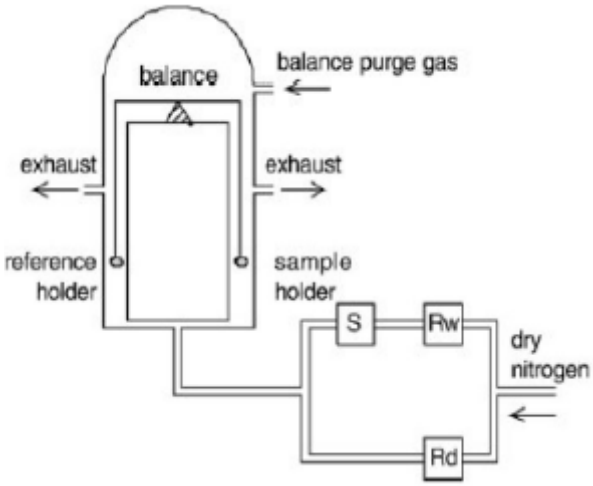


Figure I. 20. Schéma simplifié du DVS [95]

- *Méthode dynamique VSA (Vapor Sorption Analyzer)*

Le VSA est un dispositif de mesure des isothermes d'adsorption et de désorption de la vapeur d'eau similaire au DVS. Il a globalement le même principe que celui du DVS avec une balance moins sensible (±0,1 mg). Il a tout de même une spécificité qui est une taille plus importante (cylindre de 40 mm de diamètre et 6 mm d'épaisseur).

➢ Méthodes volumétriques

Ces méthodes permettent aussi de réduire considérablement le temps de mesure tout en travaillant avec des échantillons de petites dimensions combinés à un débit dynamique de vapeur d'eau. Le Belsorp Aqua3 est l'un des équipements basé sur la méthode volumétrique.

Le processus de mesure consiste à définir une quantité de gaz adsorbée par l'échantillon moyennant l'utilisation du nombre de moles du gaz. Le volume initial est rempli d'un nombre initial de moles donné par la loi des gaz parfaits. Après la détente du gaz dans la cellule contenant l'échantillon, ce dernier se met à absorber une partie du gaz jusqu'à un point d'équilibre donné. Le nombre de moles restant dans la phase gazeuse est ensuite calculé connaissant la basse pression dans le système [20].

D'autres dispositifs de mesure de la teneur en eau peuvent être cités comme la technique TDR (Time Domain Reflectometry), la gamma densimétrie et la RMN (Résonance Magnétique Nucléaire).

I.3.3. Mesure de la perméabilité à la vapeur

La perméabilité à la vapeur d'un matériau de construction, à une température donnée, est une notion utilisée, surtout dans le domaine du bâtiment, lorsque l'on cherche à apprécier les risques de condensation dans les parois. Il faut cependant signaler que parler dans ce cas de "perméabilité" constitue un abus de langage, puisque ce paramètre est lié à des processus diffusionnels.

La méthode la plus courante pour mesurer ce coefficient est la méthode dite de la "coupelle". Plusieurs protocoles normalisés existent : EN ISO 12572 (2001), (ASTM Annual book of standards E96, 2005) [96]. Elle s'obtient en imposant un gradient de pression partielle de vapeur ΔP_v constant et unidirectionnel, au travers d'un échantillon d'épaisseur *e*. Comme indiqué sur la Figure I. 21, ce gradient de pression est obtenu grâce à une solution saline saturée, qui permet de maintenir une humidité relative donnée et en gardant la température constante, nous obtenons une pression de vapeur partielle constante sur la base de l'échantillon. De même pour l'autre côté de l'échantillon, la température et l'humidité relative sont fixées et gardées constantes grâce à une chambre climatique (système le plus courant). La mesure demande plusieurs jours, voire plusieurs semaines. Pour que la mesure soit significative, l'écart entre les humidités relatives régnant sur chacune des faces de l'échantillon doit être modéré, afin que l'état de saturation soit relativement uniforme dans l'échantillon [4].

Si par exemple $p_1>p_2$; dans ce cas, le matériau est traversé, en régime permanent, par un flux massique de vapeur d'eau allant du milieu où règne une pression partielle p_1 au milieu de pression p_2. Pour déterminer ce flux de vapeur, il est nécessaire de peser régulièrement la coupelle. Le taux de variation de masse entre deux pesées successives des échantillons est donné par la relation suivante :

$$\Delta m = \frac{m_{i+1}-m_i}{t_{i+1}-t_i} \qquad \text{I. 28}$$

Où $\Delta m\,[kg/s]$ est le taux de variation de masse ; $m_i\,[kg]$ est la masse à l'instant t_i; $m_{i+1}\,[kg]$ est la masse à l'instant t_{i+1}. t_i et t_{i+1} sont les temps correspondants à deux pesées successives.

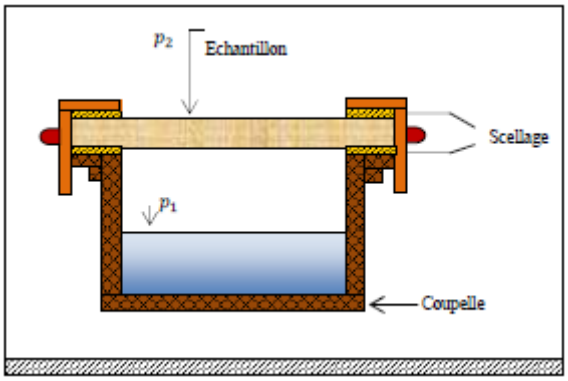


Figure I. 21. Schéma représentatif de la coupelle [20]

Lorsque la masse de l'ensemble de la coupelle varie linéairement, alors on est en régime permanent. L'accès au débit de vapeur d'eau G $[kg/s]$ est déterminé par la pente de la droite de l'évolution de la masse au cours du temps. Ensuite, la densité de flux de vapeur j_v est calculée comme suivant :

$$j_v = \frac{G}{A} \qquad \text{I. 29}$$

Où A $[m^2]$ est la surface de l'échantillon.

La perméabilité à la vapeur est définie par la loi de diffusion de Fick :

$$\delta_p = \frac{j_v}{\Delta p_v} \qquad \text{I. 30}$$

Où Δp_v $[Pa]$ est la différence de pression de vapeur.

La mesure de la perméabilité à la vapeur d'eau se heurte à plusieurs difficultés. En effet, la relation I.36 n'est valable que lorsque l'on considère un mélange parfait de l'air humide sur les deux faces de l'échantillon. Or, dans la réalité, il est difficile d'atteindre ce type de condition aux limites notamment sur la face intérieur de l'échantillon. Il est cependant nécessaire de corriger le flux de vapeur par des termes qui représentent les résistances à la vapeur d'eau [20]. Il s'agit notamment, de la résistance à l'intérieur du matériau noté Z_p, des résistances à la surface de l'échantillon Z_1 et Z_2 et la résistance de la couche d'air à l'intérieur de la coupelle Z_a. La résistance totale Z $[m^2.s.Pa/kg]$ est donnée par la relation suivante [20] :

$$Z = \frac{1}{\delta_p} \qquad \text{I. 31}$$

Les résistances à la diffusion surfacique se déterminent de la façon suivante en utilisant la loi de Lewis [20, 97] :

$$\delta_{p,sur} = \frac{1}{\beta_p} \qquad \text{I. 32}$$

De plus, la relation entre le coefficient de transfert d'humidité à la surface et le coefficient de convection h_c est donnée par la formule de Lewis :

$$\beta_p = \frac{h_c}{r_v T (\rho C_p)_{air}} \qquad \text{I. 33}$$

Où $h_c [W/m^2K]$ est le coefficient de transfert de chaleur par convection ; ρ $[kg/m^3]$ est la masse volumique ; C_p $[J/kg\ K]$ est la chaleur massique de l'air.

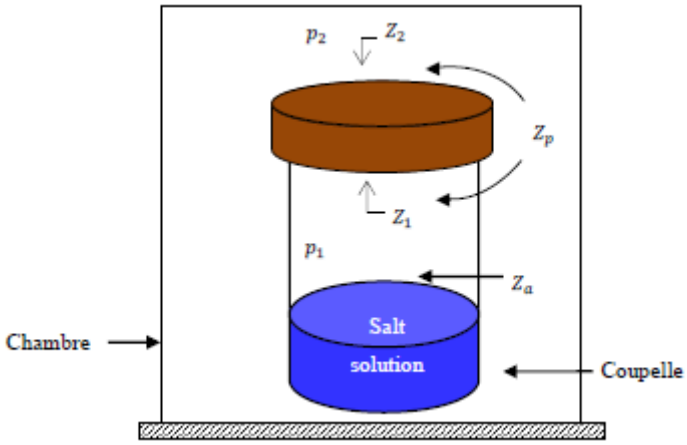


Figure I. 22. Représentation des résistances à la vapeur d'eau introduites dans la méthode de la coupelle [20]

La couche d'air entre la base de l'échantillon est la solution saline saturée contribue fortement dans l'évolution de la résistance à la diffusion Z_a, surtout dans le cas des matériaux hautement perméables [20]. Elle augmente de manière non linéaire avec l'augmentation de l'épaisseur de la couche d'air et la perméance du matériau.

$$Z_a = \frac{d}{\delta_a} \qquad \text{I. 34}$$

Où d $[m]$ est l'épaisseur de la couche d'air en question et $\delta_a [m^2/s]$ est la perméabilité à la vapeur dans l'air, donnée par la norme EN ISO 12572 :

$$\delta_a = \frac{2{,}306}{r_v\, T\, P}\ 10^{-5} \left(\frac{T}{273}\right)^{1{,}81} \qquad \text{I. 35}$$

La densité de flux de vapeur dans ce cas, après introduction du facteur de résistance à la vapeur μ, est donnée par :

$$j_v = -\frac{\delta_a}{\mu} \nabla u_v \qquad \text{I. 36}$$

Avec, μ représentant le rapport entre le coefficient de diffusion de la vapeur d'eau dans l'air et celui dans le matériau ; u_v $[kg/m^3]$ est la teneur en vapeur. La perméabilité à la vapeur corrigée s'exprime alors comme suit [20] :

$$\delta_{p\ corr} = \frac{\Delta p_v}{d/(Z-Z_1+Z_2+Z_a)} \qquad \text{I. 37}$$

D'après Duforestel [37], la non prise en compte de ces corrections peut engendrer des erreurs de mesure non négligeables. Ces erreurs concernent donc plus particulièrement les matériaux très perméables à la vapeur que sont les isolants thermiques, notamment les isolants fibreux de faible densité. Et c'est aussi pour ces matériaux de faible conductivité thermique que l'impact de cette erreur a le plus d'effet en matière énergétique. A cet effet, Duforestel [37] suggère d'adopter les précautions suivantes afin de limiter ces erreurs systématiques :

- Mesurer l'épaisseur d'air entre l'échantillon et la coupelle pour en évaluer la résistance à la diffusion et pouvoir ainsi la soustraire à la résistance totale ;
- Pratiquer la mesure dans une chambre climatique fortement ventilée (en pratique, des vitesses d'air supérieures à 7 m/s) de façon à limiter la résistance de surface.

Dans ces travaux de recherche, Duforestel [37] insiste que lors d'un essai de la coupelle, la pression totale du gaz ne peut pas être uniforme. Alors le flux de vapeur isotherme ne peut plus s'exprimer sous la seule influence d'un gradient de pression de vapeur, mais sous la double influence d'un gradient de pression de vapeur et d'un gradient de pression totale. De plus, Il résume dans le Tableau I. 11 les erreurs relatives qui peuvent être observées si l'on ne prend pas en compte la part advective du flux de vapeur et la non uniformité de la pression totale.

Tableau I. 11. Erreur relative sur la mesure de la perméabilité à la vapeur sans prise en compte de la part advective du flux de vapeur et la non uniformité de la pression totale [37]

Matériau	Erreur relative sur la perméabilité à l vapeur (%)
Laine de verre	1,01
Polystyrène expansé	-86,71
Bois	-0,65
Béton cellulaire	1,00
Plâtre	-1,21
Béton	-5,32

Il existe aussi quelques techniques permettant de remonter au coefficient de diffusion. Nous retrouvons l'approche dite classique. Dans ce cas l'équation de diffusion ou encore de Fick est écrite dans le cas unidirectionnel qui considère que les échantillons testés sont de longueur très grande devant l'épaisseur (voir Figure I. 23).

$$\frac{\partial w}{\partial t} = D_m \frac{\partial^2 w}{\partial x^2} \qquad \text{I. 38}$$

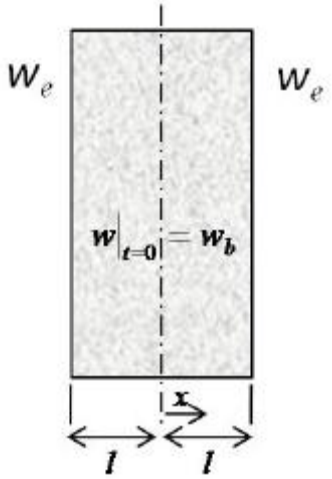


Figure I. 23. Schéma du matériau modélisé [94]

Le coefficient de diffusion dans le cas d'une approche classique peut être exprimé comme suit [94] :

$$D_m = \frac{\pi}{4} l^2 \left(\frac{dW^+}{d\sqrt{t}}\right)^2 \qquad \text{I. 39}$$

Avec W^+ est la teneur en eau adimensionnelle globale qui s'exprime comme suit :

$$W^+ = \frac{8}{\pi^2} \sum_{i=0}^{\infty} \frac{1}{(2i+1)^2} exp\left(-D_m \left[(2i+1)\frac{\pi}{2l}\right]^2 t\right) \qquad \text{I. 40}$$

A partir du suivi de la quantité d'eau échangée avec l'ambiance dans le temps pour un pallier d'humidité relative donnée et en exploitant la partie linéaire de la courbe $W = f(\sqrt{t})$, le coefficient de diffusion hydrique peut être déterminé pour ce palier.

Une deuxième approche, développée au LaSIE par Trabelsi [94], est présentée ci dessous :

Cette technique à l'avantage de pouvoir déterminer à la fois et la teneur en eau du matériau en sorption et le coefficient de diffusion.

La teneur en eau adimensionnelle W^+ peut être exprimée en fonction de deux paramètres : (i) le coefficient de diffusion, D_m, déduit expérimentalement des essais de sorption-désorption et (ii) le coefficient de transfert par convection massique d'humidité, β, obtenu à l'aide de corrélation issues de la littérature [94].

$$W^+ = B \exp\left(-\frac{t}{\tau}\right) \qquad \text{I. 41}$$

La teneur en eau peut être exprimée par les équations équivalentes suivantes :

$$W^+ = \frac{4sin^2\mu_1}{2\mu_1^2 + \mu_1 \sin(2\mu_1)} \exp\left(-\mu_1^2 \frac{D_m t}{l^2}\right) \qquad \text{I. 42}$$

Le calcul du coefficient de diffusion hydrique est réalisé en se basant sur les résultats expérimentaux obtenus durant les essais de sorption. En effet, grâce au suivi temporel du poids des échantillons, effectué dans l'enceinte climatique et pour chaque palier d'humidité relative, les grandeurs B et τ, peuvent être calculées en utilisant les deux expressions suivantes :

$$B = \frac{4sin^2\mu_1}{2\mu_1^2+\mu_1 \sin(2\mu_1)} \qquad \text{I. 43}$$

$$\tau = \left(\frac{l^2}{\mu_1^2 D_m}\right) \qquad \text{I. 44}$$

I.3.4. Mesure de la conductivité thermique

Durant le siècle précédent, de nouvelles techniques et méthodes de mesure de la conductivité thermique ont vu le jour. Ces méthodes peuvent être classées en plusieurs catégories selon trois principales critères [98] [17] (Figure I. 24) :

Selon le type de régime thermique

Les mesures relatives aux transferts d'énergie font généralement appel à deux sortes de régimes communément appelés "régime permanent" (ou établi, stationnaire…) et "régime transitoire" (ou non stationnaire : évolution du champ de température avec le temps).

Selon le type de mesure

Dans ce cas, la mesure est dite soit "relative" lorsqu'on obtient le résultat souhaité par comparaison avec un matériau étalon où les valeurs sont connues, soit "absolue" dans le cas contraire. Dans la plupart des méthodes stationnaires ou transitoires, la mesure est absolue.

Selon la géométrie de l'appareillage et des éprouvettes

Elle peut être soit "plane" si les éprouvettes sont carrées ou circulaire, soit à symétrie "cylindrique". Ou bien selon la direction du flux qui peut être "axial" ou "radial".

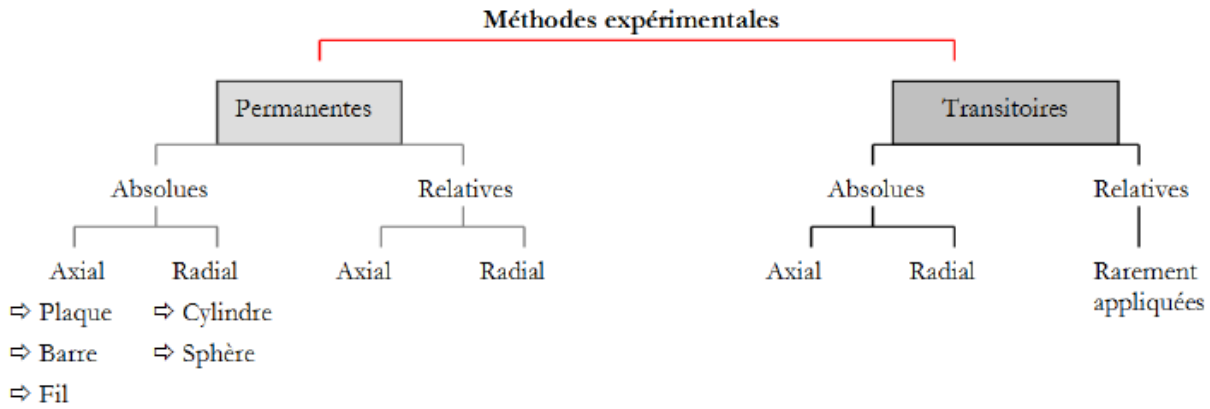


Figure I. 24. Vue d'ensemble sur les méthodes expérimentales de mesure de la conductivité thermique [98] [17]

Ces méthodes peuvent être aussi classées en considérant celles-ci normalisées ou non-normalisées, avec contact ou sans contact.

I.3.4.1. Dispositifs de mesure en régime permanent

Dans le cas d'un régime permanent, le milieu est soumis à un flux stationnaire (indépendant du temps) et en équilibre thermique (1ère loi de la thermodynamique). Le principe de mesure en ce régime s'appuie donc sur la loi de Fourier et sur les conditions aux limites, il s'appuie sur l'exploitation des mesures de la température en divers point du matériau considéré.

A. Dispositifs pour des mesures relatives avec flux axial

Les dispositifs reposent sur le principe de comparaison. Deux éprouvettes cylindriques (éprouvette de référence et une autre à caractériser) sont placées entre deux sources de chaleur. La conductivité thermique, λ_{ref}, de l'éprouvette étalon est connue, tandis que celle de l'éprouvette λ est à calculer suivant la formule I.45. Les deux éprouvettes sont parcourues par un flux axial identique en faisant abstraction des pertes latérales.

$$\lambda = \lambda_{ref} \frac{(T_1 - T_2)l}{(T_2 - T_3)l_{ref}} \qquad \text{I. 45}$$

Avec, l et l_{ref} sont les longueurs des éprouvettes ; les températures T_1, T_2 et T_3 correspondent aux interfaces entre sources-éprouvette, éprouvette-éprouvette et puits-éprouvette (voir Figure I. 25).

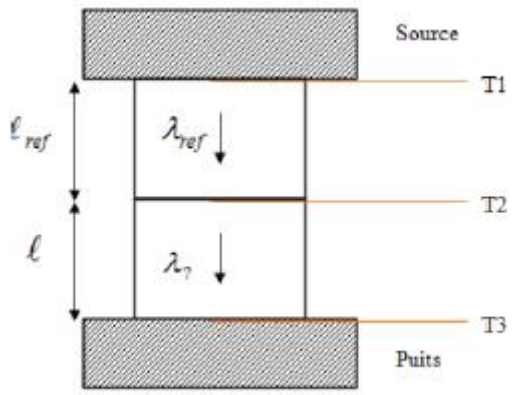


Figure I. 25. Principe de la méthode de comparaison [17, 98]

Plusieurs difficultés expérimentales peuvent être relevées, notamment :

- La nécessité de garder la température constante sans fluctuation pendant toute la durée de l'essai ;
- L'existence des pertes latérales dues à la géométrie de l'échantillon surtout pour les isolants.

B. Dispositifs pour des mesures absolues avec flux axial

La mesure absolue avec flux axial consiste à mesurer un flux de chaleur traversant l'échantillon. L'effort de mise en œuvre est toujours complexe dans ce cas. Un effort particulier est à développer afin d'éviter le flux parasite et les pertes latérales. Pour cela la solution la plus attrayante est le principe de la plaque chaude gardée.

- *Méthode de la plaque chaude gardée (NF EN 12667, 2001)*

Elle est majoritairement utilisée pour les matériaux isolants. Le principe de la méthode consiste à créer un transfert de chaleur unidirectionnel en mettant une plaque infinie entre deux plans parallèles et isothermes avec une densité de flux thermique uniforme, unidirectionnelle et constante en chaque point de la plaque.

Dans ce cas, les mesures sont faites en zone centrale de l'échantillon pour éviter ainsi les perturbations aux bords de celui-ci.

Il existe aussi plusieurs types de méthodes de plaques chaudes gardées, notamment avec ou sans anneaux de garde.

La méthode est limitée par :

- Le maintien d'un flux traversant l'éprouvette, unidirectionnel, uniforme et constant ;
- Il faut atteindre le régime permanent ce qui peut être très long (jusqu'à 24 heures) ;
- Avoir un état de surface respectant les exigences de la méthode.

- *Méthode de la boite chaude gardée (NF EN 8990)*

Le premier dispositif de cette méthode a été conçu à la fin des années trente pour tester différentes configurations de murs [99]. L'échantillon (3) de matériau à tester est placé entre, d'une part, une enceinte chaude (2) dotée d'une résistance chauffante entourée d'un anneau de garde thermique (1) et d'autre part, d'une enceinte froide (4) disposant d'un groupe froid thermodynamique, le tout mis dans un anneau de garde en vue de mesurer la résistance globale de l'échantillon (Figure I. 26).
Les exigences de la norme adoptée ici sur l'appareillage mis en œuvre et sur les mesures de cette méthode permettent de limiter les erreurs sur les valeurs finales calculées après l'essai. Cet équipement est conçu pour maîtriser les pertes thermiques, et en particulier les risques de ponts thermiques en ayant une surface effective de mesure d'environs 1,7 x 1,7 m.

Les limites de cette méthode sont liées à la conception, l'étalonnage et au fonctionnement de l'équipement.

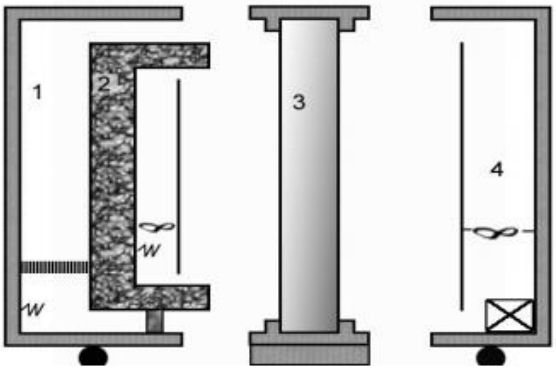


Figure I. 26. Schéma de principe du dispositif de la boite chaude gardée

I.3.4.2. Dispositifs de mesure en régime transitoire

A. Méthode du fil chaud

Cette méthode permet de mesurer la conductivité thermique en utilisant une aiguille chauffante. C'est une méthode de caractérisation très connue et utilisée dans le monde industriel grâce à sa rapidité de mise en œuvre et son coût peu élevé. Elle s'applique aux mauvais conducteurs (λ<3 W.m^{-1}.K^{-1}) [100, 98].

Le principe de la méthode consiste à mettre un fil métallique très fin parcouru par un courant électrique entre deux blocs du matériau à étudier. Un échelon de flux de chaleur constant ($\varphi = 0$ si $t < t_0$ et $\varphi = \varphi_0$ si $t > t_0$) de source cylindrique est alors appliqué au fil chauffant et on relève l'évolution de la température $T_s(t)$ de ce fil (Figure I. 27). Cela permet d'en déduire la conductivité thermique λ du matériau à caractériser [77].

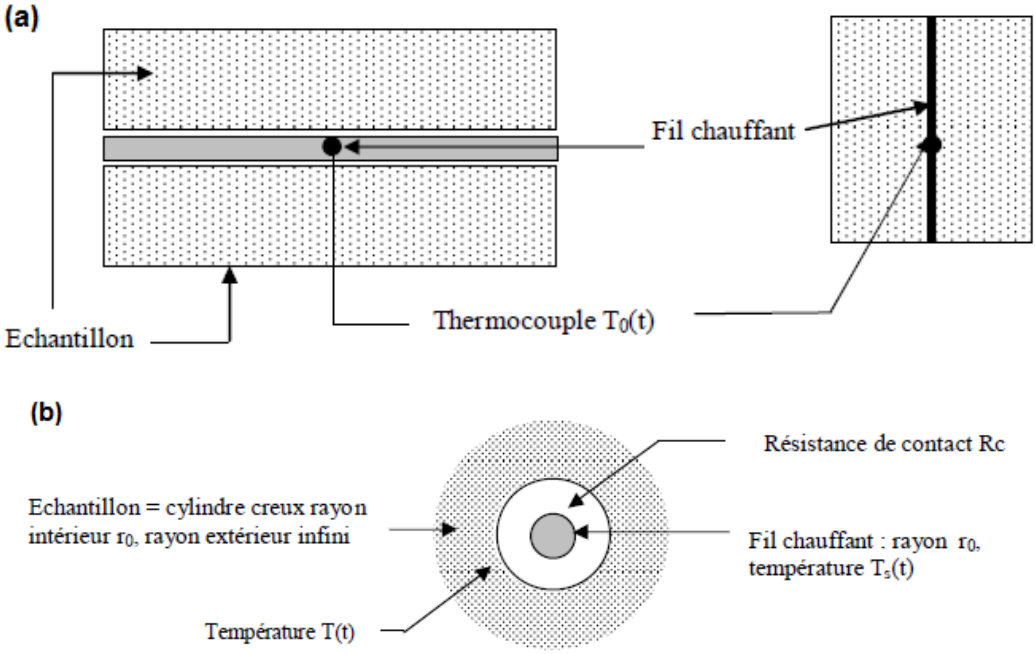


Figure I. 27. (a) Schéma de montage de la méthode fil chaud ;
(b) Schéma de transfert autour du fil chaud [101]

Dans ce cas, la température est déterminée par l'intermédiaire d'une mesure de résistivité électrique du fil afin que le champ de température ne soit pas perturbé par des fils thermoélectriques [98].

L'équation de chaleur en coordonnées cylindriques dans l'échantillon s'écrit :

$$\frac{\partial T}{\partial t} = D\left(\frac{\partial^2 T}{\partial r^2} + \frac{1}{r}\frac{\partial T}{\partial r}\right) \qquad \text{I. 46}$$

En 1956, Jaeger [102] propose une relation qui prend en compte la variation de la température dans un milieu infini dans toutes les directions de l'espace [17] :

$$\mathrm{T} = \frac{\mathrm{Q}}{4\pi\lambda}\ln\frac{4\mathrm{tk}}{\mathrm{r}^2\mathrm{C}} + \mathrm{cst} \qquad \text{I. 47}$$

Où : *Q [W/m]* est la quantité de chaleur par unité de longueur ;

λ [W/m.k] est la conductivité thermique de l'échantillon ;

k [m²/s] est la diffusivité thermique ;

r [m] est le rayon de l'aiguille ;

C est la constante d'Euler (C=0,57721…) ;

t [s] est le temps.

La conductivité thermique est donc déterminée d'après la pente de la droite d'ajustement de θ en fonction de *Ln(t).*

Cette méthode peut conduire à des résultats imprécis dans un certain nombre de cas :

- Mesures sur des matériaux très légers car dans ce cas l'influence de la masse du fil ne devient négligeable qu'au bout de plusieurs dizaines de secondes. L'échantillon devra être de dimensions suffisantes pour que le temps pendant lequel le milieu reste semi-infini soit supérieur au temps d'influence de la masse de la sonde ;
- Mesure sur des matériaux très diffusifs : l'hypothèse du milieu semi-infini n'est valable que pendant un temps très court qui peut être insuffisant pour une bonne exploitation des mesures, donc la méthode est valable pour des temps très court. Elle n'est pas utilisable pour les matériaux à diffusivité élevée tels que les métaux ;
- La conductivité du fil est négligée dans cette méthode, alors cette hypothèse est valables pour les matériaux beaucoup moins conducteurs que le fil chaud.

B. Méthode flash

La méthode flash, ou dite impulsionnelle, permet d'estimer la diffusivité thermique des solides. Elle a été proposée en 1961 par Parker *et al.* [103]. Le principe de la méthode consiste à envoyer, en face avant de l'échantillon, un flux lumineux de forte puissance pendant un temps cours et d'enregistrer à l'aide d'un thermocouple l'élévation de la température en face arrière de l'échantillon après que la face avant ait reçue le flash (Figure I. 28). La diffusivité thermique est déduite de l'analyse du thermogramme expérimental.

Plusieurs auteurs ont proposé des modèles d'estimation de la diffusivité thermique en exploitant les résultats de cette méthode. Lors de la modélisation, des hypothèses sont généralement adoptées, parmi celles-ci :

- Uniformité du flux radiatif absorbé sur toute la surface de l'échantillon ;
- Température uniforme et égale à la température ambiante à t = 0 ;
- Coefficient d'échange convectif identique sur toutes les faces.

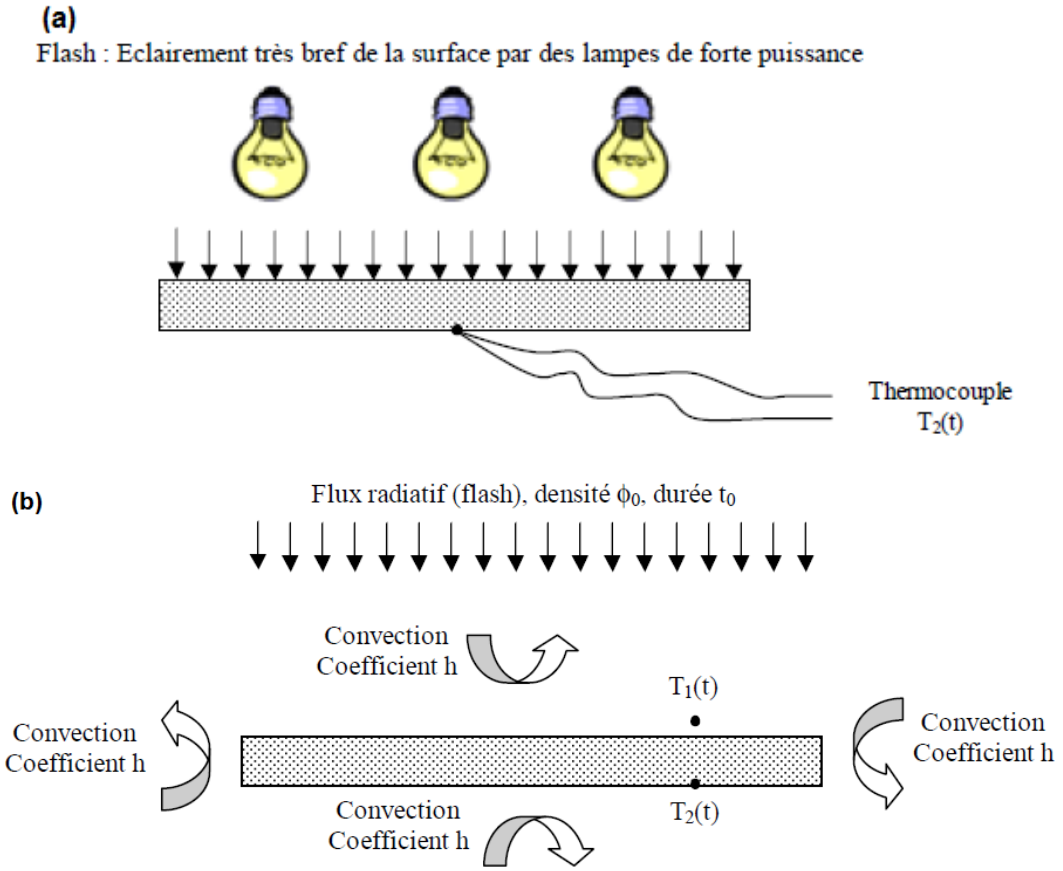


Figure I. 28. (a) Schéma du montage de la méthode flash ;
(b) Schématisation des flux de chaleur dans la méthode flash [101]

De plus, les pertes latérales ne sont pas généralement prises en compte dans les calculs. Jannot [101] a mentionné qu'en choisissant un échantillon de largeur au moins égale à 6 fois son épaisseur on pourrait négliger l'influence des pertes convectives latérales. Il a de plus été montré que ces pertes latérales sont proportionnelles aux pertes convectives sur la face avant. Cette méthode n'est pas utilisable pour les matériaux très légers (difficile d'y mesurer la température de surface) et les milieux poreux (le flash envoyé sur la face avant n'est pas absorbé intégralement au niveau de la surface, une partie pénètre dans la masse de l'échantillon à travers la porosité et fausse la mesure).

C. Méthode Hot Disk

Elle s'intéresse à la mesure simultanée de la conductivité thermique et de la diffusivité thermique. C'est un dispositif expérimental qui utilise une sonde de forme cylindrique constituée d'une résistance de platine sous forme d'un ruban enroulé en spirale sur un support en matière plastique. Cette sonde est alors placée en sandwich entre deux échantillons du matériau à caractériser. Les dimensions du matériau doivent être suffisantes pour pouvoir faire l'hypothèse du milieu semi-infini [101]. La résistance de platine est utilisée à la fois pour produire un flux de chaleur et pour mesurer la température moyenne du disque [101].

Cette méthode repose sur un modèle qui considère la sonde sous forme d'anneaux sources concentriques (avec un rayon noté r_s). La profondeur de pénétration du flux d_{pen} joue un rôle déterminant pour l'estimation de propriétés thermophysiques du milieu, et définie par l'équation suivante [100] :

$$d_{pen} = c_1\sqrt{t_{ex}\lambda} \qquad \text{I. 48}$$

Où c_1 est une constante et t_{ex} est la durée de l'excitation thermique.

Le milieu est supposé cylindrique de rayon r et semi-infini par rapport à la sonde. La conductivité thermique de l'échantillon est obtenue par la relation I.48 durant la partie initiale du régime transitoire, et avant que le flux de chaleur n'atteigne les bords de l'échantillon [100].

$$T(t) = \frac{\psi V}{\pi^{\frac{3}{2}} r_s \lambda} f(\tau) \qquad \text{I. 49}$$

Où $\tau = \sqrt{\frac{a\,t}{r_s^2}}$ est une grandeur sans dimension fonction du temps caractéristique de l'élément Hot Disk. La fonction $f(\tau)$ décrit la situation quand l'échantillon a une prolongation limitée dans la direction perpendiculaire à la sonde [104, 105].

L'utilisation de cette méthode est basée sur la connaissance des caractéristiques thermophysiques du milieu. En effet, la connaissance grossière du matériau (géométrie, plage de conductivité thermique…) permet d'estimer la profondeur de pénétration et ainsi choisir le type de sonde et la puissance de chauffe adéquats. Cette méthode est très fiable pour les estimations de la conductivité thermique.

Nous pouvons aussi mentionner d'autres méthodes de mesures de la conductivité thermique telles que la méthode du film chauffant, du fil parallèle et méthode à deux fluxmètres…etc.

I.3.5. Mesure de la chaleur spécifique

Il existe différentes méthodes de mesure de la chaleur spécifique et le choix de la méthode va dépendre de la nature des produits, de la gamme de température de mesure envisagée et de la précision recherchée. La chaleur spécifique peut être déterminée à pression constante ou à volume constant.

Ces méthodes de mesure peuvent être classées en deux catégories : méthodes dynamiques et statiques.

I.3.5.1. Méthodes de mesures dynamiques

Ces méthodes sont basées sur la variation de la température. Parmi ces méthodes, on retrouve l'analyse calorimétrique différentielle (DSC) qui est bien adaptée pour les mesures de capacités thermiques dans les gammes de température peu étendues. Bien que la technique soit délicate à mettre en œuvre, il est possible d'obtenir des résultats précis dans un laps de temps court. Il existe deux types de DSC, l'une à flux de chaleur et l'autre à compensation de puissance.

- *DSC à flux de chaleur*

Deux cellules sont contenues dans un même four, l'une contient l'échantillon et l'autre la référence (Figure I. 29). L'échantillon et la référence sont mis dans deux capsules qui doivent être identiques en matériaux, volumes et masses.

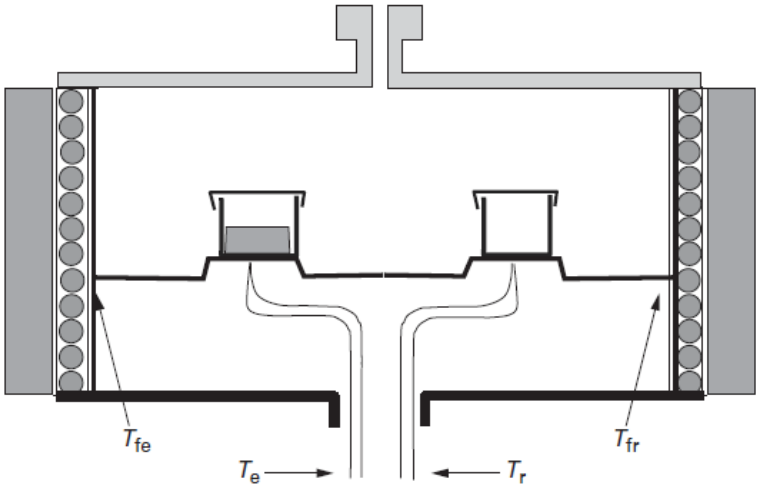


Figure I. 29. Schéma de montage de la DSC à flux de chaleur [106]

Les échanges thermiques sont modélisés par les relations suivantes [106] :

$$\varphi_e = \frac{T_{fe} - T_e}{R_e} \qquad \text{I. 50}$$

$$\varphi_r = \frac{T_{fr} - T_r}{R_r} \qquad \text{I. 51}$$

$$\Delta\varphi = \varphi_e - \varphi_r \text{ (en J.s}^{-1}\text{ ou watt)} \qquad \text{I. 52}$$

Avec R_e et R_r représentent respectivement les résistances thermiques de l'échantillon et de la référence ; T_e, T_{fe}, T_r, et T_{fr} sont les températures respectives échantillon, paroi four côté échantillon, référence, paroi four côté référence et $\Delta\varphi$ et le flux de chaleur qui sera enregistré en fonction du temps à température constante ou à température variable.

D'après Grenet et Legendre [107], de nombreux facteurs ne sont pas pris en compte dans cette modélisation, telles que :

- Les capacités thermiques, les masses et résistances thermiques des capsules et de leurs supports ;
- Les résistances thermiques des capteurs ;
- La résistance thermique échantillon/référence.

De nombreux efforts sont fournis actuellement par les constructeurs pour pallier ces difficultés.

- *DSC à compensation de puissance*

Le système est composé de deux microfours rigoureusement identiques, l'un contenant le produit à mesurer et l'autre la référence. Les microfours sont placés dans un bloc maintenu

à température constante.

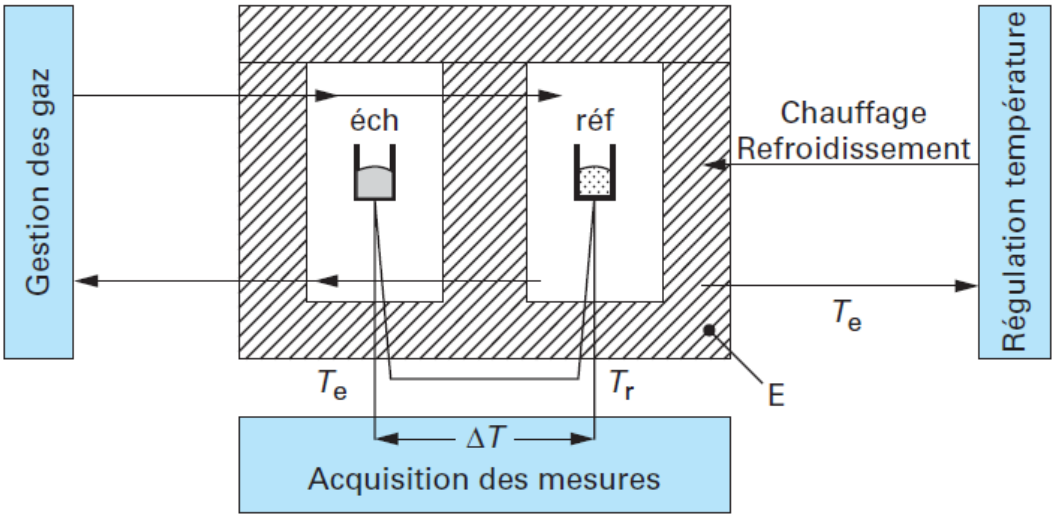


Figure I. 30. Schéma de montage de la DSC à compensation de puissance [107]

Le principe de cette méthode consiste à imposer la même température dans les deux fours et de mesurer la différence électrique fournie entre les deux fours en fonction du temps pour maintenir la même température dans les deux fours.

Dans les deux types de DSC, une puissance électrique en fonction du temps est enregistrée. Il existe deux types de programmes de mesures de la chaleur spécifique : l'un en continu et l'autre par pas [106].

Mesure en continu :

$$C_p = \left(\frac{1}{m}\right)\left(\frac{1}{\beta}\right)\varphi \qquad \text{I. 53}$$

Avec $\beta = \frac{\partial Q}{\partial t}$ est la vitesse de chauffe et m la masse de l'échantillon analysé.

Mesure par pas :

Cette méthode consiste à parcourir le domaine de température compris entre T_1 et T_2 par des incréments de température de quelques degrés (10 ou 20°C maximum) en réalisant une succession de paliers et de montées en température. C'est une méthode plus consommatrice de temps que la méthode continue.

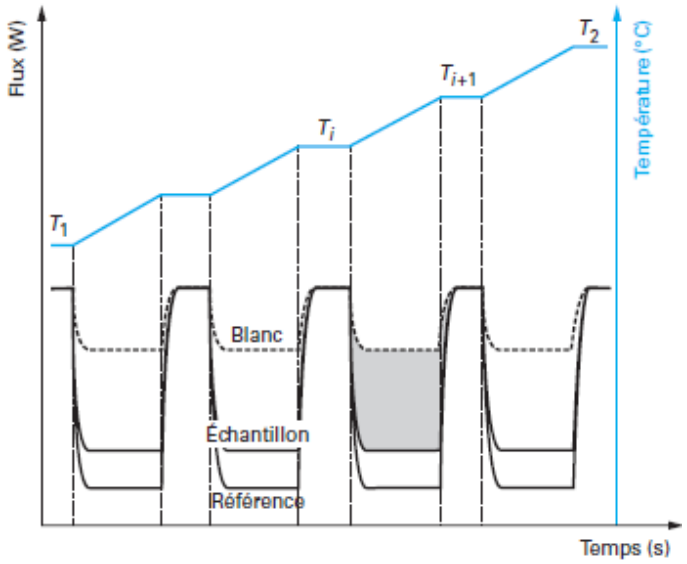


Figure I. 31. Thermogramme obtenu par la méthode par pallier [106]

Elle nécessite trois essais successifs [106]:

1. Avec deux cellules vides sans échantillons ;
2. Avec un matériau de référence ;
3. Avec l'échantillon à caractériser.

L'aire sous la courbe (Figure I. 31) correspond à l'énergie adsorbée par l'échantillon pour passer de la température T_i à la température T_{i+1}. La chaleur spécifique moyenne ($\overline{C_p}$) à la température moyenne $\overline{T} = (T_i + T_{i+1}/2)$ est obtenue comme suit :

$$\overline{C_p}(\overline{T}) = \frac{\int_{T_i}^{T_{i+1}} \varphi_e dT - \int_{T_i}^{T_{i+1}} \varphi_b dT}{\int_{T_i}^{T_{i+1}} \varphi_r dT - \int_{T_i}^{T_{i+1}} \varphi_b dT} \frac{m_r}{m_e} c_{pr}(\overline{T}) \qquad \text{I. 54}$$

- *Microcalorimètre à flux*

Il est composé de deux cellules identiques placées dans un bloc calorimétrique. Ces cellules sont entourées de capteurs composés d'un ensemble de thermocouples soudés entre eux.

Le principe du microcalorimètre à flux consiste à mesurer en fonction du temps la différence de flux thermique échangé entre une cellule et le milieu extérieur.

I.3.5.2. Méthodes de mesure statique

- *Microcalorimètre Calvet HT*

Cet appareil est constitué essentiellement de deux cellules de mesure situées symétriquement dans un bloc calorimétrique, d'un four et d'un dispositif d'introduction des éprouvettes.

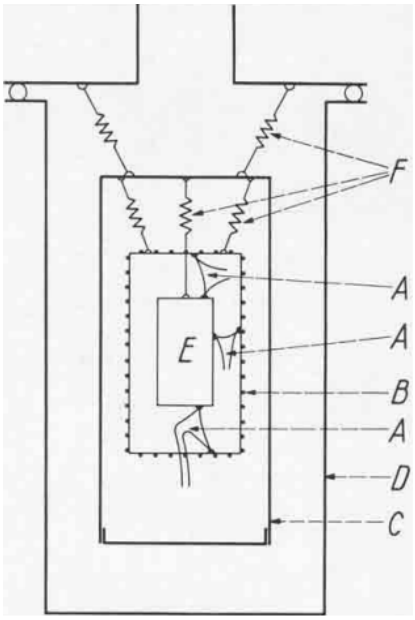
Deux capteurs fluxmétriques, composés de thermocouple montés en série entourent les cellules de mesure et les relient thermiquement au bloc calorimétrique. Un dispositif de manipulation permet d'introduire les éprouvettes dans les cellules sous atmosphère neutre.

Lorsqu'une éprouvette, située dans l'une des cellules de mesure, se transforme (fusion), s'échauffe ou se refroidit, elle échange de la chaleur (absorbée ou dégagée) avec le bloc calorimétrique qui l'entoure via les capteurs fluxmétriques. Le signal électrique délivré par ces capteurs est proportionnel aux flux thermiques échangés par conduction entre les cellules et le bloc calorimétrique. L'intégrale de ce signal en fonction du temps est égale, à la sensibilité du fluxmètre près, à l'énergie dégagée ou absorbée dans la cellule de mesure.

Cet appareil présente une très grande inertie et les mesures en continu ou pas à pas sont pratiquement inapplicables car il faut utiliser des vitesses très lentes, de l'ordre de 0,02 °C. min^{-1} pour être à l'équilibre.

I.3.5.3. Méthodes adiabatiques

Les mesures par calorimétrie adiabatique se font sans échange de chaleur avec le milieu extérieur. L'idée essentielle de cette technique est de rendre aussi faible que possible le couplage entre l'ensemble calorimétrique et le milieu extérieur afin de faciliter la détermination de ΔT [108]. D'après Legendre [106] ; cette technique est facilement utilisable pour une gamme de température allant de l'ambiante à 150 °C, au-delà de cette limite les difficultés sont importantes. Dans ce cas, l'écran thermique n'est plus isotherme ; sa température est asservie de telle sorte qu'elle soit maintenue identique à celle de l'ensemble calorimétrique (Figure I. 32).



A couples thermoélectriques d'asservissemnt des écrans
B écran chauffant asservi
C écran non asservi
D enceinte externe
E cellule de mesure
F suspension des différents éléments

Figure I. 32. Schéma de montage d'un calorimètre adiabatique [108]

A pression constante, un apport d'énergie électrique W, dans une résistance va permettre d'augmenter la température d'une éprouvette de masse m de T_1 à T_2, soit de ΔT, ce qui se traduit par les égalités suivantes :

$$C_p = \frac{\Delta H}{\Delta T} = \frac{W}{\Delta T} \qquad \text{I. 55}$$

La méthode adiabatique nécessite trois types de mesures : des mesures de température, des mesures d'énergie électrique ainsi que la mesure du temps [106].

Les difficultés de cette méthode est qu'un calorimètre n'est jamais parfaitement adiabatique, donc il existe toujours des fuites thermiques. De plus, l'équilibre thermique à l'intérieur de la cellule de mesure est toujours délicat à obtenir.

I.4. Approches et modèles de prédiction du comportement hygrothermique des matériaux poreux de construction

Dans cette partie du chapitre, nous passerons en revue la partie modélisation des transferts couplés de chaleur et d'humidité. Tout d'abord, nous décrirons les principaux modèles macroscopiques de transferts existants dans la littérature et qui considèrent leur paramètres d'entrée constants et qui abordent les phénomènes de transferts d'une façon déterministe. Par la suite, nous décrirons quelques travaux de la littérature qui prennent en compte la variabilité des propriétés, des conditions environnementales (conditions aux limites) en adoptant des approches probabilistes.

I.4.1. Approche déterministe : modèles macroscopiques de transfert couplé de chaleur et d'humidité

Il existe dans la littérature une panoplie de modèles qui décrivent les transferts hygrothermiques dans les matériaux poreux de construction en considérant une multitude de variables et de paramètres. Ces modèles se différencient principalement dans le choix des moteurs de transfert considérés ainsi que sur les hypothèses adoptées qui sont parfois sujettes à de nombreuses critiques.

I.4.1.1. Modèle de Luikov (1964)

Luikov [109] a été l'un des premiers chercheurs à proposer un modèle prenant en compte le couplage thermo-hydrique dans les matériaux poreux. Il considère que la diffusion de la vapeur d'eau dépend d'une part, du gradient de teneur en eau massique (u) et de la température (T) et d'autre part, du gradient de pression totale (P) à l'intérieur du matériau poreux [94]. Il propose toutefois de séparer les flux de vapeur et liquide.

Flux de vapeur :

$$j_v = -a_{mv}\gamma_0(\nabla u + \delta_v \nabla T + \lambda_{pv}\nabla P) \qquad \text{I. 56}$$

Avec :

a_{mv} : Coefficient de diffusion de la vapeur d'eau au sein du matériau poreux ;

γ_0 : Poids volumique du matériau à l'état sec ;

δ_v : Coefficient de gradient thermique pour le transfert de la vapeur d'eau ;

λ_{pv} : Conductivité de transfert molaire de vapeur.

Flux liquide :

$$j_l = -a_{ml}\gamma_0(\nabla u + \delta_l \nabla T + \lambda_{pl}\nabla P) \qquad \text{I. 57}$$

Avec :

a_{ml}: Coefficient de diffusion de l'eau en phase liquide ;

δ_l : Coefficient de gradient thermique pour le transfert de l'eau liquide ;

λ_{pl} : Perméabilité à l'eau.

Enfin, l'équation de conservation de la masse s'écrit comme suit :

$$\frac{\partial u}{\partial t} = -a_m(\nabla^2 u + \delta \nabla^2 T + \delta_p \nabla^2 P) \qquad \text{I. 58}$$

Avec :

a_m : Coefficient de diffusion d'humidité ;

δ : Coefficient de gradient thermique ;

δ_p : Perméabilité apparente à l'air.

De plus, dans le bilan énergétique, Luikov a négligé le transfert de chaleur convectif et radiatif. Les flux de chaleur considérés sont uniquement dus à la conduction et au changement de phase.

$$c\gamma_0 \frac{\partial T}{\partial t} = div(\lambda \nabla T) + L_{vl} div(j_v) \qquad \text{I. 59}$$

Luikov a proposé l'équation I.59 qui représente la variation de la pression totale en faisant un bilan de masse uniquement sur la phase vapeur et en ne considérant que la différentielle en pression.

$$c_a \gamma_0 \frac{\partial P}{\partial t} = div(k \nabla P) + I_v \qquad \text{I. 60}$$

Avec :

c_a: Capacité d'humidité du corps capillaire poreux ;

k : Perméabilité à la vapeur ;

I_v: Terme source de la vapeur d'eau.

En considérant la teneur en eau massique comme moteur de transfert, qui est un paramètre non continu dans les transferts au sein d'une paroi multicouche. Pour pallier ce problème, Luikov a introduit la notion de potentiel de transfert de masse qui aurait la particularité d'être continu tout au long de l'ensemble et de varier dans le même sens que la teneur en eau massique.

$$\begin{cases} \frac{\partial T}{\partial t} = a_q \nabla^2 T + \varepsilon_{vl} L_{vl} \frac{c_m}{c_q} \frac{\partial \theta}{\partial t} + \frac{c_{pq} k}{c_q \gamma_0} \nabla P \nabla T \\ \frac{\partial \theta}{\partial t} = a_m \left(\nabla^2 \theta + \acute{\delta} \nabla^2 T + \acute{\acute{\delta}} \nabla^2 P \right) \\ \frac{\partial P}{\partial t} = a_p (\nabla^2 P) + \varepsilon_{vl} \frac{c_m}{c_a} \frac{\partial \theta}{\partial t} \end{cases} \qquad \text{I. 61}$$

Avec :

a_q : Diffusivité thermique ;

$a_m = a_{mv} + a_{ml}$: Coefficient de diffusion d'humidité ;

a_p : Coefficient de diffusion du mélange vapeur d'eau-gaz ;

$\acute{\delta}$: Coefficient de gradient thermique ;

$\acute{\acute{\delta}} = \lambda_p / \lambda_m$: Rapport de transfert de masse ;

ε_{vl} : Facteur de conversion de phase ;

$c_{q;m;pq}$: Respectivement la capacité thermique massique, capacité d'humidité et capacité thermique massique du mélange vapeur d'eau-gaz ;

L_{vl} est la chaleur latente d'évaporation.

Ce modèle a inspiré beaucoup de chercheur dans leurs travaux de recherche [20, 21, 94, 110]. La difficulté majeure de ce modèle réside dans la détermination des paramètres du modèle en séparant le transfert de la phase liquide et vapeur et aussi dans la détermination du coefficient de gradient thermique. Un banc expérimental a été proposé à cet effet dans les travaux de recherche de Trabelsi [94] pour l'évaluation de ce coefficient.

I.4.1.2. Modèle de Philip & De Vries (1957)

Philip & De Vries [111] ont décrit le flux diffusif comme étant fonction de la teneur en eau volumique et de la température. Ils ont considéré le transport de vapeur comme un processus diffusionnel régi par la loi de Fick [20].

Flux de vapeur :

$$\frac{j_v}{\rho_l} = -D_{\theta vap}\nabla\theta - D_{Tvap}\nabla T \qquad \text{I. 62}$$

Avec :

$D_{\theta vap}$: Coefficient de diffusion isotherme de la vapeur d'eau ;

D_{Tvap} : Coefficient de diffusion non-isotherme de la vapeur d'eau ;

Flux liquide :

Le flux en phase liquide qui découle de la loi de Darcy est exprimé par Philip & De Vries en fonction de la teneur en eau volumique et de la température comme suit :

$$\frac{j_l}{\rho_l} = -D_{\theta l}\nabla\theta - D_{Tl}\nabla T - K \qquad \text{I. 63}$$

$D_{\theta l}$: Coefficient de diffusion isotherme d'eau liquide ;

D_{Tvap} : Coefficient de diffusion non-isotherme d'eau liquide ;

K : Perméabilité à l'eau liquide.

Comme Luikov, Philip & De Vries ont négligé les transferts convectif et radiatif.

$$\rho C\frac{\partial T}{\partial t} = div(\lambda\nabla T) + L_{vl}div(D_{\theta vap}\nabla\theta) \qquad \text{I. 64}$$

Le système d'équations décrivant les transferts couplées de chaleur et d'humidité dans les matériaux poreux selon Philip & De Vries est le suivant :

$$\begin{cases} \frac{\partial\theta}{\partial t} = \nabla(D_\theta\nabla\theta) + \nabla(D_T\nabla T) + (\nabla K) \\ \rho C\frac{\partial T}{\partial t} = \nabla(\lambda\nabla T) + L_{vl}\nabla(D_{\theta vap}\nabla\theta) \end{cases} \qquad \text{I. 65}$$

Avec :

D_T : Coefficient de diffusion d'humidité non isotherme ;

D_θ : Coefficient de diffusion d'humidité isotherme ;

C : Chaleur spécifique du matériau ;

λ : Conductivité thermique.

Ce modèle utilise la teneur en eau volumique comme moteur de transfert d'où le problème de discontinuité lors de l'étude des parois multicouches. De plus, il ne permet pas de prendre en compte les évolutions de la pression dans le matériau. Il est souvent utilisé dans la modélisation du séchage.

I.4.1.3. Modèle de Künzel (1995)

En 1995, Künzel [112] a proposé une nouvelle équation d'équilibre [21] :

$$\frac{\partial u}{\partial t} = \nabla(D_{HR}\nabla HR + \delta_p \nabla P_v) \qquad \text{I. 66}$$

Où D_{HR} dépend de la température et de la teneur en eau et δ_p dépend de la température et ne dépend pas de la teneur en eau. D'après Künzel, le flux liquide est régi par un gradient d'humidité relative et le flux de vapeur par un gradient de pression de vapeur.

Les équations décrivant le modèle de Künzel sont :

$$\begin{cases} \rho C_p \frac{\partial T}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x}\left(\lambda \frac{\partial T}{\partial x}\right) + L_v \frac{\partial}{\partial x}\left(\delta_p \frac{\partial HR\, P_{vsat}}{\partial x}\right) \\ \frac{\partial u}{\partial HR}\frac{\partial HR}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x}\left(D_{HR}\frac{\partial HR}{\partial x}\right) + \frac{\partial}{\partial x}\left(\delta_p \frac{\partial HR\, P_{vsat}}{\partial x}\right) \end{cases} \qquad \text{I. 67}$$

Avec :

$\frac{\partial u}{\partial HR}$: Pente de l'isotherme de sorption ;

L_v : Chaleur latente de vaporisation ;

δ_p : Perméabilité à la vapeur d'eau ;

P_{vsat} : Pression de vapeur saturante ;

D_{HR} : Coefficient de diffusion liquide.

Ce modèle développé par Künzel appartient à Fraunhofer Institut für Bauphysic (IBP) et est commercialisé sous le nom de WUFI (Wärme und Feuchte Instationär).

En plus de ces modèles qui sont considérés comme modèle de référence des transferts couplés de chaleur et d'humidité, nous pouvons citer aussi le modèle de Duforestel [6], de Hagentoft *et al.* [113], ...etc.

I.4.1.4. Modèles d'isothermes d'adsorption et de désorption

Il existe, dans la littérature, plusieurs modèles décrivant les phénomènes d'adsorption [114, 115]. On y trouve des modèles théoriques, semi-théoriques ou encore empiriques.

- *Modèle de Langmuir*

En 1918, Langmuir décrit l'adsorption monocouche des molécules dans le domaine hygroscopique comme suit :

$$U = \frac{mC_{Langmuir}HR}{1+C_{Langmuir}HR} \qquad \text{I. 68}$$

Où m est la teneur en eau adsorbée maximale et $C_{Langmuir}$est exprimé en fonction de la chaleur latente d'adsorption L_{ad} comme suit [4]:

$$C_{Langmuir} \propto \exp\left(\frac{M_1 L_{ad}}{RT}\right) \qquad \text{I. 69}$$

Ce modèle limite son application au domaine des faibles humidités relatives.

- *Modèle BET*

Ce modèle a été développé par Brunauer, Emmett et Teller en 1938 [8]. Ce modèle reprend le modèle de Langmuir en cherchant à étendre son domaine d'application. Il se distingue par le fait que plusieurs couches peuvent venir se superposer sur la première couche adsorbée. Il s'écrit sous la forme :

$$U = \frac{mC_{BET}HR}{(1-HR)(1+(C_{BET}-1)HR)} \qquad \text{I. 70}$$

Le modèle de BET ne s'applique que dans le domaine hygroscopique où la condensation capillaire est négligeable, soit des humidités relatives inférieures à 50%.

- *Modèle GAB*

Ce modèle est développé par Guggenheim, Anderson et de Boer. Il reprend le modèle de BET avec un facteur correcteur K prenant en compte la chaleur adsorbée de toutes les couches moléculaires pour l'étendre sur toute la gamme d'humidité relative.

$$U = \frac{mC_{GAB}KHR}{(1-KHR)(1+K(C_{GAB}-1)HR)} \qquad \text{I. 71}$$

C_{GAB} est exprimé en fonction de la température de référence $(T_{réf})$ et de la chaleur de sorption du matériau (Q) comme suit [116] :

$$C_{GAB}(T) = C_{GAB}(T_{réf})\exp\left(\frac{Q}{R}\left(\frac{1}{T}-\frac{1}{T_{réf}}\right)\right) \qquad \text{I. 72}$$

Ce modèle permet une modélisation des isothermes de sorption jusqu'à 90% d'humidité relative.

- *Modèle GDW*

Le modèle GDW (Generalised D'Arcy and Watt) est également basé sur la théorie de Langmuir. Il suppose que plusieurs molécules de vapeur d'eau peuvent être adsorbées sur chaque molécule appartenant aux sites d'adsorption secondaires.

$$U = \frac{m.K.HR}{1+K.HR} \cdot \frac{1-k(1-w)HR}{1-k.HR} \qquad \text{I. 73}$$

Où w est la proportion de molécules adsorbées sur les sites primaires qui deviennent des sites secondaires d'adsorption.

I.4.2. Approche prenant en compte la variabilité des propriétés de transfert des matériaux cimentaires et des conditions environnementales

Les modèles précédemment cités adoptent une approche déterministe de prédiction du comportement hygrothermique des matériaux poreux de construction. Ils considèrent des paramètres d'entrée constants, des conditions aux limites statiques qui ne reflètent pas souvent la réalité,…etc. Or, avec le caractère hétérogène des matériaux poreux de construction en général et des matériaux cimentaires en particulier, ces approches ne sont pas toujours les plus réalistes. Dans cette partie du chapitre, nous nous sommes intéressés aux approches prenant en compte la variabilité des propriétés des matériaux de construction dans la prédiction de leur durabilité et de leur comportement hygrothermique. Avant l'établissement de cette approche dite "stochastique", une évaluation expérimentale de la variabilité des paramètres considérés est inévitable.

Dans ces travaux de recherche, De Larrard [117] a évalué la variabilité de quelques paramètres les plus influents sur la lixiviation du béton. Il a en effet, étudié la variabilité de la résistivité électrique, de la propagation des ondes ultrasonores, de la résistance en compression et de traction, du module de Young, de la porosité à l'eau et des épaisseurs dégradées au cours de l'essai de lixiviation accélérée. Il a aussi étudié la variabilité spatiale de la porosité à l'eau, du coefficient de tortuosité et du paramètre de thermoactivation globale de la cinétique de lixiviation. Les travaux de recherche de De Larrard s'inscrivaient dans le cadre d'un projet dit ANR RGCU "APPLET" (Durée de vie des ouvrages : Approche Prédictive Performantielle et Probabiliste) qui regroupait plusieurs chercheurs de différents laboratoires. Le principe de la campagne expérimentale d'APPLET était d'assurer un suivi longitudinal de deux chantiers réels, dont la construction était assurée par Vinci Construction. L'objectif était de proposer une caractérisation expérimentale pour plusieurs gâchées au cours de la réalisation du chantier. Les deux

chantiers sont le tunnel de l'A86 dans l'ouest parisien, et un viaduc aux alentours de Compiègne. Les résultats de cette campagne sont récapitulés dans [118]. Une étude de la variabilité de la résistance à la compression et à la traction, du module de Young, du coefficient de diffusion des chlorures, des isothermes de désorption de la vapeur d'eau ; de l'épaisseur du béton carbonaté ; de la résistivité électrique, de la porosité accessible à l'eau, des épaisseurs dégradées au cours de l'essai de lixiviation accélérée, de la tortuosité et de la perméabilité au gaz a été présentée.

La Figure I. 33 présente un résultat de l'investigation expérimentale du projet APPLET sur la variabilité de la teneur en eau à l'équilibre en fonction de l'humidité relative environnante et de la porosité accessible à l'eau. Defraeye *et al.* [119] ont étudié l'influence de la variabilité des propriétés hygrothermique de la brique et du plâtre sur le séchage. Ils ont à cet effet mené une campagne expérimentale d'identification de la variabilité des paramètres du modèle adopté dans leur étude (Tableau I. 12). La campagne expérimentale a été dédiée aux propriétés suivantes : la masse volumique ρ_s à l'état sec; la chaleur spécifique $C_{p,s}$ à l'état sec ; la conductivité thermique λ_{PM} en fonction de la teneur en eau ; le coefficient de diffusion de la vapeur d'eau δ_v et l'évolution de la teneur en eau en fonction de la pression capillaire.

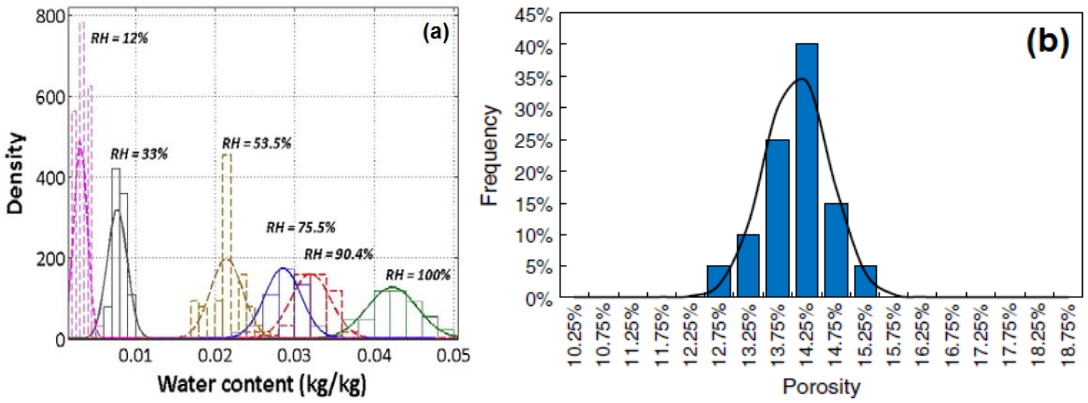


Figure I. 33. (a) distribution statistique de la teneur en eau à l'équilibre du béton A1 [94, 118, 120] ;(b) Distribution de la porosité du béton A2 après un séchage à 105°C [118]

Feng *et al.* ont étudié la répétabilité et la reproductibilité des propriétés hydriques de quelques matériaux de construction. Ils ont conclu que :

- Les incertitudes sur les propriétés hydriques qui sont dues au caractère hétérogène du matériau étudié varient en fonction de la propriété étudiée et des conditions d'essai ;

- Les résultats de mesure (isotherme de sorption, perméabilité à la vapeur d'eau, teneur en eau à saturation, …) présente une bonne répétabilité ;

- D'importantes incertitudes sur la reproductibilité des résultats et une grande différence des résultats d'un laboratoire à un autre ont été enregistrées.

Tableau I. 12. Propriété de transport de la brique et du plâtre : valeurs moyennes et écart type [119]

Propriété	Valeur moyenne Brique	Valeur moyenne Plâtre	Écart type
ρ_s (kg/m^3)	2005	790	1%
$C_{p,s}$ $(J/kg\ K)$	840	870	5%
λ_{PM} (W/mK)	*0,5+0,0045 w*	*0,2+0,0045 w*	5%
$\delta_v\ (s)$	$\frac{2{,}61\times10^{-5}}{\mu_{dry}R_vT}\ \frac{1-(w/w_{cap})}{0{,}503(1-(w-w_{cap}))^2+0{,}497}$	//	18% sur μ_{dry}
w (kg/m^3)	$w_{cap}\begin{bmatrix}0{,}3(1+(1{,}25\times10^{-5}p_c)^{1{,}65})^{-0{,}65/1{,}65}\\+0{,}7(1+(1{,}80\times10^{-5}p_c)^6)^{-5/6}\end{bmatrix}$	$0{,}3(+(1{,}25\times10^{-5}p_c)^{1{,}65})^{-0{,}65/1{,}65}$	5% sur w_{cap}

Dominguez-Miñoz *et al.* [121] ont évalué la variabilité de la conductivité thermique des matériaux isolants. Ils ont relevé à cet effet une importante variabilité. Une comparaison inter-laboratoires (six laboratoires) des propriétés hydrique (porosité, diamètre critique de pore, isotherme d'adsorption et de désorption, résistance à la vapeur d'eau) a été entreprise. Cette étude a été menée sur trois matériaux poreux de construction : panneau de silicate de calcium, brique céramique et béton cellulaire. Ces essais ont été réalisés dans le cadre du projet HAMSTAD [121]. Les conclusions de ce projet sont :

- De fortes reproductibilités des résultats de porosité et de masse volumique ont été enregistrées ;
- Les résultats de sorption ont été moins fiables que prévu ;
- La variabilité du diamètre critique des pores obtenue par l'essai d'intrusion au mercure est importante pour les matériaux à forte hétérogénéité (brique) ou pour les matériaux à structure complexe ;
- Les résultats sur la résistance à la vapeur d'eau des différents matériaux ont montré une variabilité extrêmement élevée malgré l'utilisation de la même norme expérimentale.

Après avoir pu quantifier les différentes variabilités qui dépendent du phénomène étudié, les auteurs ont eu recours aux méthodes probabilistes afin d'intégrer ces variabilités dans leur modèle de prédiction du phénomène étudié. Plusieurs techniques existent pour arriver à cette fin qui dépend du type de variabilité et de sa cause :

- Le cas le plus courant est de présenter une grandeur par une loi de distribution (densité de probabilité de la variable aléatoire). Cette démarche est applicable dans le cas des incertitudes dues à la précision de mesure du banc expérimental, à la non répétabilité et reproductibilité des mesures, à la différence de mesure entre un équipement et un autre et entre chaque norme utilisées,…etc. Ces variables ainsi constituées sont supposées représenter les variabilités des paramètres sur toute la structure considérée ou sur une partie de celle-ci. Un certain nombre d'études ont adopté cette démarche. Peuvent être citées [122, 123, 124, 125] ;

- Représenter la variabilité sous forme de champs aléatoires corrélés : si la grandeur étudiée dépend de l'espace ;

- Représenter la variabilité avec des processus aléatoires qui décrivent l'évolution d'une grandeur aléatoire en fonction du temps.

Bien qu'étant plus complète qu'une approche déterministe, une approche probabiliste comporte certaines difficultés. Il est nécessaire par exemple d'analyser toutes les sources possibles d'incertitudes. Celles-ci peuvent avoir des origines variées :

- Incertitude sur la géométrie et les dimensions de la structure étudiée ;

- Incertitude sur le modèle physique décrivant le phénomène ;

- Incertitude sur les actions extérieures (humidité relative, température, endommagement,…) ;

- Incertitudes numériques (discrétisation, schémas d'intégrations,…) ;

- Incertitude sur les propriétés thermophysiques du matériau étudié.

Dans cette partie on va s'attarder aussi à définir les outils de base d'une modélisation probabiliste : variables aléatoires, champs aléatoires, fonction de covariance …etc.

Le phénomène aléatoire

Un phénomène est dit aléatoire si, reproduit maintes fois dans des conditions identiques, il se déroule chaque fois différemment de telle sorte que le résultat de l'expérience change d'une fois sur l'autre de manière imprévisible.

Espace probabilisé

Un espace de probabilité(s) ou espace probabilisé est la donnée d'une probabilité à tout événement tangible. Ce sont des espaces de la forme (Ω, F, P). Définissons chacun des sous espaces. Ω est appelé l'univers, c'est l'ensemble des événements possible. Les éléments de F sont appelés les événements, c'est un sous ensemble de Ω. Finalement P est appelé probabilité

ou mesure de probabilité. La Figure I. 34 illustre un problème de probabilité avec comme variable aléatoire $k(\omega)$; Ω est l'ensemble des observables et $P(\omega)$ la mesure de probabilité.

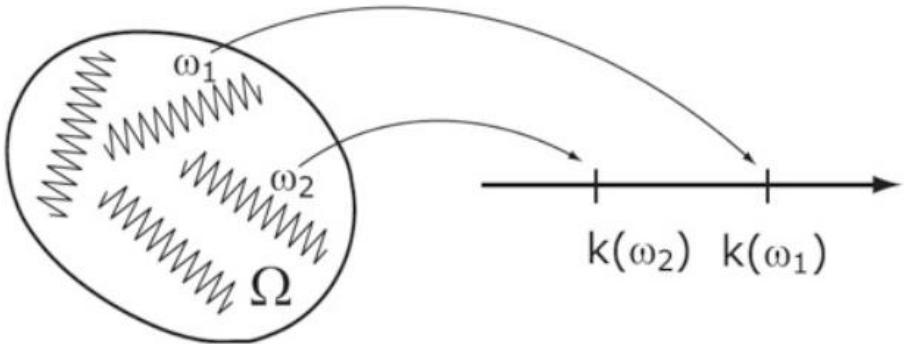


Figure I. 34. Exemple d'un problème de probabilité [126]

Variables, vecteurs et champs aléatoires

Une variable aléatoire est une fonction définie sur l'ensemble des éventualités, c'est-à-dire l'ensemble des résultats possibles d'une expérience aléatoire, c'est une fonction mesurable (*f*) d'un espace probabilisé *(Ω, F, P)* vers un espace mesurable *(E, M)* (ou *M* est une tribu de E). C'est toute application :

$$f : \omega \in F \mapsto f(\omega) \in M \qquad \text{I. 74}$$

La différence entre l'appellation entre variable et champ vient des dimensions de M. Par exemple si *f(Ω)* est à valeur dans $= \mathbb{R}^{N}$. On appelle *(f)* une variable aléatoire réelle pour *N=1* et un champ aléatoire pour *N>1*.

On peut également définir la densité de probabilité d'une fonction ou variable aléatoire, c'est une fonction qui permet de représenter une loi de probabilité sous forme d'intégrales. On dit qu'une fonction φ est une densité de probabilité d'une variable aléatoire réelle f si : $\forall\, x \in \mathbb{R}$:

$$P(f \leq x) = \int_{-\infty}^{x} \varphi(x) du \qquad \text{I. 75}$$

P étant toujours la mesure de probabilité associée à *F*.

Dans le cas de variable à densité de probabilité, on peut également définir ces deux moments statistiques :

- L'espérance : tire sa définition de la question légitime que l'on peut se poser à propos d'une variable aléatoire "quelle est la valeur espérée ou attendue pour X ?".

$$E\{f\} = \int_{R} f\, \varphi(\omega) du \qquad \text{I. 76}$$

Lorsque f est un champ, il faut faire attention à ne pas confondre entre l'espérance et la moyenne.

- La variance : elle est définie par l'équation suivante :

$$\sigma_f^2 = E\{(f - E\{f\})^2\} \qquad \text{I. 77}$$

Les champs gaussiens corrélés

Avant de définir les champs gaussiens, définissons tout d'abord les variables aléatoires gaussiennes.

Une variable aléatoire réelle X est une variable gaussienne d'espérance μ et d'écart type σ strictement positif (donc de variance σ^2) si elle admet comme fonction de densité φ, pour tout réel x :

$$\varphi(x) = \frac{1}{\sigma\sqrt{2\pi}} \exp\left(\frac{-(x-\mu)^2}{2\sigma^2}\right) \qquad \text{I. 78}$$

Une variable gaussienne est donc entièrement définie par les deux paramètres μ et σ^2. On note habituellement cela de la manière suivante :

$$f \sim \mathcal{N}(\mu, \sigma^2) \qquad \text{I. 79}$$

Dans ce cas, on dit que f suit une loi normale d'espérance μ et de variance σ^2. Si l'espérance $\mu = 0$ et la variance $\sigma^2 = 1$; on dit que f suit une loi normale (gaussienne) centrée réduite et on écrit :

$$f \sim \mathcal{N}(0,1) \qquad \text{I. 80}$$

Un champ gaussien f est tel que :

$$\forall\, x \in M, f_x \sim \mathcal{N}(\mu, \sigma^2) \qquad \text{I. 81}$$

Ce champ gaussien est entièrement défini par ses moments d'ordre 2, c'est-à-dire l'espérance et la variance, ainsi que par sa fonction de covariance.

Les champs gaussiens corrélés sont des champs dont la valeur de ce dernier en un point est dépendante des valeurs aux points voisins. Ils sont très utilisés en pratique malgré le support non borné.

La covariance est un nombre permettant d'évaluer le sens de variation de deux variables et de quantifier le degré de dépendance de ces variables. Si deux variables aléatoires sont totalement indépendantes alors leur covariance est nulle. La corrélation (la dépendance) entre les valeurs en deux points (x, y) est définie par sa fonction de covariance. Pour un champ gaussien cette fonction est défini par :

$$C: M \times M \rightarrow \mathbb{R}$$
$$C(x,y) = E\left[(f_x - E[f_x])(f_y - E[f_y])\right] \quad \text{I. 82}$$

La modélisation d'un champ aléatoire nécessite une discrétisation, c'est à dire une approximation avec un ensemble fini de variables aléatoires collectées dans un vecteur aléatoire. Les principales méthodes de discrétisation peuvent être classées en trois groupes :

(i) discrétisation par point : Méthode du point central, méthode des fonctions de formes, méthodes utilisant les points d'intégration et la méthode d'estimation linéaire optimale ;

(ii) discrétisation moyenne ;

(iii) développement en série : méthode de Karhunen-Loève (méthode adopté dans notre travail, voir chapitre IV) [127, 128], développement en séries orthogonales [129] et Extension de la méthode d'estimation linéaire optimale (EOLE) [130].

I.5. Bilan

Cette analyse bibliographique a permis d'établir un état de l'art général quant aux transferts hygrothermiques dans les matériaux poreux de construction en général et des matériaux à base cimentaire en particulier. Nous avons abordé lors de cette étude trois parties qui semblent importantes pour une bonne prédiction du comportement hygrothermique des matériaux cimentaires :

1. Tous d'abord, nous avons commencé par analyser les propriétés thermo-hydriques des matériaux cimentaires (isotherme de sorption, perméabilité à la vapeur, conductivité thermique et chaleur spécifique) en énumérant tous les facteurs les plus influents. Il était aussi question de définir la microstructure des matériaux cimentaires ainsi que le phénomène d'hydratation tout en cherchant à mettre en avant la relation microstructure-propriétés thermo-hydriques ;

2. Par la suite, nous avons passé en revue plusieurs méthodes de caractérisation tout en soulignant les limites de chacune ;

3. Enfin ; un bref aperçu des modèles déterministes de transferts couplés de chaleur et d'humidité a été exposé avec en plus quelques descriptions des approches probabiliste en citant quelques travaux antérieurs portant sur l'évaluation de la variabilité de quelques propriétés des matériaux poreux de construction.

Les informations marquantes tirées de ce chapitre sont d'une part, la nécessité et l'importance de l'investigation expérimentale qui est une étape clé pour une bonne prédiction du comportement hygrothermique des matériaux cimentaires, d'autre part, le

recours aux démarches probabilistes est une solution à privilégier afin de limiter les incertitudes et de prendre en compte les différentes variabilités qui peuvent affecter considérablement les résultats de prédiction.

Chapitre II

Caractérisation expérimentale des matériaux étudiés

L'étude des phénomènes de transferts de chaleur et d'humidité nécessite une connaissance approfondie des propriétés intrinsèques (microstructurales, thermophysiques et hydriques) des matériaux dont certaines demeurent peu abondantes dans la littérature. Ces propriétés constituent des paramètres d'entrée des modèles de transfert qui seront présentés dans le chapitre III.

Dans ce chapitre sont présentés les différents essais et résultats de caractérisation réalisés dans le cadre de ce travail sur des matériaux cimentaires (pâte de ciment, mortier et béton). La campagne expérimentale porte sur trois volet : (i) propriétés microstructurales et d'hydratation : porosité et distribution de la taille des pores ainsi qu'une étude des techniques d'arrêt d'hydratation ; afin d'appréhender la relation entre taux d'hydratation d'un matériau et ses propriétés de transfert thermo-hydrique ; (ii) propriétés hydriques : isotherme de sorption, courbe de rétention d'eau et perméabilité à la vapeur d'eau ; comme principal paramètre gouvernant d'une part les mécanismes de transport d'agent agressif au sein du matériau, donc sa dégradation et d'autre part, les transferts thermiques dans les matériaux de parois des bâtiments ; (iii) propriétés thermiques : Conductivité thermique et chaleur spécifique, afin d'appréhender les propriétés d'isolation des matériaux de parois de bâtiments pour des considérations de confort des environnements habitables.

II.1. Matériaux étudiés

Trois types de matériaux sont étudiés. Une pâte de ciment avec différents rapport Eau sur Ciment (E/C)=0,3 ; 0,35 et 0,4 ; un mortier avec un rapport E/C=0,55 et Sable sur Ciment (S/C)=3. Concernant ces deux premiers matériaux, deux formulations sont proposées. La première formulation de chaque matériau (pâte 1 et mortier 1) est réalisée avec un ciment Portland CEM-I 52,5N avec 95% de Clinker (Tableau II. 1 et II.2), tandis que dans la deuxième formulation, une partie du ciment (30%) est substituée par du laitier de hauts fourneaux (pâte L30 et mortier L30), dont les caractéristiques figurent sur le Tableau II. 1. Enfin, le troisième matériau étudié est un béton. Sa formulation (Tableau II. 3) est tirée des travaux de Younsi *et al* [131] et est notée "Béton REFI". Elle est réalisée avec le même ciment que les matériaux précédents (CEM-I 52,5N).

Tableau II. 1. Caractéristiques du ciment et du Laitier

Ciment	CEM-I 52,5N	Laitier	Moulu ORCEM
Clinker (%)	95	Début de prise (min)	180
Début de prise (min)	155	Masse volumique (g/cm^3)	2,89
Masse volumique (g/cm^3)	3,11	Surface spécifique (cm^2/g)	4500
Surface spécifique (cm^2/g)	3400		

Tableau II. 2. Composition chimique en oxydes du ciment CEM-I 52,5N (en % massique)

Constituant	Valeur usine moyenne (%)	Constituant	Valeur usine moyenne (%)
SiO_2	20,50	K_2O	0,82
Al_2O_3	4,50	Na_20	0,12
Fe_2O_3	2,70	SO_3	3,40
CaO	64,80	Cl^-	0,01
MgO	1,50	Perte au feu	1,00

Tableau II. 3. Composition du béton REFI [kg/m^3] [131]

	REF I
Ciment CEM1 52.5N	303
Gravillon 10/14	875
Gravillon 6,3/10	211
Sable 0/4	855
Eau	182

Les pâtes de ciment et les mortiers ont été fabriqués par gâchées de 5 litres. Les constituants de ces derniers sont pesés au 1/10ème de gramme prés. Le malaxage est effectué conformément à la norme NF EN 196-1. Des moules 4x4x16 cm^3 ainsi que des moules prismatique 10x10x40 cm^3 ont été utilisés pour le coulage des pâtes de ciment et du mortier. À l'issue du coulage, les échantillons sont directement placés sur une table vibrante afin d'en évacuer les bulles d'air résiduelles.

Les constituants du béton REFI sont pesés au 1/10ème de gramme prés. Le béton a été fabriqué par gâchée de 16 litres en respectant la procédure de malaxage suivante : nous avons placé les constituants du plus grossier au plus fin dans la cuve du mélangeur. Par la suite, après malaxage pendant 30 secondes, nous avons ajouté l'eau pendant 30 secondes tout en malaxant. Puis on termine avec un malaxage pendant deux minutes. Le béton a été coulé dans des moules cylindriques 16x32 cm. La vibration est effectuée par tige vibrante après un remplissage en 3 fois de l'éprouvette.

Après démoulage à 24 heures, les échantillons de pâte de ciment, de mortier et de béton sont ensuite conservés dans une salle humide dont la température est de 20±2 °C et l'humidité relative de 95±3%.

II.2. Propriétés Microstructurales et d'hydratation

II.2.1. Porosimétrie à l'eau

La mesure de la porosité accessible à l'eau est réalisée selon la procédure de l'AFPC-AFREM [84] qui s'effectue en quatre phases. La phase 1 est la saturation sous vide de l'échantillon au moyen du banc de saturation présenté dans la Figure II. 1. La mise sous vide est réalisée au moyen d'une pompe à vide capable de maintenir un vide absolu de 2mm Hg et cela pendant 4 heures. Après 24 heures de saturation, l'ensemble est mis à pression atmosphérique pendant 24 heures. Ensuite, l'échantillon est pesé une première fois dans l'eau à l'aide d'une balance hydrostatique (phase 2) pour obtenir la masse de l'échantillon notée M_{eau} [kg]. Après la deuxième phase, l'échantillon est extrait de l'eau, essuyé et pesé à l'air pour obtenir la masse de l'échantillon saturé M_{air} [kg] (Phase 3). Enfin, arrive la phase 4 (phase de séchage de l'échantillon). A cette étape l'échantillon est mis dans une étuve à une température de 105 °C. Pendant le séchage, on procède à un suivi de perte de masse jusqu'à équilibre selon le critère $\frac{\Delta m_{24h}}{m} \leq 0{,}1\ \%$ où Δm_{24h} [kg] est la perte de masse entre deux pesées effectuées à 24 heures d'intervalle, et m sa masse à la première borne de l'intervalle. Après équilibre, on obtient alors la masse sèche de l'échantillon M_{sec} [kg].

La porosité accessible à l'eau est calculée comme suit (II. 1) :

$$\varepsilon = \frac{M_{air} - M_{sec}}{M_{air} - M_{eau}} \times 100\ (\%) \qquad \text{II. 1}$$

Les essais sur les pâtes de ciment et mortier sont réalisés à deux âges du matériau (7 et 28 jours). Les résultats obtenus sont résumés dans la Figure II. 2. Ils présentent la moyenne sur trois mesures.

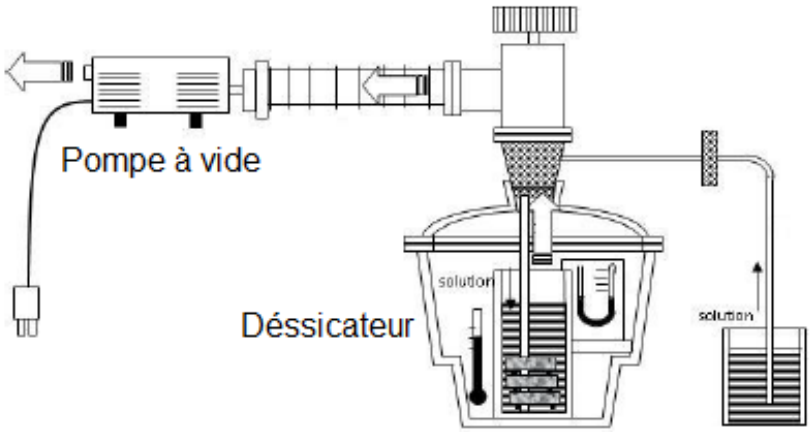


Figure II. 1. Banc de saturation

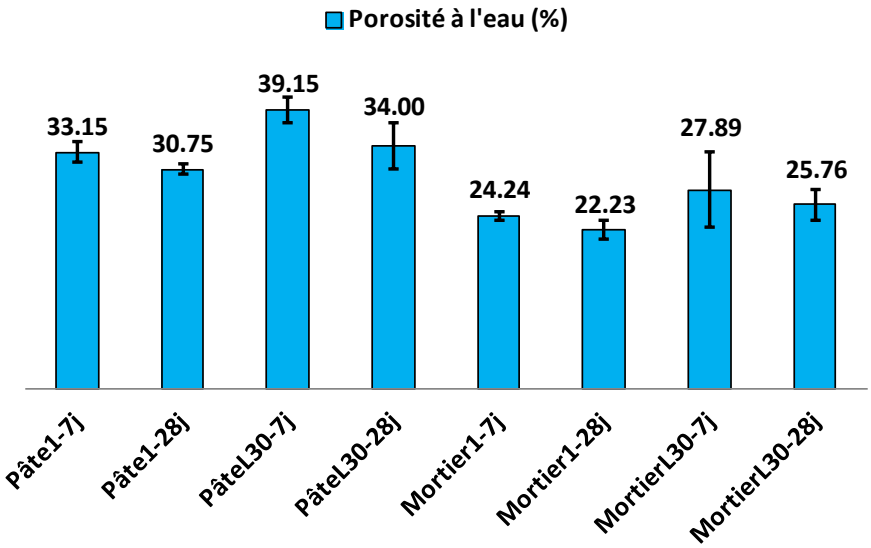


Figure II. 2. Porosité accessible à l'eau des différents matériaux à 7 et 28 jours d'âge avec les écart-types de chaque mesure

Nous distinguons à partir de ces résultats :

- Une réduction de la porosité à l'eau en fonction de l'âge du matériau. Cela est dû à la formation des hydrates qui modifient la microstructure et par conséquent ces propriétés ;
- La porosité des matériaux avec substitution d'une quantité de ciment (30%) par du laitier est supérieure à celle des matériaux réalisé avec 100% de CEM-I 52,5N à l'âge 7 jours et 28 jours ;
- La porosité des pâtes de ciment est supérieure à celle des mortiers.

Ces résultats de porosité accessible à l'eau peuvent nous être utiles pour d'éventuelles justifications et explications de résultats expérimentaux exposés dans la suite du chapitre.

II.2.2. Porosimétrie au mercure

La porosimétrie au mercure est une méthode couramment utilisée pour l'investigation de la microstructure des matériaux poreux. C'est une technique simple et rapide qui permet d'accéder à la porosité totale du matériau ainsi qu'à la distribution de la taille de ces pores, moyennant des hypothèses sur la géométrie du réseau poreux.

Les mesures ont été réalisées avec un porosimètre de marque *Micromeritics* de type *AutoPore III9420*, couvrant une gamme de pores allant de 0,003 µm à 360 µm, et pouvant aller jusqu'à une pression supérieure à 400 MPa. Néanmoins, n'accédant pas aux pores de moins de 0,003 µm et compte tenue de la difficulté d'un séchage préalable complet de l'échantillon sans en modifier la microstructure, cette technique tend à sous-estimer la porosité [131].

Les échantillons utilisés dans notre étude sont de forme cubique d'environ 15 mm de côté, après sciage. Ces échantillons sont séchés avant l'essai à une température de 60°C jusqu'à stabilisation de la masse. Ensuite, ils sont placés dans un pénétromètre à partir d'où le mercure est introduit progressivement dans le réseau poreux de l'échantillon initialement sous vide. Le mercure est injecté dans l'échantillon par pressions croissantes par paliers jusqu'à l'équilibre. Ainsi, pour chaque palier de pression correspond un volume injecté. A partir de ce couple de mesures, nous pouvons remonter à toute sorte d'informations notamment le rayon des pores correspondant à chaque palier de pression et donc à la distribution de la taille des pores moyennant l'utilisation de l'équation de Washburn (II. 2) et l'hypothèse de pores cylindriques de diamètre D.

$$r = \frac{2\gamma_{Hg}}{P_c} \cos\theta \qquad \text{II. 2}$$

Où γ_{Hg} représente la tension superficielle du mercure qui varie avec sa pureté [N/m]. θ est l'angle de contact entre le mercure et la paroi solide interne du pore qui varie selon la composition du solide. Une valeur de 130° est recommandée en absence d'informations spécifiques. P_c $[Pa]$ est la pression exercée sur le mercure pour son injection.

Les résultats de porosité ainsi que la distribution de la taille des pores sont présentés dans les figures suivantes (Figure II. 3, II.4 et II.5). La Figure II. 3 présente une comparaison des valeurs de porosité obtenues par essai de porosimétrie à l'eau et par intrusion de mercure.

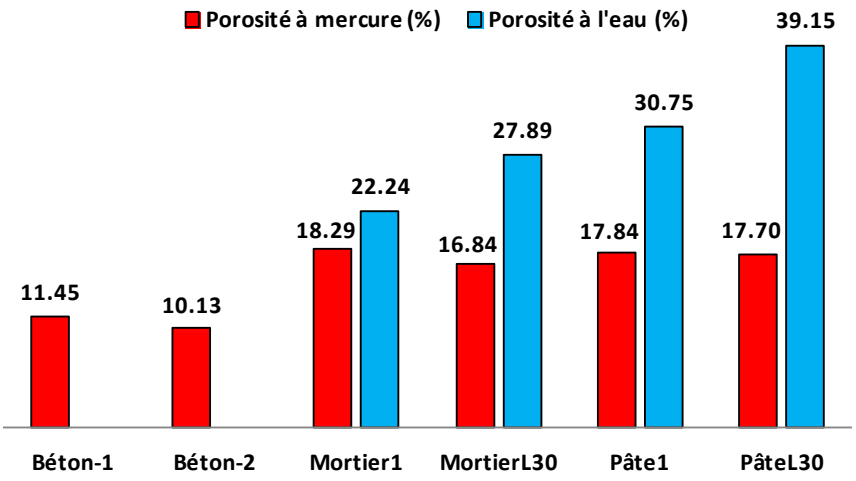


Figure II. 3. Comparaison des valeurs de porosité déterminées par l'essai de porosité à l'eau et par intrusion de mercure, pour différents matériaux testés

Il est à noter que les essais de porosimétrie au mercure ont été réalisés sur des échantillons de 3 mois d'âge. Nous distinguons un écart important entre les porosités au mercure et à l'eau. De plus, les résultats de porosité au mercure font apparaitre un écart faible entre les valeurs de porosité des mortiers et des pâtes de ciment. Cela est dû au fait que la porosimétrie à l'eau permet de détecter une gamme plus large de pores que la porosimétrie au mercure. En effet, cette dernière ne permet pas d'accéder aux pores les plus fins ($< 3\ nm$), ni aux plus gros pores (>360 µm).

La Figure II. 4 et la Figure II. 5 présentent la distribution de la taille des pores des différents matériaux étudiés. Elles montrent un mode principal de pores se situant entre 0,01 et 0,1 µm pour le béton et la pâte de ciment et entre 0,1 et 1 µm pour le mortier. D'après De Larrard *et al* [117], le laitier ne réduit pas nécessairement la porosité totale mais augmente la tortuosité tout en réduisant la taille des pores et leur connectivité. Ce constat est confirmé par la comparaison de la distribution de la taille des pores du mortier 1 et pâtes 1 à celle du mortier L30 et pâte L30. En effet, nous distinguons une réduction du pic du mode principal d'environ $10\ mL/g$.

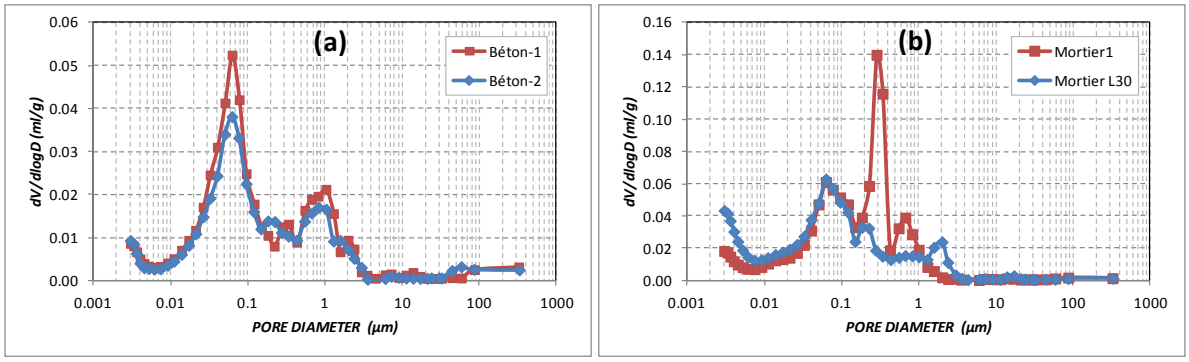


Figure II. 4. Distributions de la taille des pores obtenues par intrusion au mercure du béton (a) et du mortier 1 et L30 (b)

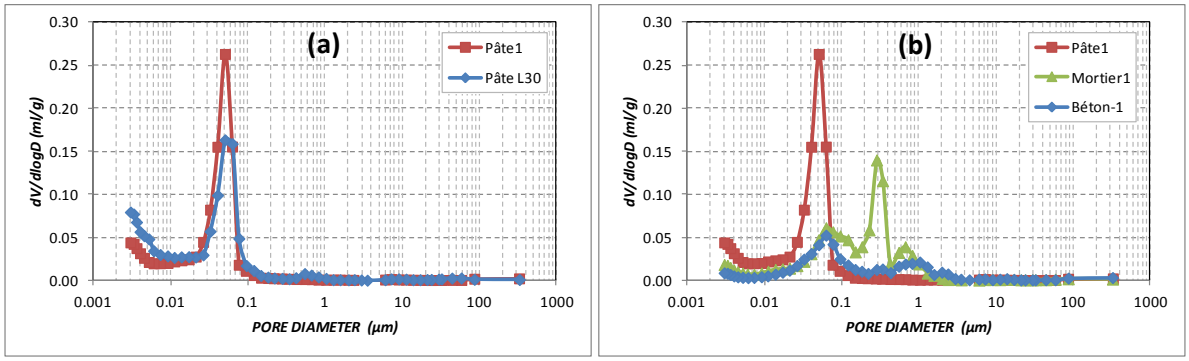


Figure II. 5. Distributions de la taille des pores obtenues par intrusion au mercure des pâtes de ciment (a) et comparaison du béton, mortier 1 et pâte 1 (b)

II.2.3. Taux d'hydratation

Une étude expérimentale sur les courbes d'isothermes d'adsorption et de désorption ainsi que sur le coefficient de diffusion de la vapeur d'eau des matériaux cimentaires a été menée et sera présentée plus loin dans ce chapitre. Ces propriétés hydriques, directement liées à la microstructure du matériau et à ses constituants, évoluent en fonction de l'âge du matériau considéré. La détermination de l'évolution de ces propriétés en fonction de l'âge du matériau cimentaire nécessite un arrêt d'hydratation, sans quoi, la microstructure du matériau étudié poursuit son évolution pendant la mise en œuvre des essais. Une étude préalable de différentes méthodes d'arrêt d'hydratation a permis le choix de la technique la plus adaptée à notre cas d'étude.

Les techniques d'arrêt d'hydratation analysées dans ce travail sont [132] :

a- Arrêt de l'hydratation à l'aide de trois bains successifs de 30 minutes dans deux solvants (acétone et éther diéthylique), suivis d'un séchage en étuve à 60°C pendant 24h [133, 132]. Cette technique est notée "AH Acétone/Éther 3x30 mn".

b- Arrêt de l'hydratation par immersion sous vide dans un bain d'acétone pendant 7 jours et suivie d'une mise sous vide (sans acétone) pendant 3 jours, elle est notée "AH Acétone 7j" [132, 134, 135, 76, 136, 137].

c- Arrêt de l'hydratation par séchage en étuve à 60°C pendant 7 jours [135, 76, 132, 73]. Elle est notée "AH Séchage 7j".

Konecny et Naqvi [135] ont constaté qu'en comparaison avec les techniques d'arrêt d'hydratation par séchage dans l'étuve et séchage par congélation (freeze drying), l'arrêt de l'hydratation en utilisant des solvants d'isopropanol produit des échantillons avec des pores plus fins moins endommagés. En outre, ils ont constaté que les pores des pâtes de ciment durcies sont endommagés par freeze drying. Dans une autre étude réalisée par Feldman et Beaudoin [76], les résultats montrent que le méthanol et l'isopropanol génèrent moins de contrainte sur la microstructure des pâtes de ciment durcies. Zhang et Glasser [138] ont montré qu'un séchage sous vide élevé augmente le volume des pores de la pâte de ciment. Gallé [73] a révélé que l'arrêt d'hydratation par séchage sous vide de la pâte de ciment génère des contraintes et des microfissures. Collier *et al.* [132] ont conclu qu'aucune des méthodes d'arrêt d'hydratation étudiées dans leur travail ne semblait causer un effet remarquable sur la composition et la microstructure des pâtes de ciment.

Dans notre analyse, les matériaux ont subi différentes techniques d'arrêt d'hydratation pour des fins de comparaison entre ces techniques. Les procédures d'arrêt d'hydratation ont été lancées à 7 jours d'âges sur différents échantillons. Les échantillons en question ont été préalablement conservés dans une ambiance à 20±3°C et à plus de 95% d'humidité relative. Après arrêt d'hydratation, les échantillons sont ensuite broyés très finement de façon à obtenir une poudre homogène (de granulométrie inférieure à 80 µm). Cette poudre a été conservée dans une boite étanche avant d'être analysée par thermogravimétrie (ATG) au plus tard 24h après broyage. Une ATG témoin d'un échantillon n'ayant pas subi d'arrêt d'hydratation (notées "Sans AH") est entreprise à 7 jours d'âge pour des fins de comparaison (courbe bleu).

Les essais de thermogravimétrie ont été effectués sur le dispositif SETSYS Evolution 16/18 de SETARAM (Figure II. 6). L'analyse consiste en la mesure de la variation de masse d'un échantillon en fonction de la température. L'équipement se compose d'une enceinte étanche permettant de contrôler l'atmosphère de l'échantillon, d'un four permettant de gérer la température, d'un module de pesée (microbalance), d'un thermocouple pour mesurer la température et d'un ordinateur permettant de contrôler l'ensemble et d'enregistrer les données. Les essais ont eu lieu sous une atmosphère contrôlée d'argon dans une gamme de température allant de 25°C à 1200°C avec une vitesse de chauffage de 10°C/min. A l'issue de l'analyse, nous obtenons une courbe traduisant l'évolution de la perte de masse en

fonction de la température de l'échantillon (Figure II. 7 et Figure II. 8). Une courbe ATG sur matériau cimentaire se divise en trois parties principales. La première phase correspond au départ de l'eau libre évaporable de l'échantillon. La deuxième partie traduit le départ de l'eau liée chimiquement aux hydrates (déshydratation). La différentiation entre ces deux parties est difficile. C'est la raison pour laquelle il faut définir au préalable une température frontière entre le départ de l'eau évaporable et celui de l'eau liée aux hydrates. Dans leurs travaux, Hamami [15], Mounanga [12] et Loukili [139] ont fixé cette température à 145 °C, température déjà préconisée par Taylor [140]. Nous décidons alors de fixer cette température à 145 °C. La troisième et dernière phase correspond à la décarbonatation du matériau.

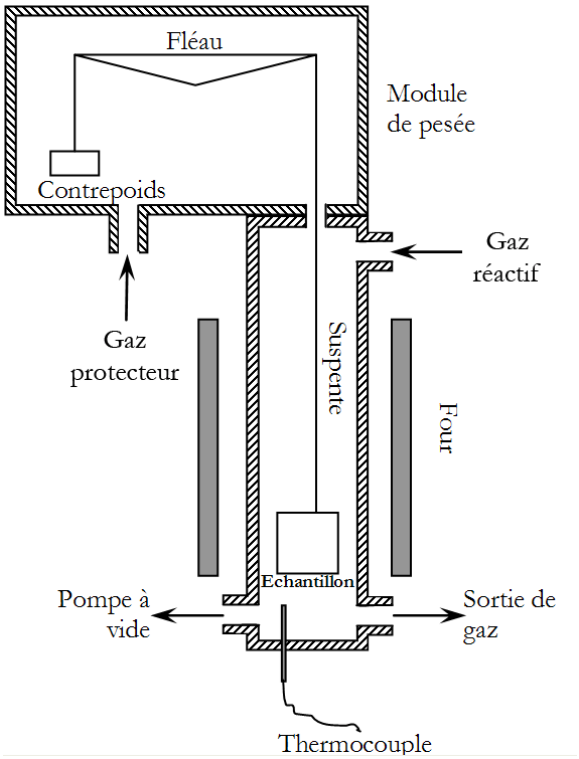


Figure II. 6. Représentation schématique d'un appareil d'ATG (type Setaram- SETSYS Évolution 16/18) [15]

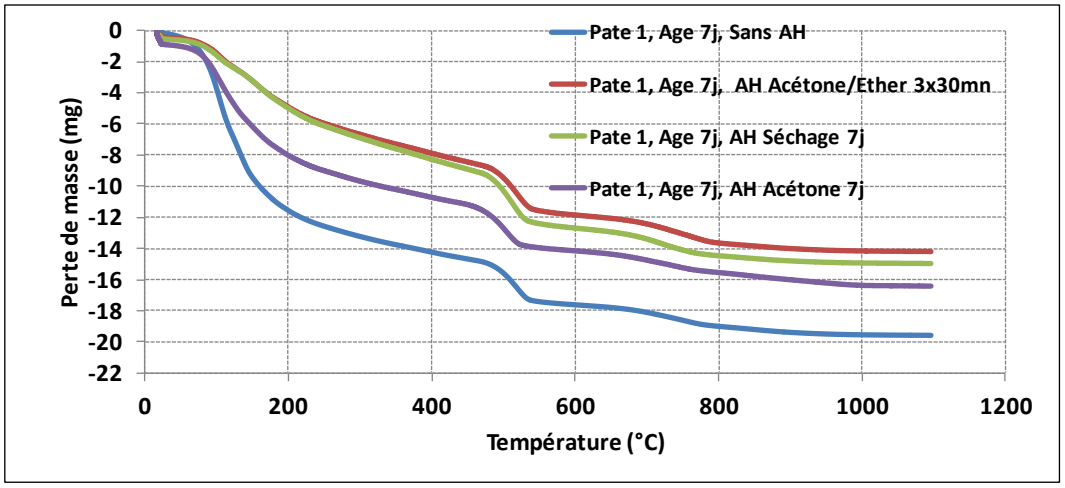


Figure II. 7. Évolution de la masse de l'échantillon au cours d'une ATG de la pâte de ciment 1 en fonction des techniques d'arrêt d'hydratation utilisées

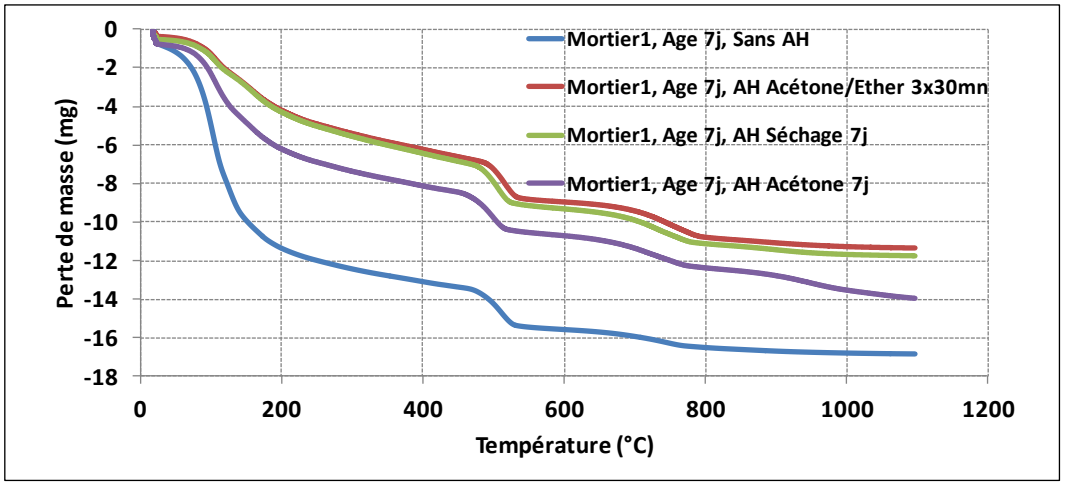


Figure II. 8. Évolution de la masse de l'échantillon au cours d'une ATG du mortier 1 en fonction des techniques d'arrêt d'hydratation utilisées

La Figure II. 9 présente les courbes de dérivée des pertes de masse de la pâte de ciment 1 en fonction des techniques d'arrêt d'hydratation. De plus, une courbe dTG témoin de l'échantillon sans arrêt d'hydratation est présentée (courbe bleue). Tous les tracés dTG présentés sur la Figure II. 9 montrent de façon similaire trois pics. Pendant la première phase, nous distinguons la vitesse élevée de la perte d'eau de la pâte de ciment n'ayant pas subi d'arrêt d'hydratation.

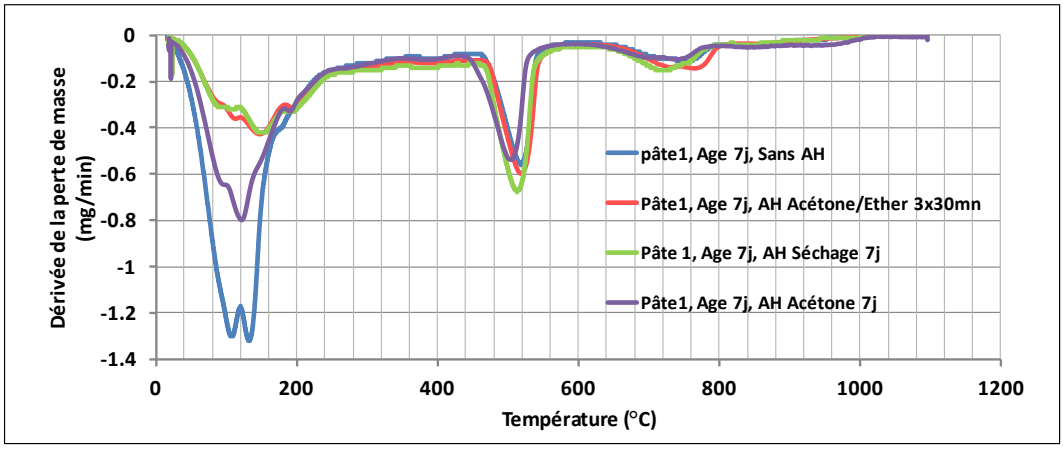


Figure II. 9. Dérivée des pertes de masse dTG de la pâte de ciment 1 en fonction des techniques d'arrêt d'hydratation utilisées

Ces courbes ATG et dTG sont utilisées pour le calcul du degré d'hydratation (Figure II. 10) selon la relation (II. 3) [15, 12]. Il est obtenu en calculant le rapport de la masse de l'eau liée à un instant « t » noté $m_{el}(t)$ à la masse de l'eau nécessaire à une hydratation complète du ciment obtenue par la formule de Bogue [141].

$$\alpha(t) = \frac{m_{el}(t)}{W_{el}(\infty).m_c} \qquad \text{II. 3}$$

Où $W_{el}[\%]$ est la proportion massique d'eau nécessaire pour l'hydratation complète du ciment. Elle est estimée à 24% selon la composition du ciment (Tableau II. 2). m_c $[kg]$ est la masse du ciment anhydre introduite dans l'échantillon. m_{el} $[kg]$ est la masse de l'eau liée au ciment à l'instant « t » donnée comme suit :

$$m_{el}(t) = |\Delta m_{145°C\to1100°C}(t)| - |\Delta m_{600°C\to800°C}(t)| + m_{d,145°C\to1100°C}(t) - m_c.P_F$$

$\Delta m_{145°C\to1100°C}(t)$ est la perte de masse de l'échantillon entre 145 et 1100°C [kg] ;

$\Delta m_{600°C\to800°C}(t)$ est la perte de masse de l'échantillon entre 600 et 800°C [kg] ;

$m_{d,145°C\to1100°C}(t)$ est la dérivée de l'appareil entre 145 et 1100°C [kg] ;

La masse du ciment anhydre m_c [kg] est obtenue à partir des paramètres entrant dans la composition du matériau testé suivant la relation (II. 4).

$$m_c = \frac{m_{échantillon}}{\left(1 + \frac{E}{C} + \frac{A}{C} + \frac{S}{C} + \frac{S_p}{C}\right).(1 + P_F)} \; [kg] \qquad \text{II. 4}$$

$m_{échantillon}$ $[kg]$ est la masse initiale de l'échantillon ;

$\frac{E}{C}$ [%] est le rapport massique Eau/Ciment du matériau ;

$\frac{A}{C}$ [%] est le rapport massique Addition/Ciment du matériau ;

$\frac{S}{C}$ [%] est le rapport massique Sable/Ciment du matériau ;

$\frac{S_p}{C}$ [%] est le rapport massique Superplastifiant/Ciment du matériau ;

P_F [%] est la perte au feu du ciment anhydre.

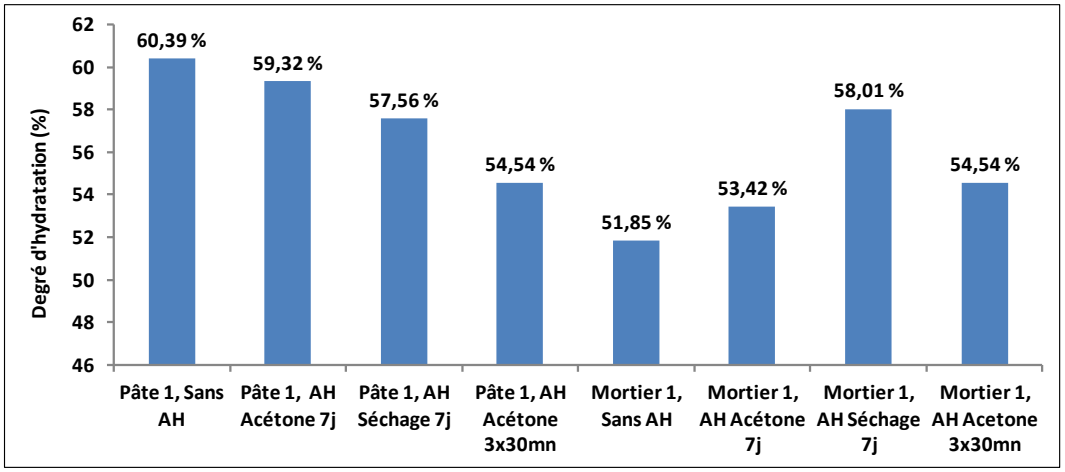


Figure II. 10. Degré d'hydratation des pâtes de ciment 1 et mortier 1 à l'âge de 7 jours

La Figure II. 10 montre l'évolution du degré d'hydratation de la pâte1 et du mortier1 en fonction des techniques d'arrêt d'hydratation utilisées. Deux comportements distincts ont été enregistrés vis-à-vis des différentes techniques d'arrêt d'hydratation : une diminution du degré d'hydratation par rapport au témoin (cas des pâtes de ciment) ou au contraire une augmentation du degré d'hydratation (cas des mortiers). Ceci est probablement dû à l'échantillonnage des mortiers qui contiennent un pourcentage de sable qui peut varier d'un échantillon à l'autre en raison de la faible quantité de matière utilisée pour les ATG (environ 90 mg). Ces deux comportements peuvent être aussi dus à l'effet de la température sur la cinétique d'hydratation. En effet, il a été montré que les effets de la température sur la cinétique d'hydratation et de durcissement peut être double [142]. D'une part, le taux de réaction augmente avec l'augmentation de la température [143] (cas du degré d'hydratation du mortier 1). D'autre part, la densité des hydrates est plus élevée à une température plus importante [144], ce qui ralentit la pénétration de l'eau libre à travers les hydrates. Par conséquent, pendant la dernière phase d'hydratation, la réaction d'hydratation est ralentie à une température plus élevée et le degré d'hydratation final peut donc être aussi faible (cas de la pâte de ciment 1).

Ces résultats montrent que ces techniques affectent le degré d'hydratation des matériaux cimentaires. Ce constat rejoint d'autres observations de la littérature [134] concernant l'utilisation des liquides organiques pour arrêter l'hydratation. Ils mentionnent aussi que la

réaction avec le C-H pourrait conduire à une condensation d'aldol et, par la suite affecter les résultats de l'analyse thermogravimétrique (ATG) du matériau.

Nous constatons par ailleurs que la technique la plus adéquate pour notre étude (c.à.d. celle qui influe le moins sur le degré d'hydratation) est l'arrêt d'hydratation par immersion sous vide dans un bain d'acétone pendant 7 jours suivie d'une mise sous vide (sans acétone) pendant 3 jours notée "AH Acétone 7j".

II.3. Propriétés hydriques

Dans cette partie du chapitre, une campagne expérimentale est entreprise dans le but d'identifier et de déterminer les propriétés hydriques des matériaux étudiés et leurs évolutions en fonction de l'âge de ces matériaux. Nous nous intéressons principalement à l'étude des isothermes d'adsorption et de désorption de la vapeur d'eau, de la rétention d'eau, de la capacité de stockage d'humidité et de la perméabilité à la vapeur d'eau.

La capacité de stockage d'humidité d'un matériau poreux de construction peut être déterminée expérimentalement par l'essai de sorption isotherme et de succion. L'ensemble de ces isothermes de sorption est appelé courbes de rétention d'eau ou d'humidité. Ces courbes sont divisées en trois régions de stockage. La Figure II. 11 montre ces trois régions : la région hygroscopique (Région AC), le régime capillaire (Région D) et la région hyper hygroscopique (Région E). Une partie de cette section est consacrée à l'étude du régime capillaire (Région D).

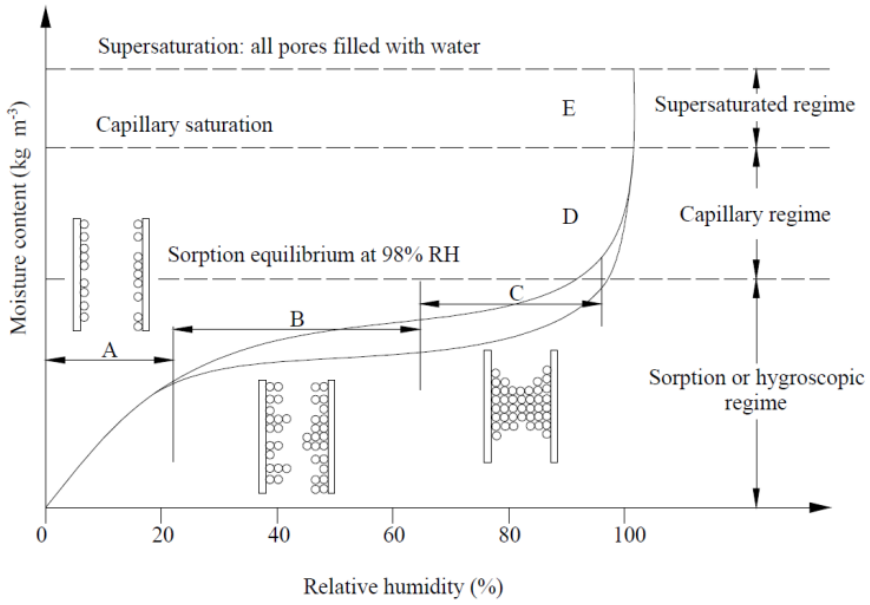


Figure II. 11. Diagramme schématique d'une courbe d'isotherme d'adsorption et de désorption [21]

La Figure II. 11 montre que la pente de la courbe devient plus raide lorsque l'humidité relative (HR) se rapproche de 100%. Au voisinage de cette limite, il est difficile de déterminer avec précision la teneur en eau correspondante. C'est pourquoi, les isothermes de sorption sont considérées valables pour la description du comportement de rétention d'eau jusqu'à une teneur en eau maximale qui, dans la plupart des définitions, correspond à HR = 98% [145, 146, 147].

La capacité de stockage d'humidité est déduite moyennant l'exploitation des courbes d'isothermes d'adsorption et de désorption. Elle est exprimée, à une constante multiplicative près (pression de vapeur saturante), par la pente de celles-ci. Ces courbes permettent de caractériser d'une façon intrinsèque les matériaux poreux, à l'échelle porale, vis-à-vis de l'activité de l'eau. C'est cette structure porale du matériau qui permet de définir son comportement vis-à-vis de l'adsorption et de la désorption. Un matériau cimentaire est caractérisé par une microstructure qui évolue au cours de l'hydratation et du séchage [148, 13]. Ce changement de microstructure affecte le comportement du matériau vis-à-vis des transferts hydriques [148, 149]. Afin d'identifier l'influence du degré d'hydratation sur la capacité de stockage d'humidité du matériau, nous avons mesuré les isothermes d'adsorption et de désorption ainsi que la perméabilité à la vapeur d'eau, en fonction de l'âge du matériau à 7 jours et 28 jours. Espinosa et Lutz [150] ont montré, à partir d'analyses thermogravimétriques (ATG), que le degré d'hydratation augmente au cours des mesures d'adsorption et de désorption. Ce constat nous a conduits à procéder à l'arrêt de l'hydratation du matériau avant chaque essai en veillant à l'utilisation de méthodes bien adaptées [151]. De plus, la teneur en eau du matériau est largement liée à la quantité d'hydrates contenus dans celui-ci [150]. Ces hydrates se forment dans les pores intergranulaires dont le volume est déterminé par l'eau qu'ils contenaient initialement. Les pores capillaires résultant de ces espaces intergranulaires ont une taille qui diminue avec le rapport E/C [13]. De ce fait, des essais d'isothermes d'adsorption et de désorption sur des pâtes de ciment avec des rapports E/C différents (0,3 ; 0,35 et 0,4) ont été réalisés dans le cadre de la présente étude.

Treschel [39] a montré que la perméabilité à la vapeur d'eau ne dépend pas seulement de la nature du matériau mais aussi de la pression de vapeur appliquée sur l'échantillon. En effet, la perméabilité à la vapeur d'eau des matériaux non-hygroscopiques est peu affectée par l'humidité relative contrairement aux matériaux hygroscopiques [38]. De plus, la perméabilité à la vapeur d'eau varie avec la température. Cette sensibilité a été discutée dans de nombreux travaux de la littérature [152]. Dans ce travail, il a été montré qu'en plus de tous ces paramètres à prendre en compte lors de la mesure de la perméabilité à la vapeur d'eau par la méthode de la coupelle, il est aussi primordial de définir l'âge des matériaux quand il s'agit de matériaux cimentaires.

II.3.1. Isothermes d'adsorption et de désorption

Il existe plusieurs techniques et dispositifs de mesure des isothermes d'adsorption et de désorption de la vapeur d'eau. La plus ancienne est la méthode gravimétrique traditionnelle (ISO 12571, 2000). L'inconvénient de cette méthode est le temps nécessaire pour obtenir une courbe d'isotherme d'adsorption et de désorption qui est très long (2 ans environs). Dans les travaux d'Abahri [20], une étude comparative entre les dispositifs de mesure a été menée. Cette étude concerne une comparaison de techniques et de dispositifs de mesure du laboratoire LaSIE. Elle implique des mesures par méthode traditionnelle moyennant l'utilisation d'une enceinte climatique, des mesures basées sur le même principe "gravimétrique" en utilisant deux autres dispositifs : Le DVS (Dynamic Vapor Sorption) et le VSA (Vapor Sorption Analyzer) et des mesures basées sur une méthode volumétrique au moyen du Belsorp Aqua 3. Les différences entre ces techniques et dispositifs sont multiples. On peut citer : la différence de la taille de l'échantillon ou la quantité de matière à analyser (DVS~30mg ; VSA~500-5000mg ; méthode traditionnelle ~10000mg et Belsorp~500-1500mg) ; la durée de la mesure qui dépend de la nature du matériau (DVS~2 semaines ; VSA~2 semaines ; méthode traditionnelle~ 2ans et Belsorp~10 jours), la précision de la balance des méthodes gravimétriques et le critère d'équilibre retenu. Dans ces travaux, Abahri [20] a constaté une bonne concordance des résultats obtenus au moyen de ces différentes techniques. En revanche, Cette comparaison met en exergue un inconvénient majeur de la méthode DVS qui ne permet pas de mesurer les teneurs en eau pour des plages supérieures à 90% en humidité relative environnante. Dans ce qui suit, les mesures d'isothermes d'adsorption et de désorption sont réalisées en utilisant le dispositif "Belsorp Aqua3" (Figure II. 12) dont le protocole est décrit ci-dessous.

Figure II. 12. Belsorp Aqua 3

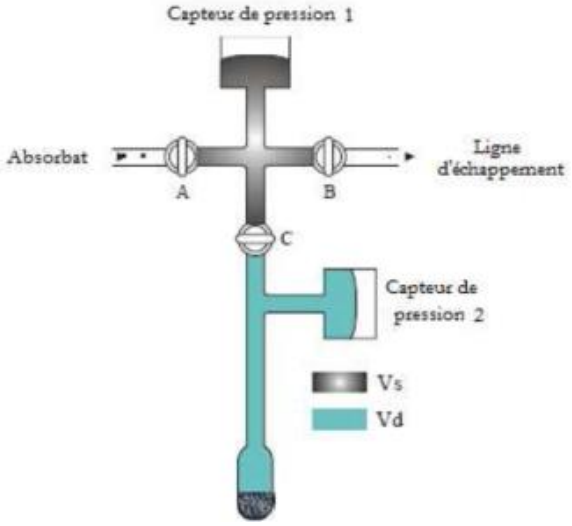


Figure II. 13. Représentation schématique d'un porte échantillon

Les échantillons ont été préalablement séchés en étuve à 40 °C durant 24 h puis ont été placés dans des tubes porte-échantillons pour être dégazés sous vide afin de finaliser leur séchage. L'ensemble a été pesé pour déterminer les masses sèches. Le dispositif est ensuite immergé dans un bain thermostaté contrôlé en température. La méthode utilisée est manométrique, basée sur le calcul de la quantité d'eau adsorbée à partir de l'acquisition de pressions de vapeur et de l'utilisation de la loi des gaz parfaits.

Le processus de mesure consiste à définir une quantité de gaz adsorbée par l'échantillon moyennant l'utilisation du nombre de moles du gaz. Le volume initial est rempli d'un nombre de moles initial donné par la loi des gaz parfaits. Après la détente du gaz dans la cellule contenant l'échantillon, ce dernier se met à absorber une partie du gaz jusqu'à un point d'équilibre donné. Le nombre de moles restant dans la phase gazeuse est ensuite calculé connaissant la basse pression dans le système.

Le volume tampon de référence de chacun des trois ports de mesure est équipé d'un capteur de pression (Figure II. 13). Le volume de l'espace dans la cellule de l'échantillon V_d est appelé "volume mort" et V_s est le volume tampon. Lorsque la cellule de l'échantillon et la quantité d'échantillon varient, le volume V_d varie aussi. La connaissance des valeurs des pressions et des volumes permet de calculer :

- La variation totale de masse d'eau dans le système entre deux injections ou retraits de volumes,
- La variation de masse de vapeur d'eau dans l'éprouvette et d'en déduire la teneur en eau de l'échantillon.

La masse de l'échantillon analysé est de quelques grammes. Cette méthode volumétrique permet de réduire considérablement le temps de mesure, tout en travaillant avec une petite quantité d'échantillon combiné avec un débit dynamique de vapeur d'eau.

Pour vérifier la reproductibilité des résultats, l'appareil est équipé de trois portes-échantillons d'où la notation (1) et (2). Des essais sur les différents matériaux cimentaires présentés dans la section II.1 ont été entrepris à 7, 28 jours et un an d'âge.

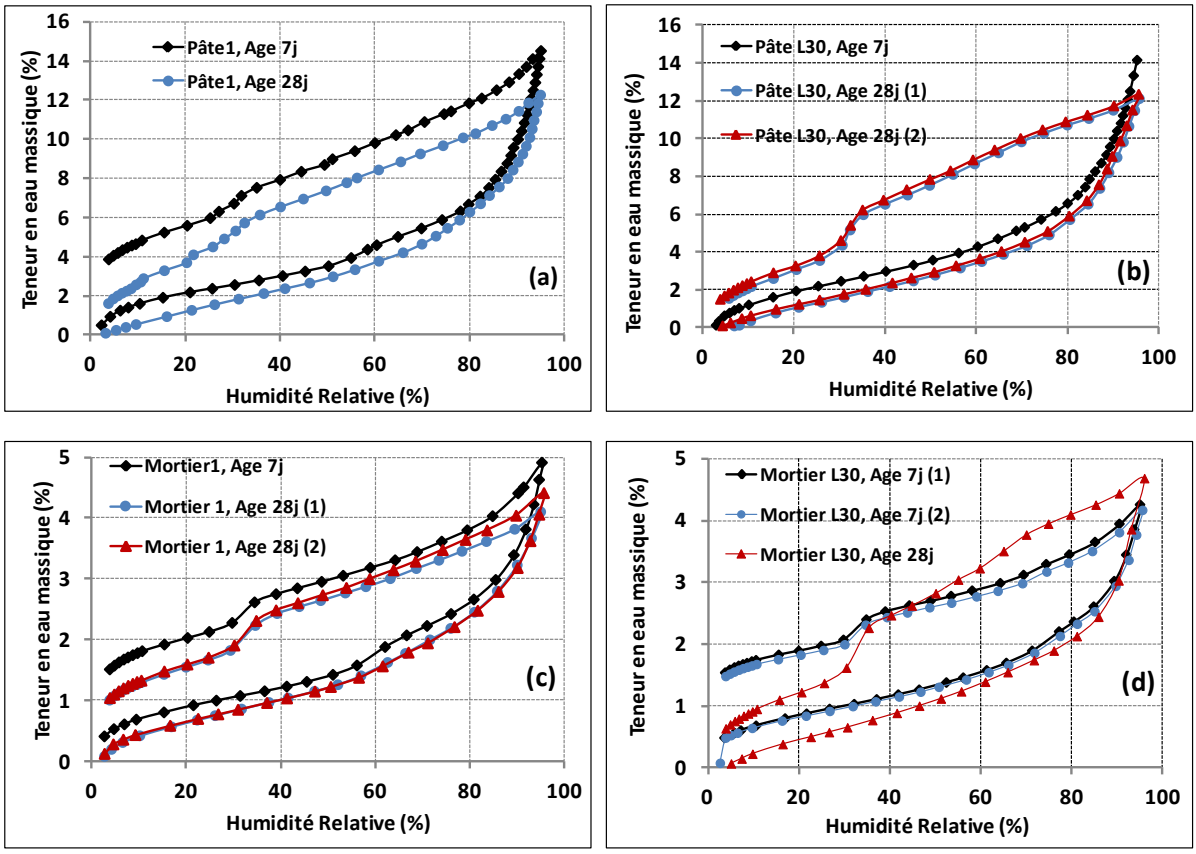


Figure II. 14. Comparaison des isothermes d'adsorption et de désorption de la vapeur d'eau à 20°C à 7 et 28 jours de : (a) pâte de ciment 1, (b) pâte de ciment L30, (c) mortier1 et (d) mortier L30

D'après les résultats présentés dans la Figure II. 14, nous remarquons une influence de l'âge sur le taux d'adsorption et de désorption des matériaux analysés. En effet, une légère diminution de ce taux pour les échantillons à 28 jours est constatée, par exemple la teneur en eau à l'équilibre à 7 jours de la pâte L30 est estimée à 14% à 95% d'humidité relative. Après durcissement de la pâte de ciment (à 28 jours), la capacité d'adsorption de ce même échantillon a diminué de 2%. Les isothermes d'adsorption obtenues présentent une hystérésis entre la sorption et la désorption sur toute la gamme d'humidité qui s'explique par la constructivité du réseau poreux (forme en bouteille d'encre de certains pores). En effet, lors de la désorption, l'eau contenue dans les plus gros pores peut se retrouver piégée par l'eau qui sature les pores les plus fins.

La comparaison présentée dans la Figure II. 15 a un double objectif : (i) illustrer la différence de comportement de sorption entre mortier et pâte de ciment. Nous montrons l'effet des granulats sur la diffusion. Ce volet va être traité en détail plus loin (comparaison sorption pâte de ciment, mortier et béton). (ii) étudier l'effet de la substitution d'une part de ciment (30%) par du laitier de hauts fourneaux. Dans ce cas, peu de différence de comportement est enregistrée à l'âge 28 jours entre les pâtes de ciment et mortiers réalisés avec un ciment

portland CEM I 52,5N et ceux réalisés avec une substitution partielle du ciment par du laitier.

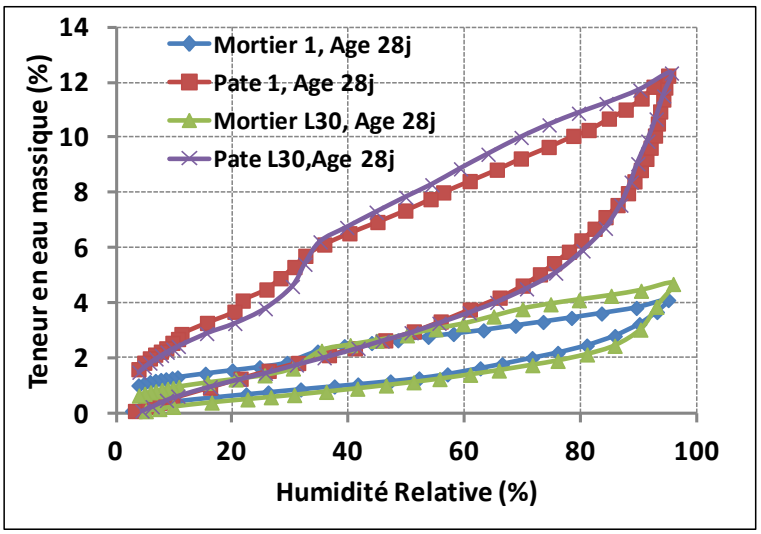


Figure II. 15. Comparaison des isothermes d'adsorption et de désorption à 20 °C de la pâte 1 et L30, du mortier 1 et L30 à 28 jours

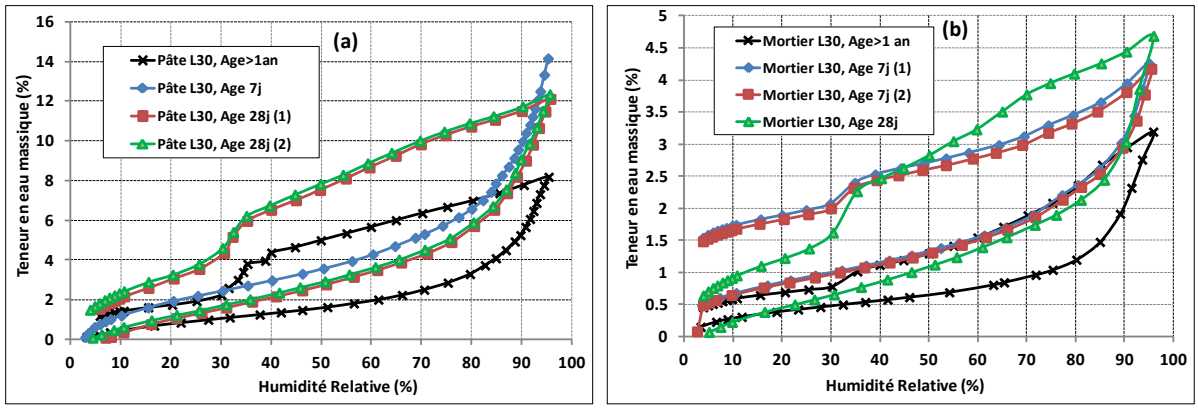


Figure II. 16. Comparaison des isothermes d'adsorption et de désorption à 20°C à 7jours, 28 jours et 1an de : (a) pâte de ciment L30, (b) mortierL30

Notons que l'analyse et la comparaison sont menées à l'âge 28 jours. Sachant que le laitier a une réaction d'hydratation très lente, des essais d'isothermes de sorption à 20°C en suivant le même protocole de pré-conditionnement et de conduite de l'essai ont été entrepris à un âge avancé (~1an) sur des matériaux à base de laitier. Les résultats obtenus sont présentés dans la Figure II. 16. Nous remarquons d'après ces résultats un comportement différent des matériaux à base de laitier après 1 an de conservation. En effet, le taux de sorption et de désorption des matériaux L30 à un âge avancé diminue considérablement. La teneur en eau au voisinage de 90% d'humidité relative diminue de 14% (âge 7 jours) à 8% (âge 1an) dans le cas des pâtes de ciment L30 et de presque 4,5% (âge 7 jours) à 3,5 % (âge 1an) dans le cas des mortiers L30. Ce résultat vient confirmer l'activation lente et tardive du laitier.

La Figure II. 17 présente une comparaison des isothermes de sorption des matériaux réalisés avec un ciment portland et les L30. La comparaison à 28 jours montre que l'ajout du laitier n'as pas d'effet sur le taux de sorption. En revanche, la comparaison avec des matériaux L30 à un âge avancé de 1 an fait ressortir l'effet réducteur du laitier sur la sorption. En effet, d'après De Larrard [117], le laitier ne diminue pas nécessairement la porosité totale mais augmente la tortuosité tout en réduisant la taille des pores et leur connectivité. Ce constat est confirmé d'ailleurs avec les essais de porosimétrie au mercure (Figure II. 4 et Figure II. 5) et son effet est bien visible sur les résultats de sorption.

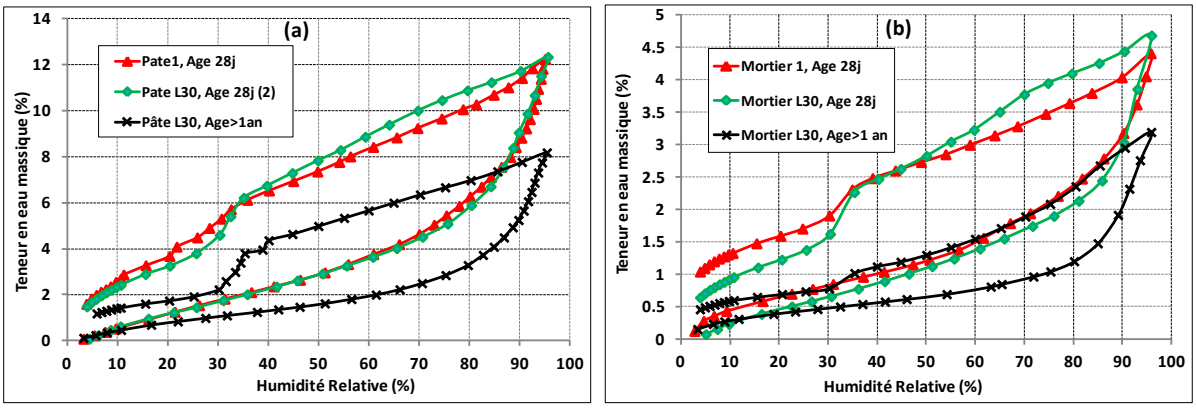


Figure II. 17. Comparaison des isothermes d'adsorption et de désorption à 20°C de : (a) pâte de ciment 1 et L30 (28j et 1an), (b) mortier 1 et L30 (28j et 1an)

En plus de la comparaison présentée dans la Figure II. 16, nous présentons dans la Figure II. 18 une comparaison des isothermes de sorption de la pâte de ciment 1, du mortier et du béton. Elle montre l'effet des granulats sur la diffusion. Nous constatons une diminution du taux de sorption avec la présence des granulats (sable et gravier). Ces granulats sont caractérisés par leur effet contradictoire sur la diffusion. D'une part, de par leur caractère imperméable (Figure II. 19), les granulats diminuent la diffusion et le stockage d'humidité, d'autre part, ils introduisent une auréole de transition dans laquelle la porosité est plus élevée que dans la pâte de ciment et où, par conséquent, la diffusion sera plus importante et le stockage plus faible. Cette dernière sera discutée et démontrée plus loin dans la partie "Capacité de stockage d'humidité" et lors des mesures de la "perméabilité à la vapeur d'eau" par la méthode de la coupelle.

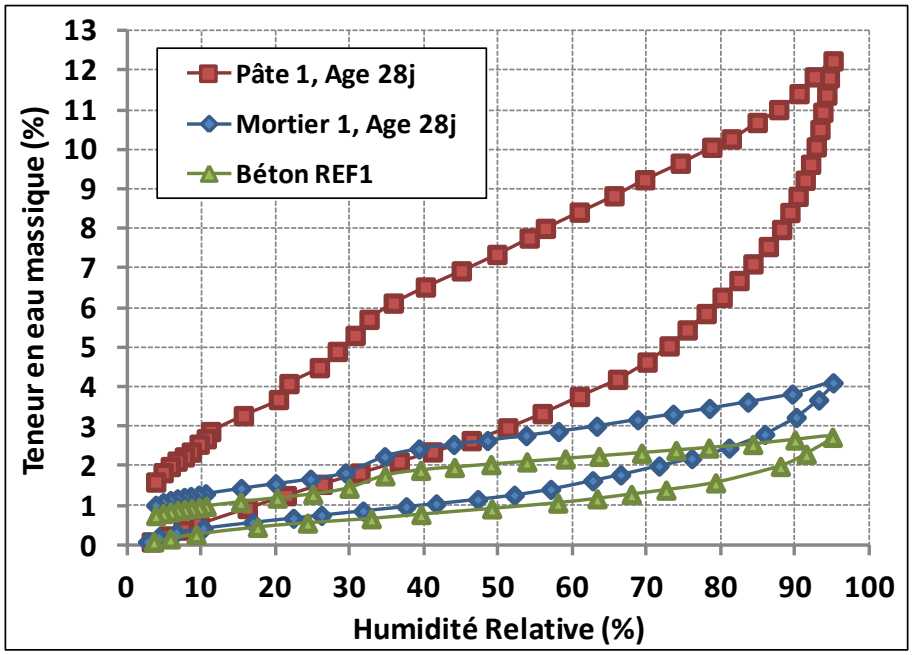


Figure II. 18. Comparaison des isothermes d'adsorption et de désorption à 20°C de la pâte de ciment 1, mortier 1 et du béton REF1

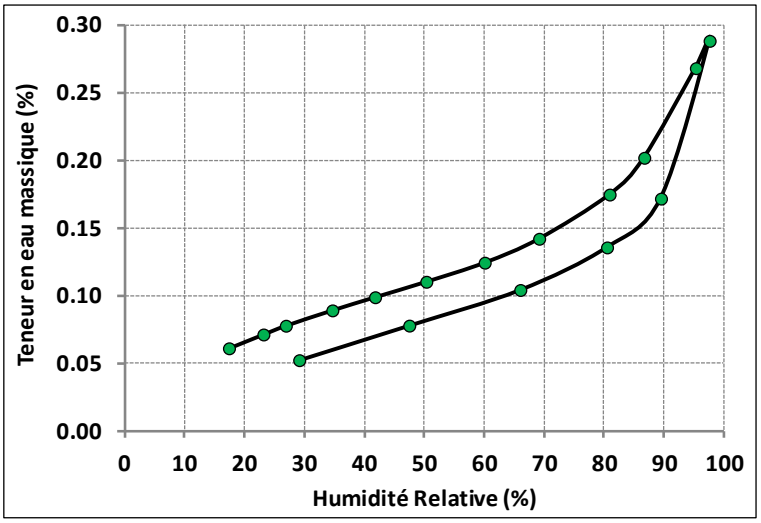


Figure II. 19. Isotherme d'adsorption et de désorption à 20°C du gravier

Un essai d'isotherme de sorption à 20°C est réalisé sur le gravier utilisé lors de la fabrication du béton REF1 dans le but de confirmer le caractère imperméable des granulats et spécialement le gravier. Le résultat est concluant avec une teneur en eau massique maximum d'environs 0,3% dans la plage d'humidité la plus élevée.

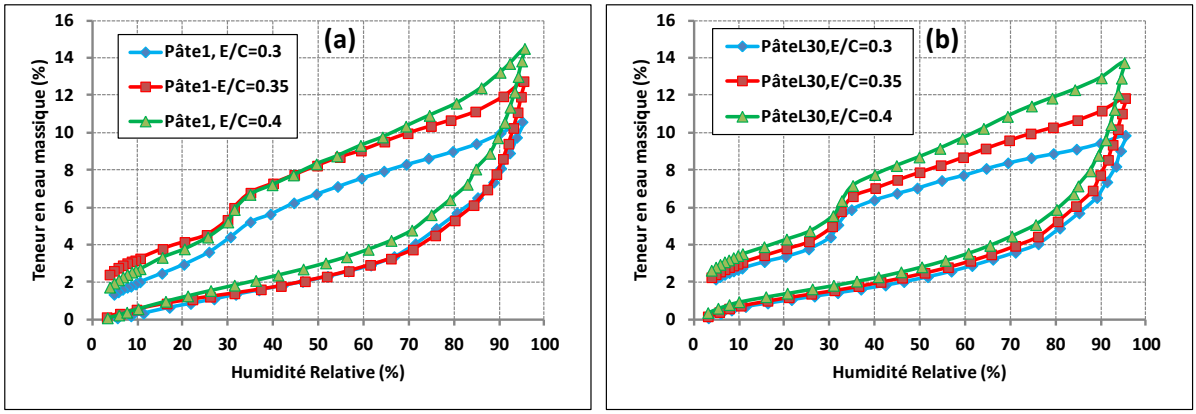


Figure II. 20. Comparaison des isothermes de sorption à 20°C de : (a)Pâte1 et (b) pâte L30 avec différents rapport E/C=0,3 ; 0,35 et 0,4 à 28 jours

La porosité d'un matériau cimentaire varie dans le même sens que le rapport E/C. Plus le rapport E/C est élevé, plus la porosité initiale, à combler par les hydrates, est élevée [153, 154]. La Figure II. 20 montre l'effet du rapport E/C de la pâte de ciment ordinaire et celle avec substitution d'une quantité de ciment par du laitier sur les isothermes d'adsorption et de désorption de la vapeur d'eau. Nous distinguons dans les deux cas un taux de sorption qui augmente avec le rapport E/C. Cela est directement lié à la microstructure du matériau cimentaire avec une évolution du degré d'hydratation en fonction du rapport E/C. Pour bien analyser ces résultats, nous présentons sur la Figure II. 21 l'effet du rapport E/C sur la distribution de la taille des pores des pâtes de ciment et mortier ordinaire issus des travaux de Hamami [15]. Dans ces travaux, Hamami a étudié des pâtes de ciment et mortiers avec différents volumes de pâte et réalisés avec deux rapports E/C (A6 : E/C=0,6 ; A4 : E/C=0,4).

Le matériau A4-50 et A6-50 présentent des mortiers ordinaires avec un rapport E/C de 0,4 et 0,6 respectivement et un volume de pâte de 50%. En revanche, avec 100% de pâte, le A4-100 et le A6-100 présentent des pâtes de ciment avec un rapport E/C de 0,4 et 0,6. Ce résultat confirme notre constat sur l'effet du rapport E/C sur la sorption. En effet, d'après la Figure II. 21, les matériaux ayant un rapport E/C=0,4 ont un mode principal de pores plus petit que les pâtes à E/C=0,6 et présentent un plus petit volume de pores [15] ; ceci leur confère une plus petite porosité totale [154].

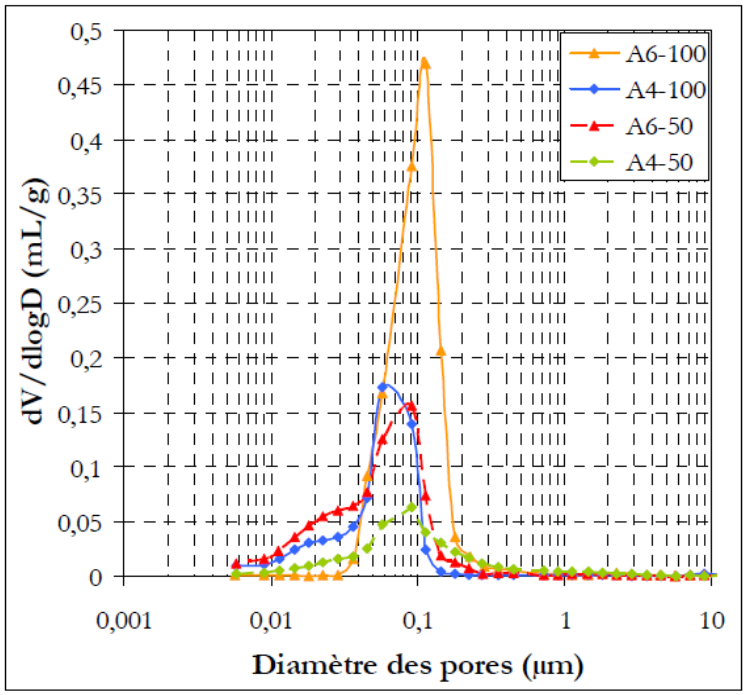


Figure II. 21. Effet du dosage en eau sur la distribution de la taille des pores des pâtes de ciment et mortiers ordinaires [15]

L'effet de la température sur les isothermes d'adsorption et de désorption est aussi étudié dans ce chapitre. La Figure II. 22 illustre une comparaison des résultats d'essais d'isotherme d'adsorption (à gauche) et de la désorption (à droite) d'un béton à différentes température (35°C et 50°C). Les essais sont réalisés sur trois échantillons pour chaque température afin d'éliminer toute incertitude qui serait due à l'échantillonnage et à l'imprécision du dispositif de mesure et autres erreurs. Une légère diminution à 50°C du taux d'adsorption est enregistrée. En revanche, ce constat n'est plus valable sur le comportement en désorption du béton où les nuages de points à différentes températures s'entremêlent.

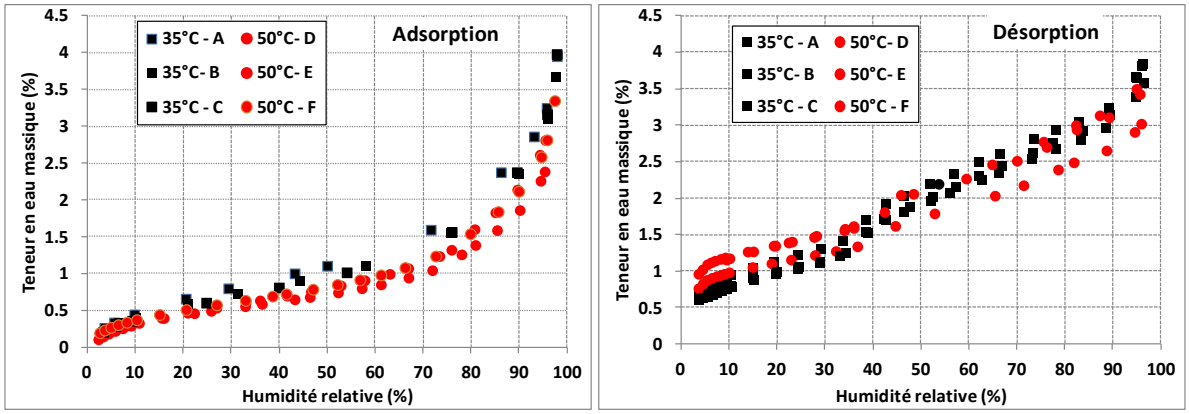


Figure II. 22. Effet de la température sur l'adsorption et la désorption de la vapeur d'eau du béton REF1

D'un point de vue modélisation, l'exploitation de l'isotherme d'adsorption et de désorption ne suffit pas pour traduire le comportement hydrique d'un matériau poreux. En effet, il est

aussi important de s'intéresser à la pente de l'isotherme de sorption car elle permet de définir la capacité du matériau à échanger de l'humidité avec son environnement ; c'est ce qu'on appelle la "capacité de stockage d'humidité" que nous présenterons ci-après.

II.3.2. Capacité de stockage d'humidité C_m

Elle est définie à une constante multiplicative près, par la pente de l'isotherme d'adsorption et de désorption. Elle constitue un paramètre d'entrée de modèles de transferts couplés de chaleur, d'air et d'humidité. Elle est définie comme suit (équation II. 5) :

$$C_m = \frac{\partial \rho^m}{\rho_s \partial \rho_v} = \frac{\partial U}{\partial HR} \frac{1}{\rho_e \rho_{vsat}} \text{ [m}^3\text{/kg]} \qquad \text{II. 5}$$

Avec ρ^m est la teneur en eau volumique du matériau étudié [kg/m^3]; ρ_s présente sa masse volumique [kg/m^3]; ρ_v est la teneur en vapeur [kg/m^3], U est la teneur en eau massique du matériau [kg/kg]; $\rho_e$est la masse volumique de l'eau [kg/m^3] et ρ_{vsat} est la teneur en vapeur saturante [kg/m^3].

Les résultats de l'évolution de la capacité de stockage d'humidité en fonction de l'âge et du rapport E/C du matériau sont présentés dans la Figure II. 23 et la Figure II. 24, respectivement. De façon prévisible, nous notons caractère variable de cette donnée. En effet, elle n'est pas constante selon la gamme d'humidité relative considérée. Le coefficient C_m décroit dans une première plage de faibles humidités relatives, puis se stabilise pour des HR comprises entre 10% et 80% et augmente dans la zone hygroscopique supérieure (HR>80%). Cette variation traduit un type d'isotherme d'adsorption (type II dans notre cas selon la classification de l'IUPAC [23]).

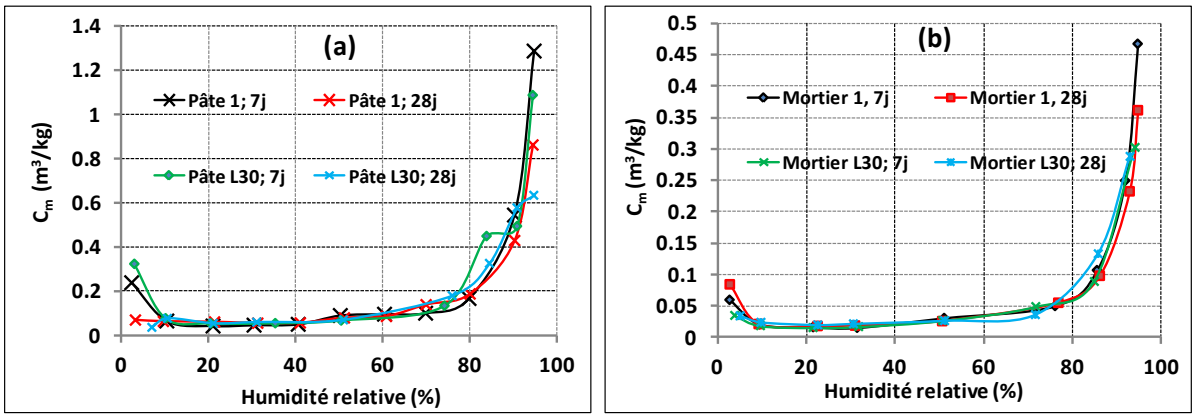


Figure II. 23. Capacité de stockage d'humidité à 7 jours et 28 jours à 20°C de la pâte de ciment 1 et L30 (a)et du mortier 1 et L30 (b)

La variation du coefficient Cm est très significative pour des humidités relatives supérieures à 80%. Par ailleurs, nous constatons que dans la zone hygroscopique supérieure, la capacité de stockage d'humidité diminue à 28 jours. Ce comportement est similaire à l'effet du

rapport E/C qui a un impact non négligeable sur cette propriété de stockage dans cette même plage d'humidité (HR> 80%) (Figure II. 24).

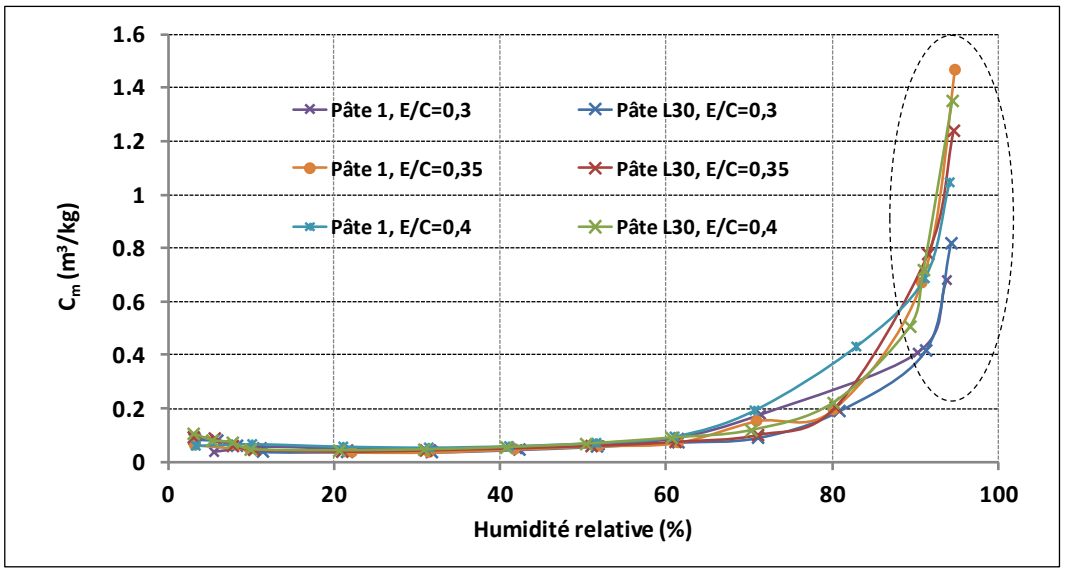


Figure II. 24. Capacité de stockage d'humidité de la pâte 1 et L30 en fonction du rapport E/C (0,3 ; 0,35 et 0,4)

II.3.3. Courbe de rétention d'eau (CRE)

D'après les résultats obtenus, les effets de l'âge du matériau, de l'utilisation des additions minérales (laitier de hauts fourneaux) et du rapport E/C sur les courbes d'isothermes d'adsorption et de désorption ainsi que sur la capacité de stockage d'humidité sont plus prononcés dans les plages d'humidité les plus élevées (HR>80%). Par conséquent, il est intéressant de connaitre le comportement de ces matériaux poreux dans ces plages d'HR élevée (zone de saturation).

La technique d'analyse des isothermes d'adsorption-désorption (Belsorp Aqua3) adoptée dans cette étude est conçue pour une utilisation dans la région hygroscopique. Elle atteint sa limite technique vers 95% d'humidité relative du fait des risques de condensation au-delà de cette limite et de l'imprécision des capteurs dans cette zone. L'utilisation d'un extracteur à membrane a permis de palier à ce problème (Figure II. 25). Les courbes de rétention d'eau (Figure II. 26) obtenues par cette méthode viennent en effet compléter la courbe de désorption dans la zone de condensation capillaire et nous éclairer sur le comportement de nos matériaux dans cette zone.

La méthode adoptée dans le cadre de notre étude est dite : méthode d'extraction par presse à membrane. Elle consiste à poser des échantillons saturés en eau sur une membrane microporeuse en cellulose, l'ensemble est placé dans une chambre sous pression alimentée en azote. Au fur et à mesure que la pression à l'intérieur de la chambre augmente, l'eau présente dans les pores de l'échantillon est extraite puis chassée à travers la membrane

microporeuse pour s'écouler dans la burette extérieure. L'équilibre est atteint lorsque l'écoulement s'arrête pour une pression fixée. Les échantillons testés sont préalablement saturés sous vide. Pour chaque pression exercée, le poids de chaque échantillon est mesuré ainsi que sa masse sèche après un séchage à 105°C afin de calculer sa teneur en eau. La même procédure est appliquée pour chacune des pressions imposées en changeant à chaque fois la membrane et l'échantillon. L'essai est réalisé sur des pâtes de ciment 1 et L30 avec les différents rapports E/C (0,3 ; 0,35 et 0,4) à 28 jours d'âge.

L'extracteur utilisé est un extracteur 10 MPa (Figure II. 25) modèle 1020 de Soil-Moisture Equipment Corp (USA). Les membranes de cellulose utilisées (modèle numéro 1041D12) sont constituées de lames en cellulose régénérée. Elles présentent une épaisseur de 20 µm et un rayon de pores de 2,4 nm.

Figure II. 25. Extracteur à membrane

Les courbes de rétention d'eau ainsi obtenues sont présentées dans la Figure II. 26. On y constate que la teneur en eau de ces pâtes de ciment est légèrement sensible au changement de la pression capillaire. Elle diminue d'environ 2% en teneur en eau en passant de 0 MPa à 10 MPa sauf pour la pâte de ciment L30 avec un rapport E/C=0,4 où cette diminution est de 4%.

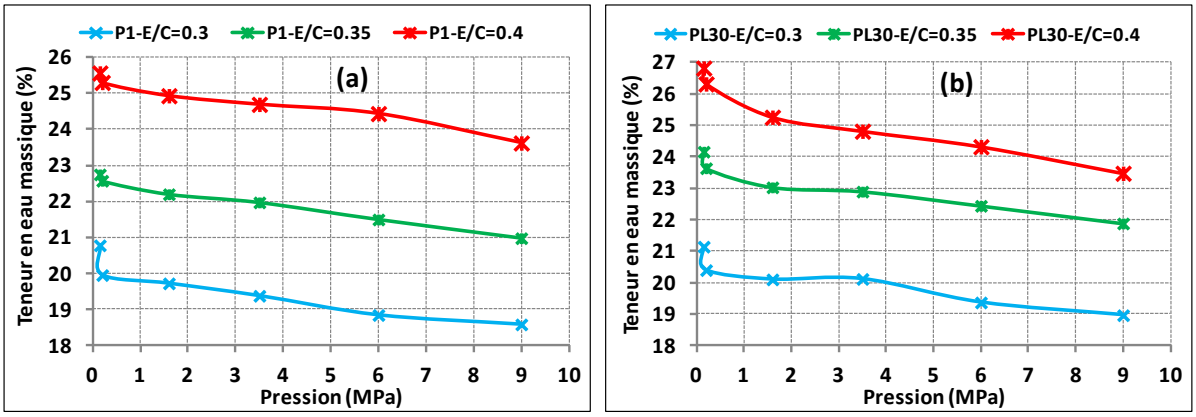


Figure II. 26. Courbe de rétention d'eau en fonction du rapport E/C de la pâte de ciment 1 (a) et de la pâte de ciment L30 (b) à l'âge 28 jours

De manière indirecte, ces résultats complètent la courbe d'isotherme de désorption de la vapeur d'eau des pâtes de ciment 1 et L30. La loin de Kelvin reliant l'humidité relative et la succion (Tableau II. 4) permet de faire le lien entre ces deux procédures d'essai (équation II. 6) :

$$P_c = -\frac{RT\rho_l}{M}\ln(HR) \qquad \text{II. 6}$$

Avec : P_c [Pa] est la pression capillaire ; ρ_l [kg/m^3] est la masse volumique de l'eau ; HR [–] est l'humidité relative ; M [kg/mol] est la masse molaire de l'eau ; R[J/mol. K] est la constante des gaz parfaits ($R = 8{,}31443$ J/mol. K) et T [K] est la température absolue. D'où l'expression de *HR* (équation II. 7):

$$HR = \exp\left(-\frac{P_c\, M}{RT\rho_l}\right) \qquad \text{II. 7}$$

Tableau II. 4. Valeurs de la succion et de l'humidité relative issues de la relation de Kelvin (équation II. 7)

Succion (MPa)	Humidité relative (%)
0	100
0,15	99,89
0,2	99,85
0,4	99,71
0,9	99,34
1,6	98,84
3,5	97,49
6,0	95,74
9,0	93,67

Les résultats de la Figure II. 27 et de la Figure II. 28 montrent un comportement hydrique plus complet des matériaux poreux. Ce résultat, obtenu par rétention d'eau, fait apparaître un autre palier de teneur en eau pour les fortes humidités. La courbe de l'isotherme de désorption complète obtenue correspond à la description de type IV de l'IUPAC (Figure II. 29). Elle a la même allure que la courbe de type II (Figure II. 20) pour les faibles et moyennes valeurs des pressions partielles. Pour les pressions les plus élevées, elle est caractérisée par un palier de saturation. On distingue, à partir de la courbe de désorption obtenue, trois régions : la première entre 0 et 30% d'humidité relative où le transfert est régi majoritairement par la phase vapeur ; dans la plage d'humidité 30%-90%, on a une compétition entre deux modes de transfert, la diffusion de la vapeur d'eau et la migration de la phase liquide. Enfin, la dernière plage qui correspond à la zone de condensation capillaire (HR>90%), le transfert est régi principalement par l'advection de la phase liquide.

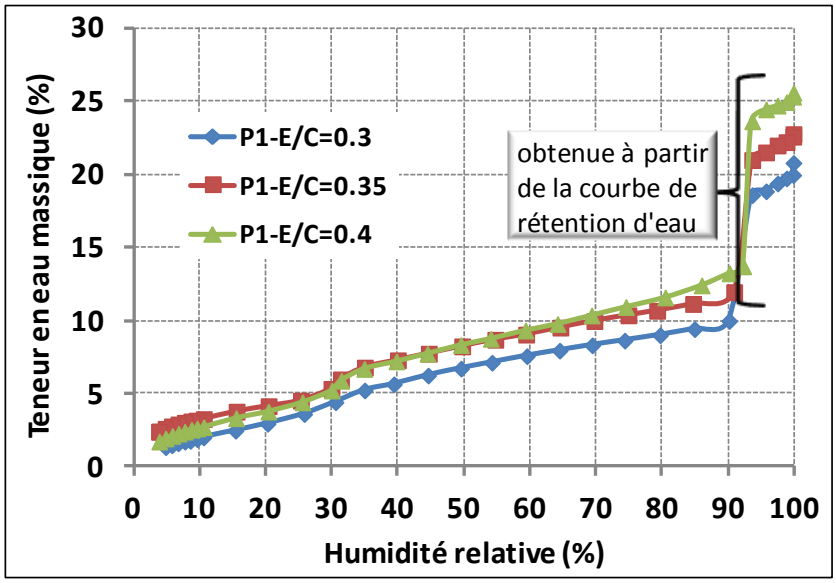


Figure II. 27. Courbe de désorption complète de la vapeur d'eau de la pâte de ciment 1 à 28 jours d'âge

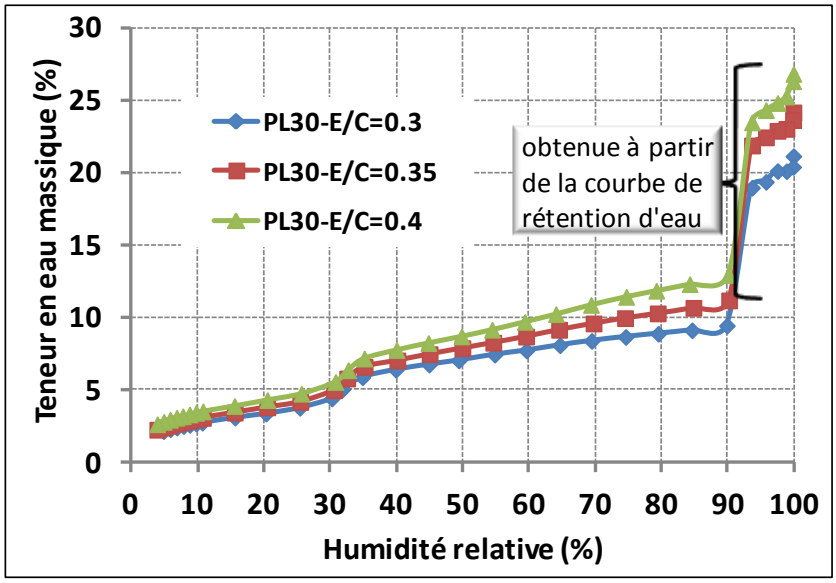


Figure II. 28. Courbe de désorption complète de la vapeur d'eau de la pâte de ciment L30 à 28 jours d'âge

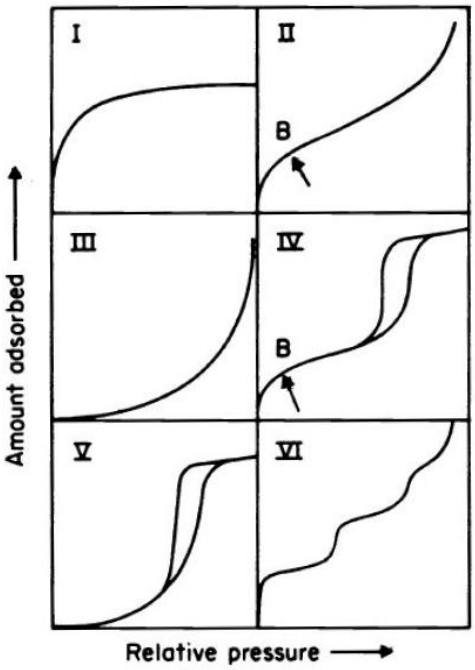


Figure II. 29. Classification des isothermes d'adsorption physique donnée par l'IUPAC [23]

II.3.4. Modélisation des isothermes d'adsorption et de désorption

Le processus d'adsorption et de désorption de la vapeur d'eau des matériaux poreux de construction est un phénomène long qui dépend de la nature du matériau. Il existe dans la littérature un nombre considérable de modèles décrivant ce phénomène de sorption [114, 115]. Dans notre étude, nous nous intéressons plutôt aux modèles ayant une base théorique avec des paramètres possédant une signification physique, ce qui permet une interprétation plus précise des résultats expérimentaux.

Notre choix s'est porté sur les modèles GAB et GDW exposés dans le chapitre I qui sont largement utilisés dans la littérature. Pour rappel, leurs expressions sont les suivantes :

Modèle GAB

$$U = \frac{m.C.K.HR}{(1-K.HR)(1-K.HR+C.HR)} \qquad \text{II. 8}$$

Modèle GDW

$$U = \frac{m.K.HR}{1+K.HR} \cdot \frac{1-k(1-w)HR}{1-k.HR} \qquad \text{II. 9}$$

Où U est la teneur en eau massique ; m est la capacité monocouche ; w représente le taux de molécules adsorbées sur les sites primaires qui se transforment en sites secondaires d'adsorption ; U est la teneur en eau massique ; HR représente l'humidité relative et enfin, C, K et k sont des constantes cinétiques reliées à l'adsorption des sites primaires et

secondaires. Pour juger de la pertinence des résultats, un critère de performance "R^2" est utilisé. Il représente le coefficient de détermination. Il mesure la qualité de l'ajustement des estimations de l'équation de régression.

$$R^2 = 1 - \frac{\sum_i (U_i - \widehat{U}_i)^2}{\sum_i (U_i - \overline{U})^2} \qquad \text{II. 10}$$

Où U_i est la teneur en eau de la i^{ème} mesure expérimentale [%]; $\widehat{U}_i$ est la teneur en eau théorique [%] et $\overline{U}_i$ est la moyenne des teneurs en eau mesurées [%].

Tableau II. 5. Paramètres associés aux modèles GAB et GDW pour les différents matériaux étudiés

Matériau	Modèle	m	C	K	k	w	R^2
Pâte 1- Age 7j	GAB	2,123	24,24	0,9077	-	-	0,9941
	GDW	3,964	-	4,86	0,9559	0,3401	0,9981
Pâte 1- Age 28j	GAB	2,101	4,561	0,8875	-	-	0,9962
	GDW	465,9	-	0,01039	0,9365	0,1991	0,9981
Pâte L30- Age 7j	GAB	2,053	13,3	0,9073	-	-	0,9961
	GDW	4,59	-	3,02	0,9524	0,3211	0,9995
Pâte L30- Age 28j	GAB	2,016	3,245	0,8908	-	-	0,9975
	GDW	18,63	-	0,2487	0,9297	0,2962	0,9984
Mortier 1- Age 7j	GAB	0,949	32,79	0,8674	-	-	0,9954
	GDW	1,028	-	19,41	0,8947	0,6733	0,9956
Mortier 1- Age 28j	GAB	0,962	7,29	0,8416	-	-	0,999
	GDW	1,199	-	4,275	0,8642	0,6955	0,9991
Mortier L30- Age 7j	GAB	0,858	45,3	0,8631	-	-	0,9974
	GDW	0,9781	-	20,76	0,9049	0,5667	0,9987
Mortier L30- Age 28j	GAB	0,6807	6,697	0,9035	-	-	0,9941
	GDW	4,501	-	0,5197	0,9628	0,1778	0,9984
Pâte 1- E/C=0,3	GAB	2,109	2,007	0,8722	-	-	0,9992
	GDW	15,42	-	0,2184	0,8852	0,5585	0,9992
Pâte 1- E/C=0,3 (Courbe complète)	GAB	4,672	9,537	0,8224	-	-	0,9811
Pâte 1- E/C=0,3 Belsorp	GAB	21,31	3,182	0,3369	-	-	0,997
Pâte 1- E/C=0,3	GAB	4,672	9,537	0,8224	-	-	0,9811
Pâte 1- E/C=0,35	GAB	1,406	6,009	0,9392	-	-	0,9993
	GDW	4,674	-	1,071	0,9581	0,412	0,9997
Pâte 1- E/C=0,4	GAB	2,004	4,525	0,9142	-	-	0,9992
	GDW	9,553	-	0,6131	0,944	0,3377	0,9998
Pâte L30- E/C=0,3	GAB	1,515	6,028	0,9002	-	-	0,9983
	GDW	5,472	-	0,9717	0,9451	0,2954	0,9992
Pâte L30- E/C=0,35	GAB	1,417	9,457	0,9301	-	-	0,9979
	GDW	3,961	-	1,781	0,9616	0,3391	0,9995
Pâte L30- E/C=0,4	GAB	1,632	12,16	0,9325	-	-	0,9984
	GDW	3,203	-	3,43	0,9595	0,4367	0,9995

Le Tableau II. 5 montre les paramètres associés aux modèles ainsi que le critère de performance correspondant. Sur la base du critère de performance "R^2", nous pouvons affirmer que les deux modèles reproduisent bien le comportement du matériau vis-à-vis de l'adsorption (Figure II. 30).

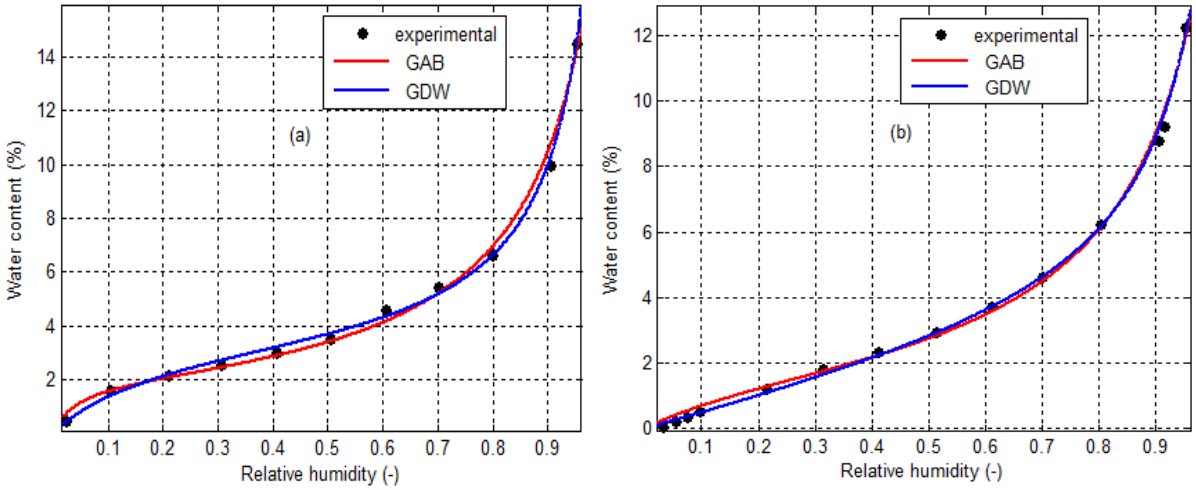


Figure II. 30. Isotherme de sorption de la pâte 1 à l'âge 7 jours (a) et 28 jours (b)

La Figure II. 30 montre les isothermes d'adsorption (pâte de ciment 1) obtenues à partir des modèles exposés ci-dessus (équation II. 8 et II. 9). Les paramètres ont été estimés par régression selon la méthode des moindres carrées non linéaire.

La finesse des modèles de transfert hygrothermique est étroitement liée à celle de leurs paramètres d'entrée. La Figure II. 31 représente deux courbes d'isothermes de désorption de la même pâte de ciment (pâte1- E/C=0,3) obtenue à partir du modèle de GAB. La première courbe, de couleur bleue, est obtenue en utilisant les résultats expérimentaux de l'essai de sorption Belsorp Aqua3 et la seconde, de couleur rouge, est obtenue en combinant celui-ci avec l'essai de rétention d'eau (extracteur à membrane). Nous montrons par cette comparaison que la teneur en eau dans la zone de saturation est partiellement décrite si l'on utilise seulement les résultats obtenus par le Belsorp.

La teneur en eau à saturation est une donnée d'entrée importante pour les modèles de transfert de chaleur et de masse. Ces résultats montrent une grande différence entre les deux expériences: essai volumétrique avec et sans courbe de rétention d'eau. De ce fait, l'utilisation de l'extracteur à membrane permet de corriger ou d'obtenir la teneur en eau dans la zone de saturation. La teneur en eau à 100% d'humidité relative est d'environ 22% au lieu de 11% mesuré avec le test de sorption seul (Figure II. 31).

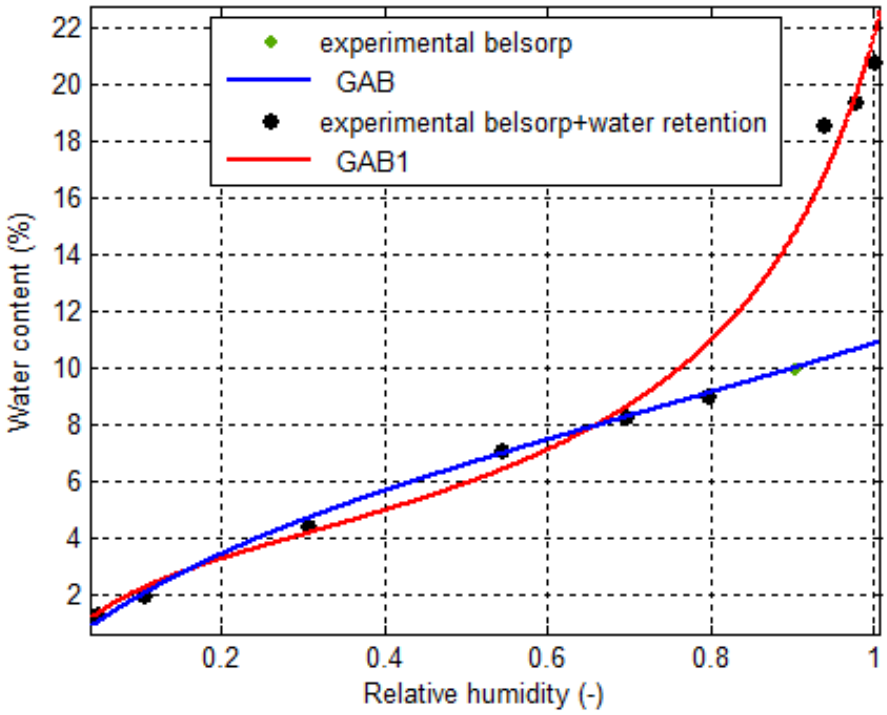


Figure II. 31. Comparaison de l'isotherme de désorption de la pâte 1

II.3.5. Perméabilité à la vapeur d'eau

En termes d'analyse du comportement hydrique, la perméabilité à la vapeur d'eau est la propriété la plus mesurée pour les matériaux de parois de bâtiment. Le coefficient de perméabilité à la vapeur d'eau d'un matériau permet de caractériser ses propriétés «d'étanchéité/fuite». Il représente la quantité de vapeur transmise à travers une surface par unité de temps, de pression et d'épaisseur. Cette propriété dépend de la nature du matériau et de son état hydrique.

Le coefficient de perméabilité à la vapeur d'eau est déterminé par la méthode de la coupelle en utilisant la norme NF EN ISO 12572 [155]. Elle consiste à créer un gradient de pression de vapeur entre les deux compartiments amont et aval de l'échantillon (Figure II. 33), ce gradient est assuré grâce à l'application de deux hygrométries différentes (93% à l'intérieur de la coupelle, 50 % à l'extérieur) pour une température uniforme de 23°C.

L'équipement (Gravitest, GINTRONIC, Suisse) (Figure II. 32), utilisé pour la mesure de la perméabilité à la vapeur d'eau, se compose d'une enceinte à température et humidité régulées dans laquelle sont placées six coupelles dont la pesée est automatisée. La dimension des échantillons est d'environ 8 cm de diamètre et 1cm d'épaisseur. L'humidité relative à l'intérieur de la coupelle est assurée par une solution saline saturée de KNO_3 (93%). Deux types de matériaux (pâte et mortier) sont analysés lors de l'essai, avec, pour chaque type, un échantillon témoin (sans solution saline saturée). La durée d'un essai de perméabilité est

d'environ 20 jours, selon la nature du matériau. L'équilibre est déterminé par la stabilité de la masse de l'échantillon sur une durée de 48h selon le critère d'équilibre suivant :

$$\frac{m(t) - m(t + 48h)}{m(t + 48h)} \leq 0{,}1\% \qquad \text{II. 11}$$

Avant l'essai, les éprouvettes sont stockées dans une ambiance à température uniforme de (23±5) °C et de (50±5) % d'humidité relative pendant une période assez longue (durée dépendant de la nature du matériau, de ces dimensions, etc.) selon la norme pour que leurs masses se stabilisent.

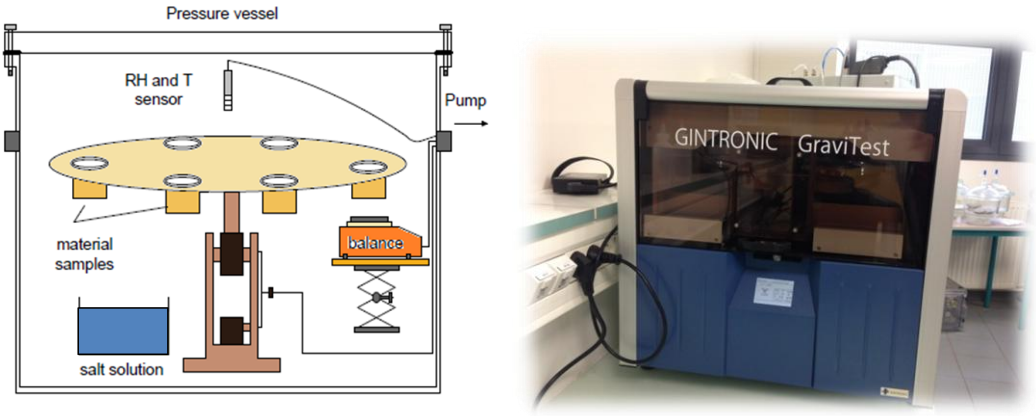


Figure II. 32. Dispositif expérimental de mesure de la perméabilité à la vapeur d'eau par la méthode de la coupelle de type Gintronic Gravitest

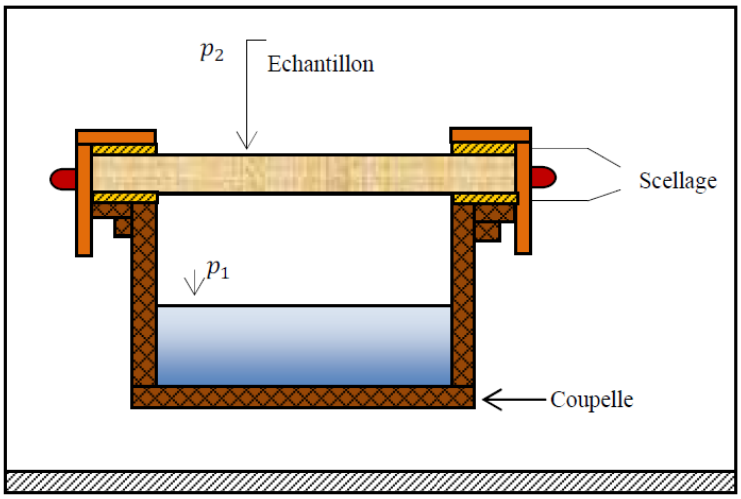


Figure II. 33. Schéma représentatif d'une coupelle

Plusieurs propriétés peuvent être obtenues au moyen de cet appareil :

Perméance à la vapeur d'eau W : c'est le rapport entre le flux de vapeur d'eau et la différence de pression partielle de vapeur d'eau entre les deux faces de l'éprouvette au cours de l'essai. Une perméance de façade de bâtiment mal contrôlée peut engendrer :

- Une dégradation des matériaux ;
- Une diminution des performances thermiques des isolants ;
- Une diminution de la résistance mécanique des différents matériaux de la paroi ;
- La corrosion des armatures dans le béton armé ;
- Une détérioration de la qualité de vie des occupants d'un bâtiment suite à une humidité inadéquate dans l'espace habité.

Résistance à la vapeur d'eau Z : c'est l'inverse de la perméance à la vapeur d'eau.

Facteur de résistance à la vapeur d'eau μ : c'est la résistance d'un matériau à se laisser traverser par la vapeur d'eau rapportée à celle d'une couche d'air stationnaire d'épaisseur identique à la même température. Autrement dit, ce facteur indique dans quelle mesure la vapeur d'eau traverse plus difficilement ce matériau que l'air. La valeur de ce facteur est toujours supérieure à 1. Il est calculé par le rapport de la perméabilité à la vapeur d'eau de l'air divisée par la perméabilité à la vapeur d'eau du matériau étudié.

Épaisseur équivalente d'air Sd : C'est un paramètre très important pour l'appréciation des écrans sous-toiture/pare-pluie et des frein/pare-vapeur afin de déterminer leurs domaines d'application. Plus la valeur de Sd est proche de zéro, plus la perméance est importante et inversement. C'est l'épaisseur d'une couche d'air calme dont la résistance à la diffusion de vapeur d'eau est égale à celle du matériau testé.

Une série de facteurs affecte la précision des valeurs mesurées :

- Surface de l'échantillon : Le diamètre d'une coupelle d'essai cylindrique doit être mesuré avec une précision de ±0,5 mm. Pour certains types de coupelles, il est nécessaire de prendre des précautions pour compenser l'effet d'un "bord masqué". Dans notre cas, il n'y a pas de dépassement de bords car nous avons utilisé une carotteuse dont le diamètre correspond exactement à celui de la coupelle.
- Épaisseur de l'échantillon : Si on doit mesurer la perméabilité d'un matériau, la précision avec laquelle on peut mesurer l'épaisseur de l'éprouvette aura une influence directe sur la précision du résultat. Dans notre cas, un pied à coulisse à affichage numérique est utilisé, dont la précision est au centième de millimètre.
- Produit de scellement : Un joint défectueux engendrera la mesure d'un flux plus important dans l'une des éprouvettes. Un soin particulier est nécessaire pour éviter les fuites et des résultats aberrants. Une cire spéciale est utilisée dans notre cas.
- Précision de la pesée : comme les pesées sont automatiques, la précision de la balance est liée aux performances de l'équipement Gravitest. Cette précision est de ±0,4 mg.

La Figure II. 34 présente l'évolution du flux de vapeur d'eau au cours de l'essai de la coupelle. Elle montre l'équilibre après 25 jours de temps pour les matériaux à 7 jours d'âge et après environ 14 jours à un âge de 28 jours. Cela est dû au temps de pré-conditionnement qui est plus important pour les matériaux à 28 jours. Les résultats obtenus après calcul sont récapitulés dans le Tableau II. 6. Les matériaux testés ont subi avant l'essai un arrêt d'hydratation à 7 jours et 28 jours pour éviter l'avancement de l'hydratation au cours de l'essai.

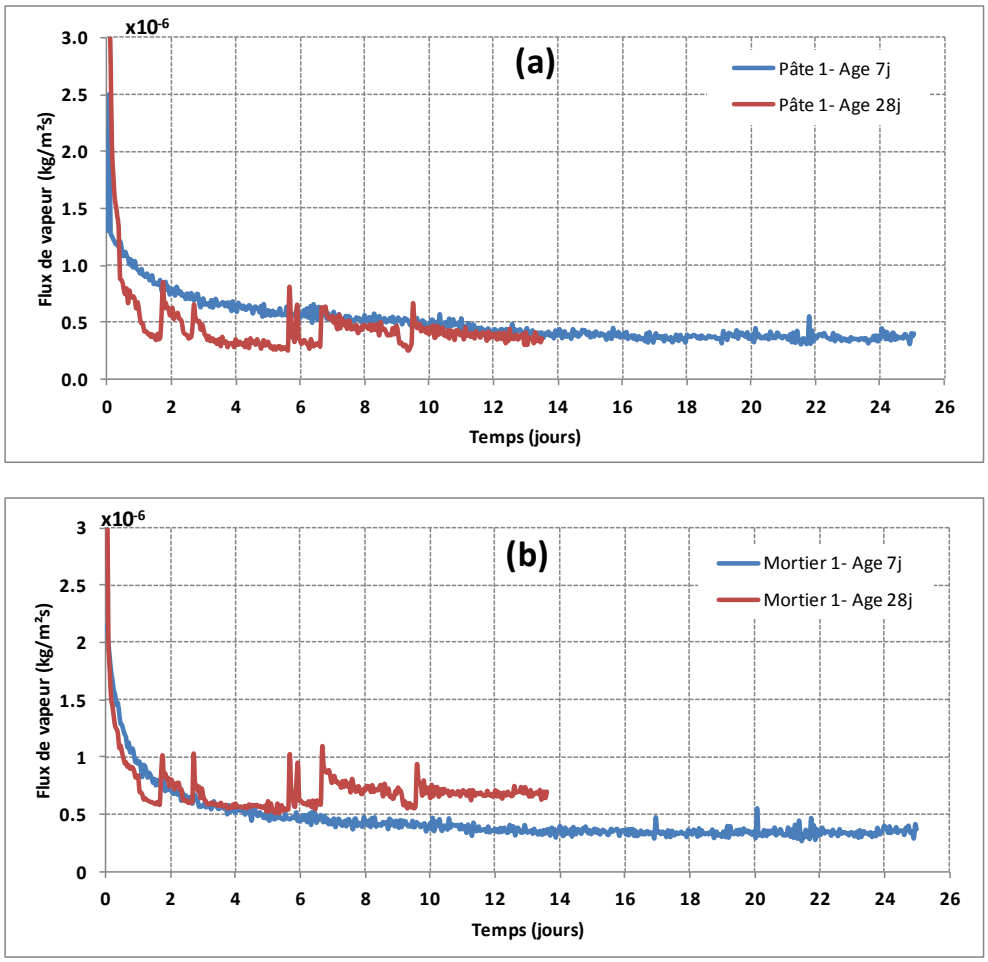


Figure II. 34. Évolution du flux de vapeur en fonction du temps de :
(a) la pâte de ciment 1 et (b) du mortier 1 en fonction de l'âge

Tableau II. 6. Résultat d'essai de perméabilité à la vapeur d'eau

	Age (jour)	μ [-]	Sd [m]	W [kg/m^2.s.Pa] x10^{-10}	δ [kg/m.s.Pa] x10^{-12}
Pâte1	7	50,9	0,64	3,04	3,83
	28	88,7	0,89	2,43	2,21
Mortier1	7	53	0,66	2,92	3,67
	28	62,2	0,43	4,47	3,16
Pâte L30	7	63,7	0,41	4,76	3,10
	28	74,3	0,59	3,32	2,66
Mortier L30	7	45,2	0,29	6,72	4,37
	28	52,6	0,42	4,66	3,73

Avec μ [-] est le facteur de résistance à la vapeur d'eau ; Sd [m] est l'épaisseur équivalente d'air ; W [kg/m^2.s.Pa] est la perméance à la vapeur d'eau et δ [kg/m.s.Pa] est la perméabilité à la vapeur d'eau.

De ces résultats (Tableau II. 6), nous distinguons une légère diminution de la perméabilité à la vapeur avec l'âge du matériau cimentaire (pâte de ciment, mortier). Cette diminution est liée à l'évolution de la microstructure du matériau (porosité, tortuosité, distribution de la taille des pores…) et de sa maturité suite à l'évolution de son hydratation entre 7 et 28 jours.

En ce qui concerne le comportement des matériaux L30 ; il nous est difficile de commenter ce résultat à 28 jours compte tenu de l'hydratation tardive et lente du laitier. En effet, le comportement en sorption des matériaux L30 à un âge avancé (1 an) présenté dans la Figure II. 17 est totalement différent de son comportement à 28 jours.

II.4. Propriétés thermiques

II.4.1. Conductivité thermique

L'étude de la conductivité thermique des milieux poreux est rendue compliquée car selon le gradient d'humidité relative, de la température et du squelette du milieu poreux (la structure n'est connue que d'une façon grossière), les contributions de chaque phase (solide, liquide et gazeuse) au transfert de chaleur varient.

Il existe plusieurs techniques de mesure de la conductivité thermique. Elles peuvent être classées en deux catégories ; en régime permanent telle que la méthode de la plaque chaude gardée et en régime transitoire telles que la méthode "flash" et "sondes à chocs".

Dans ce travail, la conductivité thermique est mesurée en utilisant la méthode normalisée de la plaque chaude gardée selon les normes EN 12667 [156]et EN 12664 [157]. C'est la méthode la plus utilisée pour les faibles conductivités thermiques *(λ<1 w/m^2 K)* c'est à dire pour les matériaux solides isolants. Le principe de l'appareillage (λ-Meter EP 500,

Allemagne) (Figure II. 35) utilisé pour la mesure est de reproduire les conditions de transfert de chaleur à travers une plaque de surface infinie et d'épaisseur limitée par deux plans parallèles et isothermes. L'éprouvette est placée entre une plaque froide et une plaque chaude et est soumise à un gradient de température fixé. Un anneau de garde autour de la zone de mesure empêche les dissipations de chaleur transversales et permet de diriger le flux de chaleur au travers de l'épaisseur de l'échantillon. La conductivité thermique du matériau est alors directement calculée à partir de la puissance électrique dispensée par l'appareil. Le principe de la mesure de la conductivité thermique λ repose sur le rapport entre le flux de chaleur qui traverse le matériau et le gradient de température qu'il génère selon la relation suivante :

$$\lambda = \frac{U.I.d}{S.\Delta T} \ [w/m^2\ K] \qquad \text{II. 12}$$

Avec $U.I[VA]$ est la puissance électrique ; $d[m]$ est l'épaisseur de l'échantillon tésté ; $S[m^2]$ est la surface d'échange et ΔT[K] est le gradient de température.

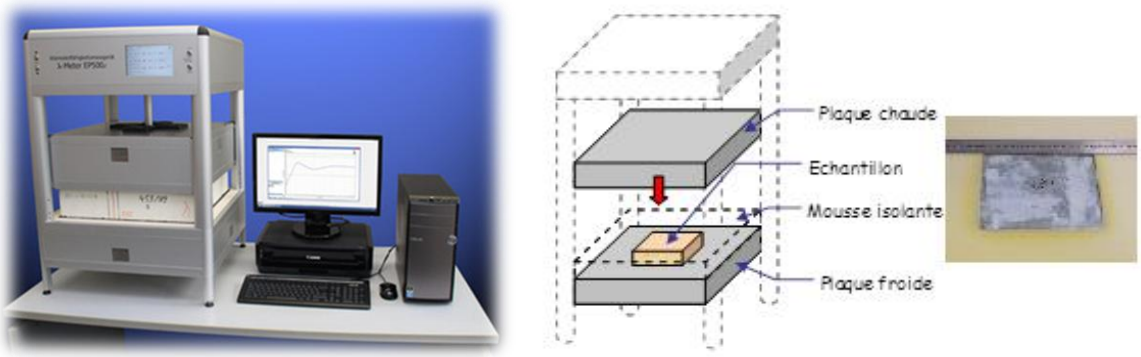


Figure II. 35. Dispositif de mesure de la conductivité thermique en régime permanent (λ-Meter EP 500)

La taille de l'échantillon est au minimum de $15 \times 15\ cm^2$ et au maximum $50 \times 50\ cm^2$ avec une épaisseur qui peut varier (4cm d'épaisseur dans notre cas). Le matériau doit être homogène et bien plan en surface.

La conductivité thermique est obtenue pour trois températures différentes (10°C, 20°C et 30°C) avec une différence de température entre les deux plaques de 10°C. Un même échantillon est utilisé pour la mesure selon les trois températures. Les résultats obtenus sont récapitulés dans la Figure II. 36, Figure II. 37 et dans le Tableau II. 7 présentant les résultats bruts de l'essai en question des différents matériaux testés après une conservation de 28 jours dans une salle humide dont la température est de 20±2 °C et l'humidité relative de 95±3%. Les essais ont été menés à 28 jours d'âge.

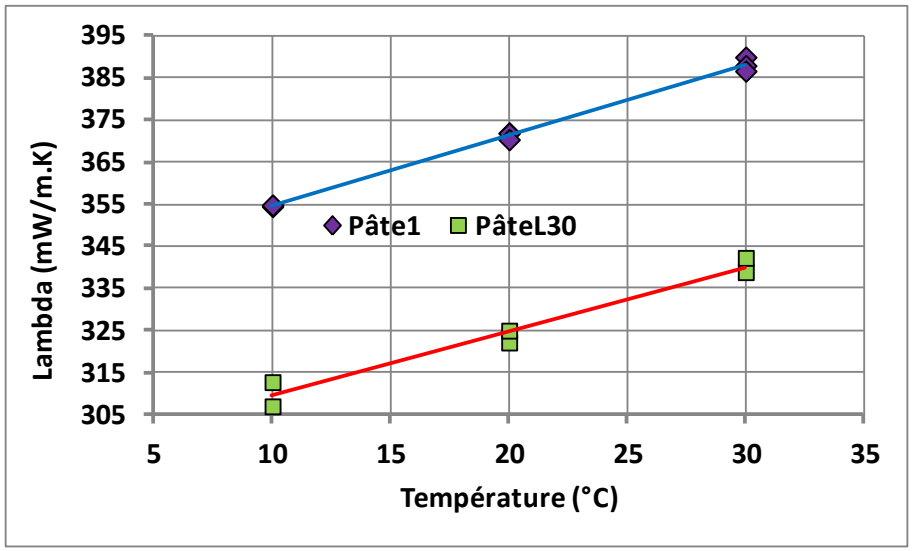


Figure II. 36. Comparaison de la conductivité thermique en fonction de la température de la pâte1 et pâteL30 à 28 jours d'âge

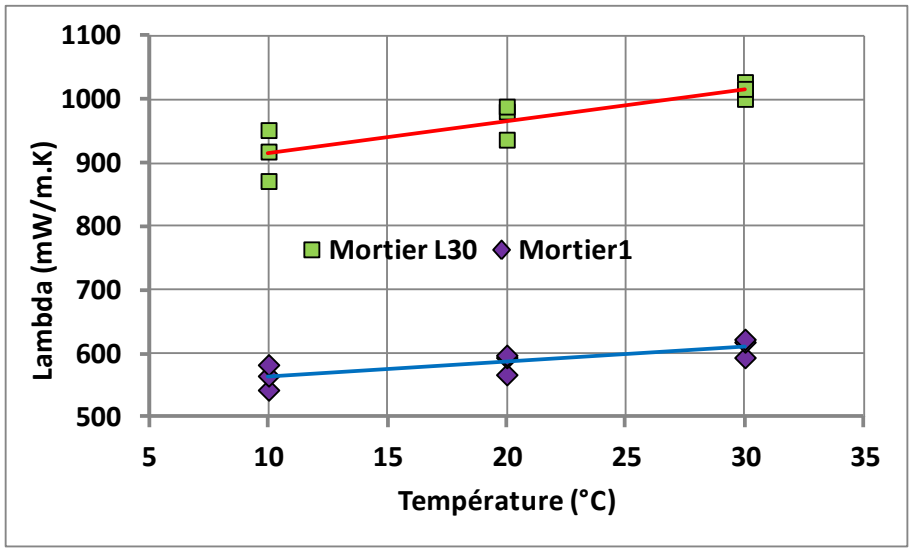


Figure II. 37. Comparaison de la conductivité thermique en fonction de la température du mortier1 et mortierL30 à 28 jours d'âge

La conductivité thermique du matériau évolue en fonction de la température d'essai (Figure II. 36 ; Figure II. 37). Elle dépend aussi de celle de chaque constituant. En effet, la conductivité thermique de la pâte1 est sensiblement supérieure à celle de la pâte avec substitution d'une partie de ciment (30%) par du laitier de hauts fourneaux. Ces mesures sont effectuées sur des échantillons sous un état hydrique ambiant (température et humidité ambiantes). Les mortiers de type L30 ont une conductivité thermique plus importante que les mortiers ordinaires (mortier1).

Tableau II. 7. Résultats des essais de conductivité thermique sur des matériaux à un âge ≥28 jours

		$\lambda\ (mW/m.K)$		
	Température (°C)	10	20	30
Pâte1	Pâte1-1	354,80	372,00	390,00
	Pâte1-2	354,50	371,90	388,00
	Pâte1-3	354,80	370,40	386,70
Écart-type $(mW/m.K)$		0,17	0,89	1,66
PâteL30	Pâte L30-1	307,85	322,17	338,90
	Pâte L30-2	312,75	325,90	342,30
Mortier1	Mortier1-1	542,90	567,20	594,30
	Mortier1-2	565,10	594,30	618,40
	Mortier1-3	582,50	597,50	622,60
Écart-type $(mW/m.K)$		19,84	16,69	15,44
MortierL30	Mortier L30-1	871,90	937,00	1001,20
	Mortier L30-2	918,30	981,30	1027,00
	Mortier L30-3	952,10	989,10	1017,00
Écart-type $(mW/m.K)$		40,26	28,10	13,33

Cette propriété est fortement dépendante de l'état hydrique des matériaux. Plusieurs travaux de la littérature ont montré l'effet de la teneur en eau du matériau sur sa conductivité thermique [158, 36]. La Figure II. 38 présente une évolution de la conductivité thermique du mortier L30 en fonction de sa teneur en eau massique lors d'un essai conduit à 10 °C. Nous distinguons de ce résultat une évolution quasi linéaire dont la droite de régression est : $\lambda = 36{,}803\ U + 825{,}56$; avec $U\ [\%]$ désignant la teneur en eau massique de l'échantillon. Ce résultat confirme la forte dépendance de la conductivité thermique de l'état hydrique du matériau et l'importance de la prise en compte de cette dépendance dans les simulations numériques.

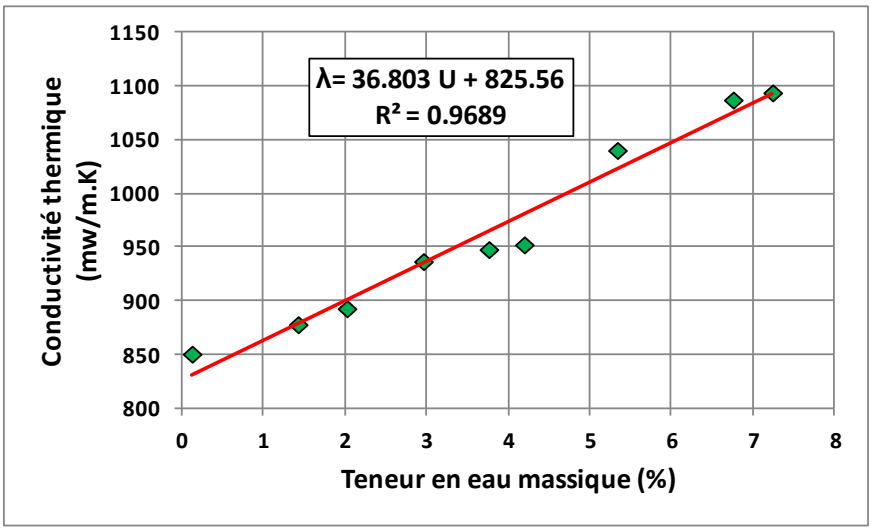


Figure II. 38. Évolution de la conductivité thermique en fonction de la teneur en eau du mortier L30 à 3 mois d'âge

II.4.2. Chaleur spécifique Cp

La réaction d'hydratation du ciment est dépendante de la température [159]. Elle conditionne la morphologie et la microstructure du matériau résultant. Par conséquent, la connaissance de la chaleur spécifique en fonction du degré d'hydratation (âge) des matériaux cimentaires est essentielle. Deux dispositifs expérimentaux de mesure de la chaleur spécifique sont utilisés : un calorimètre différentiel à balayage (DSC : Differentiel Scanning Calorimetry) et un calorimétre à flux de type "Calvet".

II.4.2.1. Mesure de la chaleur spécifique par DSC

La DSC permet la détermination simple et rapide de la chaleur spécifique sur des échantillons de taille réduite. Le principe consiste à mesurer les différences de comportement thermique entre un échantillon à analyser et une référence placée dans un même four dont la température est programmable.

Les échantillons sont préalablement séchés en étuve ventilée à 40°C pendant 24 h avant d'être prélevés après refroidissement et placés dans les capsules d'analyse. Les mesures sont réalisées au moyen d'un calorimètre différentiel à balayage DSC Q100- RCS cooling (Ta Instruments) sous débit d'azote de 50 ml/min. Les capsules utilisées sont des capsules inox « grand volume » (110 µl) serties sous presse.

Une cellule de mesure DSC se compose d'un four et d'un capteur intégré avec des positions définies pour les creusets échantillon et référence. Les capteurs sont branchés à des thermocouples permettant d'enregistrer aussi bien la différence de température entre l'échantillon et la référence (signal DSC) et la température absolue de l'échantillon ou de la référence.

L'appareil est calibré à partir d'une ligne de base établie à vide, sans capsule, puis par une constante de calibration réalisée à partir d'un échantillon de 27,3 mg d'indium placé dans une capsule d'un côté et d'une capsule vide sur l'autre plateforme.

La cellule référence chauffe dans la majorité du temps plus vite que l'échantillon, durant la chauffe de la cellule DSC, c'est-à-dire que la température référence (courbe verte Figure II. 39) augmente un peu plus vite que la température échantillon (courbe rouge Figure II. 39). Une réaction de fusion de l'échantillon est enregistrée à un temps t_1 où la température de l'échantillon dans ce cas reste constante jusqu'à la fin de la fusion, la température de la référence, pour sa part, continue d'augmenter. A la fin de la fusion (temps t_2), la température de l'echantillon commence de nouveau à augmenter lineairement. Le signal différentiel ΔT (Figure II. 39) entre l'échantillon et la référence (aire bleu) est pourvu d'un

pic ainsi calculé. L'aire du pic est corrélée à la quantité de chaleur de la transition (enthalpie en J/g).

La méthode utilisée est une méthode directe de mesure des capacités thermiques à partir d'une rampe de température entre 15°C et 55°C, avec une vitesse de chauffe de 10 °C/min sans palier isotherme.

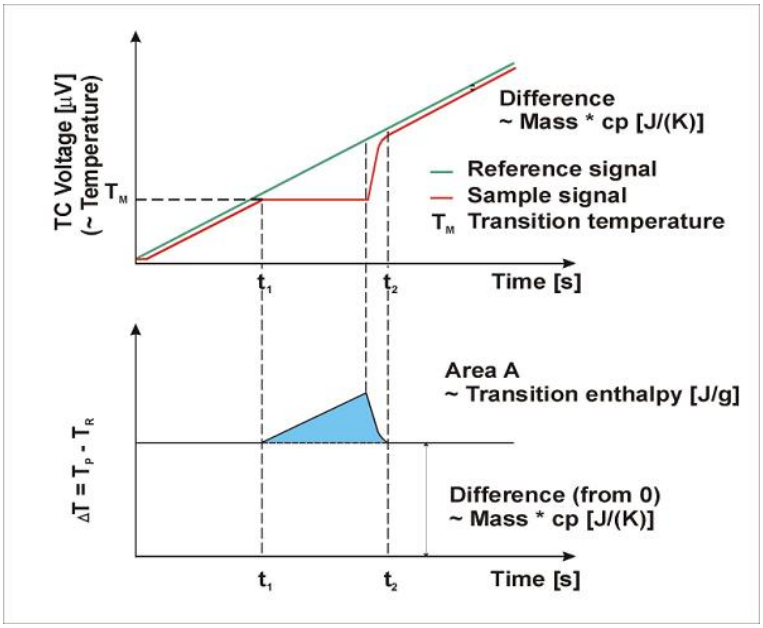


Figure II. 39. Principe de mesure de la chaleur spécifique par DSC

La Figure II. 40 présente l'évolution de la chaleur spécifique en fonction de la température et de l'âge des différents matériaux testés. De plus, une comparaison de la chaleur spécifique à 30 jours est illustrée dans la Figure II. 41.

Ces résultats (Figure II. 40) montrent une évolution non négligeable de la chaleur spécifique en fonction de la température et du degré d'hydratation. Elle augmente d'environ 30% pour la pâte 1 et 25% pour le mortier 1 de l'âge 7 jours à 30 jours. De plus, nous distinguons une augmentation de la chaleur spécifique entre l'âge 7 jours, 14 jours et 30 jours d'environ 4% pour chaque augmentation de température de 5°C de la pâte L30 et du mortier L30. En revanche, une diminution plus importante d'environ 30% du Cp est enregistrée entre l'âge 3 jours et 7 jours de ces mêmes matériaux. Cette différence est attribuée majoritairement à l'eau non liée chimiquement (eau libre) compte tenu de la chaleur spécifique élevée de l'eau (Tableau II. 8).

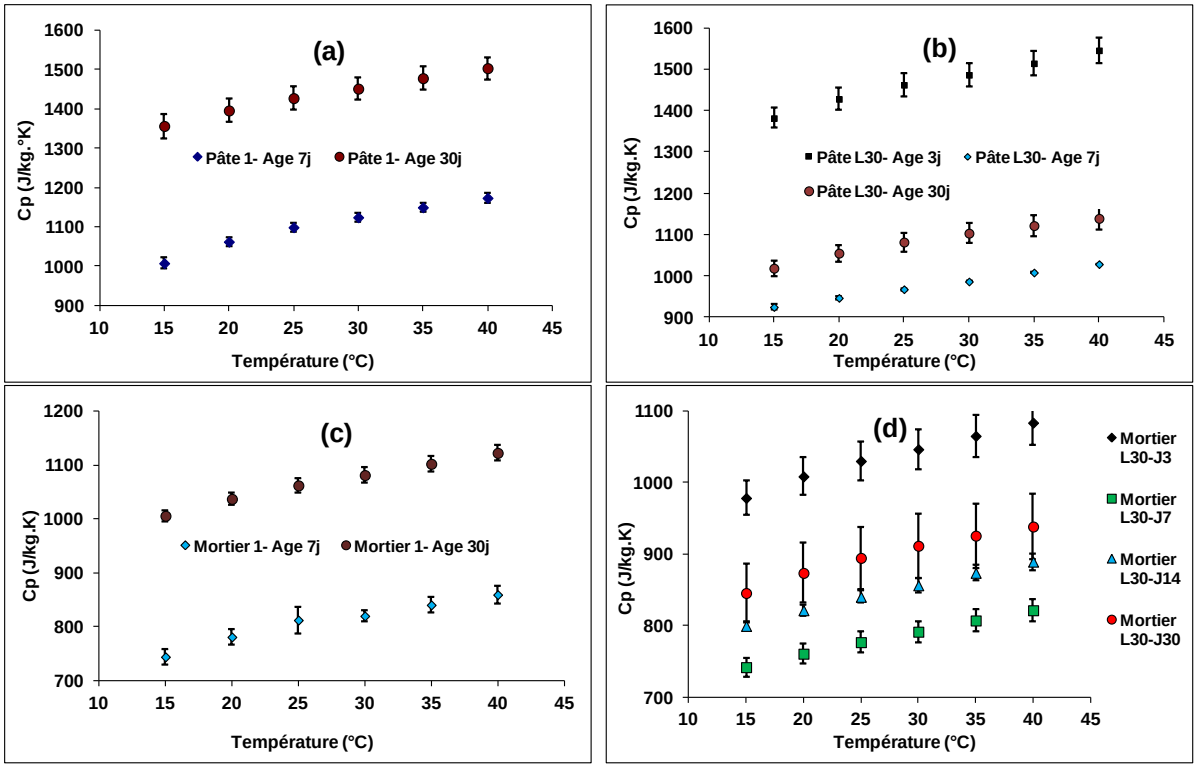


Figure II. 40. Évolution du Cp en fonction de la température et de l'âge de la pâte1 (a), pâte L30 (b), mortier 1 (c) et mortier L30 (d)

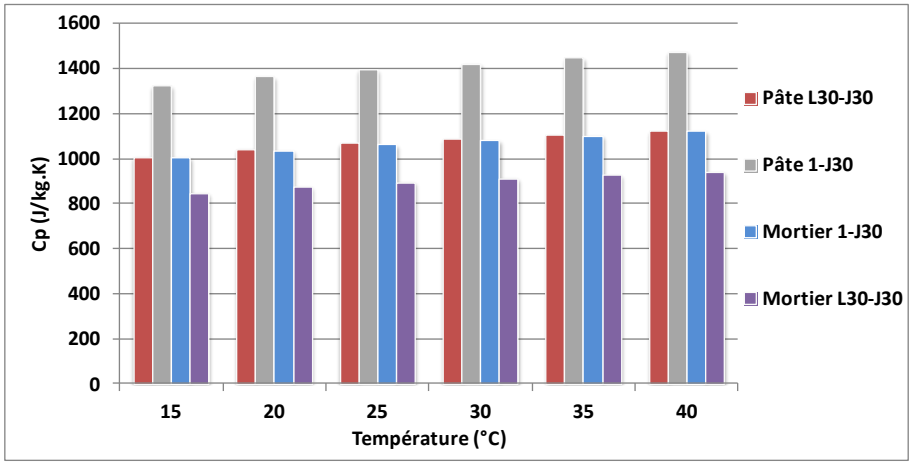


Figure II. 41. Comparaison de la chaleur spécifique des différents matériaux testés à l'âge 30 jours

La chaleur spécifique dépend de celle propre à chaque constituant (ciment, eau, sable et laitier), de leur proportion dans le mélange et de celle des hydrates formés au cours de l'avancement de l'hydratation. La substitution de 30% de ciment par du laitier de hauts fourneaux réduit la capacité thermique de la pâte de ciment et du mortier (Figure II. 41). Compte tenu du caractère très lent de la réaction d'hydratation du laitier, nous avons réalisé des essais de chaleur spécifique sur les mêmes matériaux à un âge plus avancé (1an) (Figure II. 42). Ce résultat montre une chute d'environ 40% du C_p des matériaux L30 après 1 an de conservation.

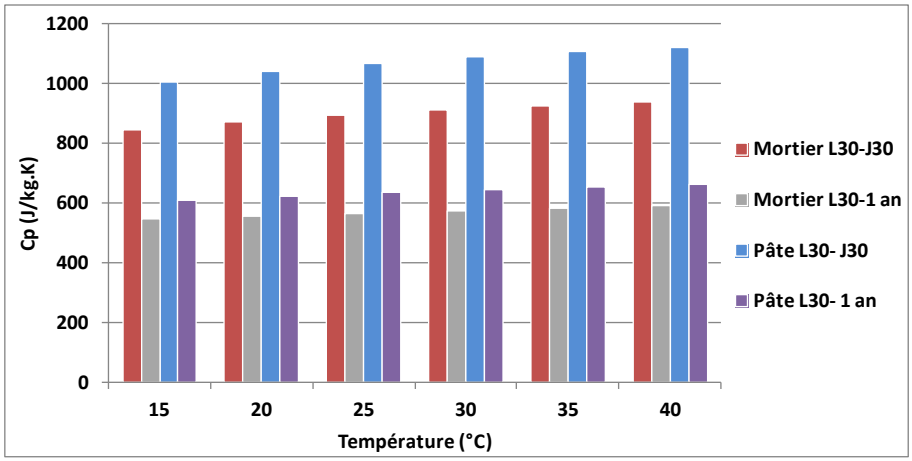


Figure II. 42. Comparaison de la chaleur spécifique des matériaux à substitution du ciment par du laitier à l'âge 30 jours et à 1 an

II.4.2.2. Mesure de la chaleur spécifique par calorimètre CALVET

D'autres mesures de chaleur spécifique ont été menées cette fois-ci en utilisant un calorimètre BT 2.15 de type "Calvet". Il est composé d'une enceinte calorimétrique et de périphériques électriques ou pneumatiques. Le bloc calorimétrique est renfermé dans une enceinte cylindrique étanche de 1000 mm de hauteur et de 360 mm de diamètre (Figure II. 43). La partie gauche de la Figure II. 43 représente une vue en coupe de l'appareil : le cœur est constitué du bloc calorimétrique où l'on reconnaît les deux cavités cylindriques qui renferment chacune un élément calorimétrique : douille et fluxmètre. Le bloc et son thermostat forment un assemblage compact, chauffé par un enroulement résistant périphérique. La sonde de régulation, noyée dans la paroi du thermostat permet de le piloter. Une cuve composite, fixée elle aussi à la partie supérieure de l'appareil de façon étanche, définit l'enceinte calorimétrique. Cette enceinte est maintenue sous atmosphère contrôlée. Une circulation de fluide de refroidissement est assurée en permanence dans la double paroi de la cuve centrale. Cet ensemble est contenu dans une seconde cuve étanche maintenue sous un vide permanent.

Le déroulement de l'essai commence par le choix de la cellule expérimentale. Dans notre cas, des cellules standards sont utilisées, elles sont conçues spécialement pour les études de solides ou de produits pulvérulents à faible tension de vapeur où la pression interne ne doit pas dépasser 500 kPa. L'échantillon analysé est de forme cylindrique de 1 cm de diamètre et 5 cm de hauteur. Après avoir choisi la cellule et découpé l'échantillon par sciage qui sera pesé dans la cellule en utilisant une balance analytique, nous avons introduit la cellule contenant l'échantillon dans la cellule « mesure » du calorimètre. Dans la cellule « référence », nous avons introduit une cellule identique vide. L'essai est réalisé avec une rampe de température de -15°C jusqu'à 40°C. La vitesse de chauffe est de 0,1°C/min suivant le programme de chauffe suivant :

Séquence 1 :	Isotherme	Température départ : -15°C Durée : 3600 s Température fin : -15°C
Séquence 2 :	Rampe	Température départ : -15°C Vitesse : 0,1°C/min Température fin : 45°C
Séquence 3 :	Isotherme	Température départ : 45°C Durée : 1800 s Température fin : 45°C

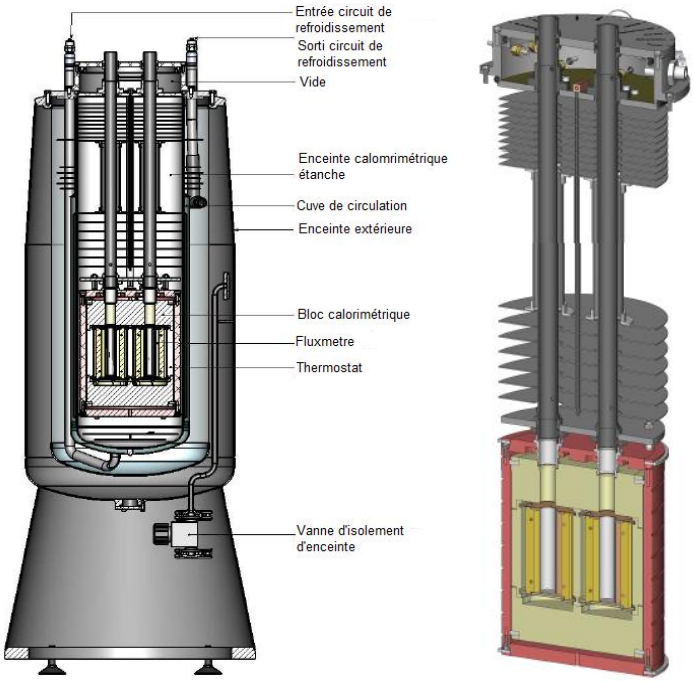


Figure II. 43. Dispositif de mesure de la chaleur spécifique : calorimètre Calvet BT 2.15

La température maximale du calorimètre est de 200°C sans thermofluide. La température est limitée en fonction de la plage de température du thermofluide utilisé. Les résultats obtenus sont présentés dans la Figure II. 44. L'âge des matériaux étudiés (pâte de ciment, mortier et béton) au moment de l'essai dépasse les 90 jours. La conservation après fabrication de nos matériaux est toujours la même dans une salle humide dont la température est de 20±2 °C et l'humidité relative de 95±3%. Puis, ils sont séchés à 40 °C jusqu'à équilibre avant l'essai en question. Ce résultat confirme les constats observés lors de l'analyse par DSC, notamment la valeur de la chaleur spécifique du mortier qui est inférieure à celle de la pâte de ciment.

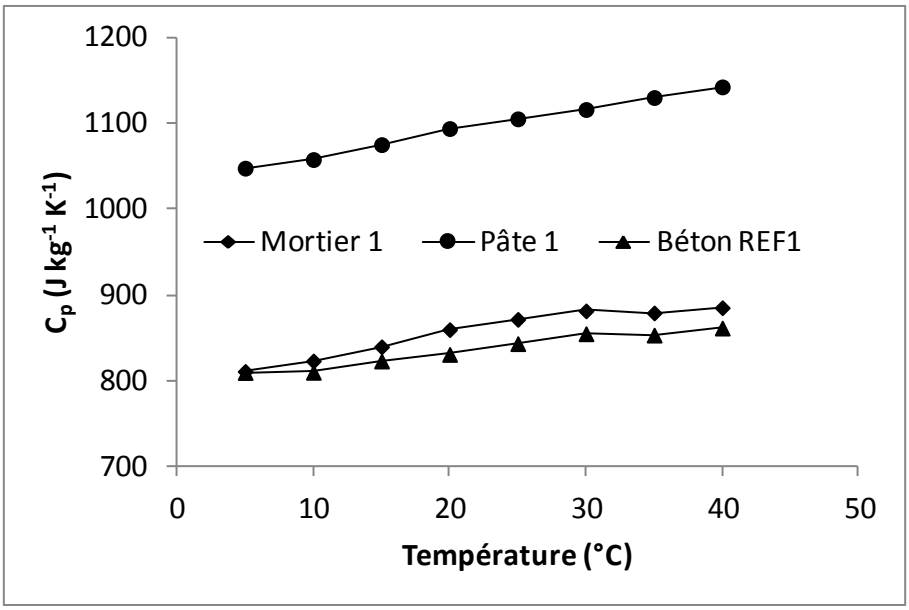


Figure II. 44. Comparaison de l'évolution du Cp en fonction de la température des différents matériaux testés à un âge > 90 jours

La Figure II. 45 présente une comparaison des résultats de Cp obtenus par analyse DSC et par le biais du calorimètre Calvet. Les échantillons analysés ont suivi le même protocole de conservation après fabrication et de pré-conditionnement avant l'essai ; à savoir une conservation dans une salle humide après 24h de la fabrication et un séchage en étuve à 40°C jusqu'à équilibre. La différence constatée est d'environ 20% pour la pâte de ciment et le mortier. Afin d'analyser ces résultats ; nous présentons dans le Tableau II. 8 les valeurs de la conductivité thermique et de la chaleur spécifique des constituants du béton [160]. Nous remarquons que le Cp de la pâte 1 obtenue par DSC qui varie entre 1324 et 1473 $J.kg^{-1}.K^{-1}$ est dans la fourchette de mesure (1140-1600 $J.kg^{-1}.K^{-1}$) des pâtes de ciment mentionnées dans le Tableau II. 8. De même pour les résultats de la pâte de ciment obtenue au moyen du calorimètre Calvet. Les résultats de mesures de Cp du béton (Figure II. 44) obtenues par calorimétrie Calvet sont en concordance avec les résultats du Tableau II. 8 (800-1200 $J.kg^{-1}.K^{-1}$). Il nous a été très difficile de se prononcer sur le choix d'un équipement de mesure de Cp adéquat pour les matériaux cimentaires en sachant que la DSC utilise une très petite quantité broyée d'échantillon qui n'est pas souvent représentative.

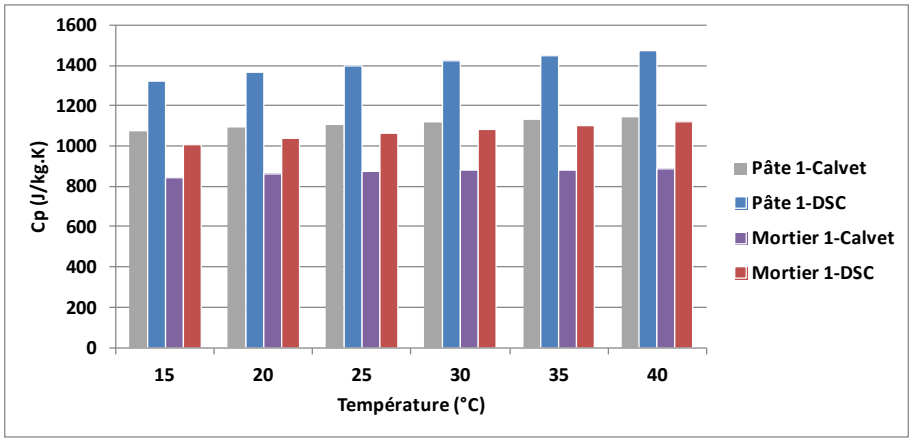


Figure II. 45. Comparaison des valeurs de Cp obtenues par DSC et par calorimétrie Calvet

Tableau II. 8. Capacité calorifique des constituants d'un béton [160]

	Capacité calorifique ($J.kg^{-1}.K^{-1}$)
Granulats	750-800
Pâte de ciment E/C(0,25-0,6)	1140-1600
Béton	800-1200
Eau	4200
Air	1050

Afin de confirmer ou d'infirmer le constat fait lors de la comparaison des valeurs du Cp mesurées par les deux équipements cités ci-dessus (Figure II. 45), à savoir la DSC et le calorimètre Calvet, nous avons mené une deuxième investigation expérimentale de comparaison sur deux autres échantillons (mortier L30 et pâte L30). Pour éliminer tout impact extérieur sur la chaleur spécifique, les échantillons dédiés aux mesures du Cp sont prélevés de la même éprouvette (élimination de la variabilité spatiale). Comme nous l'avons montré précédemment, la chaleur spécifique dépend fortement de la teneur en eau du matériau. Alors, nous devons éliminer son effet par un pré-conditionnement préalable du matériau qui est réalisé par séchage en étuve à 105 °C jusqu'à équilibre de la masse. Cela est bien évidement appliqué aux deux échantillons destinés à la DSC et au calorimètre Calvet. Le résultat obtenu est illustré sur l'histogramme de la Figure II. 46 et confirme les observations précédentes avec une importante différence entre les valeurs de Cp mesurées par DSC et par le calorimètre Calvet. Dans ce cas, contrairement aux observations illustrées sur la Figure II. 45, les valeurs de Cp mesurées en utilisant le calorimètre sont largement supérieures aux valeurs de Cp mesurées par DSC. Cette différence peut en partie être liée à la quantité d'air présente dans l'échantillon au moment de la mesure qui est bien évidement différente d'un échantillon broyé en poudre (échantillon pour DSC) et d'un échantillon solide avec une porosité donnée (échantillon pour calorimètre).

Alors, en résumé, deux comportements distincts sont obtenus : d'une part, les valeurs de Cp de la pâte 1 et mortier 1 sont plus importantes par DSC en comparaison avec les mesures par le calorimètre Calvet et, d'autre part, les valeurs de Cp de la pâte L30 et mortier L30 sont plus importantes par le calorimètre Calvet en comparaison avec les mesures par DSC. La différence de comportement entre ces deux cas peut être expliquée par le fait que dans le premier cas le pré-conditionnement est réalisé à 40°C, ce qui bien évidemment laisse une teneur en eau résiduelle du matériau. Dans ce cas, les mesures par DSC seront plus élevées du fait de la quantité d'eau résiduelle plus importante par rapport à la quantité d'échantillon testé et du fait que le Cp de l'eau est élevé (de l'ordre de 4200 $J.kg^{-1}.K^{-1}$). De plus, dans le deuxième cas, lorsqu'on augmente la température de pré-conditionnement à 105°C, le comportement du matériau change car nous avons éliminé la teneur en eau résiduelle et ici intervient l'effet de la forme de l'échantillon solide ou poudre et contenant ou pas de l'air.

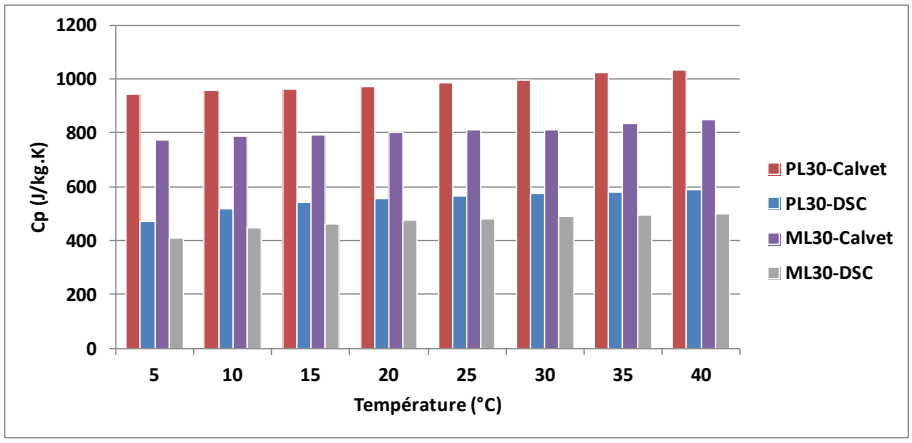


Figure II. 46. Comparaison des valeurs de Cp obtenues par DSC et par calorimétrie Calvet après un pré-conditionnement par séchage à 105°C des matériaux âgés de plus d'un an

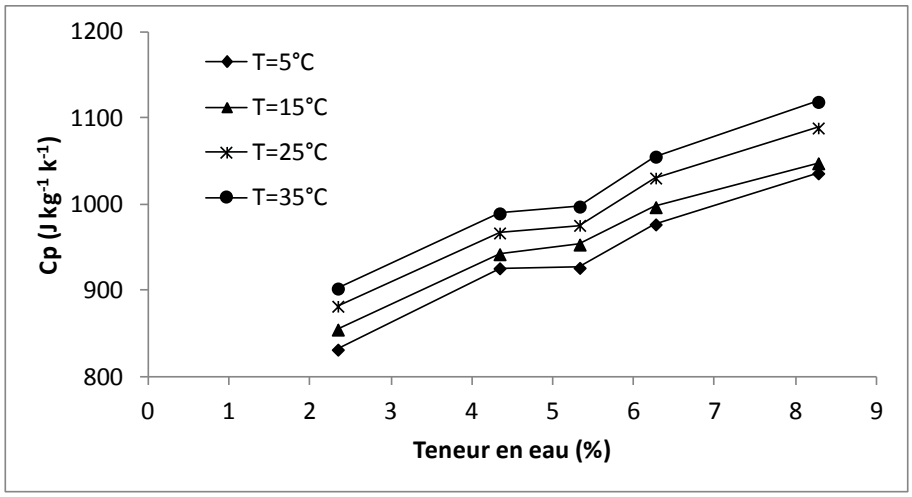


Figure II. 47. Évolution de la chaleur spécifique du mortier 1 en fonction de la teneur en eau et de la température

La Figure II. 47 présente l'effet de la teneur en eau et de la température du mortier 1 sur sa chaleur spécifique. Nous distinguons à une température de 35°C une augmentation de la chaleur spécifique de 900 $J.kg^{-1}.K^{-1}$ à une teneur en eau de 2,34% jusqu'à 1120 $J.kg^{-1}.K^{-1}$ à une teneur en eau de 8,28%. De plus, la différence entre la chaleur spécifique à 5°C et 35°C est en moyenne environs 73 $J.kg^{-1}.K^{-1}$ pour chaque teneur en eau.

II.5. Conclusion

L'identification des paramètres d'entrée des modèles de transfert couplés de chaleur, d'air et d'humidité est une étape indispensable pour une bonne prédiction du comportement hygrothermique des matériaux poreux de construction. Ce chapitre a été dédié à la caractérisation de quelques propriétés microstructurales, thermiques et hydriques des matériaux cimentaires (pâtes de ciment, mortier et béton).

En général, les essais de caractérisation des propriétés hydriques des matériaux poreux de construction prennent au minimum 7 à 10 jours selon la nature du matériau testé, ce qui n'est pas compatible avec l'étude de caractérisation de ce matériau en fonction de son âge. Pour pallier à cette difficulté, nous avons eu recours à l'arrêt de l'hydratation du ciment avant l'essai de caractérisation hydrique (Sorption, perméabilité à la vapeur, etc.). Un des objectifs du présent chapitre était d'étudier quelques techniques d'arrêt d'hydratation dans le but d'identifier la technique la plus adéquate à notre cas d'étude. Au final, la technique d'arrêt d'hydratation par immersion sous vide dans un bain d'acétone pendant sept jours suivi d'une mise sous vide (sans acétone) pendant trois jours semble la plus appropriée car elle influe le moins sur la microstructure du matériau.

De plus, nous avons montré que :

- les isothermes de sorption présentent une hystérésis entre l'adsorption et la désorption sur la quasi-totalité de l'isotherme de sorption. Ceci s'explique par la constructivité élevée du réseau poreux des matériaux étudiés,

- le taux d'adsorption et de désorption de la pâte de ciment et du mortier diminue avec l'âge du matériau et augmente en fonction du rapport E/C,

- la capacité de stockage d'humidité n'est pas constante selon la gamme d'humidité relative considérée. Elle diminue dans les plages d'humidité les plus faibles, puis se stabilise pour des HR comprises entre 10% et 80% et augmente dans la zone hygroscopique supérieure (HR > 80%). De plus, elle diminue en fonction de l'âge du matériau,

- Pour une description complète du comportement hydrique du matériau, il est nécessaire de compléter l'isotherme d'adsorption-désorption dans la zone super-hygroscopique ($HR > 95\%$) en utilisant la courbe de rétention d'eau. L'isotherme présente, en plus, un palier horizontal de saturation de type IV. Négliger cette zone peut induire des erreurs importantes dans la prédiction du comportement hygrothermique des matériaux en général.
- la perméabilité à la vapeur d'eau obtenue par la méthode de la coupelle diminue avec l'âge du matériau,
- l'ajout du laitier réduit :
    - le taux de sorption de la vapeur d'eau,
    - la capacité de stockage d'humidité,
    - la perméabilité à la vapeur d'eau du matériau,
    - la conductivité thermique de la pâte de ciment et augmente celle du mortier,
    - la chaleur spécifique.
- L'effet contradictoire des granulats sur la diffusion. D'une part, de par leur caractère imperméable, les granulats réduisent la diffusivité et la capacité de stockage d'humidité (cas de l'adsorption du mortier en comparaison avec la pâte de ciment). D'autre part, ils introduisent une auréole de transition dans laquelle la porosité est plus élevée que dans la pâte de ciment et où, par conséquent, la diffusivité sera plus importante et le stockage plus faible (cas de la perméabilité à la vapeur d'eau du mortier en comparaison avec la pâte de ciment).
- la conductivité thermique et la chaleur spécifique augmentent en fonction de la température d'essai,

Cette campagne de caractérisation expérimentale nous a permis de mesurer quelques paramètres d'entrée des modèles et d'évaluer leur sensibilité vis-à-vis de l'état d'hydratation, de l'état hydrique du matériau, du rapport E/C (traduisant la microstructure) et de l'humidité relative environnante. La prise en compte de ces variabilités lors de l'utilisation des modèles de transfert de chaleur, d'air et d'humidité pour une bonne prédiction du comportement hygrothermique des matériaux testés s'avère indispensable et fera l'objet du quatrième chapitre.

Chapitre III

Modélisation des transferts couplés de chaleur et d'humidité : Applications et analyses

Plusieurs modèles macroscopiques de transferts couplés de chaleur et d'humidité ont été développés dans la littérature dans le but de prédire le comportement hygrothermique des matériaux poreux de construction [109, 161, 20]. La principale différence entre ces modèles réside dans la considération et le choix des moteurs de transfert ainsi que les propriétés du matériau (coefficient de diffusion, perméabilité à la vapeur, etc.) considérées comme paramètres d'entrée. En effet, le choix des moteurs de transfert est lié aux dispositifs expérimentaux disponibles qui permettent de mesurer correctement les propriétés hygrothermiques des matériaux et enfin d'alimenter les modèles de prédiction ainsi développés.

Ce chapitre est en partie dédié à l'étude de la sensibilité du modèle de transfert hygrothermiques dans des matériaux poreux de construction fabriqué au cours de ce travail. Ces modèles sont développés et validés au sein du laboratoire et ils sont basés sur la théorie de Luikov. L'étude paramétrique conduite dans le but d'analyser la sensibilité de notre modèle aux variations de certains paramètres physiques sera détaillée. Enfin, en guise d'applications, nous étudierons dans un premier temps l'effet de l'âge du matériau et la prise en compte du palier de saturation sur le séchage ; dans un second temps, une analyse des méthodes de pré-conditionnement avant l'essai de carbonatation sera présentée.

III.1. Modélisation des transferts couplés de chaleur, d'air et d'humidité

III.1.1. Hypothèses du modèle

Pour des raisons de simplification du modèle de transfert hygrothermique, les hypothèses suivantes sont adoptées :

- La phase solide est homogène, indéformable et non réactive ;
- La phase liquide est constituée uniquement d'eau pure ;
- Les phases liquide et gazeuse sont considérées en équilibre thermodynamique local ;
- Le phénomène du gel/dégel est négligé ;
- Les effets de la gravité sur les transferts de masse sont négligés.

III.1.2. Équations de bilan

Les équations de conservation de masse et d'énergie sont considérées pour les trois phases. L'équation de bilan de la phase liquide et vapeur ainsi que celle du bilan d'énergie sont décrites par les formulations suivantes (équation III. 1 et III. 2) :

$$\frac{\partial \rho^m}{\partial t} = -div(j_m) \qquad \text{III. 1}$$

$$C_p \rho_s \frac{\partial T}{\partial t} = -div(j_q) - h_{lv}\dot{m} \qquad \text{III. 2}$$

Où ρ^m *[kg/m³]* est la masse de l'eau sous ces différents états ; T $[K]$ est la teneur en eau du matériau ; j_m et j_q *[kg/m². s]* sont respectivement les densités de flux de masse et de chaleur ; h_{lv} $[J/kg]$ est l'enthalpie massique ; C_p $[J/kg.K]$ est la capacité thermique du matériau ; ρ_s $[kg/m^3]$ est la masse volumique à l'état sec du matériau et $\dot{m}$ $[kg/m^3.s]$ est le taux de changement de phase.

Les transferts de masse sont décrits comme une combinaison de la diffusion de la phase vapeur avec la teneur en vapeur d'eau comme moteur de transfert et la diffusion de la phase liquide à travers les pores et s'effectue sous l'effet d'un gradient de pression, considéré comme moteur de transfert.

➢ Flux de vapeur d'eau

Le transfert d'humidité en phase vapeur est décrit selon Luikov [109] comme une diffusion sous l'effet d'un gradient de concentration en adoptant une loi de Fick modifiée exprimée par l'équation III. 3.

$$j_v = -D_v(\theta_l).\nabla\rho_v \qquad \text{III. 3}$$

Où j_v $[kg/m^2s]$ est la densité de flux de vapeur d'eau ; D_v $[m^2/s]$ est le coefficient de diffusion apparent de la vapeur d'eau qui dépend de la teneur en eau du matériau ; $\theta_l[m^3/m^3]$ est la teneur en eau volumique du matériau ; $\rho_v[kg/m^3]$ est la densité de vapeur.

- Flux d'eau liquide

Le transport de la phase liquide est décrit par la loi de Darcy. Il se produit par un transfert par adsorption capillaire par l'intermédiaire des forces capillaires entre les phases fluides et matrice solide. L'expression du flux d'eau liquide s'exprime comme suit (III. 4):

$$j_l = -K_l(\theta_l).\nabla P_c \qquad \text{III. 4}$$

Où j_l $[kg/m^2s]$ est la densité de flux d'eau liquide ; K_l $[s]$ est la perméabilité apparente à l'eau liquide ; P_c $[N/m^2]$ est la pression capillaire.

D'où l'expression du flux total de masse (III. 5) qui est la somme de la densité de flux de vapeur (III. 3) et la densité de flux d'eau liquide (III. 4).

$$J_m = j_v + j_l = -D_v(\theta_l).\nabla\rho_v - K_l(\theta_l).\nabla P_c \qquad \text{III. 5}$$

Afin de simplifier le traitement des conditions aux limites et de conserver la continuité de la variable d'état, la teneur en vapeur est considérée comme seul moteur de transfert de masse. L'expression du flux total de masse prenant en considération la teneur en vapeur est exprimé par l'équation (III. 7) en se basant sur la loi de Kelvin (III. 6) qui relie la pression capillaire à l'humidité relative.

$$P_c = -\frac{RT\rho_l}{M}\ln\left(\frac{\rho_v}{\rho_{vsat}}\right) \qquad \text{III. 6}$$

Avec P_c $[Pa]$ la pression capillaire ; ρ_l $[kg/m^3]$ la densité d'eau liquide ; M $[kg/mol]$ la masse molaire de l'eau ; R $[J/mol.K]$ la constante des gaz parfaits ; T $[K]$ la température et $\rho_{vsat}[kg/m^3]$ la teneur en vapeur saturante.

$$j_m = -\left[D_v(\theta_l) + K_l(\theta_l)\ \frac{RT\rho_l}{M}\frac{1}{\rho_v}\right]\nabla\rho_v \qquad \text{III. 7}$$

Enfin, le flux total de masse est donné par l'expression (III. 8) incluant le coefficient de diffusion d'humidité $d_m[m^2/s]$.

$$j_m = -d_m(\theta_l).\nabla\rho_v \qquad \text{III. 8}$$

L'équation III. 8 exprime la densité du flux total de masse dans le cas isotherme. Un autre phénomène de gradient thermique ou couramment appelé "effet Soret" vient s'ajouter dans le cas non isotherme. Dans ce cas, le flux total de masse s'exprime alors comme suit :

$$j_m = -d_m(\theta_l, T).\nabla\rho_v - d_m(\theta_l, T).\varepsilon.\nabla T \qquad \text{III. 9}$$

Où $\varepsilon[kg/m^3K]$ est le coefficient de gradient thermique défini par le ratio entre le coefficient de diffusion thermique D_T et le coefficient de diffusion d'humidité d_m. La détermination expérimentale du coefficient de gradient thermique a été introduite et présentée dans les travaux de recherches de Trabelsi *et al.* [94] et Abahri *et al.* [20].

Un changement de variable est nécessaire pour permettre le passage de la teneur en humidité à la teneur en vapeur par le biais de la capacité de stockage d'humidité C_m $[m^3/kg]$ définie comme suit (III. 10) :

$$C_m = \frac{\partial\rho^m}{\rho_s\partial\rho_v} \qquad \text{III. 10}$$

- Flux de chaleur

Le transfert de chaleur est attribué à deux formes : le transfert purement conductif donné par la loi de Fourier et le transfert de chaleur latente porté par la vapeur. Le transfert convectif de chaleur sensible par les flux de liquide et de vapeur est négligé. La densité de flux de chaleur j_q $[J/m^2s]$ s'exprime donc par :

$$j_q = -\lambda.\nabla T \qquad \text{III. 11}$$

La formulation finale du modèle avec comme moteurs de transferts la teneur en vapeur d'eau et la température est décrite ci-dessous [21] [94]:

$$\rho_s\, C_p\, \frac{\partial T}{\partial t} = \lambda\, \frac{\partial^2 T}{\partial x^2} + \rho_s\, C_m\, (\sigma h_{lv} + \gamma)\, \frac{\partial \rho_v}{\partial t} \qquad \text{III. 12}$$

$$\rho_s\, C_m\, \frac{\partial \rho_v}{\partial t} = d_m\, \frac{\partial^2 \rho_v}{dx^2} + \varepsilon\, d_m \frac{\partial^2 T}{dx^2} \qquad \text{III. 13}$$

Où σ [-] est le critère de changement de phase (rapport entre le flux de vapeur d'eau et le flux massique total [109]). Si $\sigma = 1$, le transfert d'humidité se manifeste sous forme de vapeur et si $\sigma = 0$ le transfert est totalement gouverné par la phase liquide et dans la majorité des cas σ est compris entre 0 et 1. $\gamma[J/kg]$ est la chaleur d'adsorption et de désorption. d_m $[m^2/s]$ est le coefficient de diffusion d'humidité.

Dans les travaux d'Abahri *et al.* [20] menés au sein du laboratoire LaSIE, une modélisation des transferts est proposée en prenant en compte le transfert de chaleur par convection dans les phases liquide et vapeur. Cette modélisation prend également en considération les termes d'accumulation de masse, d'air et de gradient de pression totale. De ce fait, trois moteurs de transfert (température, teneur en eau et pression totale) apparaissent dans le modèle. La formulation mathématique du modèle est présentée ci-après :

$$\frac{\partial \omega}{\partial t} = div[D_m(\nabla\omega + \delta\nabla T + \alpha\nabla P)] \qquad \text{III. 14}$$

$$C\rho_s\frac{\partial T}{\partial t} = div(a_t\nabla T + \delta_t\nabla u + \alpha_t\nabla P) + h_{lv}\rho_s\chi\frac{\partial \omega}{\partial t} \qquad \text{III. 15}$$

$$h_a\frac{\partial P}{\partial t} = div\left(\lambda_f\nabla P\right) + \rho_s\chi\frac{\partial \omega}{\partial t} \qquad \text{III. 16}$$

Avec :

$\omega\ [kg/kg]$ est la teneur en eau massique ; $\delta = \frac{D_v\delta_v + D_l\delta_l}{D_v + D_l}$ est le coefficient de gradient thermique des phases liquide et vapeur.

$a_t = (\lambda + h_vD_v\delta_v\rho_v + h_lD_l\delta_l\rho_l)$; $\delta_t = (h_lD_l + h_vD_v)\rho_s$;

$\alpha_t = \left(h_lk_{fl} + h_vk_{fv}\right)$; $\chi = \frac{k_{fv}}{k_f}$; $k_f = k_{fv} + k_{fl}$

Où k_{fv} et k_{fl} $[kg/m.s.Pa]$ sont respectivement le coefficient de filtration molaire de vapeur et de liquide. h_l $[J/Kg]$ est l'enthalpie massique de l'eau liquide et h_v $[J/Kg]$ est l'enthalpie massique de la vapeur d'eau. $h_a = \frac{(1-S_l)M\varepsilon}{RT}$ représente la capacité d'air humide avec S_l est le degré de saturation en eau liquide. $D_m = \frac{1}{\rho_s\, C_m}\, d_m$ représente le coefficient de diffusion hydrique.

Les principaux paramètres d'entrée du modèle sont :

- La masse volumique de l'échantillon ρ ;
- La chaleur spécifique C_p;
- La conductivité thermique λ ;
- Le coefficient de diffusion hydrique D_m, d'humidité d_m ou la perméabilité à la vapeur d'eau δ_p;
- La capacité de stockage d'humidité C_m.

Ils font partie des mesures expérimentales menées au laboratoire et dont les résultats ont été présentés au chapitre II du présent mémoire.

III.2. Étude paramétrique

L'´etude paramétrique consiste à quantifier l'influence relative de chacun des paramètres d'entrée du modèle sur les données de sortie. Dans notre cas, nous nous intéressons aux profils hydriques au sein du matériau. Afin de détecter les paramètres d'entrée du modèle les plus influents sur la prédiction du comportement hygrothermique du matériau, nous nous proposons d'étudier une configuration monocouche sous conditions non-isothermes. Il s'agit d'un bloc de mortier de 20cm d'épaisseur soumis à des conditions aux limites de type Dirichlet. Une simulation déterministe est alors effectuée avec des paramètres d'entrée issus de la caractérisation expérimentale du mortier 1 présentée dans le chapitre II. Les conditions aux limites et initiales sont illustrées par la Figure III. 1.

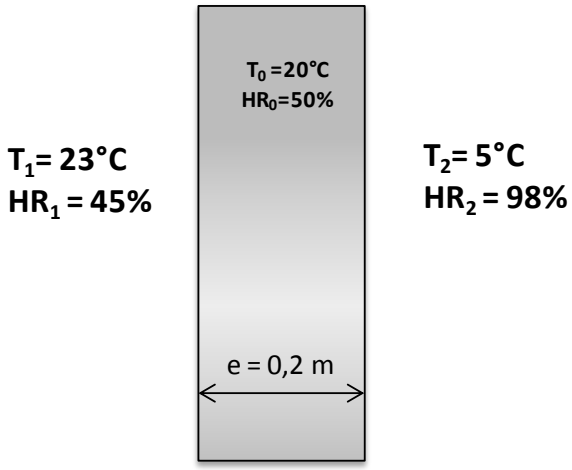


Figure III. 1. Configuration étudiée

Le modèle utilisé est celui présenté au début de ce chapitre avec comme moteurs de transfert : la température et la teneur en vapeur. Un des paramètres d'entrée du modèle est le coefficient de diffusion d'humidité noté d_m. Il est donc nécessaire de transformer les coefficients de perméabilité à la vapeur d'eau mesurés au sein de notre laboratoire en coefficients de diffusion d'humidité.

Pendant l'essai de perméabilité à la vapeur, l'évolution du débit massique traversant l'échantillon a été suivie jusqu'à l'état stationnaire, ce qui correspond à un débit massique constant $\dot{m}_{i+1} = \dot{m}_i$ où $\dot{m}_{i+1}$ est le taux de flux massique à l'instant t_{i+1}. Le débit massique à l'équilibre est ensuite introduit dans la relation suivante pour obtenir le flux de vapeur :

$$j_{vi} = \frac{\dot{m}_i}{A} \qquad \text{III. 1}$$

Avec,

$j_{vi}[kg/m^2s]$ est la densité du flux de vapeur à l'instant t_i ;

$\dot{m}_i[kg/s]$ est le taux de flux massique a l'instant t_i ;

A $[m^2]$ est la surface de l'échantillon.

Le flux de vapeur à l'équilibre $j_{veq}[kg/m^2s]$ dans des conditions isothermes s'écrit :

$$j_{veq} = -\delta_v \nabla u_v \qquad \text{III. 2}$$

δ_v $[m^2/s]$ est le coefficient de diffusion d'humidité ;

$u_v[kg/m^3]$ est la teneur en vapeur.

La densité de flux de vapeur peut encore s'écrire en termes de gradient de pression ou en fonction de l'humidité relative comme suit :

$$j_{veq} = -\delta_p \nabla p_v = -\delta_p p_{vsat} \frac{\partial HR}{\partial x} \qquad \text{III. 3}$$

δ_p $[kg/m.s.Pa]$ est la perméabilité à la vapeur d'eau ;

p_v $[Pa]$ est la pression de vapeur ;

p_{vsat} $[Pa]$ est la pression de vapeur saturante ;

Donc, la relation entre la perméabilité à la vapeur d'eau et le coefficient de diffusion d'humidité est :

$$\delta_p = \frac{\delta_v}{r.T} \qquad \text{III. 4}$$

$r = 462\, J/kg.K$

Les transformations ainsi effectuées sont récapitulées dans le Tableau III. 1.

Tableau III. 1. Passage de la perméabilité à la vapeur au coefficient de diffusion d'humidité

	Age (jours)	δ_p $[kg/m.s.Pa] \times 10^{-12}$	δ_v $[m^2/s] \times 10^{-7}$
Pâte1	7	3,83	5,24
	28	2,21	3,02
Mortier1	7	3,67	5,02
	28	3,16	4,32
Pâte L30	7	3,10	4,24
	28	2,66	3,64
Mortier L30	7	4,37	5,98
	28	3,73	5,10

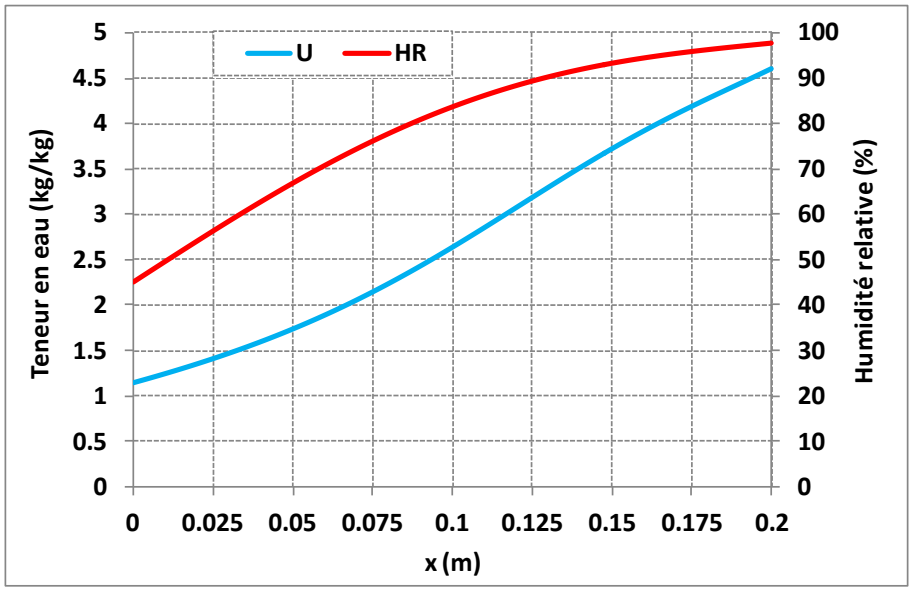


Figure III. 2. Profils de teneur en eau et d'humidité du mortier après 10h de transfert

La Figure III. 2 montre les profils de teneur en eau et d'humidité issus d'une simulation déterministe sous Comsol Multiphysics en considérant des paramètres d'entrée non variables. Le mortier est caractérisé par un coefficient de diffusion élevé. Par conséquent, l'équilibre est rapidement atteint après environ 10 heures de temps comme l'illustre la Figure III. 3. Ces résultats déterministes feront l'objet d'une comparaison avec d'autres résultats obtenus en supposant des paramètres d'entrée variables. Pour commencer, nous avons entrepris une étude de sensibilité du modèle de transfert couplé de chaleur et d'humidité vis-à-vis du coefficient de diffusion du matériau (d_m), de sa masse volumique (ρ), de sa chaleur spécifique (C_p) et enfin de sa conductivité thermique (λ).

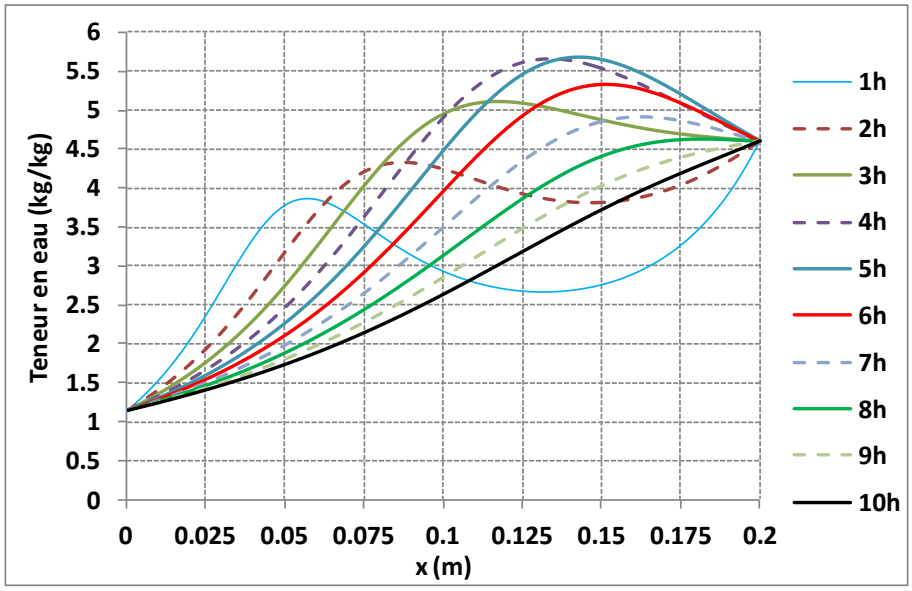


Figure III. 3. Profil hydrique à différents échéances de temps

Les figures (III.4-III.9) montrent l'évolution des profils de teneur en eau massique et d'humidité correspondante pour différentes valeurs de données d'entrée du modèle (propriétés du mortier étudié) après dix heures de transfert.

A. Sensibilité au coefficient de diffusion :

Faible variabilité : $d_m = 4{,}32 \times 10^{-7} \pm 30\%$ c.à.d. $3{,}024 \times 10^{-7} \leq d_m \leq 5{,}616 \times 10^{-7}\ m^2/s$

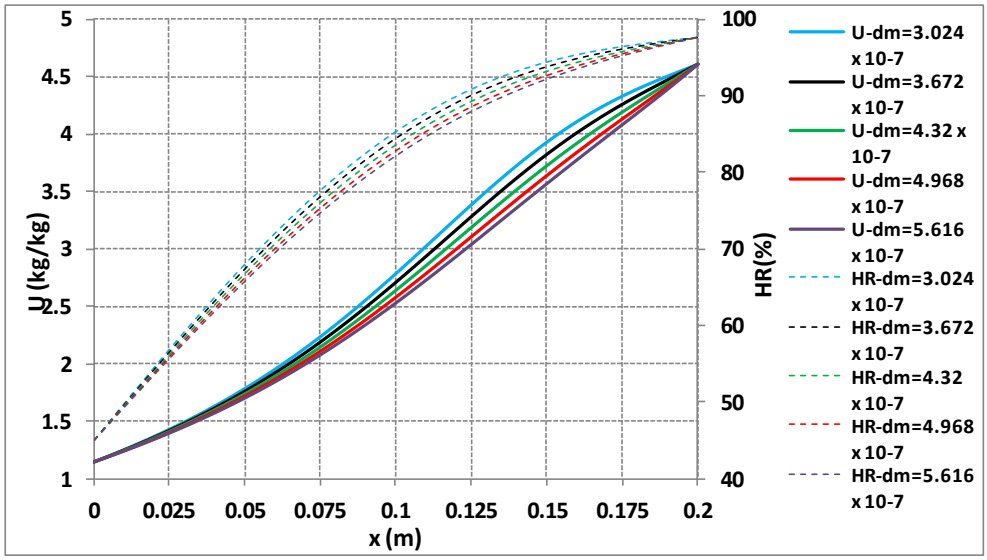


Figure III. 4. Évolution des profils hydriques et d'humidité en fonction du coefficient de diffusion après 10h de transfert

Forte Variabilité : $d_m = 10^{-6};\ 10^{-7} et\ 10^{-8}$ m²/s

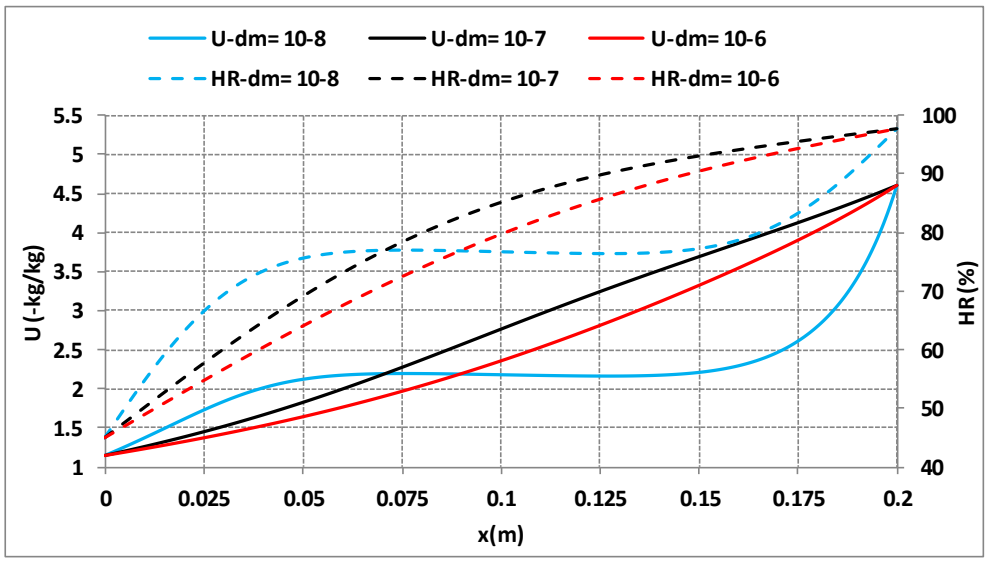


Figure III. 5. Évolution des profils hydriques et d'humidité en fonction du coefficient de diffusion avec une variabilité plus importante après 10h de transfert

Le premier résultat illustré dans la Figure III. 4 montre l'effet d'une incertitude de 30% du coefficient de diffusion d'humidité sur le comportement du matériau étudié. Dans ce cas le

coefficient de diffusion varie entre $3{,}024 \times 10^{-7}$ et $5{,}616 \times 10^{-7} m^2/s$; cette variation ne parait pas énorme (faible variabilité) mais son impact est non négligeable. En effet, l'erreur relative sur la teneur en eau au milieu de l'échantillon peut atteindre les 10%. De plus, une sensibilité du modèle aux fortes variabilités de d_m est également entreprise. Le coefficient de diffusion ainsi considéré est pris égale à 10^{-6} ; 10^{-7} et puis 10^{-8} m^2/s. Bien évidement, l'allure des profils présentés dans la Figure III. 5 changent en fonction de d_m. Il est à noter que c'est rare de se retrouver avec une telle gamme d'incertitude malgré le caractère fort hétérogène des matériaux cimentaires.

La plage de variation de la masse volumique du matériau étudié est prise entre 1900 et 2100 kg/m^3 (±5% de la valeur déterministe). Cette variabilité peut être due à plusieurs facteurs tels que la conservation des éprouvettes et leur état hydrique. La masse volumique considérée dans la modélisation est à l'état sec. Cela oblige l'expérimentateur à sécher le matériau avant la mesure de sa masse volumique. Si l'éprouvette étudiée est destinée à d'autres essais de caractérisation, l'expérimentateur a tendance à choisir une température de séchage faible pour éviter une modification de la microstructure du matériau par microfissuration. Ce choix fait subsister dans le matériau caractérisé une teneur en eau résiduelle. L'étude de la sensibilité du modèle vis-à-vis de la masse volumique sèche du matériau montre un très faible impact de cette incertitude sur les profils de teneur en eau et d'humidité correspondante (Figure III. 6). Cet effet peut être négligé à condition de ne pas dépasser cette plage de variation de ρ qui est de ±5%.

B. Sensibilité à la masse volumique : $\rho = 2000 \pm 5\%$ c.à.d. $1900 \leq \rho \leq 2100$ kg/m^3

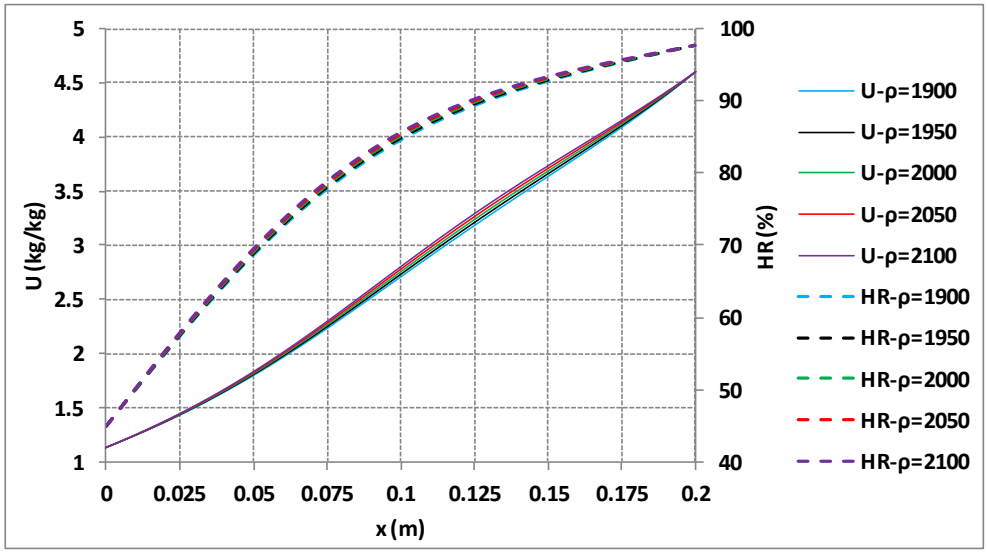


Figure III. 6. Évolution des profils hydriques et d'humidité en fonction de la masse volumique après 10h de transfert

La chaleur spécifique et la conductivité thermique dépendent de plusieurs paramètres. La chaleur spécifique du mortier varie de 1000 à 1200 $(J/kg.K)$ entre 10 et 40°C (Figure II.40-C). Sa conductivité thermique λ varie de 0,5 à 0,6 $(W/m.K)$ entre 10 et 30°C (Figure III.37). Ces deux propriétés dépendent aussi de la teneur en eau du matériau. En effet, nous distinguons une évolution quasi-linéaire de la conductivité thermique entre 0,85 (état sec : valeur référence) à 1,1 $W/m.K$ (à saturation) qui correspond à un écart relatif d'environ 30% pour le mortier L30. En plus de ces variabilités, nous pouvons retrouver celles dues aux types d'essai réalisé, au mode opératoire et à l'expérimentateur lui-même. Dans cette étude, nous avons opté pour une variation de ±20% de la chaleur spécifique et de ±30% de la conductivité thermique. Les résultats des simulations obtenues sont présentés dans la Figure III. 7 et la Figure III. 8. Ils montrent que l'incertitude sur la chaleur spécifique et la conductivité thermique a une incidence sur le comportement du matériau étudié. En effet, la teneur en eau massique au centre de l'échantillon $(x = 0{,}1m)$ varie de 0,3 kg/kg (correspondant à une variation d'environ 4% en HR), due à l'effet de C_p. Une variation de teneur en eau de 0,6 kg/kg est observée (correspondant à environ 7% en HR), due à l'effet de λ.

C. Sensibilité à la chaleur spécifique : $C_p = 1000 \pm 20\%$ c.à.d. $850 \leq C_p \leq 1250$ J/kg.K

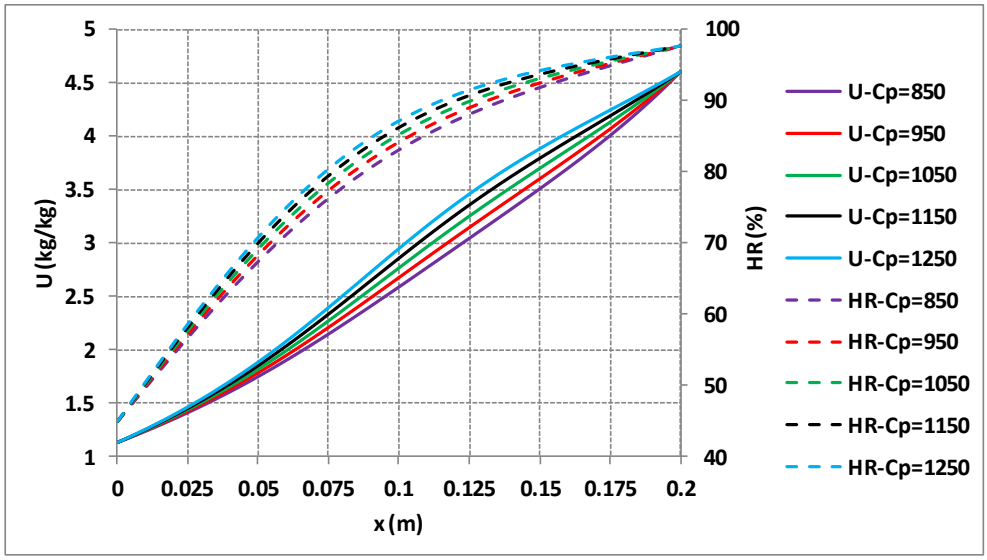


Figure III. 7. Évolution des profils hydriques et d'humidité en fonction de la chaleur spécifique après 10h de transfert

La Figure III. 9 montre une comparaison de l'évolution des profils de teneur en eau et d'humidité en fonction de la combinaison des variations des propriétés du mortier (d_m, ρ, C_p et λ). La légende de la figure est récapitulée dans le Tableau III. 2. L'effet de la variation de l'une des propriétés considérée peut compenser l'effet de l'autre. Le résultat montre une courbe enveloppe définie par sa limite inférieure (courbe rouge "J") qui correspond aux données d'entrée suivantes : $d_m = 5{,}616 \times 10^{-7}\ m^2/s$; $\rho = 1900$ kg/m^3 ; $C_p =$

$850\ J/kg.K$ et $\lambda = 0{,}78\ W/m.K$ et une limite supérieure (courbe bleu "G") avec $d_m = 3{,}024 \times 10^{-7}\ m^2/s$; $\rho = 2100$ kg/m^3 ; $C_p = 1250\ J/kg.K$ et $\lambda = 0{,}42\ W/m.K$.

D. Sensibilité à la conductivité thermique : $\lambda = 0{,}6 \pm 30\%$ c.à.d. $0{,}42 \leq \lambda \leq 0{,}78$ W/m.K

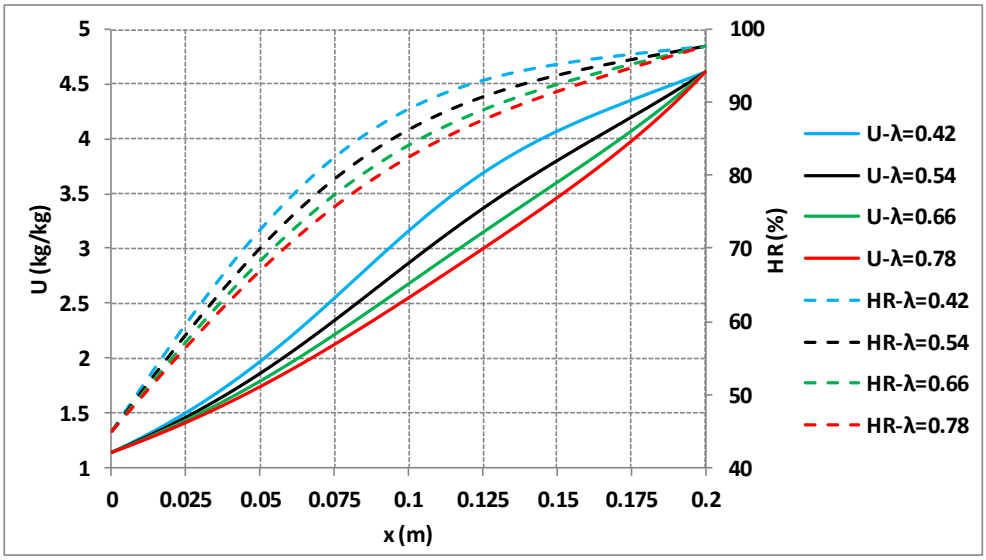


Figure III. 8. Évolution des profils hydriques et d'humidité en fonction de la conductivité thermique après 10h de transfert

E. Sensibilité aux variations combinées des données d'entrée :

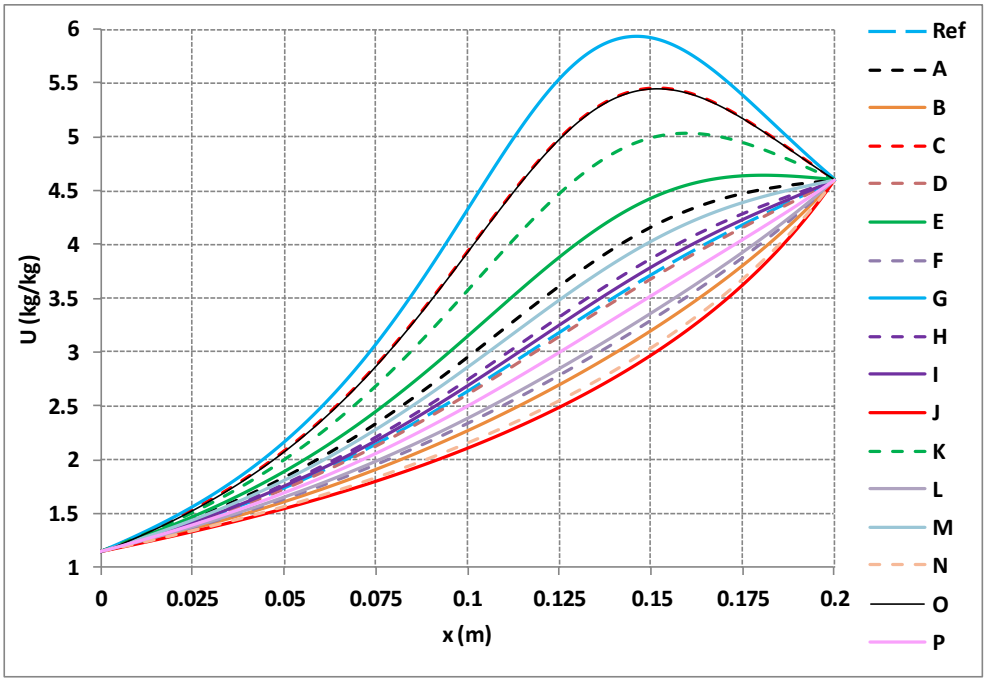


Figure III. 9. Évolution des profils hydriques et d'humidité en fonction de la variation combinée des paramètres d'entrée après 10h de transfert

Tableau III. 2. Complément explicatif de la légende de la Figure III. 9

	$d_m \times 10^{-7}[\frac{m^2}{s}]$	$\rho\ [\frac{kg}{m^3}]$	$C_p[\frac{J}{kg.K}]$	$\lambda[\frac{W}{m.K}]$		$d_m \times 10^{-7}$	ρ	C_p	λ
A	3,024	1900	850	0,42	I	5,616	1900	850	0,42
B	3,024	1900	850	0,78	J	5,616	1900	850	0,78
C	3,024	1900	1250	0,42	K	5,616	1900	1250	0,42
D	3,024	1900	1250	0,78	L	5,616	1900	1250	0,78
E	3,024	2100	850	0,42	M	5,616	2100	850	0,42
F	3,024	2100	850	0,78	N	5,616	2100	850	0,78
G	3,024	2100	1250	0,42	O	5,616	2100	1250	0,42
H	3,024	2100	1250	0,78	P	5,616	2100	1250	0,78

Nous présentons dans le Tableau III. 3 l'estimation de l'écart relatif de la teneur en eau au centre de l'échantillon par rapport au résultat déterministe (courbe "Ref"). Nous remarquons que dans tous les cas où l'erreur relative est au maximum, la conductivité thermique est faible et la chaleur spécifique est élevée. La combinaison de ces deux cas avec un coefficient de diffusion faible et une masse volumique élevée engendre une erreur relative de +64% (cas G). Ce cas s'explique par la diminution du coefficient de diffusion qui réduit la cinétique de transfert de masse combinée à une augmentation de la masse volumique, donc réduction de la porosité et du transfert. De ce cas, nous pouvons conclure que l'augmentation de la chaleur spécifique fait ralentir le transfert, a contrario de l'effet de l'élévation de la conductivité thermique.

Nous constatons aussi que la variabilité des paramètres d'entrée n'a pas les mêmes effets et que ces effets peuvent se compenser comme dans les cas A et P où, malgré la grande variabilité des paramètres, les profils de teneur en eau dans les deux cas sont très proches du profil déterministe avec une erreur faible en comparaison au cas G. Cette erreur est de l'ordre de 5%.

Tableau III. 3. Écart relatif de la teneur en eau à x=0,1 m pour différentes combinaisons des paramètres d'entrée après 10h de transfert

Cas	d_m	ρ	C_p	λ	Écart relatif (%)	Observations
A	↙	↙	↙	↙	**12,06**	La courbe A correspond à une sous-estimation de tous les paramètres d'entrée du modèle. Cela réduit la teneur en eau à x=0,1m de 12%.
B					-13,97	
C	↙	↙	↗	↙	**49,29**	Sous-estimation de d_m, ρ et λ avec une surestimation de C_p fait augmenter l'erreur relative par rapport à la référence.
D					-1,08	
E					19,39	
F					-11,37	
G	↙	↗	↗	↙	**64**	Sous-estimation de d_m et λ avec une surestimation de ρ et C_p. L'erreur relative est maximale dans ce cas.
H					4,05	
I					1,95	
J					-20	
K	↗	↙	↗	↙	**35**	Sous-estimation de λ et ρ avec une surestimation de d_m et C_p.
L					-9,57	
M					8,51	
N					-18,95	
O	↗	↗	↗	↙	**48,95**	Sous-estimation de λ avec une surestimation de d_m, ρ et C_p.
p	↗	↗	↗	↗	**-5,24**	La courbe P correspond à une surestimation de tous paramètres d'entrée du modèle. Cela affecte la teneur en eau à x=0.1m de 5% en la diminuant.

III.3. Applications :

III.3.1. Effet de l'âge des matériaux sur le séchage

Dans le chapitre précédent, nous avons présenté une investigation expérimentale portant sur l'évolution des isothermes de sorption et de la perméabilité à la vapeur d'eau en fonction de l'âge des matériaux cimentaires (pâte de ciment, mortier), où nous avons constaté une diminution du taux de sorption (Figure II.14) et du coefficient de perméabilité à la vapeur (Tableau II.6) à 28 jours. Afin d'évaluer le degré d'importance de cette évolution, nous avons entrepris des simulations de séchage sous Comsol Multiphysics sur les différents matériaux caractérisés en fonction de leur âge (pâte1, pâte L30, mortier1 et mortier L30). Le séchage est effectué à une température de 45°C et 11% d'humidité relative pendant 5 heures en considérant un état initial de saturation sur des échantillons de 20 cm d'épaisseur. Les simulations sont réalisées selon la configuration de séchage suivante (Figure III. 10) :

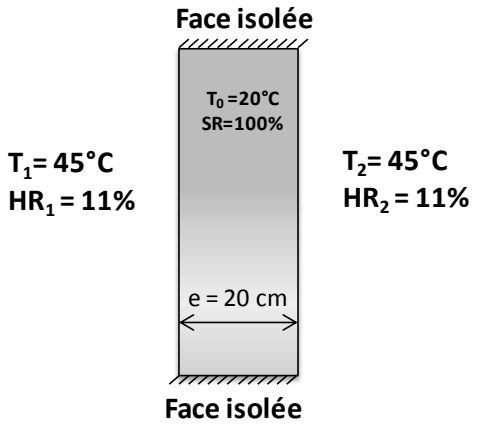


Figure III. 10. Description schématique des conditions aux limites et initiales

La Figure III. 11 présente les profils de teneur en eau à l'issue de 5 jours de séchage des matériaux mentionnés dans le chapitre II en fonction de leur âge. Cette étude considère l'effet de l'évolution combiné du coefficient de diffusion (Tableau III. 1), de l'isotherme de désorption et de la chaleur spécifique en fonction de l'âge du matériau.

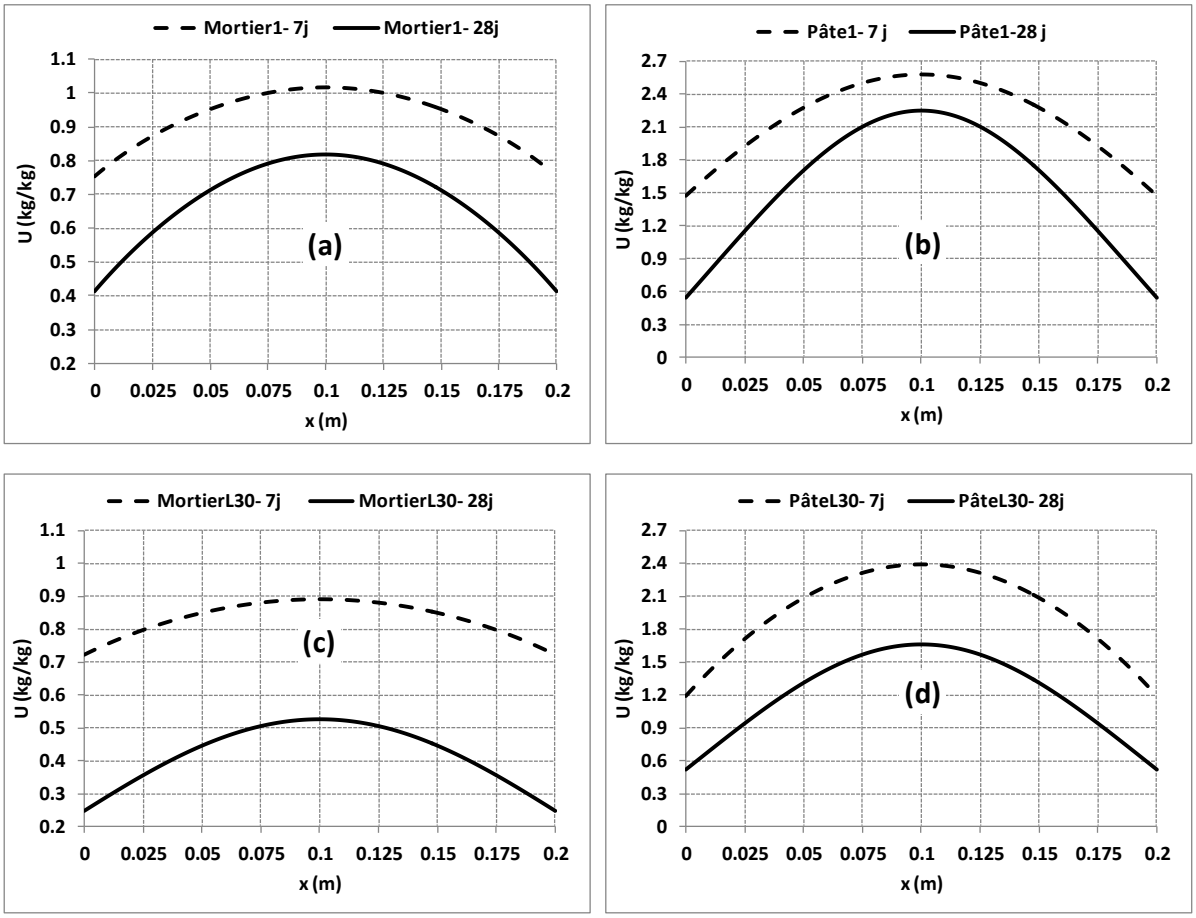


Figure III. 11. Comparaison des profils de teneur en eau à l'issue d'un séchage de 5 heures du mortier 1 (a), pâte1 (b), mortier L30 (c) et pâte L30 (d) à 7 et 28 jours d'âge

Nous constatons en moyenne une diminution de la teneur en eau à 28 jours d'environ 20%, 12%, 45% et 30% pour le mortier 1, pour la pâte 1, pour le mortier L30 et pour la pâte L30, respectivement. Ce sont des écarts qui ne sont pas négligeables. Ce résultat montre l'importance de la prise en compte d'une multitude de paramètres lors de la prédiction du comportement hygrothermique des matériaux cimentaires. Ces derniers n'ont pas la même cinétique de séchage au début et à la fin de leur hydratation.

III.3.2. Effet de la prise en compte du palier de saturation sur le séchage

Nous avons montré dans le chapitre précédent que l'isotherme d'adsorption et de désorption déterminée de façon classique est incomplète pour décrire le comportement hydrique des matériaux cimentaires. Un essai de rétention d'eau est alors mené pour la compléter. Un palier de saturation pour les fortes humidités est alors apparu. Cela modifie clairement le comportement du matériau. En effet, les paramètres des modèles d'isothermes GAB et GDW changent comme l'ont montré sur les figures II.27 et II.28 et le tableau II.5. Dans cette partie du chapitre, nous avons évalué l'effet de la prise en compte de ce palier de saturation sur le séchage décrit dans la partie précédente (paragraphe III.3.1). La Figure III. 12 présente une comparaison des profils de teneur en eau obtenus à l'issue de 5 heures de séchage de la pâte1 en considérant ou pas le palier de saturation obtenue par l'essai de rétention d'eau. Le constat est clair : la teneur en eau du matériau est largement supérieure dans le cas ou l'on considère le palier de saturation. Un écart relatif de 55% est enregistrée sur la prédiction du comportement d'un même matériau sans complément par rétention d'eau de sa courbe de sorption. Ce résultat est confirmé par le suivi de l'évolution de la teneur en eau au milieu de l'échantillon à $x = 0{,}1\ m$ dans les deux cas (Figure III. 13). Nous distinguons de cette figure une grande incertitude sur la teneur en eau à saturation (conditions initiales) qui est sous estimée dans le cas de l'isotherme classique (sans complément par rétention d'eau). Ce constat nous interpelle sur l'importance de l'investigation expérimentale pour caractériser les propriétés intrinsèques des matériaux étudiés notamment sur la mesure de la teneur en eau à saturation. Cette propriété est primordiale dans ce cas d'étude où l'on considère un état initial saturé.

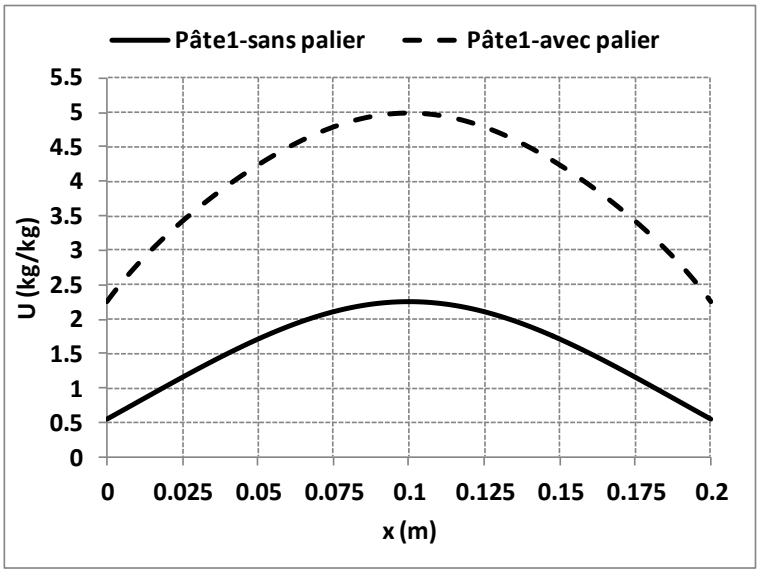


Figure III. 12. Comparaison des profils de teneur en eau à l'issue de 5 heures de séchage de la pâte1 avec et sans palier de saturation à 28 jours d'âge

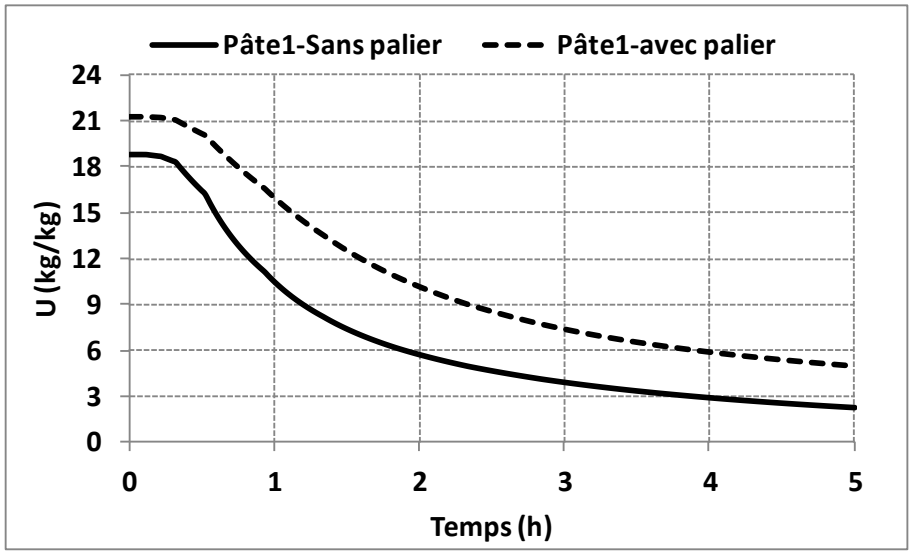


Figure III. 13. Comparaison de l'évolution de la teneur en eau au milieu de l'échantillon ($x=0,1m$) en fonction du temps de séchage pour la pâte 1 à 28 jours d'âge

III.3.3. Analyse des méthodes de pré-conditionnement avant l'essai de carbonatation accélérée

Les normes actuelles dans le domaine du génie civil obligent à garantir une durée de vie pour les constructions. En d'autres termes, ces exigences visent à garantir une conservation des propriétés des constructions ainsi que leur intégrité pour une durée de vie donnée. Ceci conduit la communauté scientifique à s'intéresser aux différents phénomènes affectant la durabilité des structures en béton armé. Le principal phénomène de dégradation est la corrosion des armatures qui constitue un danger potentiel pour la conservation et la stabilité des ouvrages. Hormis le cas des chlorures en façade maritime, cette corrosion est en majeure

partie due à la carbonatation du béton par le dioxyde de carbone atmosphérique (CO_2). Ce phénomène est parmi les plus répandues des agressions environnementales que subissent les matériaux cimentaires en général et les bétons en particulier. Elle est l'une des principales causes de ce phénomène [162, 163].

Le processus de carbonatation est décrit comme suit : le dioxyde de carbone atmosphérique diffuse dans le béton non-saturé sous sa forme gazeuse par le réseau poreux et les fissures. En présence d'eau dans les pores, le CO_2 réagit avec la pâte de ciment hydraté et notamment la portlandite, pour former des carbonates de calcium $CaCO_3$ [131]. Cette réaction s'accompagne d'une diminution du pH de la solution interstitielle du béton à une valeur inférieur à 9 [164], dépassivant ainsi les aciers dans le cas du béton armé ou précontraint et favorisant, par conséquent, leur corrosion. Le mécanisme de carbonatation de la portlandite est souvent simplifié et s'écrit :

$$Ca(OH)_2 + CO_2 \rightarrow CaCO_3 + H_2O \qquad \text{III. 5}$$

La caractérisation des matériaux cimentaires vis-à-vis de la carbonatation se fait :

- Soit en conditions naturelles in situ en exposant les échantillons de béton à des concentrations de CO_2 en conditions climatiques non contrôlées. Ce protocole est le plus proche de la réalité. Ces conditions naturelles peuvent également être reproduites en laboratoire où les éprouvettes de béton sont exposées directement à l'air libre dans une salle avec des conditions contrôlées de température et d'humidité relative ; et la concentration en CO_2 demeurant celle de l'air libre.

- Soit en conditions accélérées selon la norme expérimentale XP P 18-458 [165] afin d'accélérer le processus, connu pour sa lenteur dans les matériaux cimentaires, notamment le béton de structures. Dans ce cas, la concentration du gaz injecté depuis une bouteille est mesurée en continu par un analyseur, ce qui permet d'ajuster, à l'aide d'une électrovanne, sa valeur dans la cellule à 50 ± 5 % en volume par exemple [166, 167, 168]. Notons que ces valeurs de concentrations en CO_2 sont plutôt adoptées en France. L'humidité relative dans l'enceinte est maintenue à 65 ± 5 % par une solution saturée de nitrate d'ammonium [169]. Pacheco-Torgal *et al.* [170] ont préconisé une valeur de l'humidité relative comprise entre 50 et 70%. Cette humidité relative est choisie car la carbonatation est maximale dans cette plage d'hygrométrie. Cependant, cette plage d'humidité relative a été jugée optimale principalement pour les bétons et les mortiers ordinaires [171]. Drouet *et al* [172] indiquent que l'humidité relative pour les bétons à base de laitier est plus faible en raison de leur structure porale plus fine.

Avant le démarrage de l'essai de carbonatation accélérée, les échantillons subissent un pré-conditionnement dans le but d'optimiser l'essai en assurant un degré de saturation optimum favorisant la pénétration du gaz CO_2 et sa dissolution. Le degré de saturation optimum signifie qu'il y a assez d'air dans les pores du matériau permettant une diffusion plus rapide et facile du CO_2 et assez d'eau pour sa dissolution. Ce taux de saturation a une forte influence sur la progression du front de carbonatation dans le béton. En effet, la fraction gazeuse disponible pour le transfert du CO_2 est $\varepsilon(1-SR)$, avec ε qui correspond à la porosité du matériau et SR son degré de saturation. Ainsi, si le matériau est saturé d'eau (SR=1), la diffusion du CO_2 n'est donc possible qu'à travers la solution interstitielle, ce qui freine considérablement la progression de la carbonatation. A contrario, si le taux de saturation est trop faible ($SR \approx 0$), la dissolution du CO_2 est fortement limitée et la cinétique de carbonatation des hydrates est très lente.

Afin de d'étudier l'impact du pré-conditionnement sur la carbonatation, deux protocoles sont analysés dans ce chapitre :

- Protocole 1 : Les échantillons préalablement saturés sont placés dans une étuve à (40±2) °C pendant (48±2) heures. Ce mode de pré-conditionnement correspond à celui recommandé par l'AFREM [84].

- Protocole 2 : Les échantillons préalablement saturés sont placés dans une étuve à (45±5) °C pendant 14 jours. Ce mode de conditionnement correspond à celui recommandé par la norme expérimentale XP P 18-458 [165].

Le choix du protocole de pré-conditionnement est à la fois délicat et important, car il doit dépendre de la nature du matériau et surtout de sa microstructure. L'objectif de cette étude est de reproduire par simulation les deux pré-conditionnements décrits précédemment afin d'obtenir les profils hydriques à l'issue de ces derniers. Il s'agit, de montrer qu'à l'équilibre, avec une humidité relative environnante de 65%, des matériaux différents (Bétons Hautes Performances (BHP) et bétons courants) ont des profils de degré de saturation différents qui ne correspondent pas toujours au profil optimal pour l'essai de carbonatation accélérée.

Constat : Les recommandations AFREM stipulant un séchage à (40±2) °C pendant (48±2) heures semblent loin d'être optimales pour tous les matériaux cimentaires, surtout les BHP qui ont une porosité plus fine et donc un coefficient de diffusion d'humidité très faible. Le séchage est largement insuffisant pour ce type de matériau. Pour ce qui concerne le protocole 2 correspondant à la norme expérimentale XP P 18-458, nous remarquons qu'il doit permettre de tendre vers des degrés de saturation plus favorables à la carbonatation. Nous verrons plus en détail ce qu'il en est à la lumière de nos résultats de simulation.

III.3.3.1. Matériaux étudiés

Trois types de matériaux sont étudiés dans cette application, un béton haute performance (BHP) noté A1 prélevé in situ et caractérisé dans le cadre du projet Applet financé par l'ANR et le RGCU [94, 118, 120]. Le deuxième béton noté C15 est issu du projet MEDACHS et caractérisé au sein de notre laboratoire [94, 173]. Le troisième et dernier béton, tiré de la littérature, est classé béton courant et noté (BO) [39]. Les caractéristiques des bétons A1 et C15 sont résumés dans le Tableau III. 4. La distribution de la taille des pores du BHP A1 et du béton C15 sont illustrées dans la Figure III. 14.

Tableau III. 4. Compositions et propriétés des matériaux [94, 118, 120]

Composition et propriétés du matériau	A1	C15
Porosité (%)	12	15
Ciment (Kg/m^3)	350	275
Sable (Kg/m^3)	900	729
Gravier (Kg/m^3)	950	1085
Eau (Kg/m^3)	174	222
Addition (Kg/m^3)	80	-
Résistance en compression (MPa)	61.1	15.4

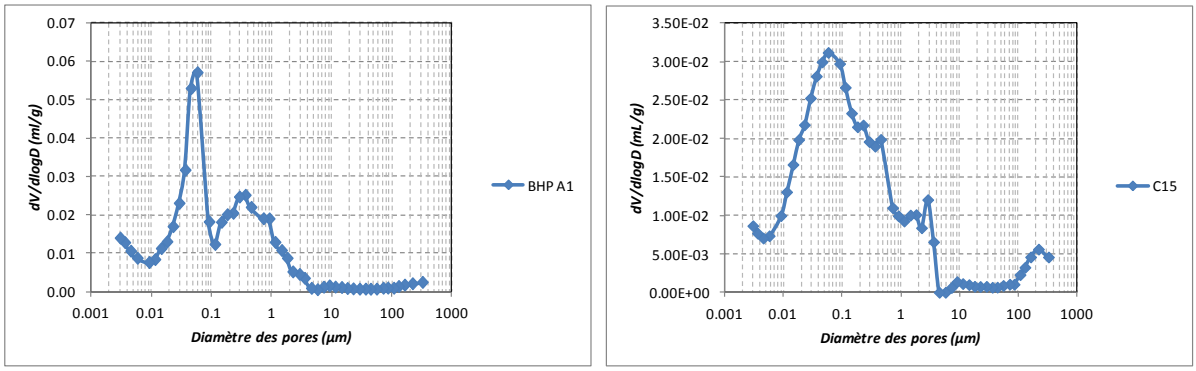


Figure III. 14. Distributions de la taille des pores obtenues par intrusion de mercure du BHP A1 et du béton C15 [94]

- Isothermes d'adsorption et de désorption de la vapeur d'eau

Les courbes d'isotherme de désorption des différents matériaux testés dans cette analyse sont illustrées sur la Figure III. 15.

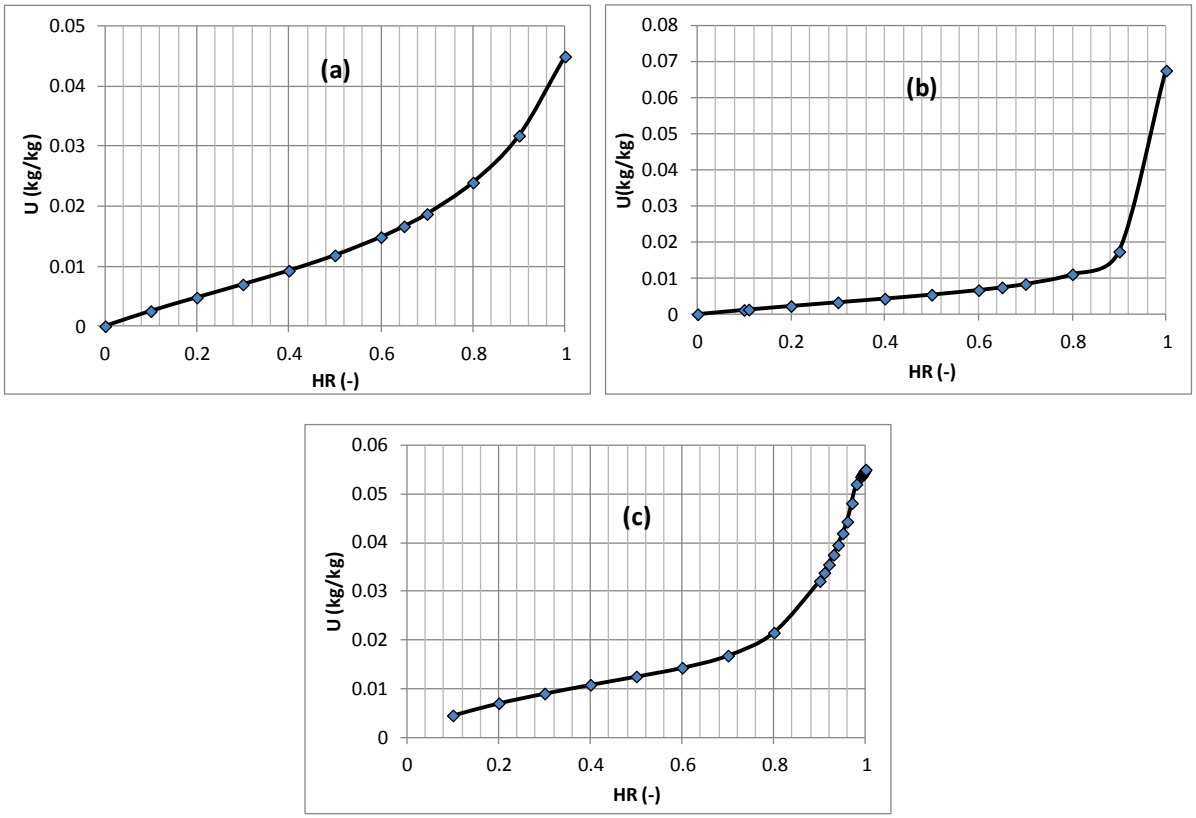
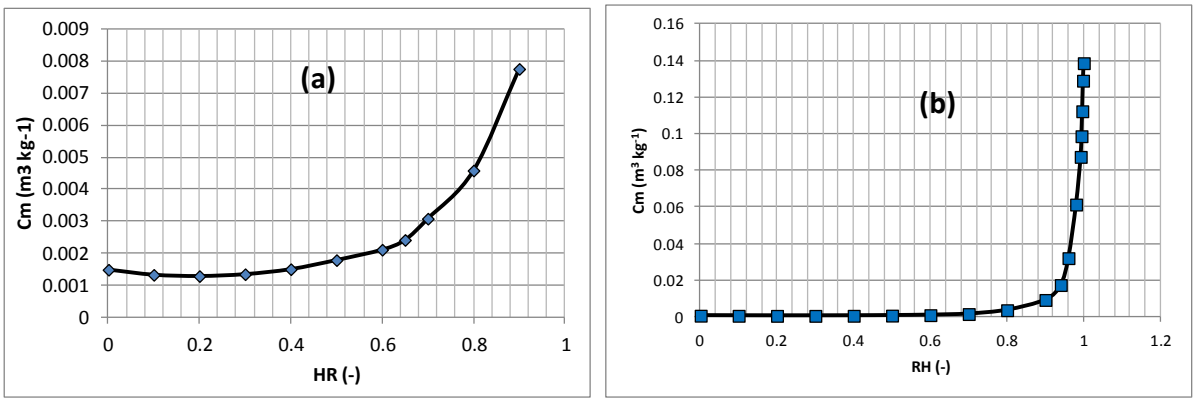


Figure III. 15. Isotherme de désorption des matériaux :
(a) BHP A1, (b) béton C15 [94] et (C) béton courant BO [39]

➢ Capacité de stockage d'humidité C_m

La capacité de stockage d'humidité C_m (Figure III. 16) est obtenue en exploitant les courbes d'isothermes de désorption de la vapeur d'eau (Figure III. 15). Elle est obtenue à une constante multiplicative près par la pente de celle-ci et est définie dans l'équation III. 10.



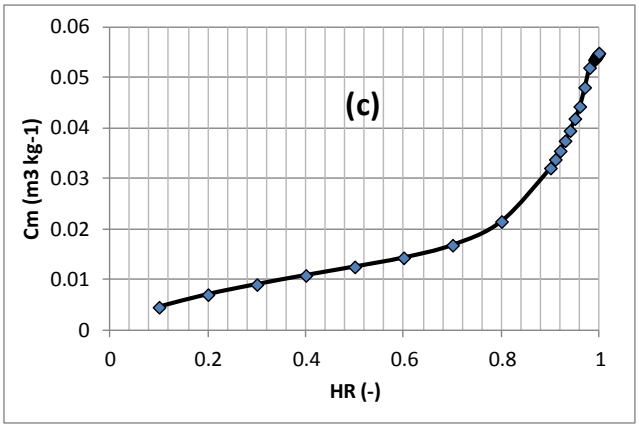


Figure III. 16. Capacité de stockage d'humidité C_m des matériaux :
(a) BHP A1, (b) du béton C15 et (c) du béton BO

- Coefficient de diffusion hydrique D_m

Le coefficient de diffusion hydrique des matériaux A1, C15 et BO sont présentés sur la Figure III. 17. Il est considéré évoluer par palier en fonction de la teneur en eau du matériau. La détermination expérimentale de ce coefficient dans le cas du BHP A1 et du béton C15 a été effectuée suivant deux approches différentes, selon les travaux de Trabelsi [94].

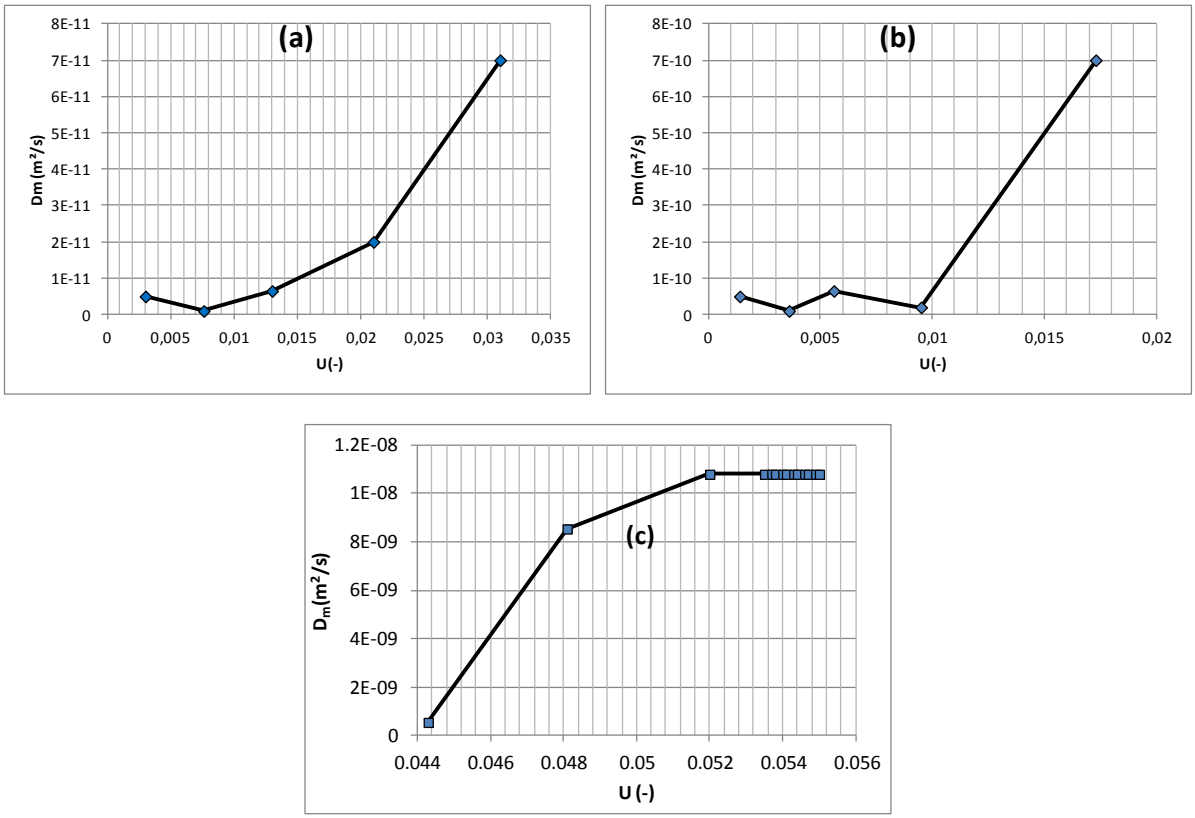


Figure III. 17. Coefficient de diffusion hydrique du BHP A1 (a),
du béton C15 (b) [94] et du béton BO [39]

III.3.3.2. Modèles utilisés et données d'entrée

Dans cette application, les deux modèles cités précédemment ont été utilisés avec un gradient de pression total nul. L'utilisation des deux modèles avec des moteurs de transfert différents nous a permis d'observer l'effet sur la prédiction du comportement hygrothermique de l'utilisation des conditions aux limites de type teneur en eau qui sont considérées non continues. Pour résoudre le modèle développé, nous avons choisi l'outil COMSOL Multiphysics. Il est plus adapté au traitement de problèmes de transferts où plusieurs phénomènes interviennent simultanément comme c'est le cas pour le transfert couplé de chaleur et d'humidité.

Les données d'entrée des modèles sont résumées dans le Tableau III. 5 suivant :

Tableau III. 5. Données d'entrées du modèle

Paramètres	A1	C15	BO
ρ ($kg.m^{-3}$)	2358	2300	2200
Cp ($J.kg^{-1}.K^{-1}$)	800	850	840
λ ($W.m^{-1}.K^{-1}$)	3,4	2,1	1,2
σ (−)	0,3	0,3	0,3
h_{lv}($J.kg^{-1}$)	$2{,}5 \times 10^{6}$	$2{,}5 \times 10^{6}$	$2{,}5 \times 10^{6}$
δ (K^{-1})	10^{-3}	10^{-3}	10^{-3}
γ ($J.kg^{-1}$)	$2{,}77 \times 10^{6}$	$2{,}77 \times 10^{6}$	$2{,}77 \times 10^{6}$

III.3.3.3. Présentation des cas d'études

Les deux protocoles de pré-conditionnement cités et définis précédemment, à savoir ceux recommandés par l'AFREM pour l'un et la norme XP P 18-458 pour l'autre sont étudiés.

En plus des simulations numériques du pré-conditionnement (séchage), un suivi par simulation de l'évolution du profil hydrique dans le matériau au cours de l'essai de carbonatation accélérée est entrepris. L'étude est alors divisée en deux phases successives :

Phase 1 : Pré-conditionnement du matériau préalablement saturé. Les simulations sont effectuées selon la configuration illustrée sur la Figure III. 18.

→ Protocole 1 : mise en étuve à (40±2) °C pendant (48±2) heures.
→ Protocole 2 : mise en étuve à (45±5) °C pendant 14 jours.

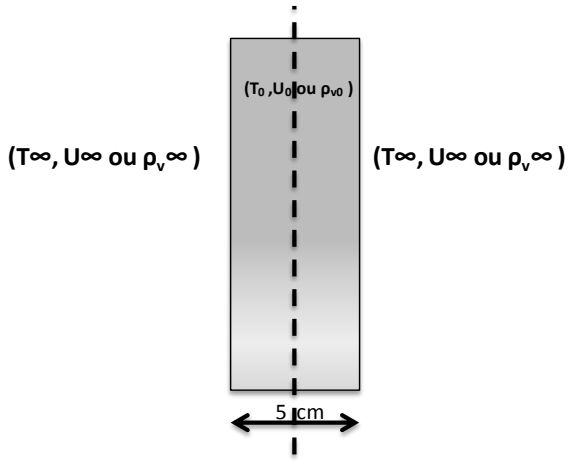


Figure III. 18. Schéma représentatif de la configuration étudiée (phase 1) et les conditions aux limites externes associées

Avec : $(T_\infty, U_\infty ou\ \rho_{v\infty})$ et $(T_0, U_0 ou\ \rho_{v0})$ sont respectivement les conditions aux limites de type Dirichlet et les conditions initiales (Tableau III. 6). (U_∞, U_0) et $(\rho_{v\infty}, \rho_{v0})$ sont, respectivement, les conditions aux limites et initiales du modèle en teneur en eau et celui en teneur en vapeur utilisés.

Tableau III. 6. Conditions initiales et aux limites de la phase 1

Conditions	A1	C15	BO
$T_0\ (K)$	293,5	293,5	293,5
$U_0\ (kg/kg)$	0,045	0,067	0,055
$\rho_{v0} = \rho_{v\,sat}\ (kg/m^3)$	0,017	0,017	0,017
$T_\infty (K)$	313,5* ; 318,5**	313,5* ; 318,5**	313,5* ; 318,5**
$U_\infty = U(Hr_{étuve} = 11\%)$	0,0029	0,0013	0,004
$\rho_{v\infty} = \rho_v(Hr_{étuve} = 11\%)$	$1{,}87 \times 10^{-3}$	$1{,}87 \times 10^{-3}$	$1{,}87 \times 10^{-3}$
Temps (jours)	2* ; 14**	2* ; 14**	2* ; 14**

- * protocole 1, ** protocole 2

Phase 2 : Suivi du profil hydrique au cours de l'essai de carbonatation.

A l'issue du pré-conditionnement (phase 1), les échantillons seront disposés dans l'enceinte de carbonatation à une humidité relative régulée à 65%. Pacheco-Torgal *et al.* [170] considèrent qu'une valeur de HR comprise entre 50 et 70% optimise l'essai de carbonatation accélérée. Or à l'équilibre, avec une humidité relative environnante de 65%, des matériaux à microstructure différentes peuvent avoir des profils de saturation différents et des temps d'équilibre différents. C'est ce que nous nous proposons d'étudier dans cette phase 2.

La durée de cette phase est aléatoire et dépend du matériau testé. Pour un premier exemple, on a choisi de prendre un temps équivalent à 14 jours de carbonatation. Pendant cette phase, nous avons négligé la quantité d'eau formée par le processus de carbonatation et l'effet de cette dernière sur la microstructure du matériau.

Les conditions initiales de cette phase correspondent aux conditions finales de la phase1 de pré-conditionnement. Les conditions aux limites sont récapitulées dans le Tableau III. 7 et correspondant à des conditions de température *T = 20 °C* et d'humidité relative *HR = 65 %* adopté lors d'un essai de carbonatation accélérée. Nous ne nous intéressons pas dans cette étude à la concentration du mélange gazeux. Nous supposons dans ces cas d'étude que la teneur en eau à saturation est obtenue à l'équilibre à 100% d'humidité relative.

Tableau III. 7. Conditions aux limites de la phase2

Conditions	A1	C15	BO
$T_\infty(K)$	293,5	293,5	293,5
$U_\infty = U(HR = 65\%)$	0,0166	0,007	0,0155
$\rho_{v\infty} = \rho_v(HR = 65\%)$	0,011	0,011	0,011
Temps (jours)	14	14	14

III.3.3.4. Résultats et discussions

A. Profils hydriques à l'issue de la phase de séchage (Phase 1)

Les profils hydriques obtenus après séchage selon les deux protocoles 1 et 2 sont présentés sur la Figure III. 19.

L'étape de pré-conditionnement selon les deux protocoles définis précédemment n'as pas pour objectif un séchage total des éprouvettes [165]. Le but en est un séchage partiel afin d'obtenir un degré de saturation (SR) optimum pour la carbonatation accélérée tout en favorisant la pénétration du gaz CO_2 et sa dissolution. Les profils du degré de saturation obtenus par simulation à l'issue de ces pré-conditionnements sont présentés sur la Figure III. 20.

D'après les résultats illustrés sur la Figure III. 19 et la Figure III. 20, nous distinguons que le pré-conditionnement du béton A1 selon les deux protocoles est clairement insuffisant et presque sans effet sur le degré de saturation du matériau qui reste au voisinage de 100% pour le protocole 1 et 90% pour le protocole 2. Le même constat est observé sur le béton C15. En revanche, nous distinguons un effet prononcé sur le degré de saturation du béton BO, avec un profil non homogène et symétrique variant entre 10 et 70% selon le protocole 1 et un profil bien homogène et équilibré à envions 8% selon le protocole 2.

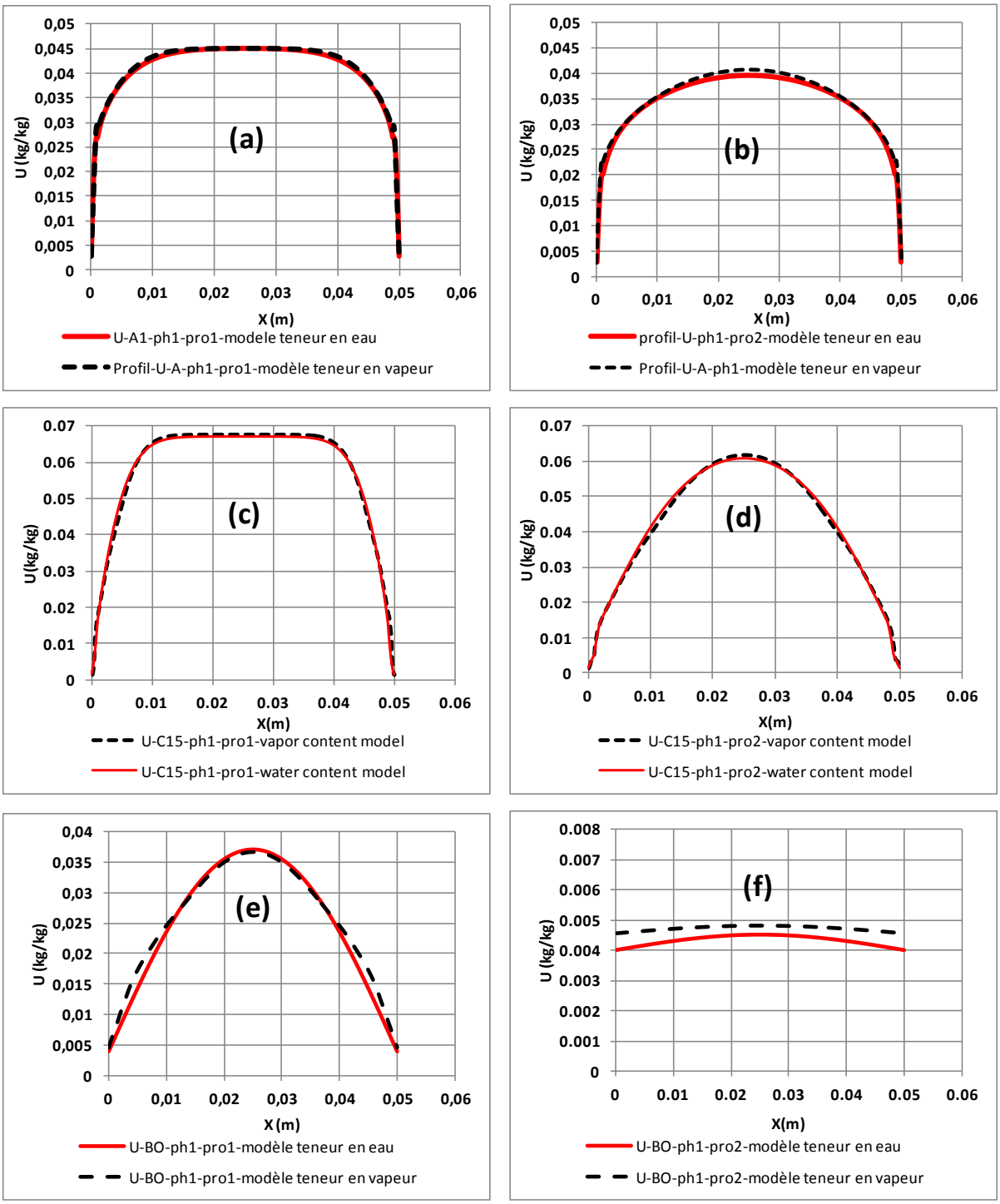


Figure III. 19. Profils hydriques après pré-conditionnement des matériaux A1 (a,b), C15 (c,d) et BO (e,f) selon le protocole 1 (a,c,e) et le protocole 2 (b,d,f)

La Figure III. 20 montre que le pré-conditionnement selon les protocoles 1 et 2 n'est pas adapté à tous les matériaux cimentaires. En effet, le séchage selon les deux protocoles n'est pas suffisant pour les matériaux avec une porosité plus fine comme les BHP. Ce résultat rejoint ceux de dans la littérature pour ce qui concerne le premier protocole, d'après Turcry *et al* [174] et Miragliotta *et al* [166]. La carbonatation des BHP est très lente, voire nulle après un court pré-conditionnement de 2 jours à 40°C. Le profil de SR (Figure III. 20.a)

obtenu selon le protocole 1 n'est pas homogène sur toute l'épaisseur du matériau. Le même constat a été fait par Turcry *et al* [169] et Villain *et al* [175].

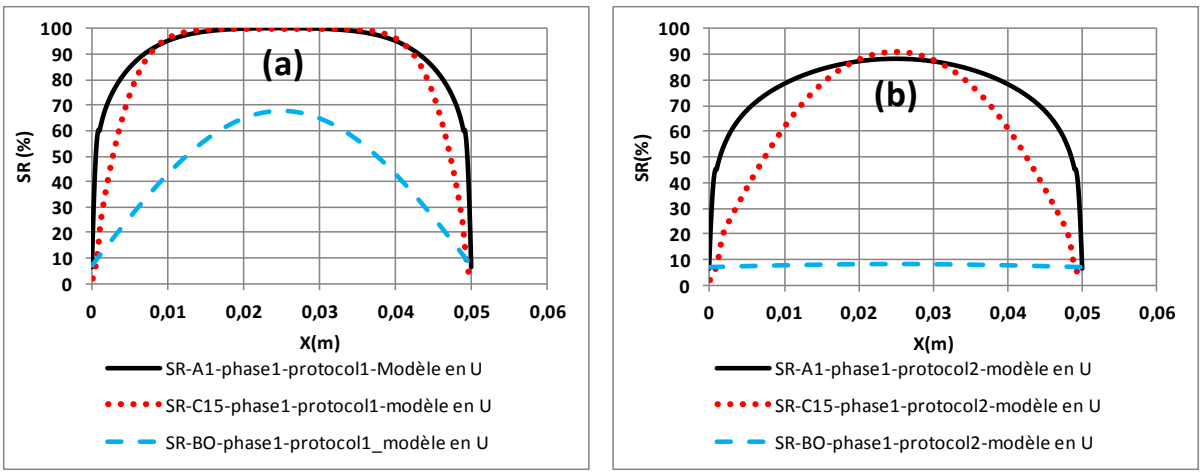


Figure III. 20. Comparaison des Profils de degré de saturation après séchage des matériaux A1, C15 et BO selon le protocole 1 (a) et le protocole 2 (b)

Les résultats de simulation du pré-conditionnement selon le protocole 2 sont en accord avec les résultats expérimentaux obtenus par Turcry *et al.* [169]. Dans ces travaux, il a été question de suivre l'évolution de l'humidité relative et de la température à différentes épaisseurs d'un béton sous un pré-conditionnement en étuve selon le protocole 2.

B. Profils hydriques à l'issu de la phase 2

Les profils hydriques obtenus par simulation numérique à l'issue de la phase 2 sont présentés dans la Figure III. 21 et la Figure III. 22. Les conditions initiales de la phase 2 correspondent aux conditions finales de la phase 1 présentée précédemment. La durée de l'essai est de 14 jours.

À travers ces résultats (Figure III. 19 et Figure III. 21), nous pouvons montrer la bonne concordance des résultats obtenus en utilisant les deux modèles de transfert couplés de chaleur et d'humidité décrits précédemment. Les profils de degré de saturation obtenus à l'issue de la phase 2 sont illustrés sur la Figure III. 22. Le degré de saturation des bétons A1 et C15 diminue légèrement. Il est d'environ 90% au milieu de l'échantillon A1 et C15 qui sont pré-conditionnés selon le protocole 1. De plus, il atteint respectivement 80 et 70% au cœur de l'échantillon A1 et C15 selon le protocole 2. Nous remarquons, en effet, que ces deux protocoles ne sont pas adaptés à ce type de matériau. En revanche, le profil du degré de saturation du béton courant (BO) est homogène et stable à SR=30% selon les deux protocoles de pré-conditionnement étudiés. Au cœur de l'échantillon, le degré de saturation passe de 70% après séchage selon le protocole 1 à 30% à l'issu de la phase 2 et de 10 à 30% selon le protocole 2. Cela montre que, malgré les efforts fournis pour choisir un pré-conditionnement et une humidité relative environnante, pour certains matériaux nous

n'arrivons toujours pas à notre objectif qui est un degré de saturation optimum et son maintien tout au long de l'essai de carbonatation.

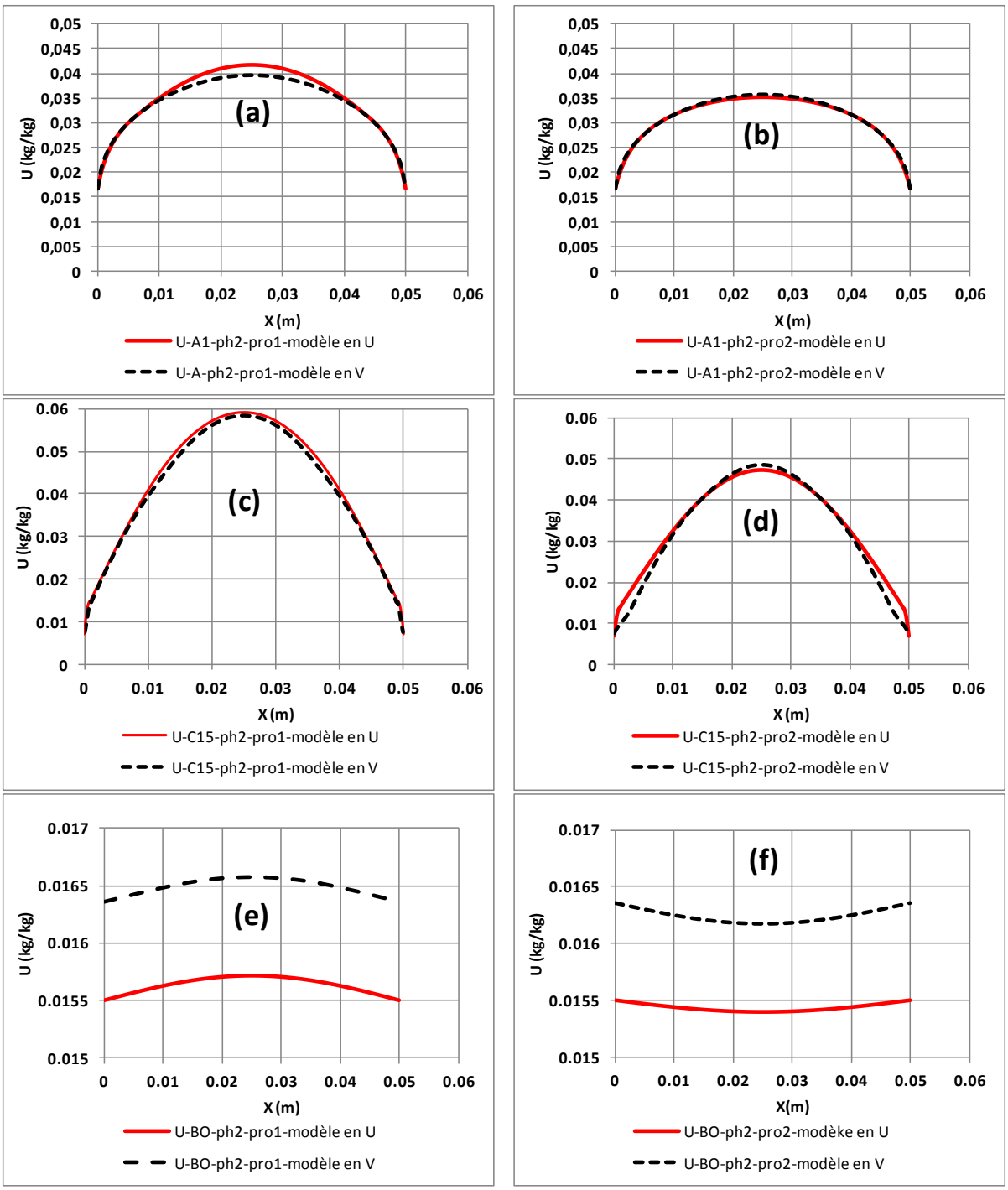


Figure III. 21. Profils hydriques à l'issue de la phase 2 de A1 (a,b), C15 (c,d) et BO (e,f) selon le protocole 1 (a,c,e) et le protocole 2 (b,d,f)

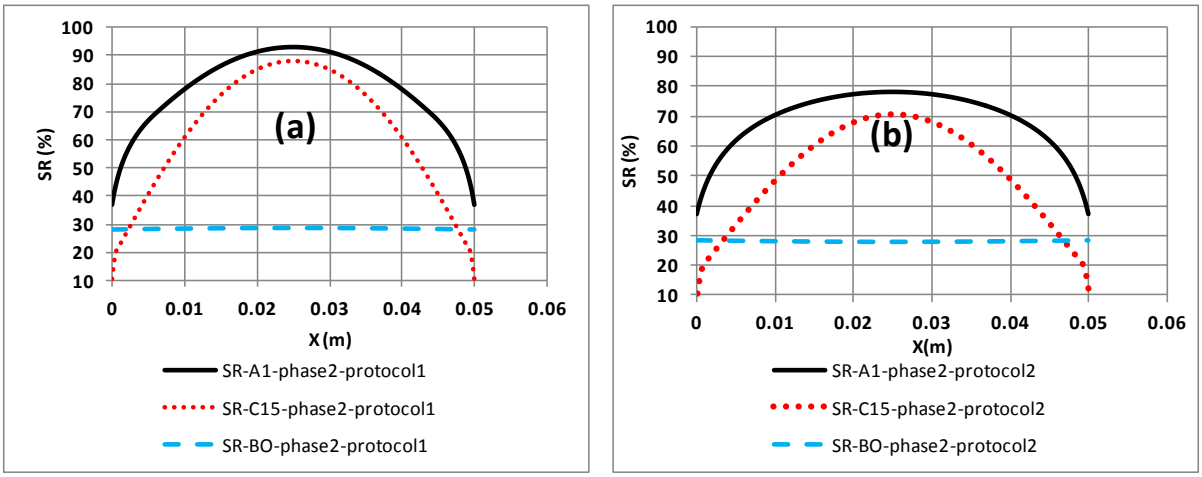


Figure III. 22. Comparaison des Profils de degré de saturation à l'issu de la phase2 des matériaux A1, C15 et BO selon le protocole 1 (a) et le protocole 2 (b)

Afin de mieux analyser nos résultats, nous avons suivi l'évolution de la teneur en eau au cours des deux phases 1 et 2 sur différentes profondeurs (0,5 cm ; 1,5 cm et 2,5 cm) de l'échantillon. Les résultats obtenus sont illustrés dans la Figure III. 23. Ces résultats viennent confirmer les observations citées précédemment avec une teneur en eau différente d'une épaisseur à une autre (profils non homogènes). Un séchage insuffisant des bétons A1 et C15 et un séchage excessif du BO selon le protocole 2 sont observés, pour une optimisation de l'essai de carbonatation accélérée.

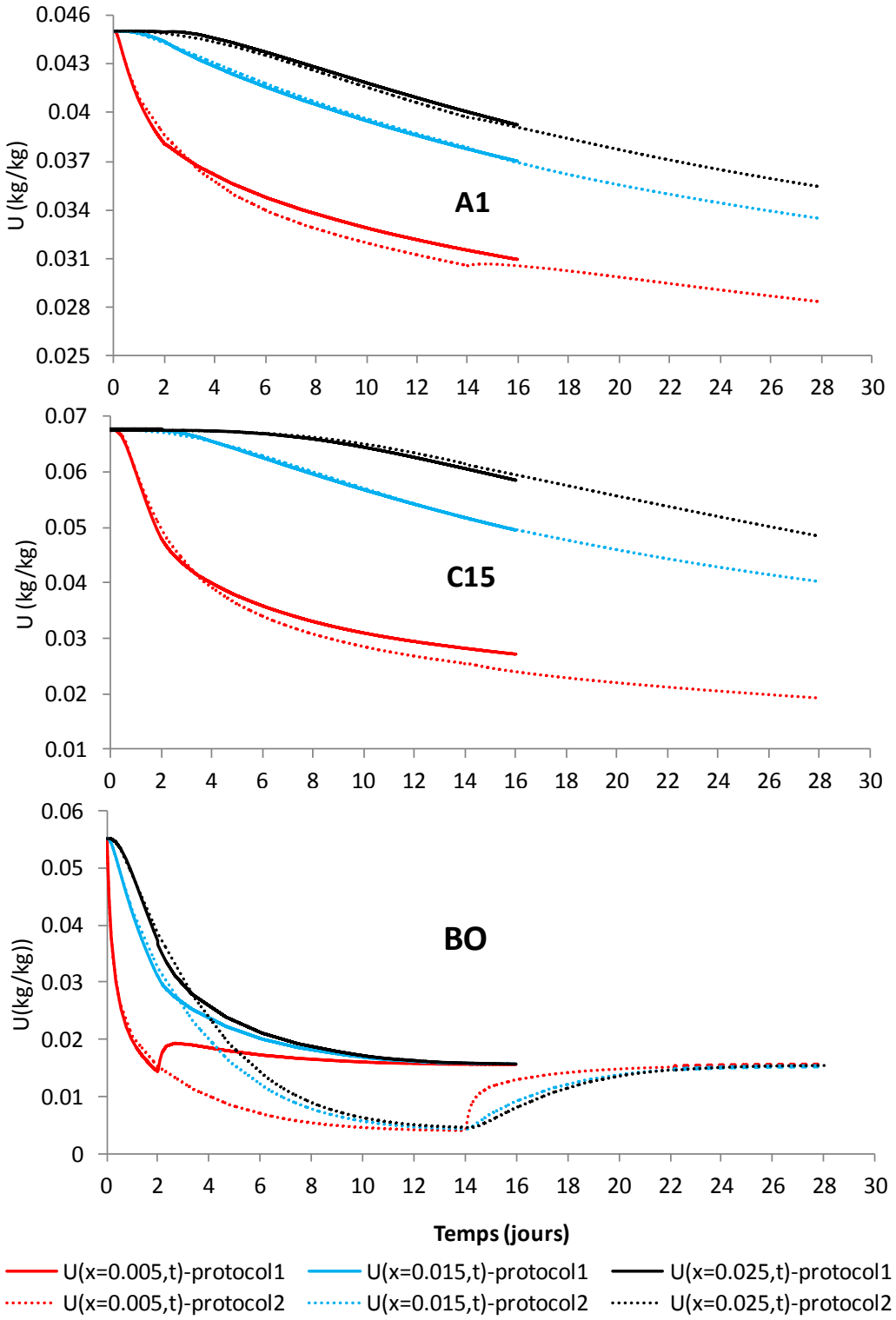


Figure III. 23. Évolution de la teneur en eau au cours des deux phases 1 et 2 selon les deux protocoles de pré-conditionnement 1 et 2

C. Recherche d'un protocole de pré-conditionnement et d'une humidité relative environnante adéquats pour un degré de saturation optimum

Les données résumées dans le Tableau III. 8 montrent que le degré de saturation du matériau à une humidité relative $HR = 65\%$ est différent d'un matériau à un autre ($SR(A1) = 35\%$; $SR(C15) = 10\%$ et $SR(BO) = 28\%$). Cela affecte nécessairement la cinétique de diffusion du dioxyde de carbone lors de l'essai de carbonatation accélérée. C'est pour cela qu'il faut adapter un pré-conditionnement et une humidité relative pour chaque type de matériau en se basant sur ses propriétés intrinsèques telles que la porosité et la diffusivité qui changent d'un matériau cimentaire à un autre en fonction de leur classe de résistance.

Tableau III. 8. Différents états hydriques du matériau à différentes hygrométries

Matériau	Teneur en eau à saturation [kg/kg]	Teneur en eau [kg/kg] à HR=65%	Degré de saturation [%] à HR=65%	Teneur en eau [kg/kg] à SR=50%
Béton A1	0,045	0,016	35	0,027
Béton C15	0,067	0,007	10	0,033
Béton BO	0,055	0,015	28	0,022

L'objectif de cette partie de chapitre est, en connaissant le degré de saturation optimum supposé constant pour tous types de matériaux, de pouvoir déduire par simulation numérique le temps de séchage ainsi que l'humidité relative environnante nécessaires pour atteindre cet optimum. Pour cela nous avons suivi la méthodologie suivante :

- Simuler le séchage pour chaque matériau pendant au moins 3 mois. La température de séchage correspond à une des températures des deux protocoles étudiés ;
- Tracer l'évolution du degré de saturation en fonction du temps et de l'épaisseur de l'échantillon ;
- Détecter le temps de séchage permettant d'atteindre le degré de saturation optimum (valeur connue au préalable). Cette valeur va correspondre au temps de séchage adéquat pour notre matériau ;
- Déduire à partir des courbes d'isothermes de désorption du matériau l'humidité relative environnante nous permettant d'atteindre et de conserver ce degré de saturation optimum. Cette valeur correspondra à l'humidité relative environnante adéquate dans l'enceinte de carbonatation accélérée.

La connaissance avec exactitude du degré de saturation optimum n'est pas l'objet de cette étude. En revanche, un exemple bien fondé du SR optimum est nécessaire pour le

déroulement de la méthodologie proposée. Pour cela, nous nous sommes basés sur les travaux de Van Balen *et al.* [176] où ils ont montré l'évolution du coefficient de diffusion du dioxyde de carbone (CO_2) en fonction de la teneur en eau d'un mortier de chaux (Figure III. 24). Même si ce matériau est différent des nôtres, nous avons choisi de prendre comme exemple son degré de saturation optimum qui sera identifié par la suite à l'aide de la Figure III. 24. Cet exemple est adopté afin d'exécuter la démarche proposée et de vérifier les résultats qui en ressortent. Ces derniers sont à prendre avec précaution.

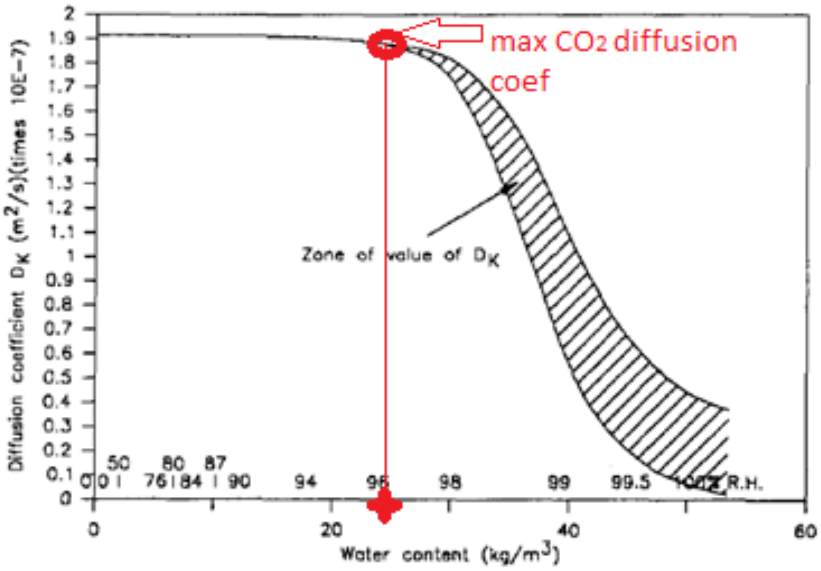


Figure III. 24. Évolution du coefficient de diffusion du dioxyde de carbone en fonction de la teneur en eau d'un mortier de chaux [176]

Le degré de saturation optimum dans ce cas d'étude est d'environs SR=50%. Il est obtenu par le rapport entre la teneur en eau optimum du matériau qui est définie par la plus grande valeur des teneurs en eau correspondante à un coefficient de diffusion de CO_2 le plus élevé ($U = 25\ Kg/m^3$) et la teneur en eau à saturation ($U_{sat} \sim 50\ kg/m^3$) obtenue à 100% d'humidité relative (Figure III. 24). L'avantage de l'utilisation de la Figure III. 24 est qu'elle illustre à la fois l'évolution du coefficient de diffusion du CO_2 en fonction de la teneur en eau et son évolution en fonction de l'humidité relative. L'axe des abscisses donne à la fois la teneur en eau et l'humidité relative. Cela nous offre la possibilité de connaitre la teneur en eau à saturation ainsi que l'humidité relative environnante pour atteindre un coefficient de diffusion de CO_2 le plus élevé.

Après exécution des trois premières étapes de la méthodologie proposée sur nos matériaux, le temps de séchage nécessaires pour atteindre le degré de saturation optimum ($SR = 50\%$) est de **3 mois** pour le béton A1, **45 jours** pour le béton C15 et **60 heures** pour le béton BO. La Figure III. 25 montre l'évolution du degré de saturation des différents matériaux jusqu'à obtention du degré de saturation optimum. De plus, les profils de degré de saturation à

l'issue de cette phase de pré-conditionnement, respectant les temps de séchage proposés, sont illustrés dans la Figure III. 26.

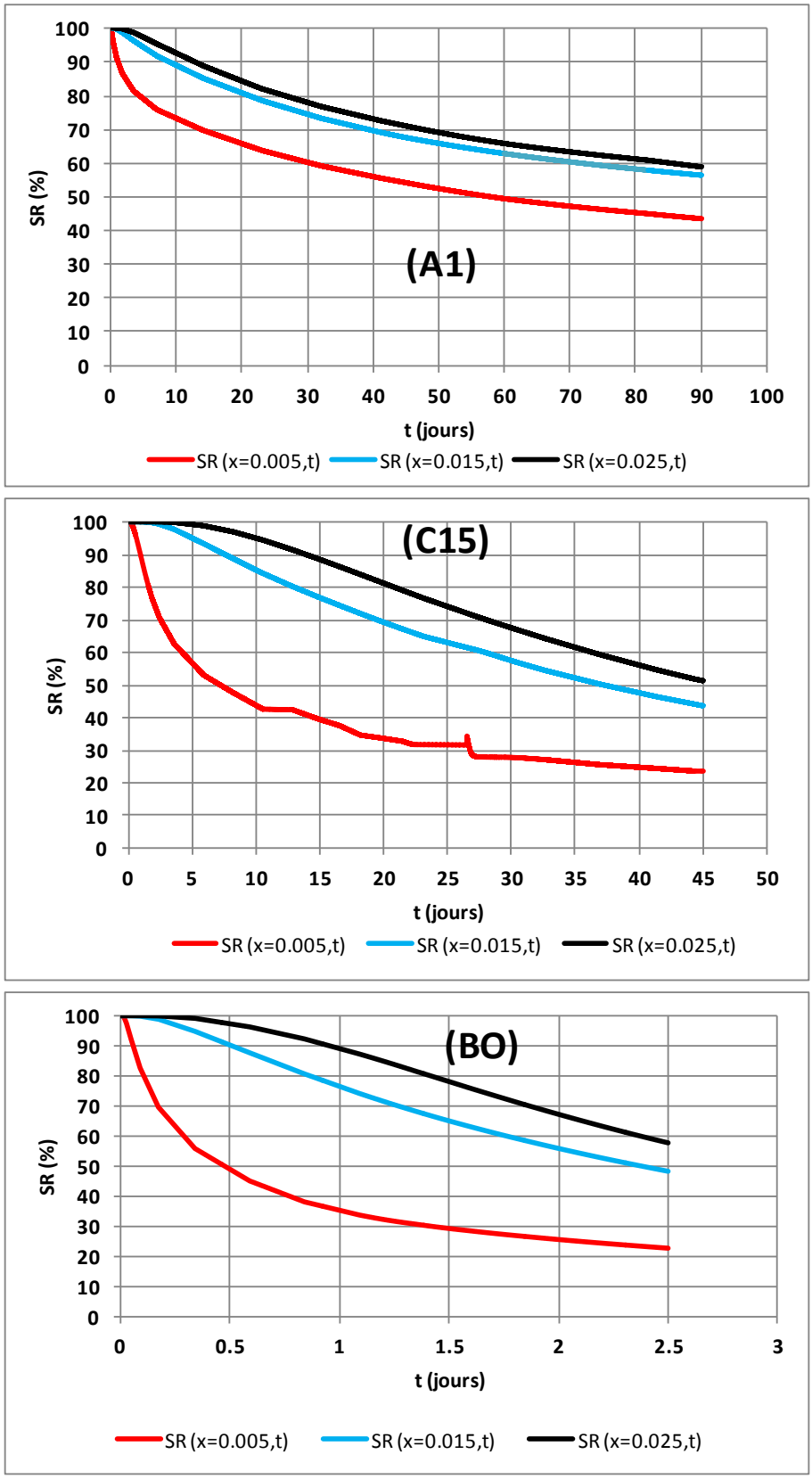


Figure III. 25. Évolution du degré de saturation des trois matériaux jusqu'à obtention du degré de saturation optimum (SR=50%) au centre de l'échantillon

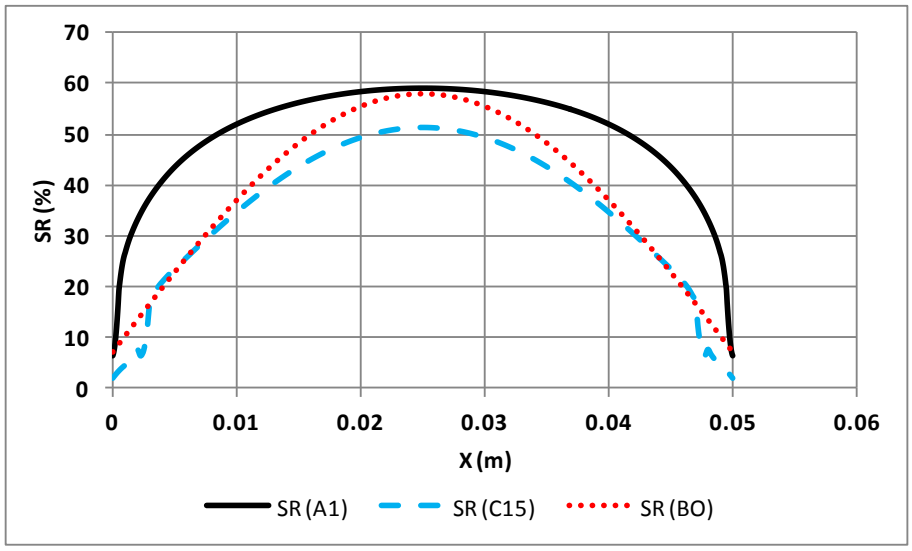


Figure III. 26. Profil de degré de saturation à l'issue du pré-conditionnement proposé (3 mois pour béton A1 ; 45 jours pour béton C15 et 60 heures pour béton BO)

Après exécution de la quatrième et dernière étape de la méthodologie en exploitant l'isotherme de désorption correspondante à chaque matériau, l'humidité relative environnante nécessaire pour garder le degré de saturation au voisinage de l'optimum au cours de l'essai de carbonatation sur les bétons A1, C15 et BO est respectivement égale à 78%, 97% et 87%. Ces humidités relatives semblent incohérentes avec les types de matériaux étudiés. Cela est dû à la forme de l'isotherme de désorption qui est particulière pour le béton C15. Nous retrouvons cette gamme d'humidité relative sur le graphique de Van Balen *et al.* [176] où est illustrées sur l'axe des abscisses la teneur en eau ainsi que l'humidité relative correspondante. L'humidité relative permettant d'avoir une teneur en eau optimum de $25\ kg/m^3$ est de $HR = 96\%$. Il est conseillé, après séchage, de conserver l'échantillon dans un dessiccateur avec une solution saline saturée avoisinant les humidités relatives citées précédemment pendant un temps suffisant dans le but d'homogénéiser le profil de teneur en eau du matériau.

L'évolution du degré de saturation de l'échantillon au cours de l'essai de carbonatation pendant 14 jours avec des humidités relatives environnantes de 78%,97% et 87% pour le béton A1,C15 et BO respectivement sont présentées sur la Figure III. 27. De plus, la Figure III. 28 présente les profils de degré de saturation obtenus au bout de 14 jours sous un environnement hygrométrique adéquat pour un essai optimisé (Température=20°C ; $HR\ (A1) = 78\%$; $HR\ (C15) = 97\%$ et $HR\ (BO) = 87\%$).

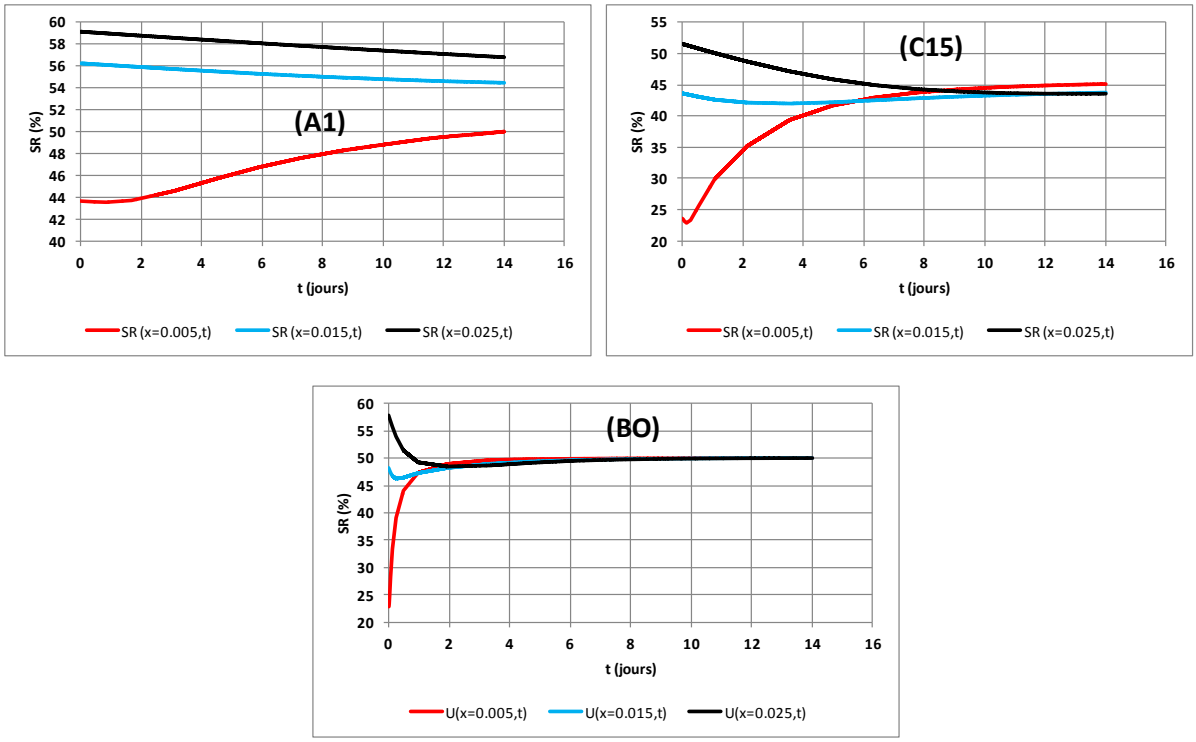


Figure III. 27. Évolution du degré de saturation des trois matériaux
au cours de l'essai de carbonatation pendant 14 jours

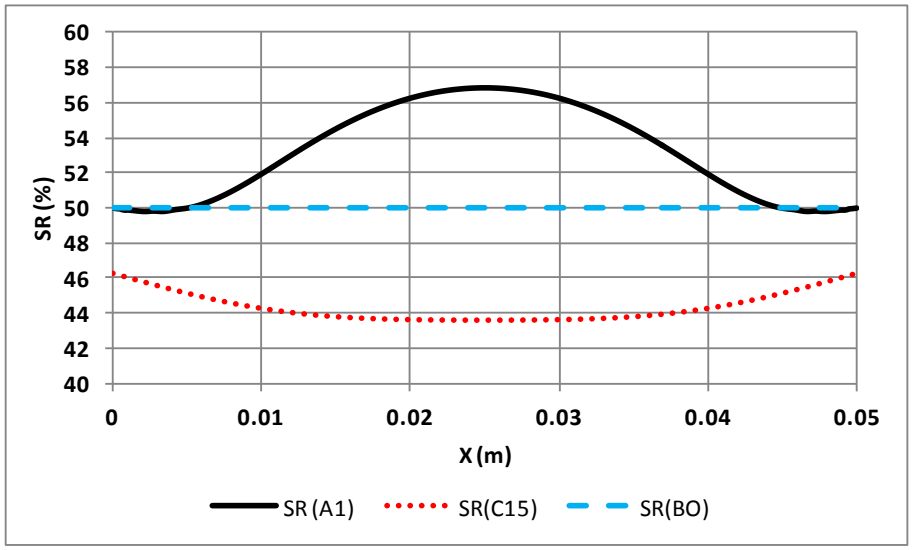


Figure III. 28. Profil de degré de saturation à l'issue de 14 jours d'essai de carbonatation

De ces résultats, nous constatons que lorsque l'on choisit une humidité relative environnante adéquate pour chaque matériau qui est déduite par le biais de son isotherme de désorption, le degré de saturation du matériau lors de l'essai de carbonatation accélérée sera proche de l'optimum fixé à 50% dans ce cas d'étude.

D. Validation expérimentale

Dans le but de valider et de confirmer nos résultats de simulations, un protocole expérimental de suivi de l'évolution de l'humidité relative au sein du matériau béton a été mis en œuvre selon la description ci-dessous.

➢ Protocole expérimental

Le séchage selon les deux protocoles cités ci-dessus a été expérimentalement réalisé (Figure III. 29). De plus, un suivi de l'humidité relative en condition hygrométrique de la phase 2 est aussi mené. Cela est rendu possible grâce à l'utilisation d'une enceinte climatique permettant de réguler la température et l'humidité relative. Le suivi a été réalisé sur un béton de 11 cm de diamètre et de 5 cm d'épaisseur, sa formulation est tirée des travaux de Younsi [131] et correspond au béton de référence noté REF 1 dont les caractéristiques microstructurales sont présentés dans le chapitre II. Le suivi de la température et de l'humidité relative dans le matériau se font à l'aide d'un capteur d'humidité relative et de température de type Sensirion, placé au milieu de l'échantillon et relié à une centrale d'acquisition de données. Un autre capteur est placé à l'intérieur de l'enceinte climatique afin de suivre et de contrôler l'humidité relative de l'ambiance.

Figure III. 29. Photo du dispositif expérimental de suivi de l'humidité relative dans le matériau

➢ Résultats et analyses

La Figure III. 30 et la Figure III. 31 présentent l'évolution de l'humidité relative au milieu de l'échantillon après un pré-conditionnement selon les protocoles 1 et 2, respectivement. De plus, nous présentons sur les mêmes graphiques l'évolution de HR pendant 14 jours obtenue sous des conditions de température et d'humidité de l'ambiance correspondant à ceux considérés lors d'un essai de carbonatation accélérée ; à savoir $65 \pm 5\%$ d'humidité relative et $20 \pm 2\ °C$ en température. Ces résultats viennent confirmer le constat fait après les

simulations numériques présentées précédemment. En effet, le séchage à 40°C pendant 2 jours selon le protocole 1 est largement insuffisant pour ce type de béton qui est classé parmi les bétons courants. En outre, le séchage selon le protocole 2 à un effet contradictoire sur l'humidité relative par rapport au choix des conditions de température et d'humidité de l'enceinte de carbonatation où on distingue une augmentation de HR d'environs 20% au cœur de l'échantillon après le passage de la phase 1 à la phase 2.

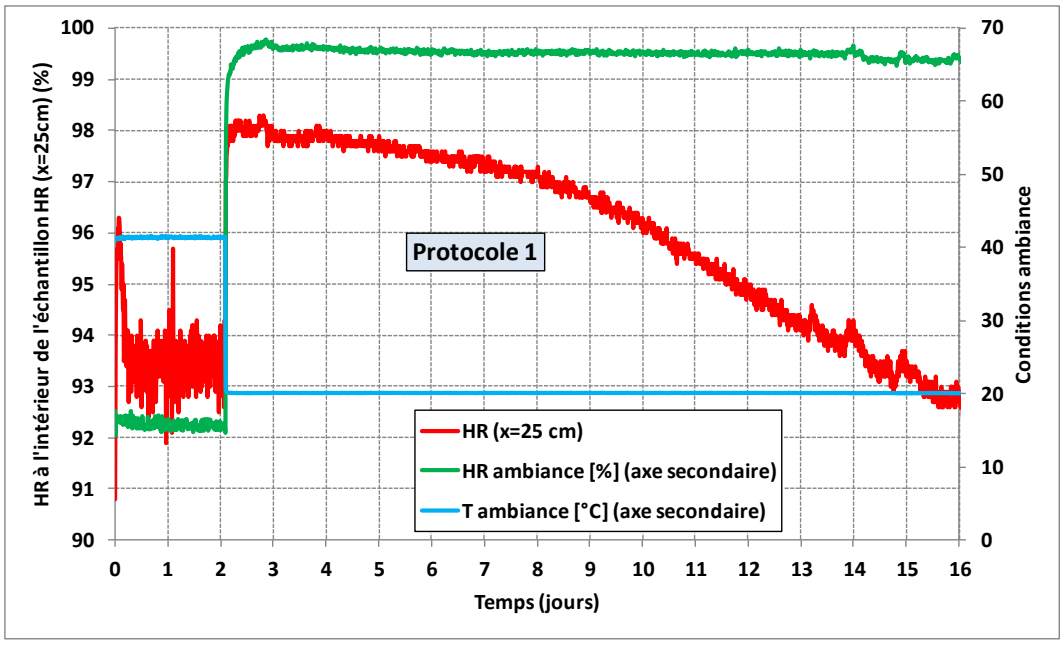


Figure III. 30. Évolution de l'humidité relative au centre de l'échantillon après séchage selon le protocole 1

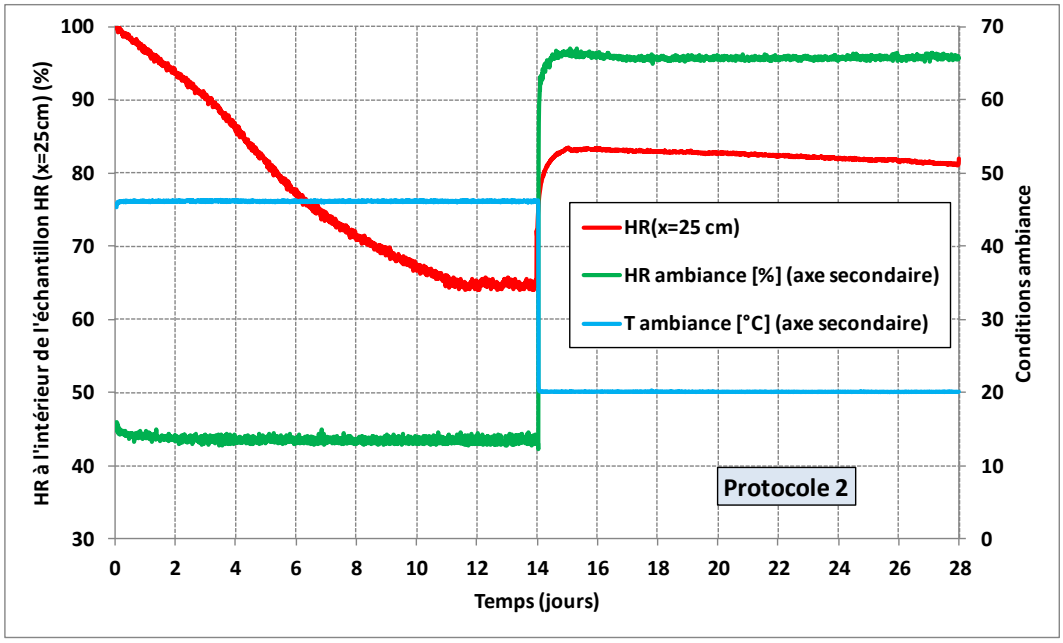


Figure III. 31. Évolution de l'humidité relative au centre de l'échantillon après séchage selon le protocole 2

III.4. Conclusion

Dans ce chapitre, deux modèles de transferts couplés de chaleur et d'humidité dans les matériaux poreux de construction sont présentés. Ils sont basés sur les travaux de Luikov et développés au laboratoire LaSIE. Le premier modèle présenté considère la température et la teneur en vapeur comme moteurs de transfert. En ce qui concerne le deuxième modèle, il considère trois moteurs de transfert : température, teneur en eau et gradient de pression totale. L'étude paramétrique a révélé la grande sensibilité du modèle aux variations des données d'entrée. De plus, elle montre la nécessité de mener avec rigueur et précision la campagne expérimentale pour l'accès aux paramètres d'entrée.

En guise d'applications, nous avons choisi tout d'abord de montrer l'impact de l'évolution des propriétés des matériaux cimentaires en fonction de leur âge. Ensuite, nous avons montré l'incidence de la prise en compte du palier de saturation obtenu par rétention d'eau dans l'isotherme de sorption sur le séchage. Enfin, une analyse des méthodes de pré-conditionnement avant l'essai de carbonatation accélérée est entreprise. Celle-ci représente une étape indispensable pour la bonne mise en œuvre de l'essai de carbonatation en laboratoire. En effet, un séchage préalable est nécessaire dans le but d'optimiser l'essai en question pour obtenir un degré de saturation optimum favorisant la pénétration du gaz CO_2 et sa dissolution.

Nous avons démontré dans ce chapitre que le pré-conditionnement dépend largement de l'état microstructural du matériau. En effet, les BHP sont très désavantagés par rapport aux bétons courants au regard des deux protocoles de pré-conditionnement réglementaires existants, à savoir celui recommandé par l'AFREM [84] et le protocole de la norme XP P 18-458 [165]. Le protocole 1 préconisant un séchage à 40±2 °C pendant 2 jours est davantage conçu pour les bétons courants. Le temps de séchage, qu'il soit de 2 jours ou de 14 jours, est insuffisant pour pouvoir baisser le degré de saturation des BHP jusqu'à l'optimum. En effet, le temps de séchage nécessaire pour atteindre un degré de saturation de 50% est estimé à 3 mois pour les BHP et 60 heures pour les bétons courants.

L'usage actuel est que l'humidité relative environnante lors de l'essai de carbonatation est comprise entre 50 et 70%. Nous avons montré, à partir de cette étude, que cette hygrométrie doit être choisie de façon à ce qu'elle nous permette d'atteindre et de rester au voisinage du degré de saturation optimum. De plus, nous avons proposé une méthodologie permettant d'atteindre ce degré de saturation optimum préalablement connu. Pour un degré de saturation avoisinant les 50%, l'humidité relative environnante est de 78% et de 87% pour les BHP et les bétons courants, respectivement.

Afin d'approfondir notre investigation sur les conséquences des incertitudes sur les prédictions des modèles sur le comportement des matériaux de construction, nous allons nous intéresser dans le chapitre suivant à l'évaluation et l'incidence de la variabilité des propriétés des matériaux poreux de construction sur leur comportement hygrothermique.

Chapitre IV

Effet de la variabilité des propriétés des matériaux poreux de construction sur leur comportement hygrothermique

Ce chapitre est consacré à l'étude de l'incidence de la variabilité des propriétés des matériaux poreux de construction sur la prédiction de leur comportement hygrothermique. Parmi les paramètres les plus influents sur les transferts thermo-hydriques, l'étude paramétrique a fait ressortir deux paramètres importants : le coefficient de diffusion d'humidité et la teneur en eau à saturation du matériau étudié. Cette dernière peut être déduite moyennant une panoplie d'approches et de techniques expérimentales qui, par conséquent, génèrent une incertitude non négligeable. Deux parties constituent ce chapitre. La première est dédiée à l'étude de l'incidence de la variabilité aléatoire de ces deux paramètres sur le séchage du mortier. Cette partie à pour objectif de montrer le degré de précision nécessaire dans l'évaluation de ces deux grandeurs et la propagation de ces incertitudes (variabilité) jusqu'à la solution finale du problème traité. La deuxième est consacrée à l'évaluation de l'incidence de la variabilité spatiale des propriétés d'un voile en béton sur son comportement hygrothermique. Des essais sur carottes issues d'un voile expérimental sont alors présentés. Puis une application est entreprise dans le but de quantifier la différence de comportement hygrothermique d'un voile en béton par une simulation considérant des champs constants et uniformes et une approche probabiliste tenant compte de la variabilité spatiale des paramètres gouvernant les transferts couplés de chaleur et d'humidité.

IV.1. Effet de la variabilité aléatoire des propriétés du matériau sur le séchage

Les matériaux cimentaires, étant les plus répandus des matériaux de construction, ont une structure complexe avec un caractère fortement hétérogène et aléatoire de leurs propriétés mécaniques et physiques. Divers processus influent sur ces milieux : chimiques, tels que l'hydratation du ciment, et physiques, tels que les échanges thermiques et hydriques. Ces derniers, qui ont trait à l'évolution de la teneur en eau et de sa répartition dans le matériau, est d'une influence importante sur le comportement global du matériau cimentaire. Parmi les sollicitations liées à ces échanges thermiques et hydriques, on peut citer le séchage qui est couramment rencontré dans le domaine du Génie Civil, soit naturel comme le séchage des éléments structuraux d'une construction en béton ou artificiel comme le séchage en laboratoire de recherche lors du pré-conditionnement des matériaux avant un essai de carbonatation accélérée. Ce dernier a pour objectif un séchage partiel du matériau en visant un degré de saturation optimum qui a une forte influence sur la propagation du front de carbonatation dans le matériau.

L'utilisation des modèles macroscopiques de séchage nécessite une connaissance approfondie des propriétés hygrothermiques des matériaux cimentaires étudiés telles que la conductivité thermique, la chaleur spécifique, le coefficient de diffusion et bien d'autres propriétés qui sont considérées comme paramètres d'entrée de ces modèles. Les méthodes expérimentales de caractérisation diffèrent d'un laboratoire à un autre. De plus les techniques et le pragmatisme diffèrent selon l'opérateur menant l'essai de caractérisation. Ce qui génère, sans doute, de grandes incertitudes sur les propriétés du matériau étudié qui va affecter, inéluctablement, son comportement. La littérature fait état de plusieurs travaux relatifs à cette thématique de recherche. L'on peut citer ceux de De Larrard [117], qui a étudié l'influence de la variabilité spatiale de la porosité et de la tortuosité sur la lixiviation du béton et précisément sur la durée de vie d'un tunnel de stockage de déchets radioactifs. L'étude paramétrique du modèle de transferts couplés de chaleur et d'humidité utilisé dans ce travail montre que parmi les paramètres d'entrée les plus influents, on retrouve le coefficient de diffusion d'humidité. Cela a été confirmé dans les travaux de Defraeye *et al.* [119] où ils ont montré que la propagation de l'incertitude des paramètres d'entrées est en relation avec le mode dominant de transport de l'humidité dans le matériau, c.à.d., le transport de liquide ou de vapeur. Un écart significatif sur les propriétés de transport a toutefois été distingué lorsque l'on compare les résultats de différents laboratoires sur plusieurs échantillons de matériaux [121, 177, 178, 118]. Trabelsi *et al.* [120] ont évalué la variabilité statistique des isothermes de désorption de la vapeur d'eau des bétons à hautes performances et son impact sur le résultat de séchage de ce type de matériau. Ils ont, en

effet, distingué une incidence sur le comportement hygrothermique du matériau et principalement dans la zone de recouvrement. De plus, Feng *et al* [179] ont étudié la répétabilité et la reproductibilité des propriétés hydriques de quelques matériaux de construction (béton cellulaire, panneau de silicate de calcium et la brique céramique). Ils ont constaté une bonne répétabilité des résultats des essais utilisés. Néanmoins, une mauvaise reproductibilité des résultats entre laboratoires due à la différence des procédures expérimentales utilisées et les conditions de contrôle et d'analyse a été mise en évidence.

L'objet de cette partie de chapitre est de quantifier l'impact de la variabilité de quelques paramètres les plus influents sur la prédiction du comportement hygrothermique d'un mortier. A savoir, le coefficient de diffusion d'humidité d_m (avec $d_m = \rho_s C_m D_m$) et la teneur en eau à saturation $Usat$ du matériau. Les données d'entrée du modèle ainsi utilisées sont issues de la caractérisation expérimentale au laboratoire des propriétés du matériau étudié. A savoir la conductivité thermique, la chaleur spécifique, l'isotherme d'adsorption et de désorption de la vapeur d'eau, la capacité de stockage d'humidité et le coefficient de diffusion d'humidité. Les résultats de la campagne de caractérisation ont été présentés dans le chapitre II (mortier 1, âge 28 jours).

IV.1.1. Effet de la variabilité du coefficient de diffusion

Dans la présente étude, nous nous sommes intéressé au temps de séchage nécessaire pour atteindre un degré de saturation $SR = 30\%$ au centre de l'échantillon. Les simulations numériques du séchage sur un échantillon de mortier 1 de 10 cm d'épaisseur sont réalisées selon la configuration présentée dans la Figure IV. 1. Dans cette configuration, la cinétique du transfert est régie principalement par le coefficient de diffusion hydrique.

Une variabilité du coefficient de diffusion de $D_m = 10^{-7} \pm 30\%$ m^2/s a été adoptée c.à.d. $0{,}7 \times 10^{-7} \leq D_m \leq 1{,}3 \times 10^{-7}$. Cette variabilité peut être retrouvée dans les travaux de Trablesi *et al.* [120]. Afin de générer des variables aléatoires de coefficient de diffusion suivant une loi de distribution normale, nous devons connaitre au moins l'espérance et l'écart type de cette propriété. Notre choix s'est porté sur ce type distribution car elle est largement utilisée dans le domaine du Génie Civil. De plus, il est possible de l'intégrer aisément dans les modèles mathématiques existants. Dans notre cas, nous connaissons les limites de variations du coefficient de diffusion (valeur maximum et minimum), ce qui n'est pas suffisant pour évaluer l'écart type et l'espérance. Nous avons choisi de générer des variables aléatoires suivant une loi normale à partir des données maximum et minimum des données et de calculer, ensuite, l'espérance et l'écart type de la série générée (Figure IV. 2). Pour rappel ; le modèle de transfert utilisé est celui présenté dans le chapitre III avec la

température et la teneur en vapeur d'eau comme moteur de transfert. De plus, les simulations sont entreprises sous l'environnement de simulation Comsol Multiphysics.

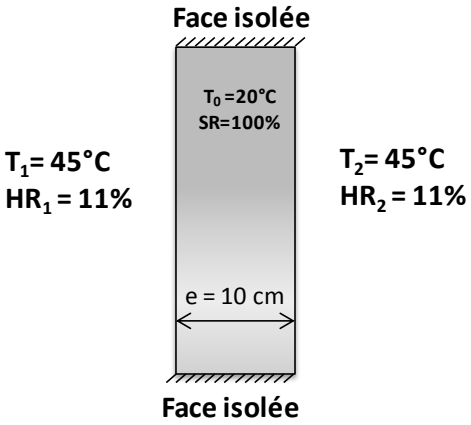


Figure IV. 1. Configuration étudiée

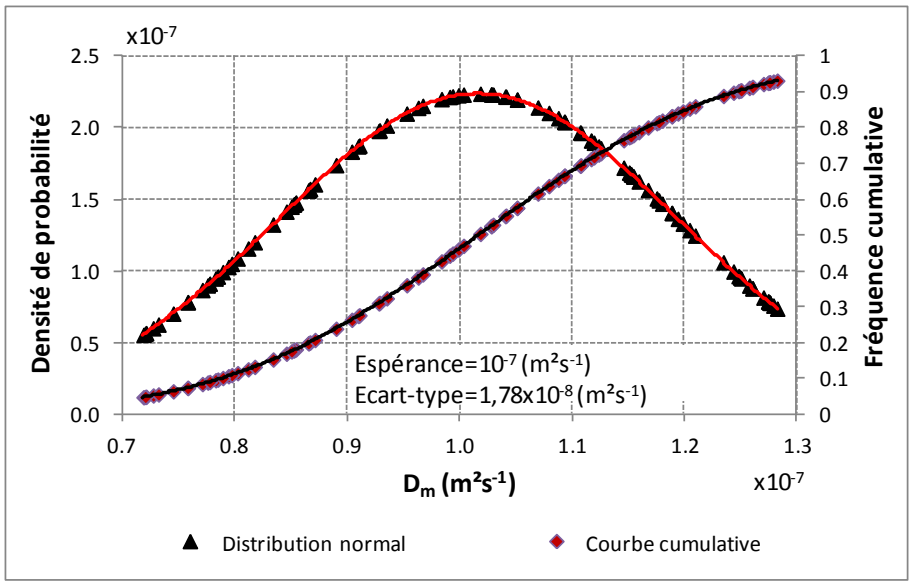


Figure IV. 2. Distribution normale et sa courbe cumulative
du coefficient de diffusion d'humidité

Les résultats obtenus seront comparés à des simulations déterministes (Figure IV. 3) avec un coefficient de diffusion constant $D_m = 10^{-7}\ m^2/s$. La Figure IV. 3 illustre l'évolution du degré de saturation en fonction du temps à différentes profondeurs de l'échantillon (x=0,05 m ; x=0,025 m et x=0,005 m).

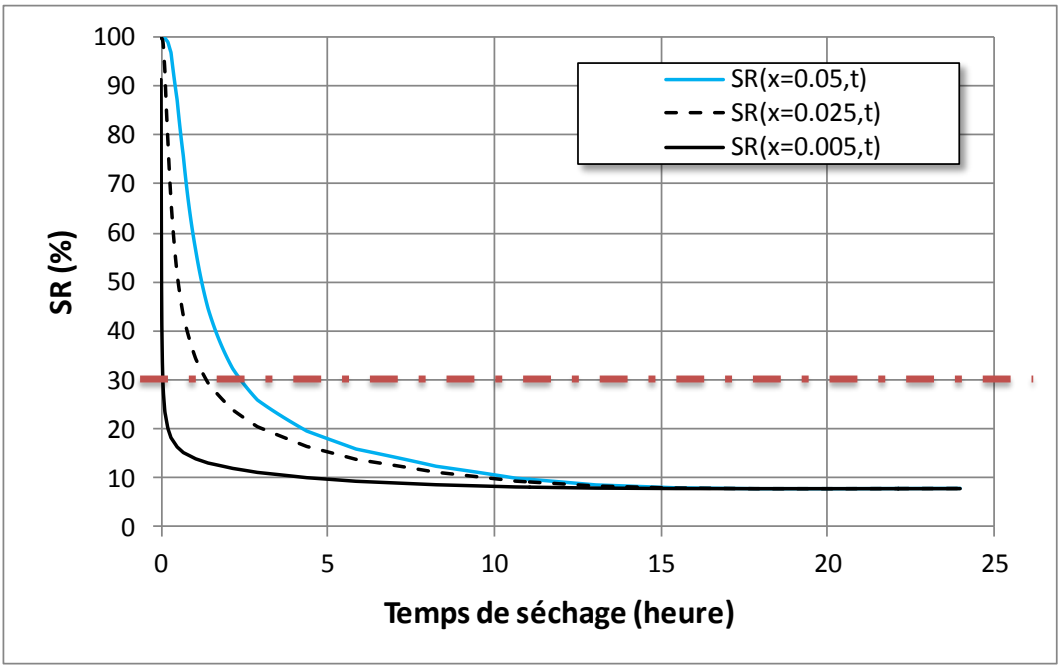


Figure IV. 3. Évolution du degré de saturation à $x = 0{,}05\ m$, $x = 0{,}025\ m$ et $x = 0{,}005\ m$ au cours du séchage (simulation déterministe)

A partir de ce résultat, obtenue par approche déterministe, il est constaté que le temps de séchage nécessaire pour atteindre un degré de saturation SR=30% au centre de l'échantillon est de t=2,38 heures.

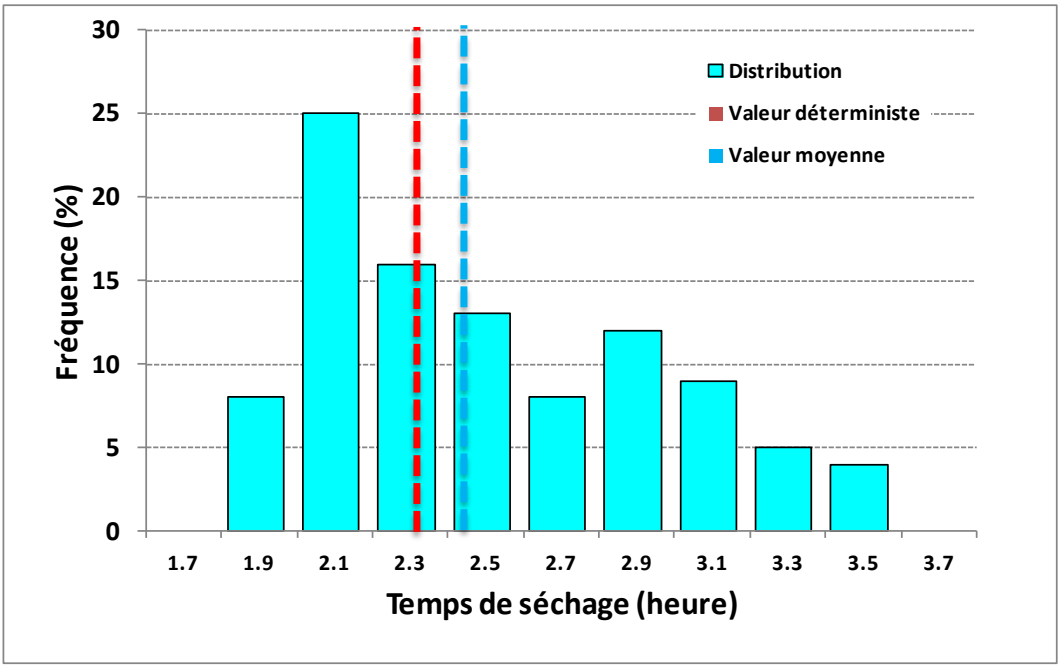


Figure IV. 4. Histogramme du temps de séchage nécessaire pour atteindre SR=30%

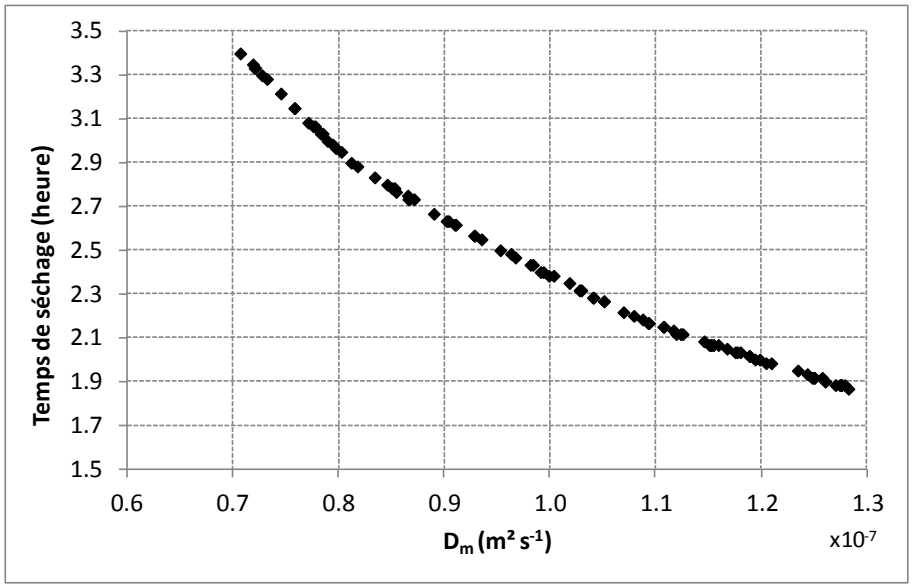


Figure IV. 5. Évolution du temps de séchage en fonction de la valeur du coefficient de diffusion d'humidité

Des simulations sur Comsol Multiphysics ont été réalisées avec un coefficient de diffusion variable suivant une loi de distribution normale (Figure IV. 2). Cela est rendu possible grâce à l'utilisation de l'option « parametric sweep » existante dans l'environnement de simulation qui permet d'avoir des paramètres d'entrées du modèle variables, et ainsi d'exécuter plusieurs simulations d'une manière automatique.

La Figure IV. 4 et la Figure IV. 5 présentent respectivement la fréquence et l'évolution du temps de séchage nécessaire pour atteindre un degré de saturation, SR de 30%, au milieu de l'échantillon en fonction des valeurs possibles du coefficient de diffusion d'humidité. On distingue de ce fait une forte influence de la variabilité de ce paramètre sur le temps de séchage avec une évolution quasi linéaire de 3,5 à 1,7 heures définie par une espérance de 2,42 heures et un écart type de 0,44 heures correspondant à une variation de ±30% de D_m. Cette incidence sur le temps de séchage induit une différence dans l'évolution du profil hydrique au sein de l'échantillon.

La Figure IV. 6 et la Figure IV. 7 représentent, respectivement, l'effet de cette variabilité sur l'évolution de l'humidité relative (HR) à x=0,05 m pendant 24 heures de séchage et aussi pendant un temps de séchage obtenu lors des simulations par approche déterministe (2,38 h). Ces résultats révèlent une forte incidence de la variabilité du coefficient de diffusion sur l'évolution de HR au sein du matériau. En effet, l'humidité relative au sein du matériau peut varier d'environ 20%.

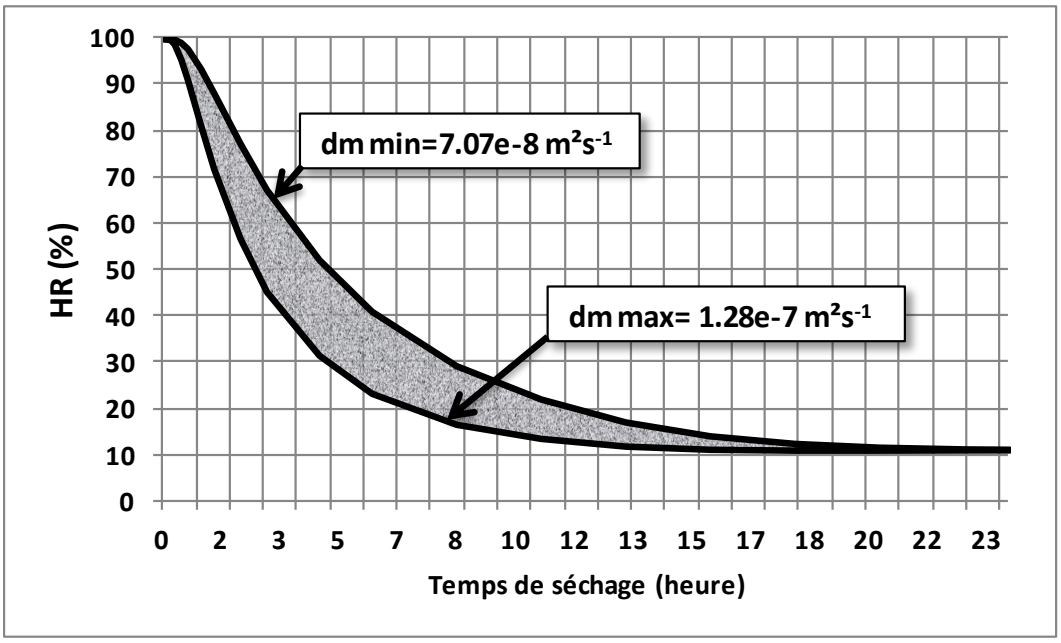


Figure IV. 6. Effet de la variabilité du coefficient de diffusion sur l'évolution de HR à x=0.05 m pendant 24 heures de séchage

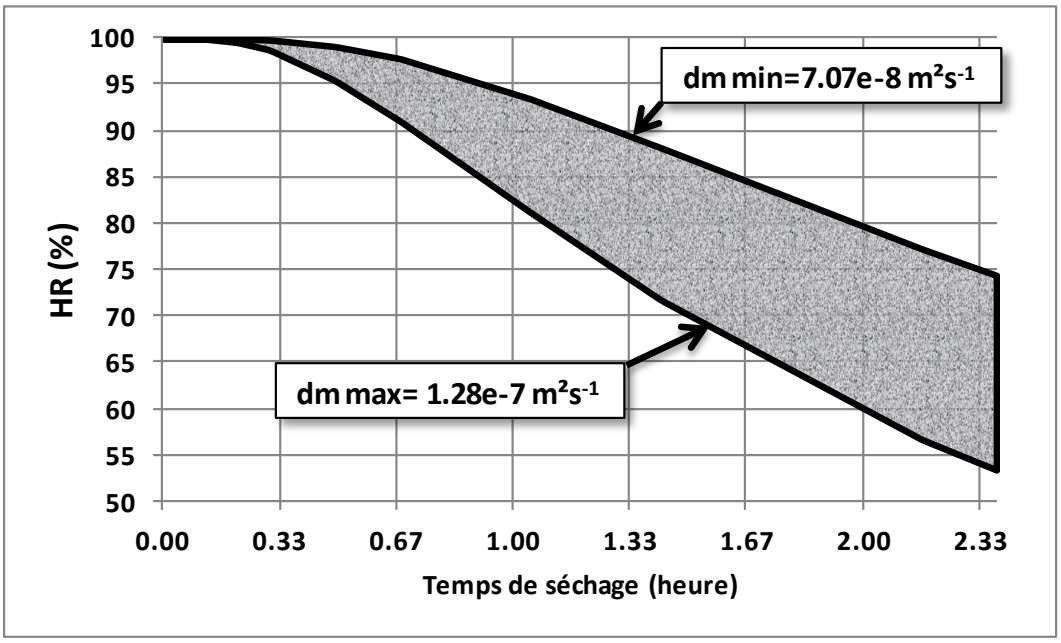


Figure IV. 7. Effet de la variabilité du coefficient de diffusion sur l'évolution de HR à x=0.05 m pendant le temps de séchage déterministe (2.38 h)

La même étude est entreprise sur un Béton Haute Performance (BHP A1) présenté dans le chapitre III. Ce matériau est choisi pour sa fine porosité et son très faible coefficient de diffusion et qui est caractérisé par une faible cinétique de transfert d'humidité. Dans ce cas, la simulation nécessite un long temps de calcul pour percevoir des contrastes dans l'évolution du degré de saturation. La variabilité du coefficient de diffusion d'humidité adopté dans ce cas pour le BHP A1 est $D_m = 10^{-11} \pm 20\%$ i.e

$0{,}8 \times 10^{-11} \leq D_m \leq 1{,}2 \times 10^{-11}$. Dans ce cas, nous nous intéresserons au temps de séchage nécessaire pour atteindre un degré de saturation SR=60% au milieu d'un échantillon de BHP d'épaisseur 5 cm. Le résultat obtenu est présenté dans la Figure IV. 8. Le temps de séchage déterministe obtenu en considérant un coefficient de diffusion constant d'une valeur $D_m = 10^{-11}\ m^2/s$ est estimé à $\mathrm{t} = 122$ jours. Le temps de séchage varie entre 105 jours et 155 jours avec une valeur moyenne de 124 jours en prenant en compte l'effet de la variabilité. Cette incertitude peut avoir une incidence non négligeable sur le degré de saturation du matériau étudié. Si l'on prend comme exemple de séchage, le pré-conditionnement avant l'essai de carbonatation accélérée où le but est d'atteindre un degré de saturation optimum favorisant la pénétration des ions chlorures et leur dissolution, cette incertitude de 50 jours sur le pré-conditionnement peut avoir une incidence non négligeable sur l'avancement du front de carbonatation.

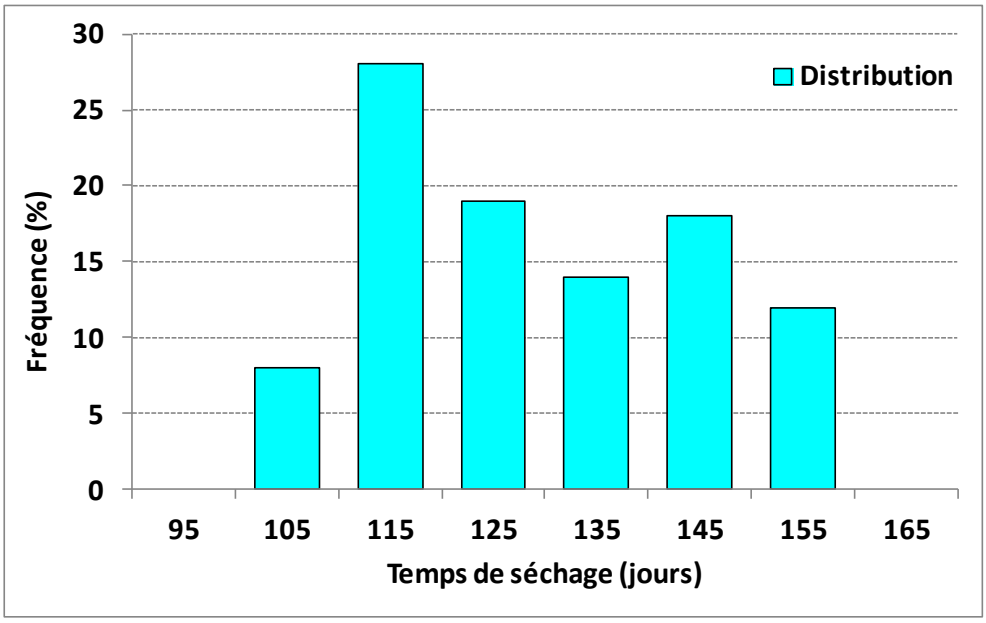


Figure IV. 8. Histogramme du temps de séchage nécessaire pour atteindre SR=60% à x=0,025 m du BHP A1

Afin d'augmenter le nombre de variables aléatoires du coefficient de diffusion, nous avons effectué 1000 simulations indépendantes les unes des autres suivant une loi de distribution normale avec les même données statistiques que celles utilisées précédemment. Le résultat obtenu est illustré sur la Figure IV. 9. Il présente la distribution du temps de séchage de 1000 réalisations avec une valeur moyenne de $t = 2{,}47$ heures et un écart-type de 0,43 jours. Nous observons notamment que la valeur moyenne de séchage est sensiblement supérieure à la valeur obtenue par approche déterministe (2,45 heures au lieu de 2.38 heures). De plus, la valeur moyenne de séchage avec 1000 réalisations de variable aléatoire de coefficient de diffusion est sensiblement supérieure à la valeur moyenne obtenue avec 100 réalisations (2,47 heures au lieu de 2,42 jours).

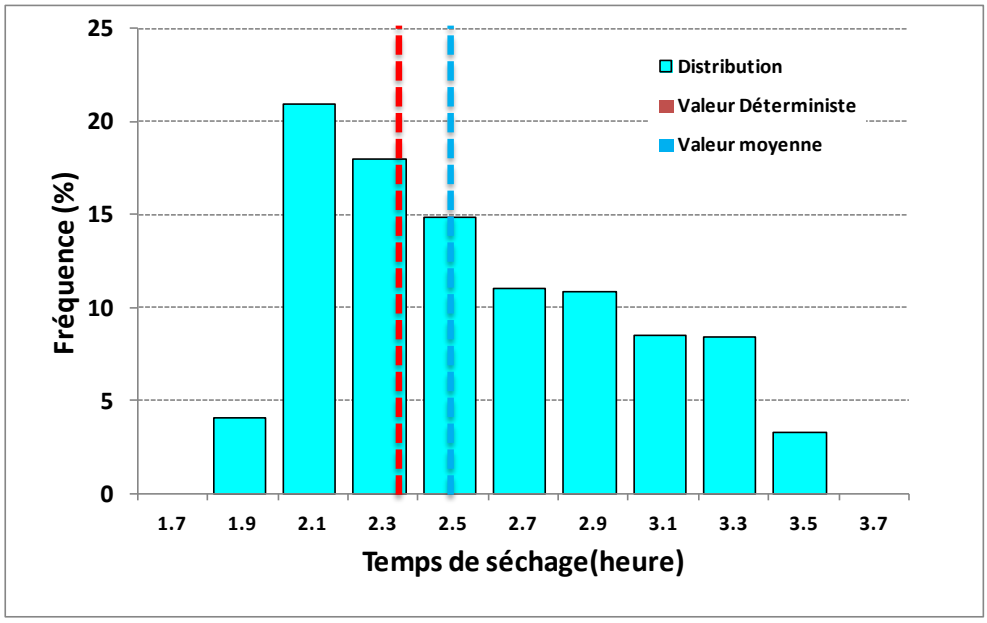


Figure IV. 9. Histogramme du temps de séchage nécessaire pour atteindre SR=30% obtenue avec 1000 réalisations de D_m

IV.1.2. Effet de la variabilité de la teneur en eau à saturation

La teneur en eau à saturation est un paramètre important lors de la prédiction du comportement hygrothermique des matériaux cimentaires, plus particulièrement lors des simulations avec des conditions initiales à saturation. Cette propriété est souvent utilisée lors du passage de la teneur en vapeur (variable continue) à la teneur en eau (variable discontinue) du matériau lorsque le moteur de transfert du modèle utilisé est la teneur en vapeur. Ceci est rendu possible grâce au recours aux modèles d'isotherme d'adsorption et de désorption (GAB ou GDW) où la variabilité de la teneur en eau à saturation affecte l'identification des paramètres du modèle et par conséquent le résultat de la transformation de la teneur en vapeur à la teneur en eau. De plus, la connaissance de la teneur en eau à saturation est primordiale lors du calcul du degré de saturation qui est défini par le rapport entre la teneur en eau à l'instant « t » et la teneur en eau à saturation.

Il existe plusieurs techniques pour obtenir la teneur en eau à saturation d'un matériau. On cite ici les cas les plus courants et les plus utilisés par la communauté scientifique et plus particulièrement du Génie Civil :

- Usat1 : En supposant que la teneur en eau volumique à saturation est égale à la porosité du matériau. La porosité à mercure des matériaux étudiés $\varepsilon_{\text{Hgmortier}} = 18{,}29\%$ et $\varepsilon_{\text{Hg A1}} = 13\%$.

- Usat2 : En utilisant les modèles GAB et GDW pour approximer la teneur en eau à saturation à 100% d'humidité relative avec l'utilisation des résultats expérimentaux d'isotherme d'adsorption et de désorption.

- Usat3 : En exploitant la courbe expérimentale d'isotherme d'adsorption et de désorption de la vapeur d'eau à une humidité relative avoisinante 100%. Cas des résultats présentés dans le chapitre II (Figure II.14) obtenus en utilisant le dispositif expérimental Belsorp Aqua 3 qui est conçu pour une utilisation dans la région hygroscopique. Il atteint, en effet, sa limite technique vers 95% d'humidité relative du fait des risques de condensation pour des humidités plus élevées et de l'imprécision des capteurs dans cette zone. La teneur en eau à saturation du BHP A1 est déduite des isothermes de sorption présenté dans les travaux de recherche de Trabelsi [94] qui a utilisé lors des mesures la méthode des solutions salines saturées.

- Usat4 : En exploitant les mesures de teneur en eau de l'essai de porosimétrie à l'eau, en procédant par une saturation sous vide du matériau.

- Usat5 : en utilisant les résultats de porosimétrie à l'eau avec $\varepsilon_{wMortier} = 21{,}03\ \%$ et $\varepsilon_{wA1} = 16\ \%$.

Les valeurs de teneur en eau à saturation ainsi obtenues pour chaque cas du mortier et du BHP A1 sont résumées dans le Tableau IV. 1.

Tableau IV. 1. Teneur en eau à saturation du mortier 1 et du BHP A1

Matériau	Usat1 (%)	Usat2 (%)	Usat3 (%)	Usat4 (%)	Usat5 (%)	Usat mean (%)
Mortier	9,14	5,28	4,42	10,8	10,51	8,03
BHP A1	5,19	4,50	4,26	7,00	7,27	5,78

Une modélisation des isothermes de sorption est entreprise pour chaque cas en considérant à chaque fois une teneur en eau à saturation ($Usat_i$) différente. Les modèles choisis sont ceux présentés dans le chapitre II (modèle GAB et GDW). Le Tableau IV. 2 présente les paramètres associés pour chaque modèle. De plus, la Figure IV. 10 et la Figure IV. 11 présentent respectivement les courbes d'isothermes d'adsorption après modélisation selon le modèle GAB et GDW. Sur la base de ces résultats, notre choix s'est porté sur le modèle GDW qui reproduit parfaitement le comportement du matériau vis-à-vis de l'adsorption.

Tableau IV. 2. Paramètres associés aux modèles GAB et GDW

Usat (%)	Matériau	Modèle	C	K	k	m	w	R^2
Usat 1	Mortier	GAB	0,0828	0,0701	-	1,2050	-	0,9645
		GDW	-	0,8394	0,9694	0,0390	0,1301	0,9992
	A1	GDW	-	0,0485	0,9711	0,6526	0,0280	0,9903
Usat 2	Mortier	GAB	0,1108	0,0065	-	9,0230	-	0,8616
		GDW	-	0,9859	0,9115	0,0353	0,1915	0,9968
	A1	GDW	-	0,02069	0,9547	1,630	0,0167	0,9877
Usat 3	Mortier	GAB	0,210	0,0219	-	2,1550	-	0,9281
		GDW	-	0,9516	0,881	0,0366	0,1959	0,9930
	A1	GDW	-	0,015	1,84	0,7836	1,0	0,9891
Usat 4	Mortier	GAB	0,0662	0,0944	-	1,0240	-	0,9630
		GDW	-	0,5206	0,9799	0,0594	0,0884	0,9993
	A1	GDW	-	0,0194	0,9785	1,601	0,0286	0,9929
Usat 5	Mortier	GAB	0,0686	0,0864	-	1,10	-	0,9695
		GDW	-	0,8667	0,9749	0,0382	0,1262	0,9994
	A1	GDW	-	0,0243	0,9798	1,2610	0,0301	0,9927
Usat mean	Mortier	GAB	0,0913	0,0221	-	3,5740	-	0,9585
		GDW	-	0,7758	0,9643	0,0411	0,1289	0,9989
	A1	GDW	-	0,04865	0,9704	0,6523	0,0274	0,990

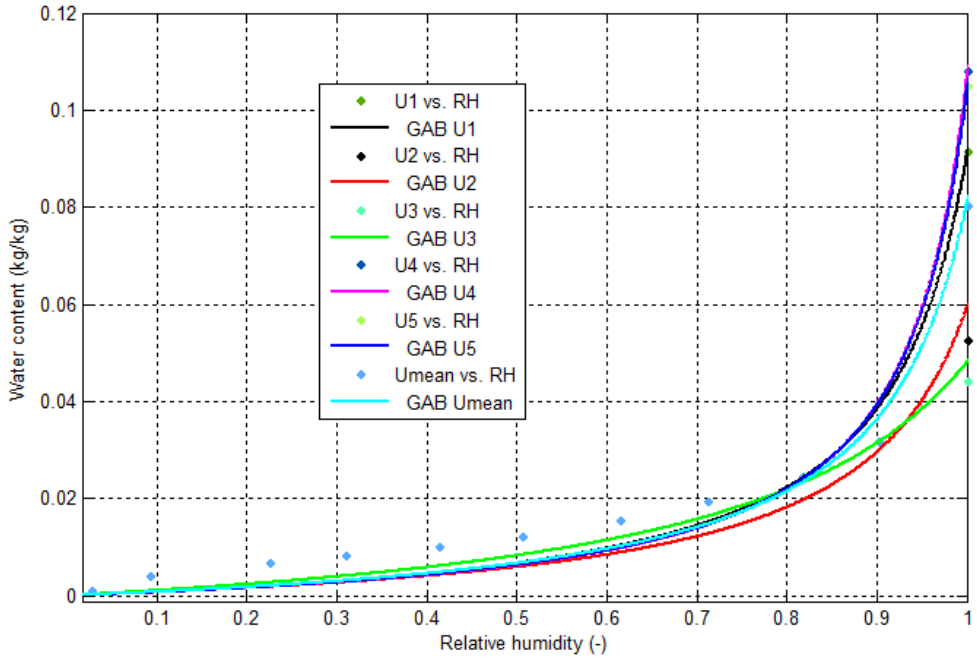


Figure IV. 10. Isotherme d'adsorption du mortier obtenue par le fit du modèle GAB avec différentes teneurs en eau à saturation

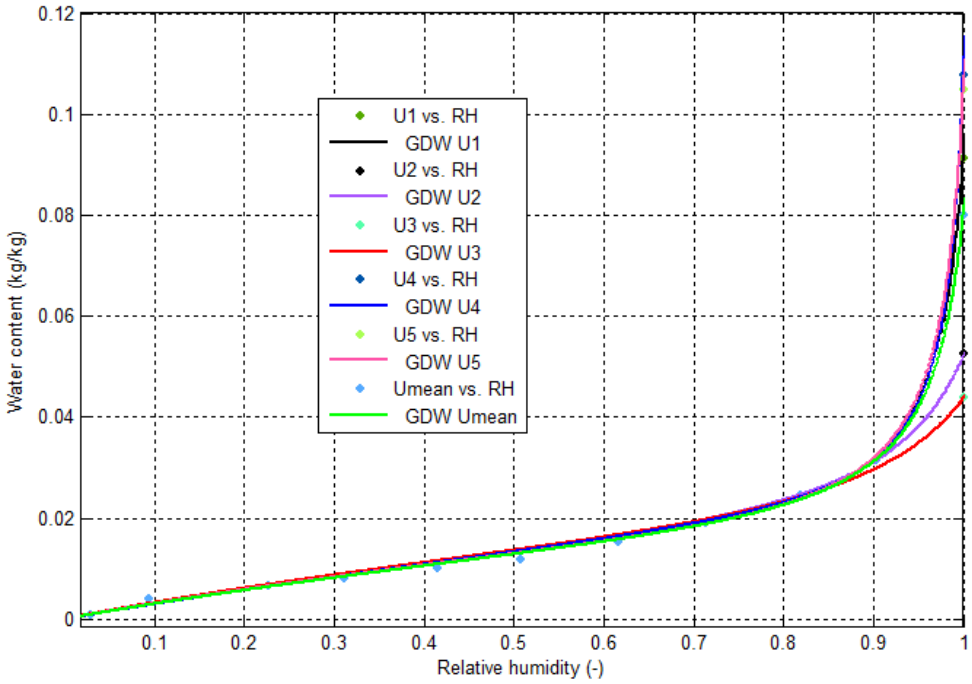


Figure IV. 11. Isotherme d'adsorption du mortier obtenue par le fit du modèle GDW avec différentes teneurs en eau à saturation

Le profil de teneur en vapeur obtenu à l'issu d'un séchage déterministe $(t = 2{,}38\ heures)$ ainsi que son évolution au cours du séchage à $(x = 0{,}05\ m)$, $(x = 0{,}025\ m)$ et $(x = 0{,}005\ m)$ sont présentés dans la Figure IV. 12. Les simulations de séchage déterministes sont menées en considérant un coefficient de diffusion du mortier constant $D_m = 10^{-7}\ m^2/s$.

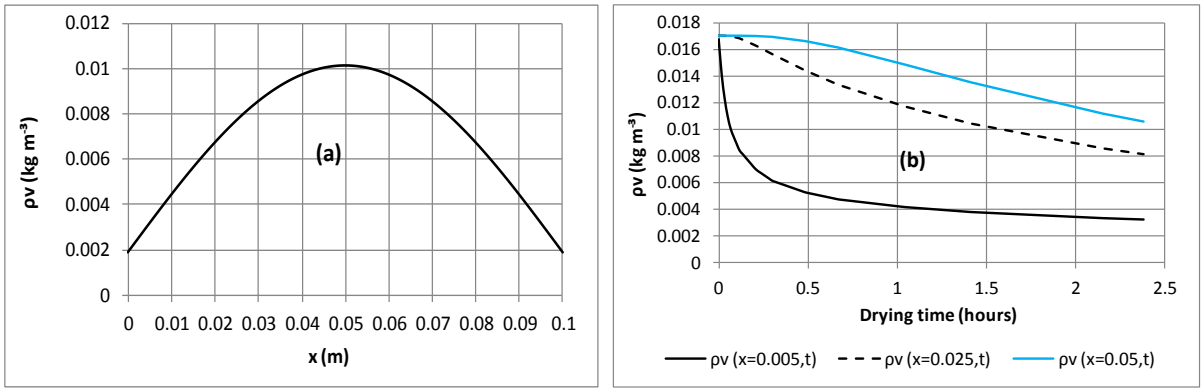


Figure IV. 12. (a) Profil de teneur en vapeur à l'issu du séchage ;
(b) son évolution à différentes profondeurs dans l'échantillon

Les profils de teneur en eau massique obtenus en utilisant le modèle GDW et ses paramètres pour chaque cas cité précédemment sont répertoriés dans la Figure IV. 13. De ce résultat, un effet peu prononcé sur le profil hydrique est observé.

Afin de quantifier la propagation des incertitudes liée à cette variabilité. L'effet de la variabilité de la teneur en eau à saturation sur le profil de degré de saturation à l'issue du

séchage et sur son évolution sont étudiés. Les résultats obtenus sont illustrés par la Figure IV. 14 et la Figure IV. 15.

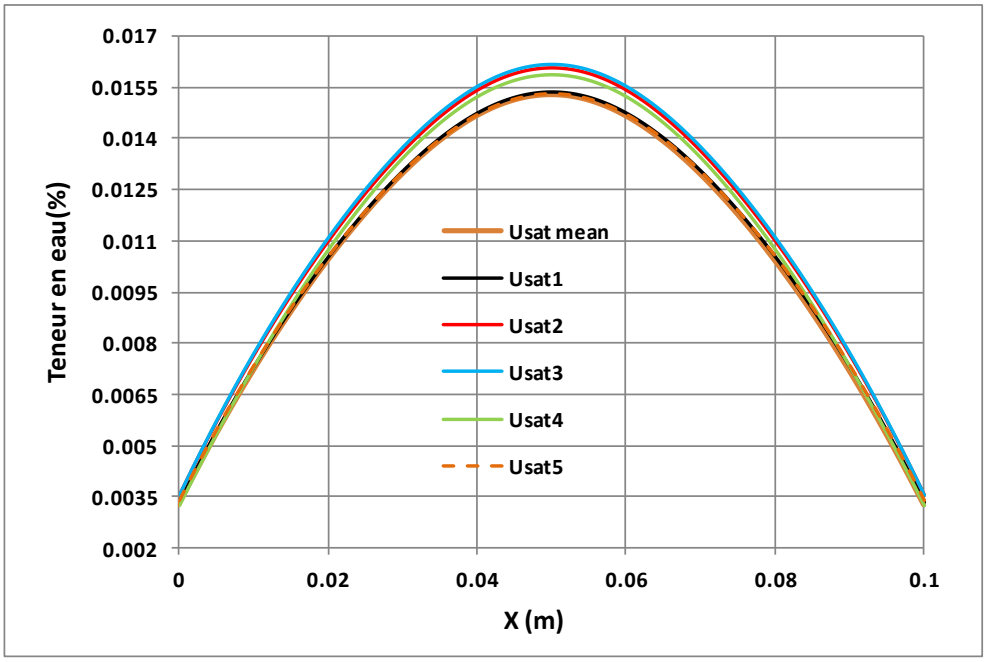


Figure IV. 13. Effet de la variabilité de la teneur en eau à saturation sur les profils de teneur en eau massique

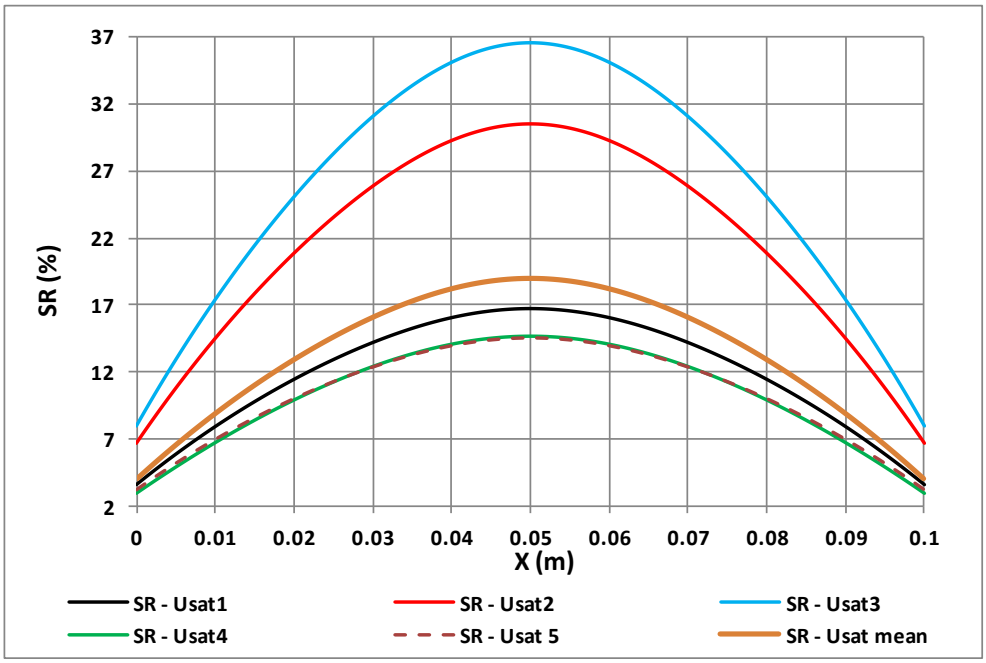


Figure IV. 14. Effet de la variabilité de la teneur en eau à saturation sur le profil de degré de saturation à l'issue du séchage

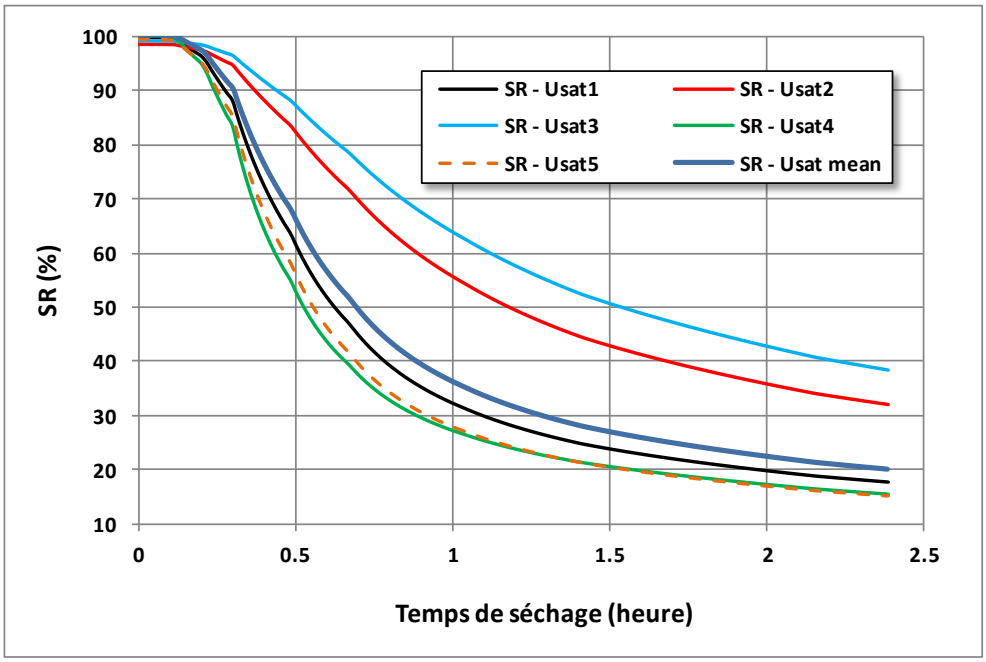


Figure IV. 15. Effet de la variabilité de la teneur en eau à saturation sur l'évolution du degré de saturation au cours du séchage

En se fiant à ces résultats (Figure IV. 14 et Figure IV. 15), l'écart du degré de saturation au milieu de l'échantillon peut atteindre 22%. Ces écarts de profil de teneur en eau et de degré de saturation peuvent avoir de grandes conséquences sur la prédiction de la durabilité des structures. En effet, la diffusion des espèces agressives, tels que les ions de chlorures, du gaz CO_2 (carbonatation) dépend fortement de la teneur en eau du matériau et précisément de son degré de saturation.

Nous nous sommes aussi intéressés, lors de cette étude, à l'effet de cette variabilité sur le temps de séchage nécessaire pour atteindre un degré de saturation au milieu de l'échantillon SR=30% pour le mortier et SR=60% pour le BHP A1 (Figure IV. 16). Le temps de séchage vari entre 0,87 et 3,5 heures pour le mortier et est plus important dans le cas du BHP A1 qui varie de 44 à 116 jours. Ces résultats montrent non seulement l'importance de l'investigation expérimentale menée afin de caractériser le matériau étudié mais aussi le choix des techniques expérimentales et la bonne interprétation des résultats afin de minimiser les erreurs sur la teneur en eau à saturation. A partir de ce résultat, nous avons aussi montré la grande dépendance de cette incertitude sur le temps de séchage sur la cinétique de transfert qui est reliée à la microstructure du matériau. L'incertitude est plus importante pour le BHP A1 et moins importante pour le mortier avec un même effet sur le degré de saturation.

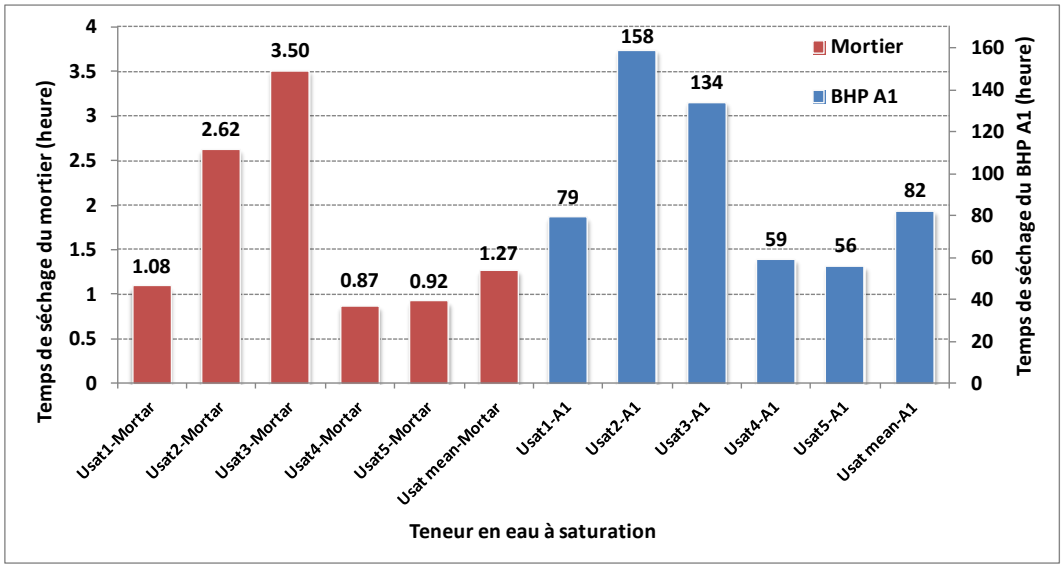


Figure IV. 16. Effet de la variabilité de la teneur en eau à saturation sur le temps de séchage

La combinaison de l'effet des deux variabilités étudiées précédemment, à savoir l'incidence de la variabilité du coefficient de diffusion d'humidité et la variabilité liée aux choix de la teneur en eau à saturation du matériau est présenté sur la Figure IV. 17. Ce résultat indique que le temps de séchage peut varier de 0,9 à 3,6 heures.

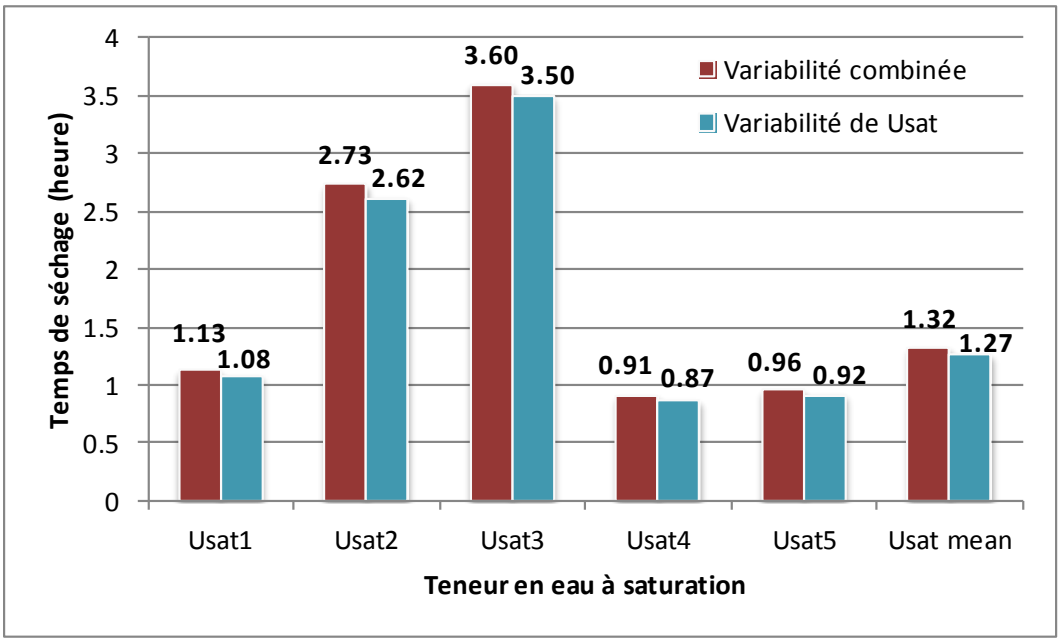


Figure IV. 17. Effet combiné de la variabilité du coefficient de diffusion et de la teneur en eau à saturation du mortier sur le temps de séchage nécessaire pour atteindre SR=30%

IV.2. Évaluation et incidence de la variabilité spatiale des propriétés du matériau sur les transferts hygrothermiques

Dans cette partie du chapitre sont présentés les différents essais réalisés sur carottes issues d'un voile expérimental en béton de 1,20 m de largeur, 2 m de hauteur et 0,15 m d'épaisseur ce qui permet d'avoir des carottes de 15 cm de hauteur. Il a été construit au laboratoire (coffrage, coulage, …etc.) dans le but d'évaluer la variabilité spatiale de quelques indicateurs performantiels du matériau : porosité à l'eau, perméabilité à la vapeur d'eau, perméabilité à l'air et isotherme d'adsorption et de désorption de la vapeur d'eau. Les résultats obtenus nous ont permis de quantifier la variabilité spatiale de ces propriétés, notamment en termes de valeur moyenne et d'écart type. Aussi, elle nous a permis de mettre en exergue la corrélation spatiale des champs étudiés et d'entreprendre, ensuite, une investigation quant à l'influence de cette variabilité sur les transferts hygrothermiques d'une paroi en béton.

IV.2.1. Campagne expérimentale : évaluer la variabilité spatiale du matériau

IV.2.1.1. Présentation de la campagne expérimentale (Voile expérimental)

Afin d'étudier l'incidence de la variabilité spatiale de quelques paramètres les plus influents sur le comportement hygrothermique du matériau, trois informations importantes sont requises : la moyenne, l'écart type et la corrélation spatiale des champs étudiés définie par la longueur de corrélation. Pour accéder à ces données, un voile expérimental en béton a été confectionné au laboratoire (LaSIE) dans lequel des prélèvements ont été effectués suivant six lignes verticales dont deux lignes dédiées aux essais de perméabilité à l'air (carottes de 64 mm de diamètre, lignes B et E sur la Figure IV. 18) et quatre lignes dédiées aux essais de perméabilité à la vapeur (carotte de 80 mm de diamètre, lignes A, C, D et F sur la Figure IV. 18).

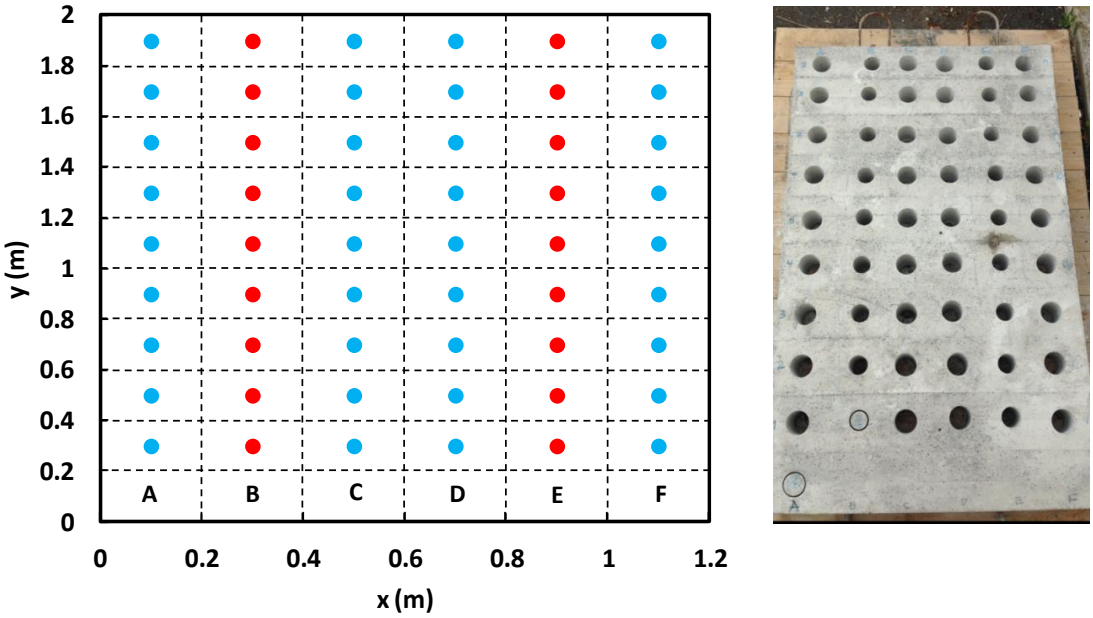


Figure IV. 18. Position des carottes dans le voile expérimental

IV.2.1.2. Formulation, conservation et caractérisations préliminaires

Le béton utilisé est à base de ciment Portland CEMI 52.5 N dont les caractéristiques sont mentionnées dans le tableau II.1 du chapitre II. Il a été préparé conformément aux prescriptions de la norme NF EN 206-1. Sa composition est récapitulée dans le Tableau IV. 3. Ce voile a été coulé en quatre fois avec quatre gâchées successives où il a été procédé, à chaque fois, à des prélèvements de trois éprouvettes 11x22 cm pour l'essai de compression à 28 jours et 90 jours. Ces éprouvettes ont été conservées après démoulage à 24 heures dans une chambre humide à une hygrométrie supérieure à 95%. Les carottes ont été prélevées à 28 jours et ont été conservées dans la même chambre avant la campagne expérimentale.

Tableau IV. 3. Composition du béton voile

Constituants	kg/m³
Ciment CEM1 52.5N	350
Gravillon 10/14	1201
Sable 0/4	762
Eau	211,8
Superplastifiant	7

Les résultats de l'essai de compression à 28 jours ont été réalisés sur deux éprouvettes et ceux à 90 jours ont été entrepris sur une éprouvette de chaque gâchée (voir Figure IV. 19). Sur la base d'une valeur de résistance visée de 35 MPa, celles relevées ont été supérieure avec une résistance maximale de 42,5 MPa à 28 jours et 45,7 MPa à 90

jours. Une homogénéité de la résistance à la compression des différentes éprouvettes pour chaque gâchée a été relevée. Cela prouve une bonne préparation des différentes gâchées en suivant à chaque fois la même procédure de malaxage et surtout en respectant les mêmes quantités de matériaux mentionnées dans le Tableau IV. 3. Les résistances à la compression à 90 jours sont presque égales à celles à 28 jours dans le cas des deux premières gâchées. Une chute de résistance à 90 jours est observée sur l'éprouvette issue de la troisième gâchée qui est dû probablement à une mauvaise préparation de l'éprouvette. Par contre, une augmentation de la résistance après 90 jours d'observation est enregistrée sur la dernière éprouvette de la dernière gâchée.

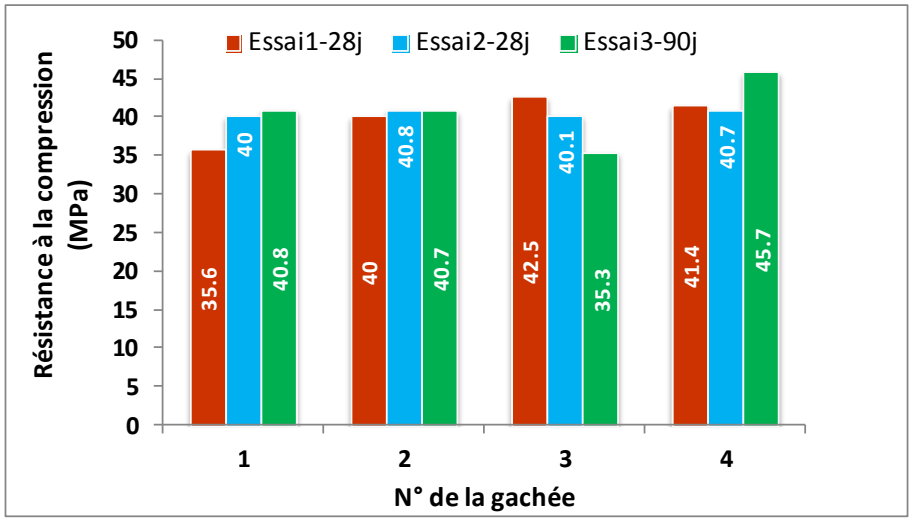


Figure IV. 19. Résistance à la compression

La campagne expérimentale de l'évaluation de la variabilité des propriétés de transport sur des carottes prélevées sur le voile expérimental a commencé après 28 jours où nous avons supposé une hydratation presque complète du béton. Afin de confirmer cette supposition, des analyses thermogravimétriques (ATG) sont réalisées selon la procédure décrite dans le chapitre II sur des échantillons prélevés à 28 jours.

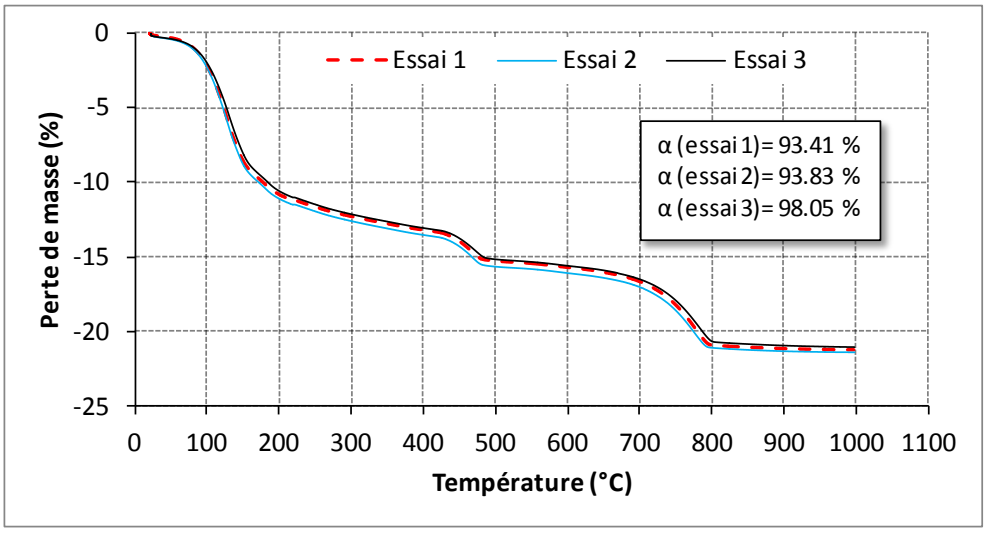


Figure IV. 20. Évolution de la masse de l'échantillon au cours d'une ATG du béton prélevé du voile expérimental

La Figure IV. 20 montre les résultats de l'analyse ATG sur trois prélèvements avec à chaque fois le degré d'hydratation correspondant, calculé selon les formules décrites dans le chapitre II. Le degré d'hydratation moyen ainsi calculé est d'environ $\alpha_{moy} = 95\%$. Cela démontre une hydratation quasi-complète de notre béton. Ainsi toutes les variabilités qui peuvent être observés seront indépendantes du processus d'hydratation.

En parallèle à ces essais d'ATG, la microstructure du béton étudié a été caractérisée par porosimétrie au mercure. Cette technique nous a permis d'obtenir la distribution de la taille des pores du matériau, illustrée par la Figure IV. 21 où l'on observe un diamètre de pore critique de 0,1 µm.

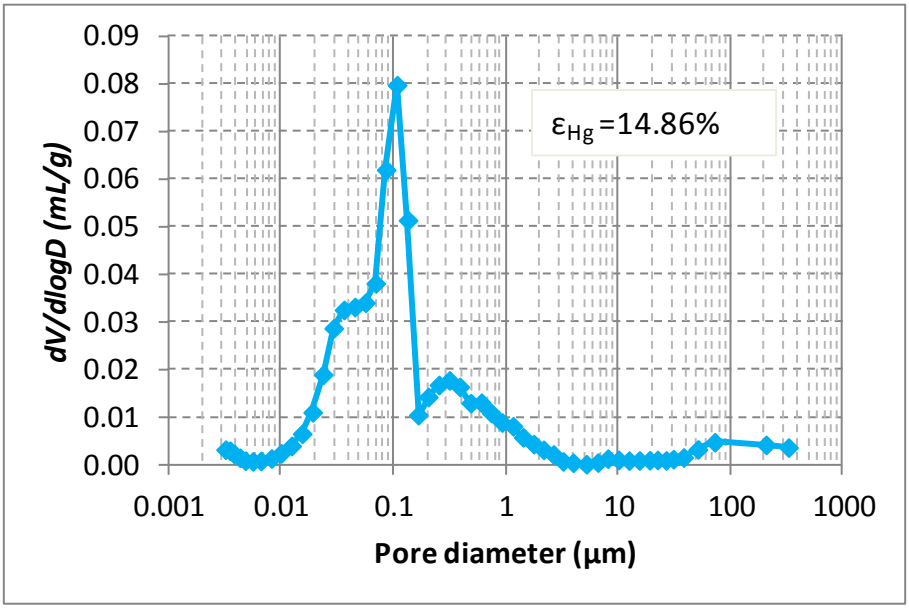


Figure IV. 21. Distribution de la taille des pores du béton voile

IV.2.2. Variabilité spatiale des propriétés du matériau étudié

Sur chacune des carottes prélevées, il a été procédé à la mesure de la porosité accessible à l'eau, les isothermes d'adsorption et de désorption de la vapeur d'eau et la perméabilité à la vapeur d'eau sur quatre lignes verticales (lignes A, C, D et F) illustrées par la Figure IV. 18. A noter que les mêmes protocoles présentés dans le chapitre II ont été adopté. De plus, des essais de variabilité de la perméabilité à l'air ont étés entrepris sur deux ligne verticales (lignes B et E sur la Figure IV. 18) dont le protocole sera décrit par la suite.

IV.2.2.1. Variabilité spatiale de la porosité accessible à l'eau

La variabilité spatiale de la porosité à l'eau a été évaluée sur l'ensemble des lignes verticales du voile. La Figure IV. 22 permet de comparer les valeurs de porosité accessible à l'eau observées sur les échantillons issus du voile expérimental, correspondant donc aux six lignes verticales. On observe que les valeurs de porosité sont assez proches entre une ligne verticale et une autre. De plus, on distingue que les valeurs ont tendance à croitre suivant la hauteur du voile qui est due probablement à l'effet de la gravité sur les couches inférieures supportant un poids important de béton qui a tendance à bien les compacter et à réduire leur porosités.

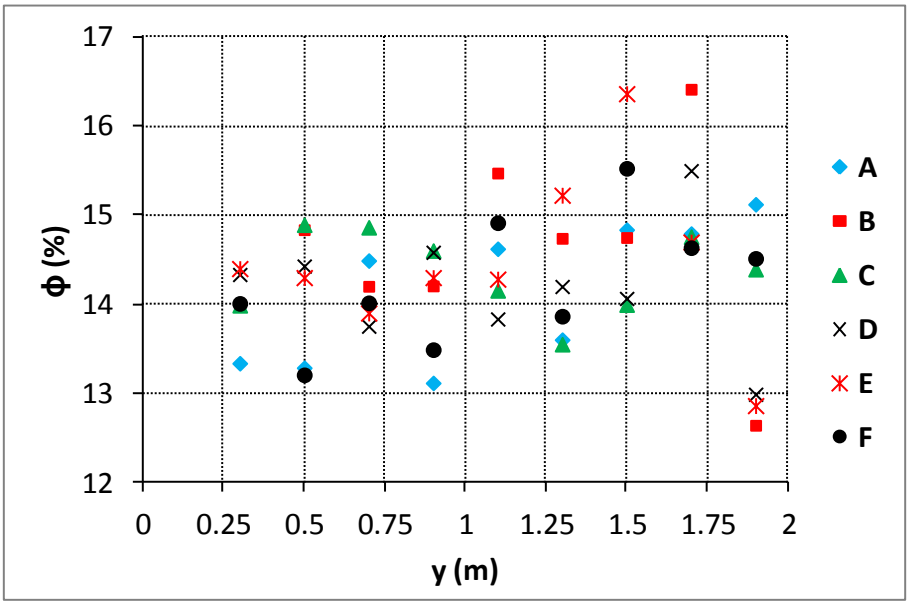


Figure IV. 22. Porosité accessible à l'eau suivant les lignes verticales du voile

Les valeurs de porosité moyenne, de son écart-type, du coefficient de variation, du minimum et maximum en fonction de la ligne de prélèvement sont résumées dans le Tableau IV. 4. L'écart type de la porosité évalué dans notre cas sur 54 carottes prélevés sur notre voile expérimental est de 0,78% qui est très proche des résultats obtenu dans le projet Applet

[118] sur le béton A1 avec un séchage à 105°C, de même pour le coefficient de variation qui est de 5,44 % dans notre cas et de 6,49 % obtenue dans ce même projet.

Tableau IV. 4. Données statistiques de la porosité à l'eau en fonction de la ligne de prélèvement

Ligne	A	B	C	D	E	F	Voile complet
Moyenne (%)	14,13	14,66	14,35	14,19	14,48	14,24	14,34
Écart-type (%)	0,78	1,08	0,46	0,68	0,94	0,72	0,78
Coefficient de variation (%)	5,55	7,41	3,23	4,80	6,55	5,09	5,44
Minimum (%)	13,12	12,64	13,55	12,99	12,86	13,21	12,64
Maximum (%)	15,12	16,41	14,89	15,50	16,36	15,52	16,41

La Figure IV. 23 montre l'étendue de la variabilité de la porosité accessible à l'eau observée sur les 54 échantillons prélevés sur le voile ainsi que les distributions de probabilité pouvant lui être associées. La loi log-logistic semble la plus appropriée pour reproduire convenablement les valeurs expérimentales de porosité ainsi observées avec une espérance $\mu = 14{,}35\ \%$ et une variance de $\sigma^2 = 0{,}606\ \%$. Ce résultat rejoint ceux trouvés dans la littérature où parmi les lois de densité de probabilité proposées dans le cadre du projet Applet [118], nous retrouvons la loi Log-normal, Gamma, Birnbaum-Sanders et la loi Log-logistic qui représentent le mieux leurs résultats. Le coefficient de vraisemblance (likelihood) de chaque loi de distribution est résumé dans le Tableau IV. 5. Ce coefficient mesure l'adéquation entre la distribution observée sur un échantillon et une loi de probabilité supposée décrire une réalité sur la population dont l'échantillon est issu. Il permet en effet de comparer entre les lois de probabilité représentant le mieux les observations expérimentales. Plus ce coefficient est important, plus la distribution proposée est adéquate. Le Tableau IV. 5 reprend ce coefficient de chaque distribution ainsi adoptée avec la moyenne et la variance leur correspondant.

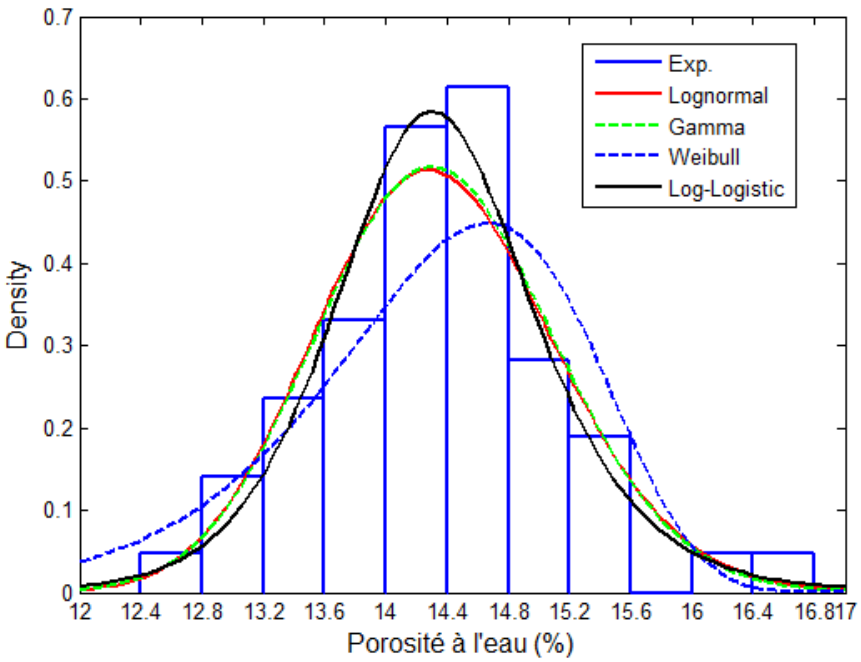


Figure IV. 23. Distribution de la porosité et les lois de distribution associées

Tableau IV. 5. Données statistique associées à chaque loi de distribution

Loi	Log-normale	Gamma	Weibull	Log-logistic
Log likelihood	-61,3982	-61,438	-66,872	-61,066
Moyenne (%)	14,341	14,341	14,283	14,349
Variance	0,608	0,596	0,967	0,606

IV.2.2.2. Variabilité spatiale de la perméabilité à la vapeur d'eau

La variabilité spatiale de la perméabilité à la vapeur d'eau est évaluée sur les échantillons prélevés sur les quatre lignes verticales (A, C, D et F) du voile expérimental (36 échantillons). Les essais sont réalisés sur le Gravitest suivant la méthode de la coupelle dont le mode et les conditions opératoires sont les même que ceux décrits dans le chapitre II.

La Figure IV. 24 illustre les valeurs de la perméabilité à la vapeur d'eau mesurée suivant la méthode de la coupelle en fonction des lignes considérées et de la hauteur de la carotte. Ces valeurs oscillent entre une perméabilité minimum de $\delta_{p\,min} = 1{,}37 \times 10^{-12}$ et un maximum de $\delta_{p\,max} = 3{,}6 \times 10^{-12}\, Kg.m^{-1}.s^{-1}.Pa^{-1}$. Ces résultats font ressortir une dispersion plus importante des valeurs suivant la ligne A avec un écart type plus élevé de $0{,}74 \times 10^{-12}\, Kg.m^{-1}.s^{-1}.Pa^{-1}$. En revanche, une homogénéité plus importante est enregistrée suivant la ligne C avec un écart type de $0{,}27 \times 10^{-12}\, Kg.m^{-1}.s^{-1}.Pa^{-1}$. Ces observations vont se traduire par une faible longueur de corrélation dans le cas d'une dispersion plus importante et une longueur de corrélation élevée dans le cas contraire (voir paragraphe IV.2.3).

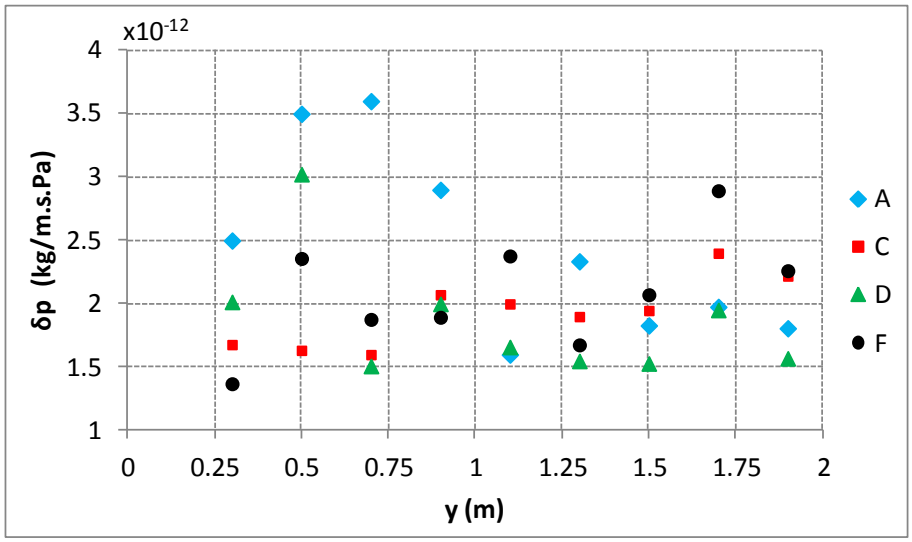


Figure IV. 24. Perméabilité à la vapeur d'eau suivant les lignes verticales du voile

Les valeurs moyennes de la perméabilité à la vapeur, leurs écart-types, les coefficients de variation et les valeurs minimum et maximum exprimées en fonction de la ligne de prélèvement sont résumées dans le Tableau IV. 6.

Tableau IV. 6. Données statistiques de la perméabilité à la vapeur en fonction de la ligne de prélèvement

Ligne	A	C	D	F	Voile complet
Moyenne ($x10^{-12}$)	2,45	1,97	1,87	2,09	2,08
Écart-type ($x10^{-12}$)	0,74	0,27	0,48	0,45	0,54
Coefficient de variation (%)	20,22	14,00	25,79	21,44	25,94
Minimum ($x10^{-12}$)	1,60	1,60	1,51	1,37	1,37
Maximum ($x10^{-12}$)	3,60	2,40	3,02	2,89	3,60

De la même manière que pour la porosité accessible à l'eau, nous avons approché nos résultats expérimentaux par des distributions de probabilité comme le montre la Figure IV. 25. Les données statistiques ainsi associées à chaque distribution sont résumées dans le Tableau IV. 7.

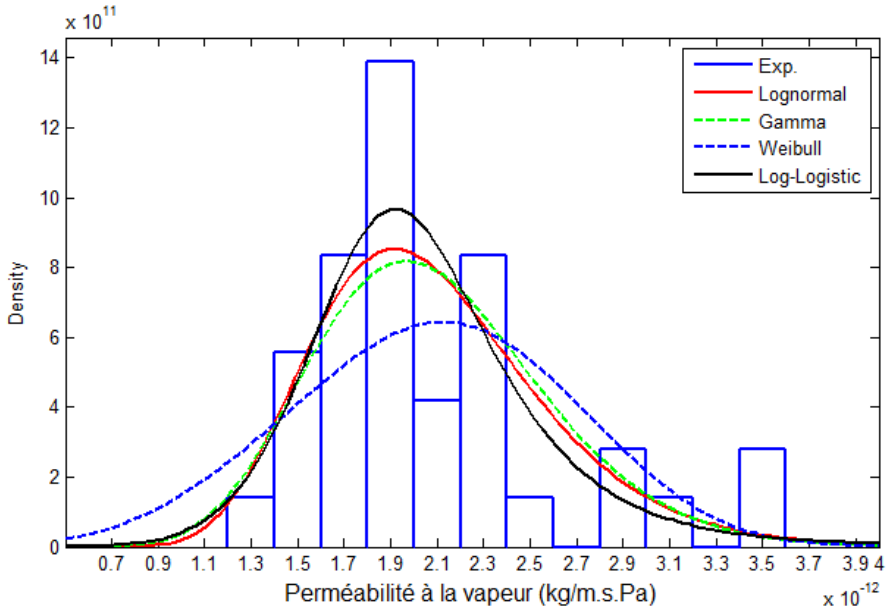


Figure IV. 25. Distribution de la perméabilité à la vapeur

Tableau IV. 7. Données statistique associées à chaque loi de distribution

Loi	Log-normale	Gamma	Weibull	Log-logistic
Log likelihood	970,46	969,34	964,67	970,30
Moyenne ($x10^{-12}$)	2,08	2,08	2,07	2,04
Variance ($x10^{-25}$)	2,52	2,49	3,60	2,59

IV.2.2.3. Variabilité spatiale de la perméabilité à l'air

La variabilité spatiale de la perméabilité à l'air a été évaluée sur des carottes prélevées sur deux lignes verticales (B et E) du voile expérimental. Dans le souci de reproductibilité des mesures, nous avons prélevés par sciage deux échantillons par carotte, 2x18 échantillons ont été ainsi obtenus. La méthode adoptée pour la mesure de la perméabilité à l'air est une méthode instationnaire à l'aide d'un perméamètre Thermicar (Figure IV. 26). La mesure a été réalisée sur des échantillons de matériau cylindriques de 65mm de diamètre et 50mm de hauteur obtenus par sciage et carottage. Pour assurer un écoulement axial durant la mesure, la périphérie de l'échantillon a été étanchéifiée à l'aide d'une résine. L'échantillon cylindrique a été soumis à un gradient de pression en imposant une pression haute (P_H) constante en amont de l'échantillon (entre 150 et 400 kPa) et une basse pression (P_B) de l'ordre de 8,5 kPa en aval (Figure IV. 26). Le principe de l'essai consiste à mesurer l'évolution de la pression en aval qui augmente à cause du débit d'air sortant de l'échantillon. La mesure s'arrête au bout de 80 s ou quand la pression basse atteigne une valeur limite de 35 kPa. Sur cette plage de pression basse atteint [8,5 – 35 kPa], la différence de pression entre l'amont et l'aval reste suffisamment grande pour que la variation de pression basse soit constante dans le temps (régime quasi permanent).

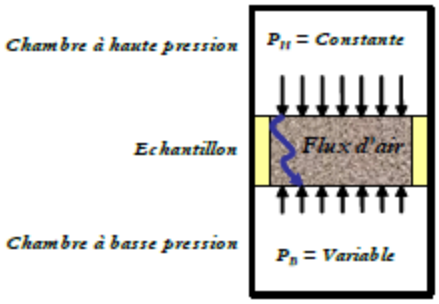


Figure IV. 26. Schéma de principe de la méthode de perméabilité au gaz [15]

La mesure de la variation de la pression en aval (P_B) permet de collecter des informations sur le débit de gaz (Q_m)en sortie de l'échantillon et d'en déduire la perméabilité apparente. Elle découle de l'utilisation de la loi de Darcy sans le terme gravitaire qui est négligé selon l'expression IV. 6.

$$V = \frac{K_a}{\mu}\frac{\Delta P}{L} \qquad \text{IV. 6}$$

Où :

$V[m/s]$ est la vitesse d'écoulement du gaz ;

$K_a[m^2]$ est la perméabilité apparente ;

$\mu[Pa.s]$ est la viscosité dynamique du gaz ;

$\Delta P[Pa]$ est la différence de pression exercée sur l'échantillon ;

$L[m]$ est l'épaisseur de l'échantillon.

En supposant que le gaz utilisé obéit à la loi des gaz parfait, la loi de Darcy s'écrit comme suit :

$$Q_m = -\frac{K_a}{\mu}\frac{M}{RT}P\frac{\partial P}{\partial x}S \qquad \text{IV. 7}$$

Où :

$S[m^2]$ est la section de passage du gaz ;

$R[J/mol.K]$ est la constante des gaz parfait ;

$T[K]$ est la température et $M\ [kg/mol]$ la masse molaire du gaz ;

Le bilan massique dans la chambre des basses pressions peut encore s'écrire :

$$V_B\frac{dP_B}{dt} = \frac{RT}{M}Q_m \qquad \text{IV. 8}$$

Où :

V_B est le volume de la chambre basse ;

Au début de l'expérience, la pression dans la chambre basse évolue linéairement en fonction du temps, ce qui signifie que le débit massique est constant pendant cette phase. Ce phénomène est dû au rapport élevé entre les deux pressions haute et basse. A partir de l'expression (IV. 7) du débit massique, nous obtenons :

$$[P_H^2 - P_B^2] = \frac{2\mu RTQ_m}{MK_aS} L \qquad \text{IV. 9}$$

Par combinaisons des deux expressions IV. 8 et IV. 9, nous obtenons une perméabilité apparente du matériau qui est donnée par l'expression suivante (IV. 10) :

$$K_a = \frac{2\mu L}{P_H^2 - P_B^2} V_B \frac{dP_B}{dt} \qquad \text{IV. 10}$$

- Conduite de l'essai

La perméabilité apparente dépend des caractéristiques du fluide, du réseau poreux du matériau (distribution de la taille des pores, connectivité …) et également de son état hydrique. De plus, elle dépend également de son état de fissuration. C'est pour cela qu'un pré-conditionnement avant l'essai est nécessaire. Dans notre cas, un séchage jusqu'à équilibre à 60°C sur des échantillons sans résine a été effectué. Cette température a été choisie de manière à éviter toute fissuration ou d'autre effets sur la microstructure du matériau. Après séchage de l'échantillon, celui-ci est placé dans le perméamètre. Afin d'assurer une étanchéité entre les deux chambre, nous avons utilisé des joints en caoutchouc avec une graisse à vide. L'essai se fait en deux phases successives :

Phase 1 : Imposition du gradient de pression

La pression P_H dans la chambre haute pression est augmentée par injection d'air sec, en même temps, un venturi relié à la chambre basse pression permet de faire baisser la pression à une valeur P_B de l'ordre de 8,5 kPa environ. Le perméamètre est géré par un ordinateur où nous pouvons imposer les différents paliers de pressions hautes (entre 130 et 400 kPa). Un critère de stabilisation est alors appliqué afin de s'assurer de la stabilité des deux pressions avant de commencer la mesure. Cette phase peut prendre 200 secondes.

Phase 2 : Mesure de la variation de la pression basse

Pendant cette phase, la pression haute est maintenue constante et l'aspiration d'air en chambre basse est arrêtée. Un écoulement d'air se produit sous l'effet du gradient de pression imposé conduisant ainsi à une augmentation de la pression en chambre basse. L'évolution de la pression basse en fonction du temps est alors mesurée. Cette phase de

l'essai se poursuit jusqu'à ce que la pression basse atteigne 35 kPa et s'arrête au plus tard 80 secondes après le début de la mesure. À la fin de la mesure, la perméabilité apparente correspondant à cette pression est ainsi calculée. Le perméamètre poursuit alors les mesures pour les paliers de pressions suivantes.

La perméabilité intrinsèque est déterminée par une régression linéaire suivant l'approche de Klinkenberg selon l'expression (IV. 11). Pour cela, plusieurs paliers de haute pression sont utilisés pour la détermination des différentes perméabilités apparentes K_a.

$$K_a = K_{INT}\beta \frac{1}{P_m} + K_{INT} \qquad \text{IV. 11}$$

$$\frac{1}{P_m} = \frac{2}{P_H - P_B} \qquad \text{IV. 12}$$

Où β $[Pa]$ est un facteur de glissement du gaz (constant) ; la courbe de K_a en fonction de l'inverse de la pression moyenne est donnée par une droite dont l'intersection avec l'axe des ordonnées nous donne la perméabilité intrinsèque (K_{INT}) (Figure IV. 27).

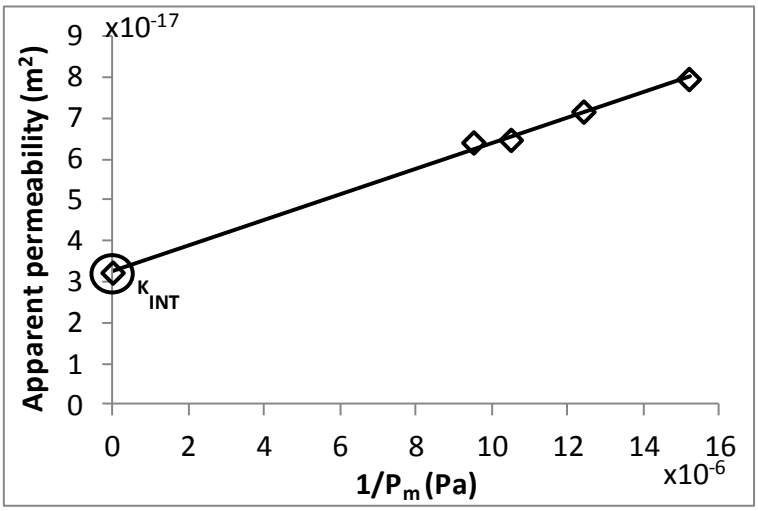


Figure IV. 27. Perméabilité apparente de l'échantillon B2 en fonction de l'inverse de P_m – Perméabilité intrinsèque

Les résultats de la perméabilité intrinsèque suivant les deux lignes verticales B et E sont présentés dans la Figure IV. 28. Les données statistiques sont résumées dans le Tableau IV. 8. Dans le but de bien quantifier la variabilité spatiale de la perméabilité intrinsèque, nous avons entrepris des essais de répétabilité et de reproductibilité. Nous avons à cet effet, réalisés trois essais sur chaque échantillon pour évaluer la répétabilité de nos mesures. Comme indiqué précédemment, sur chaque carotte prélevée nous avons sciés deux échantillons qui ont fait l'objet d'essai de répétabilité et la comparaison de la perméabilité intrinsèque moyenne entre les deux échantillons prélevés sur la même carotte permet de collecter des informations sur la reproductibilité de la mesure. Le prélèvement de trois

échantillons (5 cm d'épaisseur) sur la même carotte nous a été impossible en raison de l'épaisseur du voile correspondant à la hauteur de la carotte (15 cm). Les résultats obtenus sont présentés sur les figures suivantes.

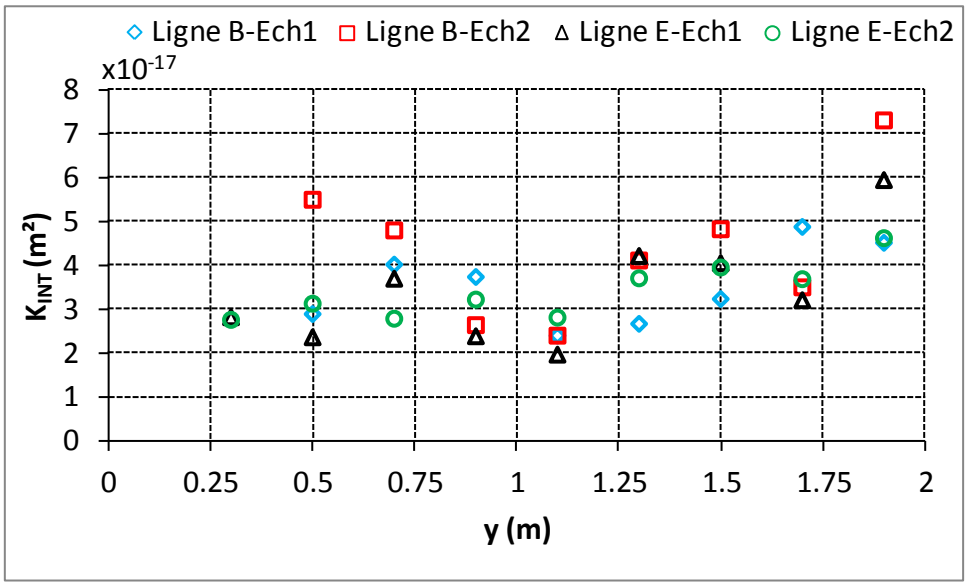


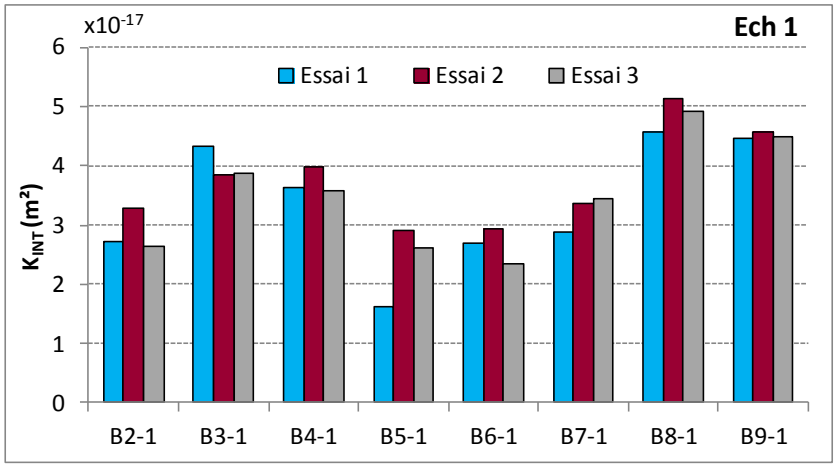
Figure IV. 28. Perméabilité intrinsèque suivant les deux lignes verticales (B & E)

Tableau IV. 8. Données statistiques de la perméabilité à l'air en fonction de la ligne de prélèvement

	Moyenne $x10^{-17}$	Écart type $x10^{-17}$	Coefficient de variation (%)	Minimum $x10^{-17}$	Maximum $x10^{-17}$
Ligne B	3,95	1,03	26,20	2,39	5,91
Ligne E	3,40	0,89	26,50	2,38	5,28
Deux lignes	3,66	0,97	26,7	2,38	5,91

➢ **Répétabilité des résultats**

- Ligne B :



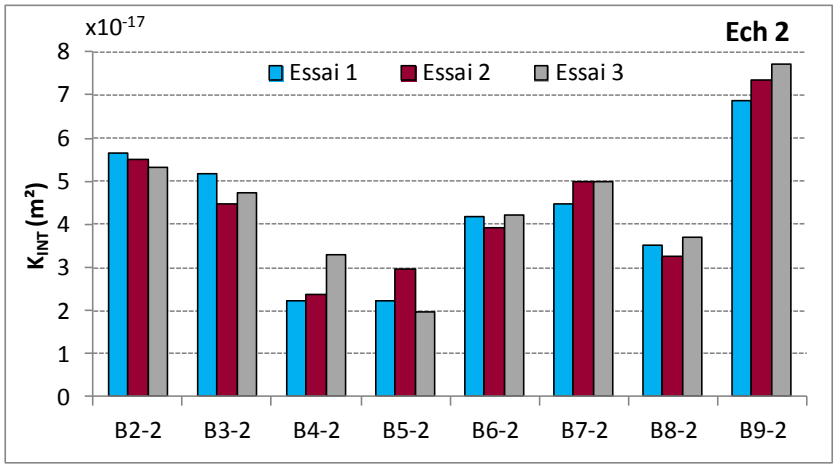
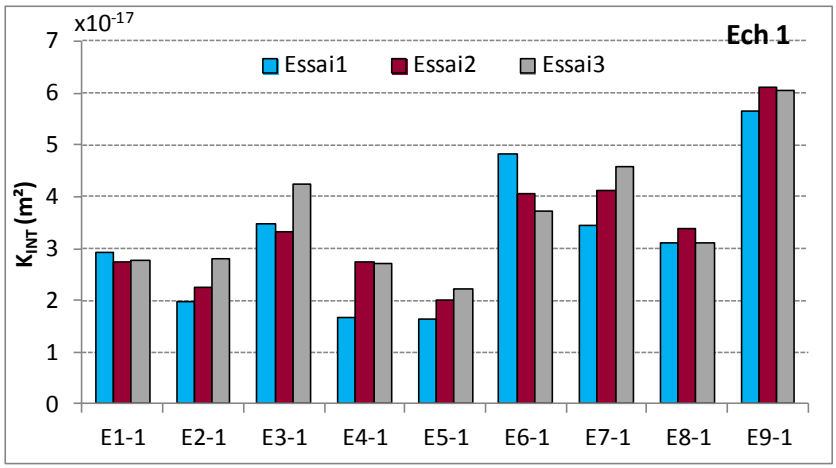


Figure IV. 29. Répétabilité des mesures de la perméabilité intrinsèque des échantillons prélevés suivant la ligne verticale B

- Ligne E :



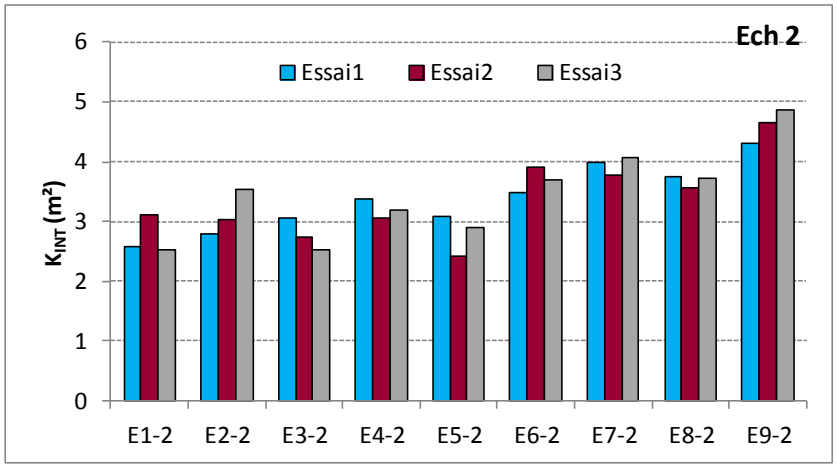


Figure IV. 30. Répétabilité des mesures de la perméabilité intrinsèque des échantillons prélevés suivant la ligne verticale E

Ces résultats (Figure IV. 29 et Figure IV. 30) démontrent une bonne répétabilité des mesures de perméabilité intrinsèque sur chacun des échantillons prélevés suivant les deux lignes

verticales B et E. En effet l'écart type de mesure ne dépasse pas $0.6x10^{-17}$ comme l'illustre le Tableau IV. 9.

Tableau IV. 9. Moyennes et écarts type de la perméabilité intrinsèque mesurée suivant les deux lignes verticales B et E

Échantillon	Ligne B – Ech 1		Ligne B – Ech 2	
	K_{INT} Moyen $x10^{-17}$ (m^2)	Écart-type $x10^{-17}$ (m^2)	K_{INT} Moyen $x10^{-17}$ (m^2)	Écart-type $x10^{-17}$ (m^2)
B2	2,88	0,36	5,49	0,17
B3	4,01	0,28	4,79	0,36
B4	3,73	0,23	2,63	0,60
B5	2,39	0,67	2,39	0,51
B6	2,66	0,30	4,10	0,15
B7	3,22	0,31	4,82	0,29
B8	4,87	0,28	3,49	0,22
B9	4,51	0,07	7,30	0,43
	Ligne E – Ech 1		Ligne E – Ech 2	
E1	2,81	0,10	2,75	0,32
E2	2,35	0,41	3,12	0,38
E3	3,69	0,49	2,77	0,27
E4	2,37	0,62	3,21	0,17
E5	1,95	0,30	2,80	0,33
E6	4,21	0,57	3,70	0,22
E7	4,04	0,57	3,94	0,16
E8	3,20	0,16	3,68	0,10
E9	5,94	0,25	4,61	0,28

- **Reproductibilité des résultats**

Afin de vérifier la reproductibilité des résultats dans les mêmes conditions et pour le même type de matériau, deux échantillons de même taille prélevés sur la même carotte ont été analysés. La Figure IV. 31 représente une comparaison des valeurs de perméabilité intrinsèque de deux échantillons prélevés de la même carotte suivant les deux lignes verticales B et E. Ces valeurs correspondent à chaque fois à la moyenne de trois mesures effectuées successivement sur le même échantillon et illustrées dans la Figure IV. 29 et la Figure IV. 30 avec à chaque fois l'écart type des mesures correspondants.

Les deux échantillons sont prélevés suivant l'épaisseur de la carotte. Avant le découpage, nous avons tout d'abord sciés 1 cm des deux côtés de la carotte afin d'éliminer les bords qui ont des propriétés différentes du cœur de l'échantillon. Les résultats présentés dans la Figure IV. 31 représente la variabilité de la perméabilité intrinsèque suivant l'épaisseur du voile.

Aucune conclusion ne peut être tirée sur l'évolution de cette propriété : parfois doublée suivant l'épaisseur (échantillon B2) et parfois constante (échantillon B5).

Si suivant l'épaisseur nous pouvons distinguer ces variabilités, alors à quoi doit-on nous attendre en ce qui concerne la variabilité spatiale ? La réponse à cette question est observée dans la Figure IV. 32 qui illustre d'une part, la distribution de K_{INT} suivant les deux lignes verticales B et E et d'autre part, les lois de distribution pouvant leur être associées. Aussi, le Tableau IV. 10 résume les données statistiques associées à chaque loi de distribution.

Les résultats illustrés sur la Figure IV. 31 montrent que la perméabilité intrinsèque dépend de la position dans l'espace de l'échantillon étudié. Elle diminue au milieu de ligne verticale de prélèvement, augmente un petit peu plus en se rapprochant de la base du voile et prend des valeurs supérieures en haut du voile.

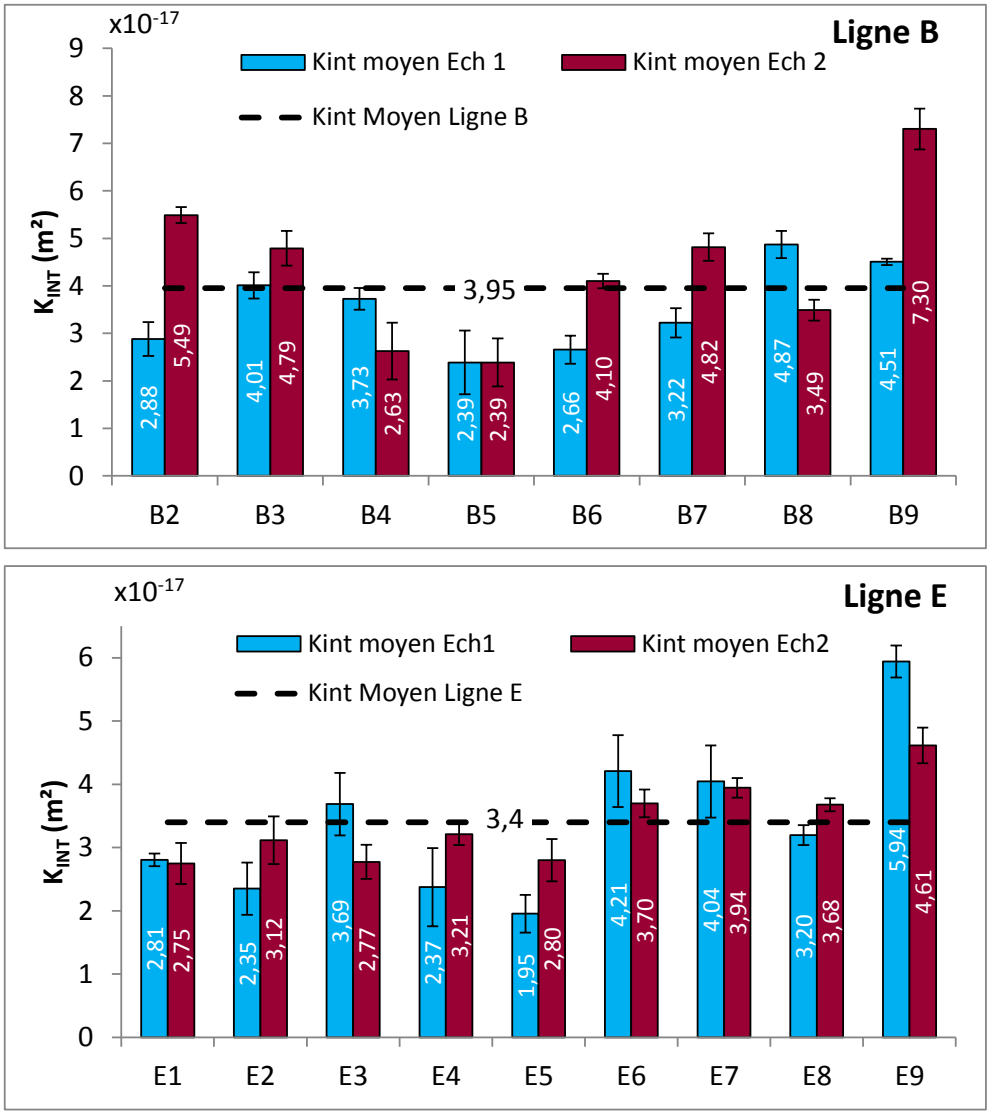


Figure IV. 31. Reproductibilité des mesures de la perméabilité intrinsèque suivant les deux lignes verticales B et E

La Figure IV. 32 montre d'une part, l'étendue de la variabilité de la perméabilité intrinsèque observée sur les 36 échantillons prélevés sur le voile expérimental et d'autre part, les distributions de probabilité pouvant lui être associée. Les lois Normal et Weibull semblent les plus appropriées pour reproduire convenablement la distribution statistique des valeurs expérimentales de perméabilité intrinsèque ainsi observées avec une espérance $\mu = 3{,}65 \times 10^{-17}\, m^2$ pour les deux lois de probabilité et une variance de $\sigma^2 = 0{,}95 \times 10^{-34}\, (m^2)^2$ et $\sigma^2 = 1{,}04 \times 10^{-34}\, (m^2)^2$ pour les lois Normal et Weibull, respectivement.

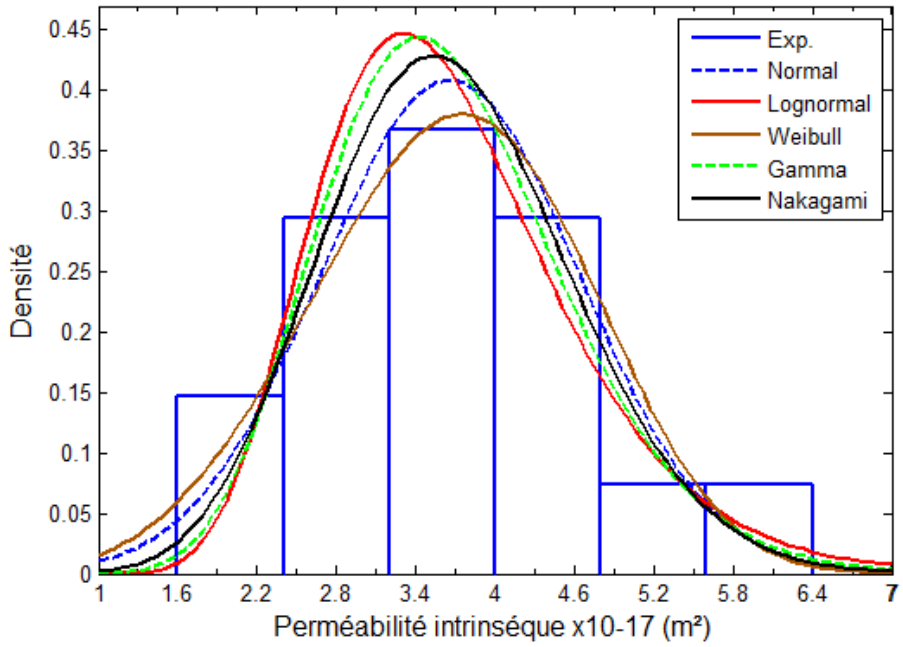


Figure IV. 32. Distribution de la perméabilité intrinsèque suivant les deux lignes verticales B et E et les lois de distribution associées

Tableau IV. 10. Données statistiques associées à chaque loi de distribution

Loi	Normal	Lognormal	Weibull	Gamma	Nakagami
Log likelihood	-23,23	-22,26	-23,60	-22,43	-22,72
Moyenne x10^{-17}	3,65	3,66	3,65	3,65	3,66
Variance x10^{-34}	0,95	0,94	1,04	0,85	0,86

IV.2.2.4. Variabilité spatiale des Isothermes d'adsorption et de désorption de la vapeur d'eau

La variabilité spatiale des isothermes d'adsorption et de désorption de la vapeur d'eau est évaluée sur les échantillons prélevés sur les deux lignes verticales A et C du voile expérimental (18 échantillons). Les essais sont réalisés sur le Belsorp Aqua 3 selon le même protocole décrit précédemment dans le chapitre II et ce pour tous les échantillons.

La Figure IV. 33 et la Figure IV. 34 présentent respectivement les isothermes d'adsorption et de désorption de la vapeur d'eau à 20 °C des bétons prélevés suivant les deux lignes verticales du voile expérimental A et C. Nous distinguons, que ce soit en sorption ou en désorption, une évolution croissante de la variabilité avec la valeur du palier d'humidité. Deux courbes enveloppes pour la sorption et la désorption sont observées. Elles concernent celle de l'échantillon A9 (Courbe supérieure) et celle du A1 (courbe inférieure). Des écarts de teneur en eau avoisinant 1,60% en sorption et de 3,10% en désorption sont enregistrés au voisinage de 95% d'humidité relative. Cela peut se justifier par la valeur de la porosité accessible à l'eau plus élevée pour le béton A9 (ε_{A9}=15% et ε_{A1}=13.3%).

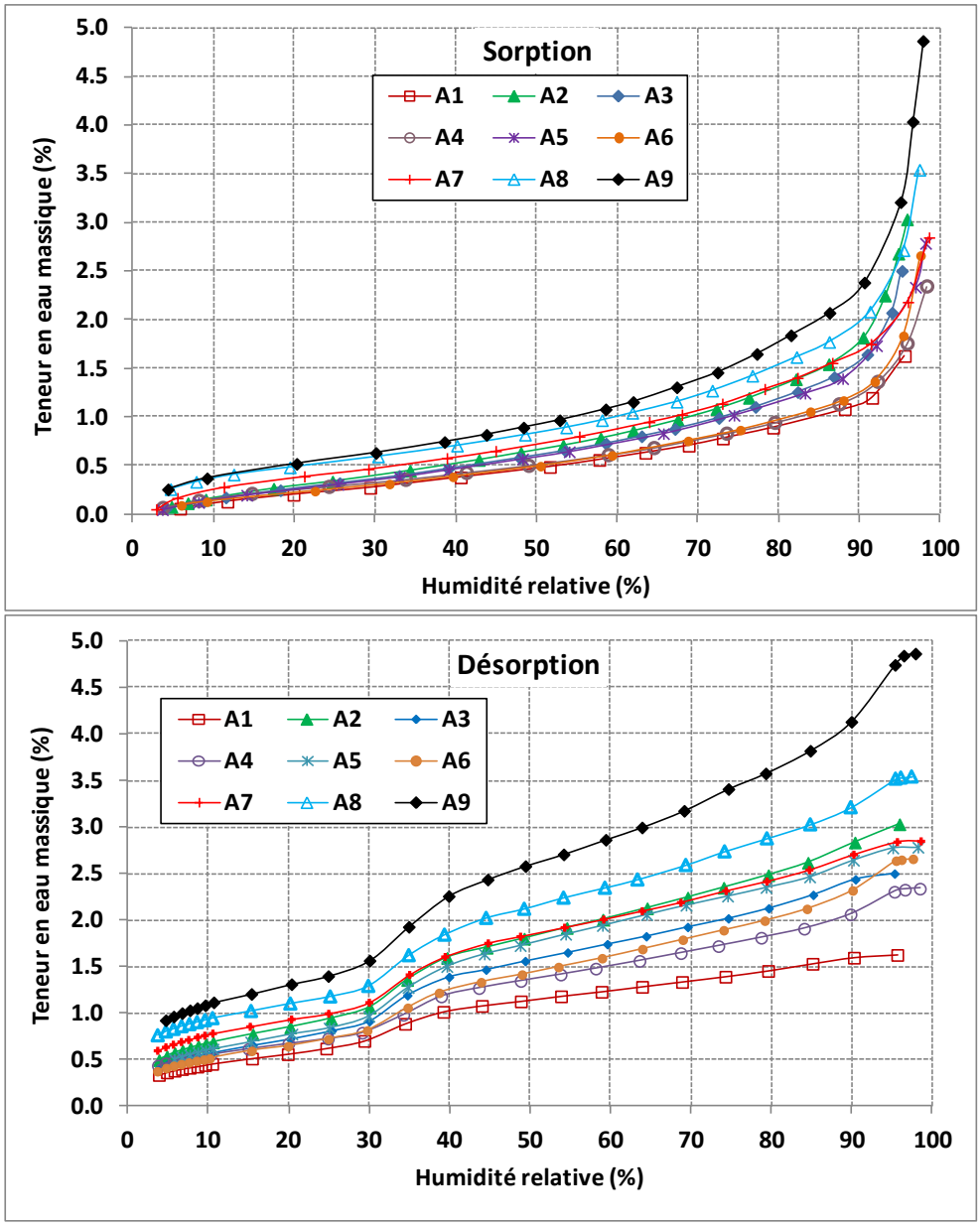


Figure IV. 33. Variabilité des isothermes de sorption et de désorption suivant la ligne verticale A à 20°C

La Figure IV. 35 traduit la dispersion des teneurs en eau en sorption et en désorption au voisinage des différentes valeurs d'hygrométrie, HR=5 ; 30 ; 50 ; 70 et 95%, obtenue suivant la ligne verticale A du voile. Elle fait apparaitre l'évolution de la teneur en eau en fonction de l'humidité et de la hauteur de la carotte sur le voile. Ce résultat vient en premier lieu confirmer l'observation d'une dispersion plus importante au voisinage des humidités relatives les plus élevées. En second lieu, elle montre une importante variabilité spatiale de la teneur en eau en désorption en comparaison à celles mesurées en sorption. Cette différence est liée au comportement hystérétique du matériau béton.

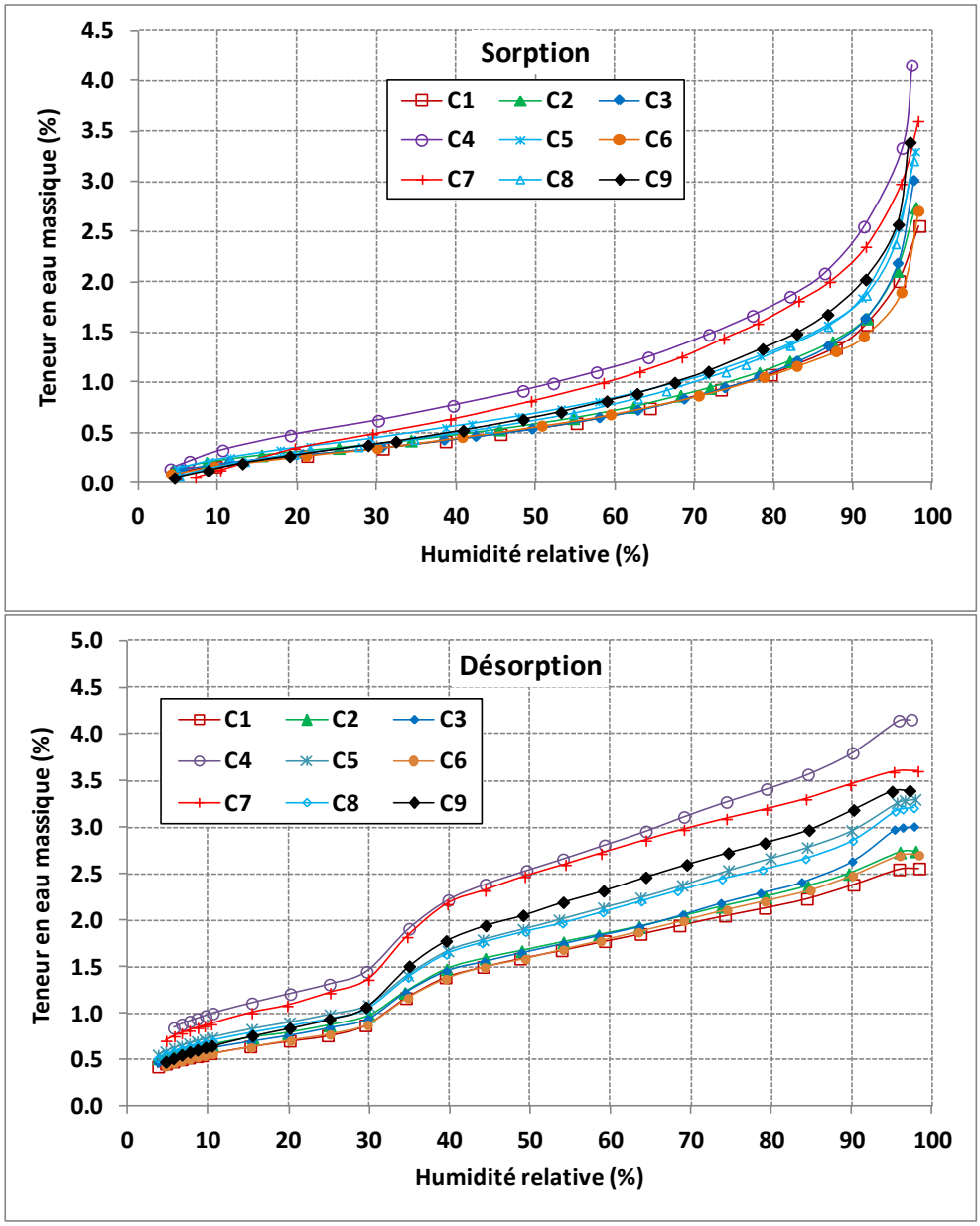


Figure IV. 34. Variabilité des isothermes de sorption et de désorption suivant la ligne verticale C à 20°C

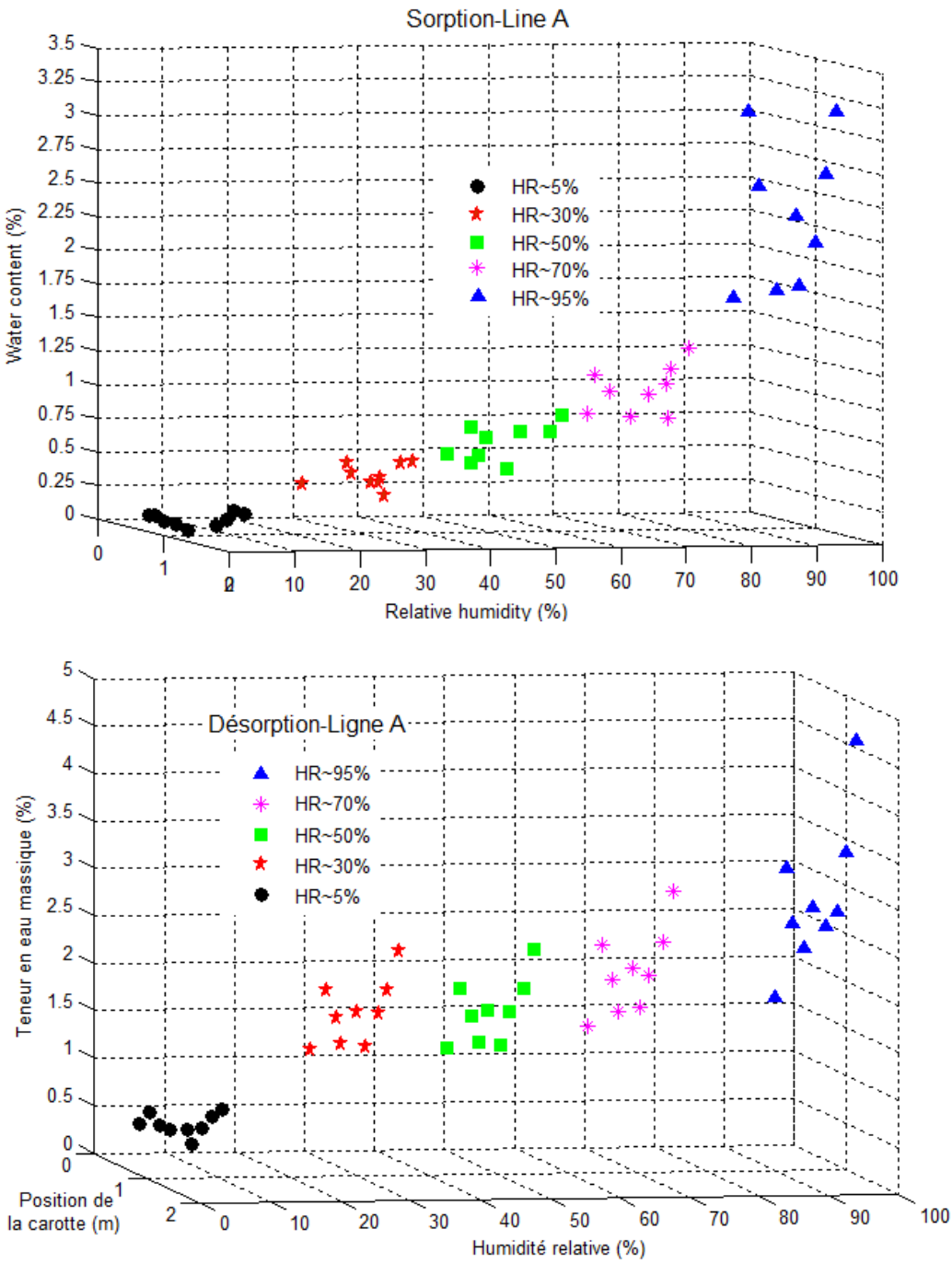


Figure IV. 35. Dispersion de la teneur en eau au voisinage des humidités relative HR=5 ; 30 ; 50 ; 70 et 95% sur la ligne A

Trabelsi [94] a étudié l'impact du volume du spécimen d'étude sur l'isotherme de désorption de la vapeur d'eau en analysant des échantillons de 5 et 10 mm d'épaisseur suivant la méthode gravimétrique traditionnelle des solutions salines saturées (Figure IV. 36) [94]. Nous remarquons bien que la variabilité spatiale observée sur les échantillons prélevés sur le voile expérimentale est largement plus importante que la variabilité due à l'effet du VER.

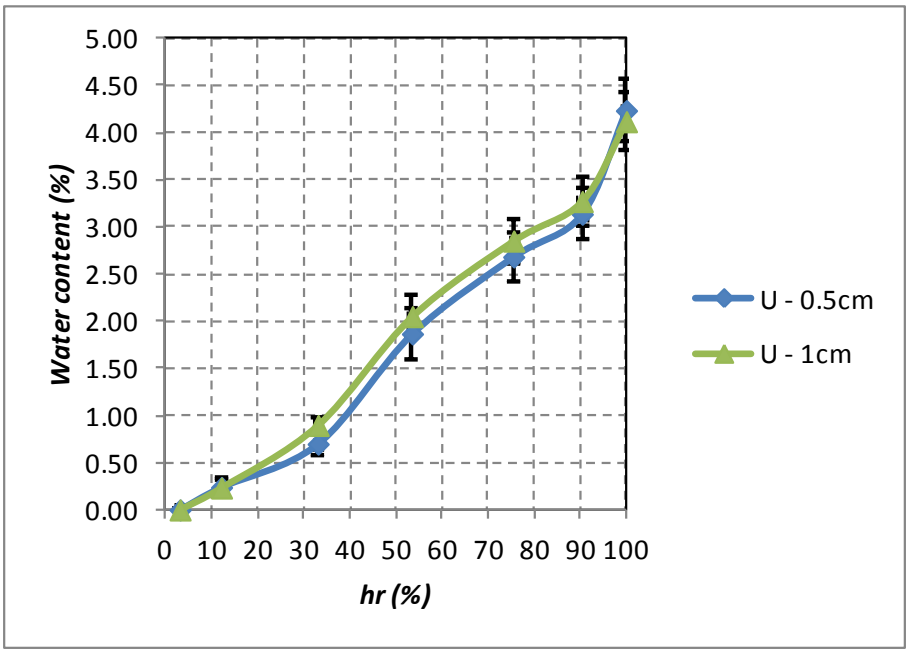


Figure IV. 36. Isothermes de désorption de la vapeur d'eau mesurées sur des échantillons de BHP de 5mm et 10mm d'épaisseur [94]

Après l'investigation expérimentale sur la variabilité spatiale des propriétés de transfert du matériau béton, une application par approche probabiliste est ainsi choisie dans le but de quantifier l'incidence de cette variabilité sur le comportement hygrothermique du matériau étudié. Pour cela, nous utilisons le modèle de transfert couplés de chaleur et d'humidité en considérant cette fois-ci comme moteurs de transfert la pression de vapeur et la température. Le choix des moteurs de transferts fixe les paramètres d'entrée où nous retrouvons entre autres la perméabilité à la vapeur d'eau. La formulation mathématique du modèle est la suivante [110] :

$$C_m \rho_s \frac{\partial P_v}{\partial t} = div\,(K_m \nabla P_v + K_T \nabla T) \qquad \text{IV. 13}$$

$$C_p \rho_s \frac{\partial T}{\partial t} = div\,(\lambda \nabla T + \alpha \nabla P_v) + L_v \rho_s \sigma C_m \frac{\partial P_v}{\partial t} \qquad \text{IV. 14}$$

Avec : $C_m = (1/P_{vsat})(\partial U/\partial HR)$ est la capacité de stockage d'humidité en $[kg/(kg.Pa)]$; $K_m[kg/(m.s.Pa)]$ représente la perméabilité à la vapeur d'eau ; K_T $[Kg/(m.s.K)]$ est la conductivité de l'eau liquide due à un gradient de température ; α $[m^2/s]$ représente le coefficient de convection de chaleur dû au gradient de pression de vapeur ; σ représente le rapport entre l'échange massique de la phase vapeur d'eau et l'échange massique global [110]. Enfin, λ $[W/m.K]$ et C_p $[J/(kg.K)]$ sont respectivement la conductivité thermique et la chaleur spécifique.

IV.2.3. Identification de la longueur de corrélation

La prise en compte de la variabilité spatiale des propriétés des matériaux dans la prédiction de leur comportement hygrothermique nécessite le passage par la génération de champ aléatoire. Dans notre cas, nous supposerons que nos champs aléatoires sont spatialement corrélés suivant la fonction de covariance donnée dans l'équation IV. 15 [117]. C'est une fonction simple qui ne nécessite que peu de paramètres et qui est différentiable en zéro.

$$C(x,y) = \sigma^2 \exp(-\frac{\|x_i - x_j\|^2}{L_c^2}) \qquad \text{IV. 15}$$

$C(x,y)$ représente la covariance entre les deux points x_i et x_j. Chaque terme C_{ij} de la matrice de covariance C correspond à la valeur de la fonction de covariance calculée entre les nœuds i et j du maillage d'où la nécessité de la table des coordonnées. Les vecteurs x_i et x_j donnent la position des nœuds correspondants. Rappelons que la covariance permet d'évaluer le sens de variation de deux variables et, par conséquent, de qualifier l'indépendance de ces variables. Si la covariance de deux variables est nulle, cela signifie que les deux variables sont indépendantes l'une de l'autre. σ^2 est la variance du champ aléatoire, tandis que le paramètre L_c correspond à la longueur de corrélation qui traduit l'importance de la corrélation spatiale du champ étudié. Plus la valeur de L_c est importante, plus le champ est fortement corrélé [117]. C'est cette longueur de corrélation qui sera déterminée à partir des résultats sur les carottes prélevés sur le voile expérimental.

La longueur de corrélation peut être identifiée à partir de l'équation IV. 15. Cela est possible seulement lorsque l'on dispose de plusieurs réalisations d'un champ aléatoire. La matrice de covariance est ainsi calculée suivant l'équation IV. 16.

$$C(x,y) = E[(X - E[X])(Y - E[Y])] \qquad \text{IV. 16}$$

Avec E correspond à l'espérance, X et Y sont respectivement les réalisations au point x et y. Dans notre cas, nous disposons d'une seule réalisation du champ aléatoire avec un seul voile expérimental. Nous sommes alors contraints d'évaluer la covariance à partir d'un variogramme qui est exprimée d'après De Larrard [117] par l'équation suivante :

$$\gamma(d) = \frac{1}{2|N(d)|}\sum_{(i,j)\,\epsilon\, N(d)}|Y_i - Y_j|^2 \text{ où } N(d) = \{(i,j)\backslash|\mathrm{x_i} - \mathrm{x_j}| = \mathrm{d}\} \qquad \text{IV. 17}$$

Avec $\gamma(d)$ est la valeur du variogramme, Y_i est la réalisation au point $\mathrm{x_i}$ de la variable aléatoire considérée, $N(d)$ est l'ensemble des couples de points (i,j) telle que la distance entre ces points est égale à d (nombre de couples remplissant cette condition).

La relation entre la covariance et le variogramme est définie par l'équation IV. 18. Rappelons que la covariance en 0 correspond à la variance. Connaissant la valeur du variogramme

correspondante à chaque distance d, nous pouvons en déduire ainsi, à partir de l'équation IV. 18, la valeur de la covariance. Ensuite, il suffit d'optimiser la valeur de L_c dans la fonction de covariance décrite précédemment (équation IV. 15).

$$\gamma(d) = C(0) - C(d) \qquad \text{IV. 18}$$

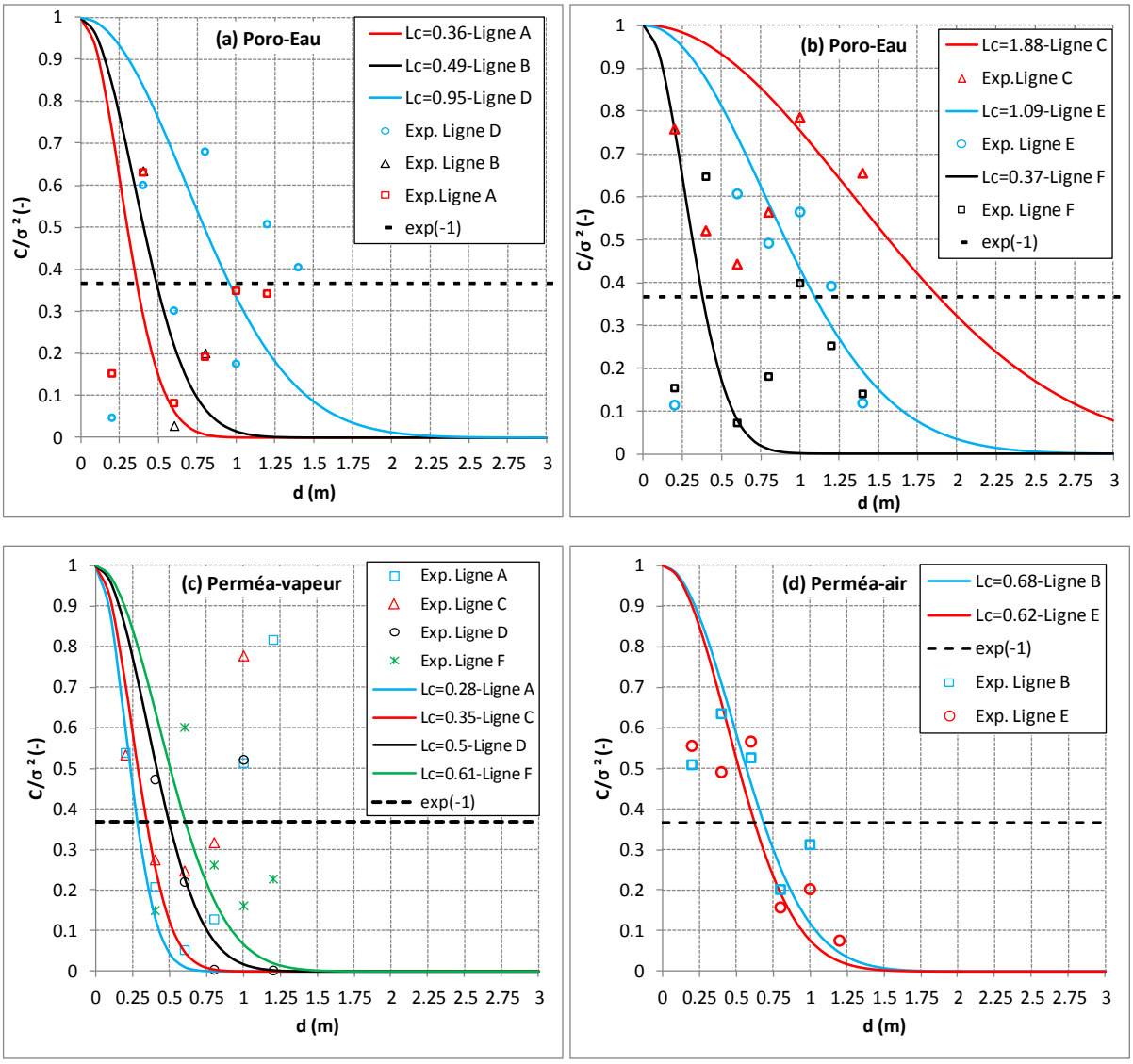


Figure IV. 37. Identification des longueurs de corrélation à partir des variogrammes pour (a & b) la porosité, (c) la perméabilité à la vapeur et (d) la perméabilité à l'air

La Figure IV. 37 présente une comparaison entre les valeurs des covariances mesurées sur le voile expérimental et celles issues des fonctions de covariance correspondantes. Comme indiqué précédemment, la variabilité de la porosité à l'eau est évaluée suivant les six lignes verticales du voile, celle de la perméabilité à la vapeur est déterminée suivant quatre lignes (A, C, D & F) et enfin celle de la perméabilité à l'air est calculée suivant deux lignes (B & E). Nous présentons sur l'axe des ordonnées la covariance normée par rapport à la variance. A

noter que les valeurs de la longueur de corrélation sont de l'ordre du mètre et ce quelle que soit la configuration étudiée.

Pour ce qui concerne la longueur de corrélation du champ spatial de sorption et de désorption de la vapeur d'eau, l'identification a été entreprise en fonction des paliers d'humidité en sorption et en désorption (HR~5 ; 10 ; 30 ; 50 ; 70 et 95%) sur la ligne A et C.

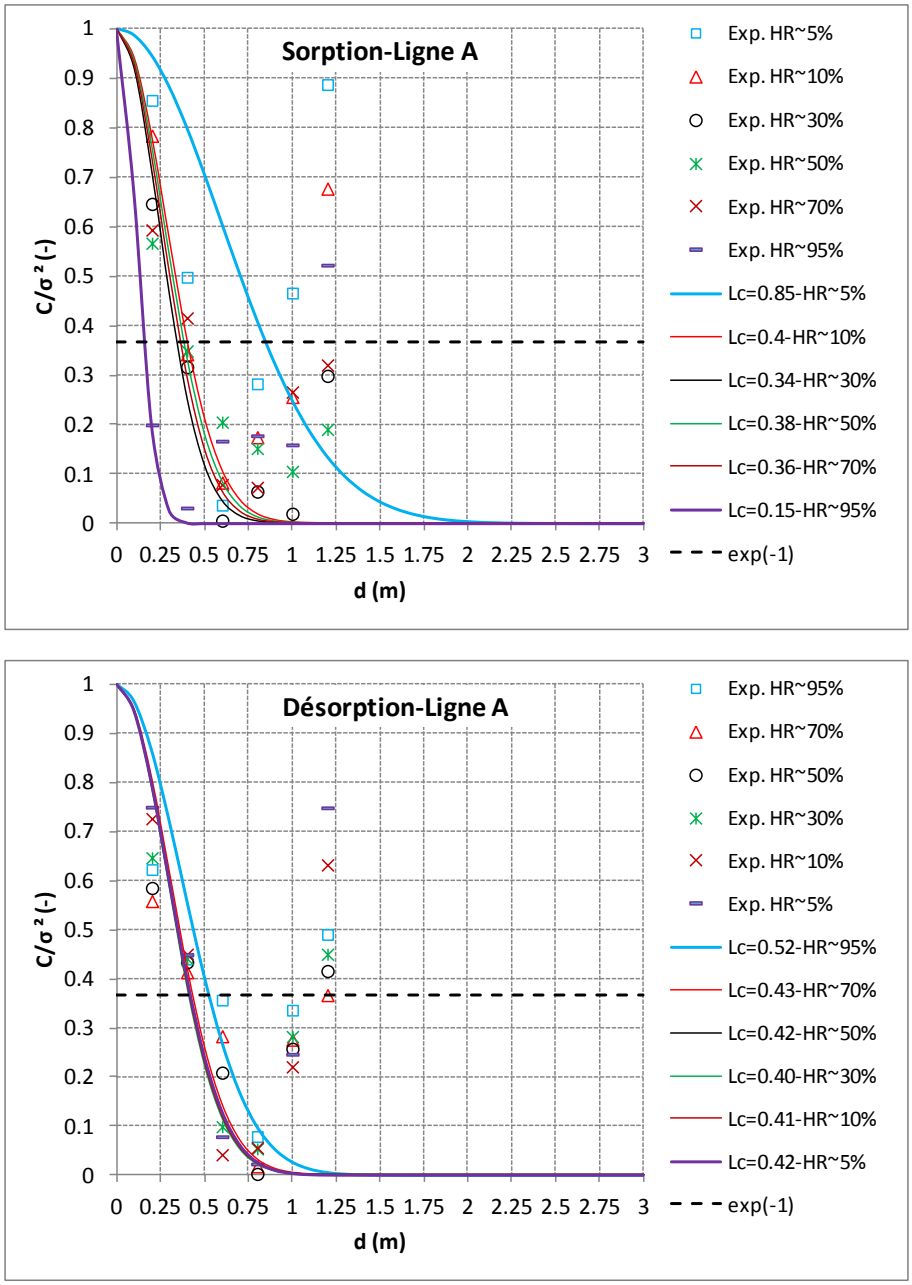


Figure IV. 38. Identification des longueurs de corrélation à partir des variogramme pour la sorption et la désorption suivant la ligne A et en fonction de HR

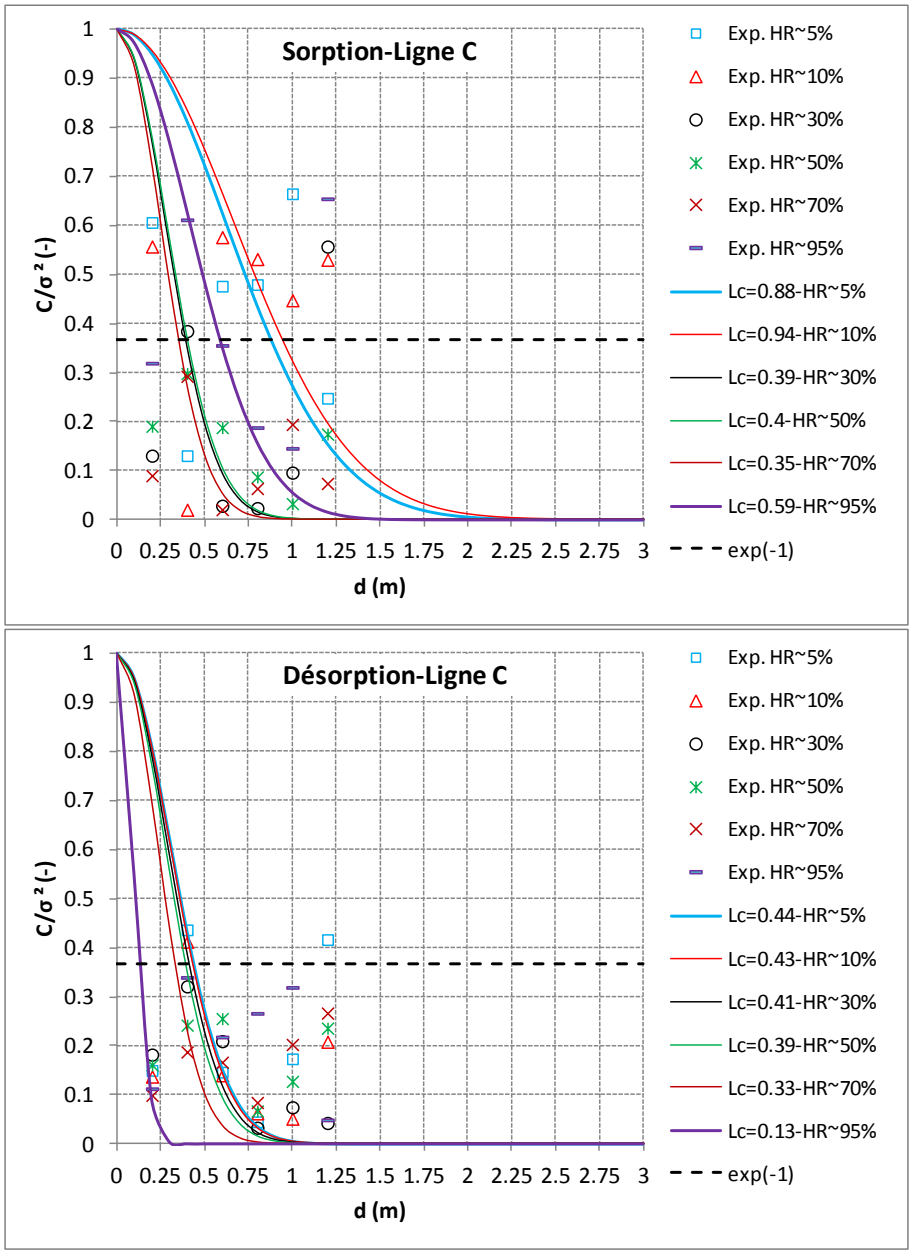


Figure IV. 39. Identification des longueurs de corrélation à partir des variogrammes pour la sorption et la désorption suivant la ligne C et en fonction de HR

La Figure IV. 40 présente une comparaison des longueurs de corrélation suivant les deux lignes verticales A et C et leur évolution en fonction du palier d'humidité relative considéré. La longueur de corrélation atteint son maximum en sorption dans les faibles humidités relatives proches de 5%. En effet, dans cette région la dispersion des teneurs en eau est très faible (Figure IV. 35). Cette observation n'est pas constatée dans le cas de la désorption. En effet, des valeurs plus faibles sont enregistrées pour des hygrométries les plus élevées. Cela se traduit par une dispersion forte et une dépendance faible des teneurs en eau dans la zone de condensation capillaire où le transfert est régi majoritairement par diffusion de la phase liquide. En conclusion, les caractéristiques du champ aléatoire des teneurs en eau varient

par palier en fonction de l'humidité relative, elles sont, en général, fortement corrélées dans la zone des faibles humidités relatives et faiblement corrélées au voisinage de la zone de saturation.

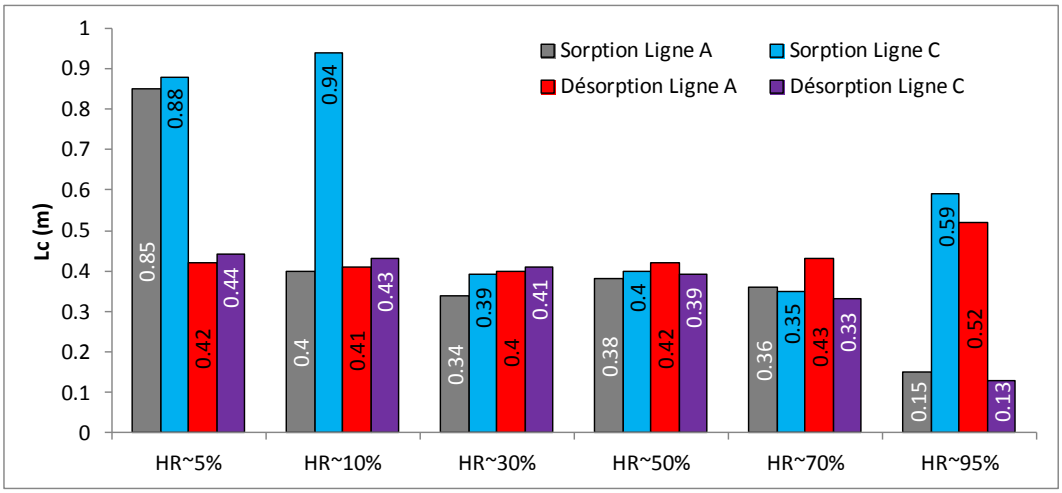


Figure IV. 40. Histogramme des longueurs de corrélations en sorption et en désorption suivant les deux lignes A et C en fonction de l'humidité relative

IV.2.4. Génération de champs aléatoires

Lors de ce qui suit, on se propose d'évaluer l'incidence la variabilité spatiale des propriétés des matériaux cimentaires sur la prédiction de leur comportement hygrothermique. Dans le cas qui nous intéresse, nous observons l'influence de la variabilité spatiale des paramètres les plus influents par rapport à la cinétique de transfert couplé de chaleur et d'humidité (perméabilité à la vapeur et isotherme d'adsorption et de désorption de la vapeur d'eau). La démarche est basée sur la génération de réalisations du champ aléatoire telle que ces réalisations soient indépendantes les unes des autres toute en tenant compte de la corrélation spatiale du champ. Spanos et Ghanem [180] ont montré que la décomposition de Karhunen-Loève était l'outil le plus performant pour parvenir à cette fin [117].

Avant de parler des champs gaussien, définissons tout d'abord les variables aléatoires gaussiennes.

Une variable aléatoire réelle X est une variable gaussienne d'espérance μ et d'écart type σ strictement positif (donc de variance σ^2) si elle admet comme fonction de densité φ, pour tout réel x, elle sera exprimée par l'équation suivante :

$$\varphi(x) = \frac{1}{\sigma\sqrt{2\pi}} \exp\left(\frac{-(x-\mu)^2}{2\sigma^2}\right) \qquad \text{IV. 19}$$

Une variable gaussienne est donc entièrement définie par les deux paramètres μ et σ^2. On note habituellement cela de la manière suivante :

$$f \sim \mathcal{N}(\mu, \sigma^2) \qquad \text{IV. 20}$$

et on dit que f suit une loi normale d'espérance μ et de variance σ^2. Si l'espérance $\mu = 0$ et la variance $\sigma^2 = 1$; on dit que f suit une loi normale (gaussienne) centrée réduite et on écrit :

$$f \sim \mathcal{N}(0,1) \qquad \text{IV. 21}$$

Un champ gaussien f est tel que : $\forall\, x \in M, f_x \sim \mathcal{N}(\mu, \sigma^2)$,

Ce champ gaussien est entièrement défini par ses moments d'ordre 2, c'est-à-dire l'espérance et la variance, ainsi que par sa fonction de covariance.

Les champs gaussiens corrélés sont des champs dont la valeur de ce dernier en un point est dépendante des valeurs aux points voisins. Ils sont très utilisés en pratique malgré le support non borné.

La covariance est un nombre permettant d'évaluer le sens de variation de deux variables et de quantifier le degré de dépendance de ces variables. Si deux variables aléatoires sont totalement indépendantes alors leurs covariance est nulle. La corrélation (la dépendance) entre les valeurs en deux points (x, y) est définie par sa fonction de covariance qui est présentée dans l'équation IV. 15.

IV.2.4.1. Décomposition modale de Karhunen Loève (KLE)

La décomposition modale de Karhunen-Loève propose une décomposition d'un champ aléatoire $f(\vec{x}, \omega)$ en l'écrivant sous la forme d'une série infinie (équation IV. 22). L'un des principaux atouts de cette méthode est qu'elle permet un découplage des variables spatiales x et stochastique ω.

$$f(\vec{x}, \omega) = \overline{f}(\vec{x}) + \sum_{i=0}^{+\infty} \sqrt{\lambda_i}\, \phi_i(\vec{x}) \xi_i(\omega) \qquad \text{IV. 22}$$

Avec $\xi_i(\omega) \sim \mathcal{N}(0,1)$ sont des variables aléatoires centrées réduites dont découle la dépendance stochastique. (λ_i, ϕ_i) sont les valeurs et vecteurs propres qui gouvernent la dépendance spatiale du champ. Elles sont obtenues en résolvant le problème aux valeurs propres généralisées (équation IV. 23) qui découle de la discrétisation spatiale de type éléments finis de l'espace.

$$MCM\, \vec{\phi} = \lambda\, M\, \vec{\phi} \qquad \text{IV. 23}$$

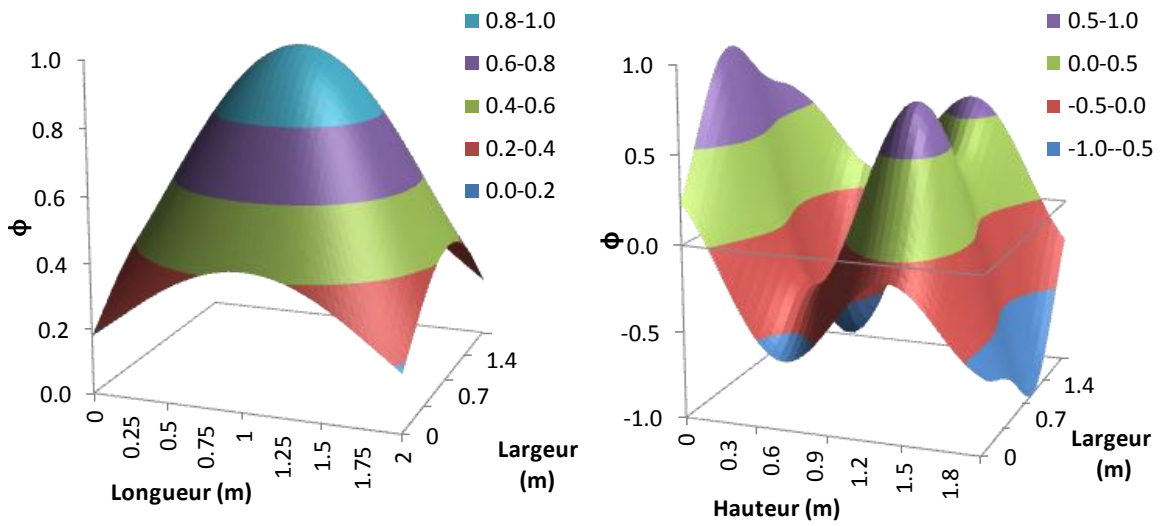
Dans cette équation, M est la matrice masse, dite de Gram. C'est l'équivalent d'une matrice masse standard mais à masse volumique unitaire ; $M = \int N\, N^T$ où N est le vecteur des

fonctions de formes. Cette intégrale est facilement calculable en utilisant la méthode d'intégration de Gauss-Legendre qui dépend du type de maillage et du nombre de points de Gauss choisie. Dans notre cas, le maillage choisi est un maillage régulier avec des éléments quadrilatère à quatre nœuds et à quatre points de Gauss. La matrice M est creuse et contient uniquement les caractères géométriques du maillage. La matrice de covariance C quant à elle contient les informations du champ aléatoire, elle dépend de la variance, des distances entre les nœuds et de la longueur de corrélation.

En connaissant les modes propres de la décomposition, nous pouvons facilement générer un grand nombre de réalisations de champ aléatoire gaussien. Pour un maillage donné, les modes propres de la décomposition sont calculés une seule et unique fois. Pour un champ aléatoire γ gaussien centré réduit, les variables aléatoires ξ sont distribuées suivant une loi normale, de moyenne nulle et de variance unitaire. Dans notre cas et contrairement aux problèmes de dynamique des structures, les modes les plus influents dans la décomposition en série sont les modes correspondants aux plus grandes valeurs propres.

IV.2.4.2. Variables et vecteurs aléatoires (modes propres de la décomposition)

La Figure IV. 41 représente certains vecteurs propres de la décomposition obtenus pour une longueur de corrélation de 0,5 m. Nous constatons que plus l'ordre du mode augmente, plus la fréquence des oscillations du vecteur propre correspondant est élevée. Cette constatation est contraire à celle des modes propres de vibration d'une structure dans un problème de dynamique.



(a) Mode 1 **(b) Mode 12**

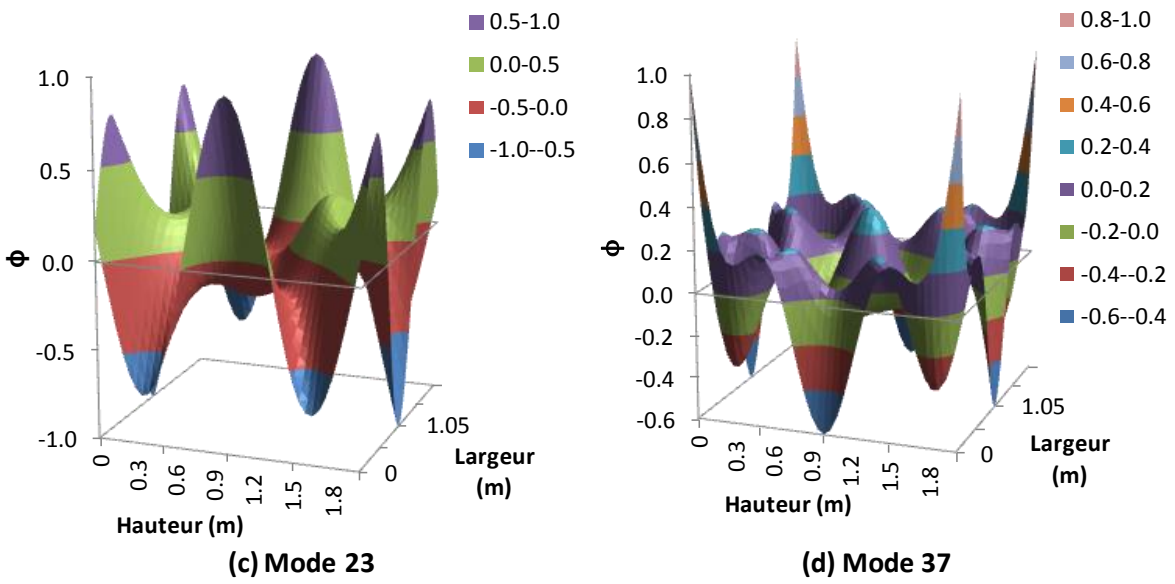


Figure IV. 41. Représentation de vecteurs propres pour une longueur de corrélation de 0,5 m

IV.2.4.3. Passage du champ gaussien au champ log-normal

La décomposition de Karhunen Loève permet à partir de variables aléatoires gaussiennes de générer des réalisations de champs aléatoires gaussiens. Or, ces champs gaussiens pourraient contenir des valeurs négatives de la propriété étudiée telles que la perméabilité à la vapeur d'eau et l'isotherme de sorption de la vapeur d'eau, ce qui n'est pas concevable d'un point de vue physique. Pour y remédier, une transformation de ces champs aléatoires gaussiens en des champs qui soient à la fois en accord avec la physique du phénomène et en accord avec les observations expérimentales s'avère nécessaire. Ceci est rendu possible grâce aux transformations mathématiques permettant de passer du champ gaussien à un autre traduit par une autre loi de probabilité. En se basant sur les travaux Colliat *et al* [181], De Larrard [117] a illustré les transformations permettant le passage d'un champ gaussien à un champ log-normal. Après avoir vérifié que les propriétés étudiées suivent une loi de distribution de type log-normal, nous avons adopté les mêmes types de transformations afin de générer nos champs aléatoires. La distribution log-normale ainsi obtenue aura les mêmes caractéristiques statistiques (espérance, variance, longueur de corrélation) que celles énoncées précédemment. Voici donc un résumé de l'essentiel de la transformation. Pour plus de détail, voir [117].

L'approche utilisée pour entreprendre cette transformation est résumée ci aprés:

$$k(x,\omega) = \exp\ (\gamma(x,\omega)) \qquad \text{IV. 24}$$

Avec $\gamma(x,\omega)$ est le champ gaussien généré par la décomposition de Karhunen Loève et $k(x,\omega)$ est le champ log-normal déduit.

Aussi, il est nécessaire de connaitre les transformations permettant d'exprimer les propriétés statistiques (espérance, variance, longueur de corrélation) pour la génération du champ gaussien compte tenu que celles-ci sont déterminées pour le champ log-normal déduit du champ gaussien. Elles s'obtiennent par l'intermédiaire des équations IV. 25, IV. 26 et IV. 27.

$$\bar{\gamma} = \ln\left(\frac{\bar{k}}{\sqrt{1 + {\sigma_k^2}/{\bar{k}^2}}}\right) \qquad \text{IV. 25}$$

$$\sigma_\gamma^2 = ln\left(1 + \frac{\sigma_k^2}{\bar{k}^2}\right) \qquad \text{IV. 26}$$

$$L_\gamma = \left(-\ln\left(\frac{1}{\sigma_\gamma^2}\ln\left(1 + \frac{\sigma_k^2}{\bar{k}^2}\exp\left(-\frac{1}{L_k^2}\right)\right)\right)\right)^{-1/2} \qquad \text{IV. 27}$$

Dans ces équations, on note $\bar{k}$ l'espérance du champ log-normal, σ_k étant l'écart-type de ce champ. $\bar{\gamma}$ et σ_γ sont l'espérance et l'écart-type du champ gaussien, déterminés afin que les caractéristiques du champ log-normal déduit correspondent à celles visées. L_γ et L_k sont respectivement la longueur de corrélation du champ gaussien et log-normal. La relation entre la longueur de corrélation du champ gaussien et de celle du champ log-normal (équation IV. 27) dépend de la fonction de covariance choisie [117].

IV.2.5. Simulation des transferts à l'échelle de la paroi : Prise en compte de la variabilité spatiale

IV.2.5.1. Cas d'étude

Nous avons évalué dans la partie expérimentale précédente la variabilité spatiale de certains paramètres intrinsèques des matériaux tels que la porosité, la perméabilité à la vapeur. Puis, nous avons identifié les moments statistiques (Espérance et variance) ainsi que la longueur de corrélation. Dans cette partie, nous allons nous intéresser à l'effet de la variabilité spatiale sur les transferts couplées de chaleur et d'humidité.

Tout d'abord, nous montrons les résultats obtenus après une simulation déterministe en considérant un champ uniforme de perméabilité à la vapeur d'eau. Ensuite, afin de montrer l'intérêt de l'utilisation de l'approche probabiliste, nous avons entrepris une simulation numérique en considérant un seul champ aléatoire de perméabilité à la vapeur. Dans un but

purement illustratif, ce champ aléatoire donnée par la Figure IV. 45 est généré en considérant une forte variabilité et une faible corrélation. Enfin, nous nous sommes intéressés à l'effet combiné de la variabilité spatiale de la perméabilité à la vapeur d'eau, des isothermes de sorption et de la teneur en eau à saturation. La démarche ainsi suivie est illustrée sur l'organigramme de la Figure IV. 50.

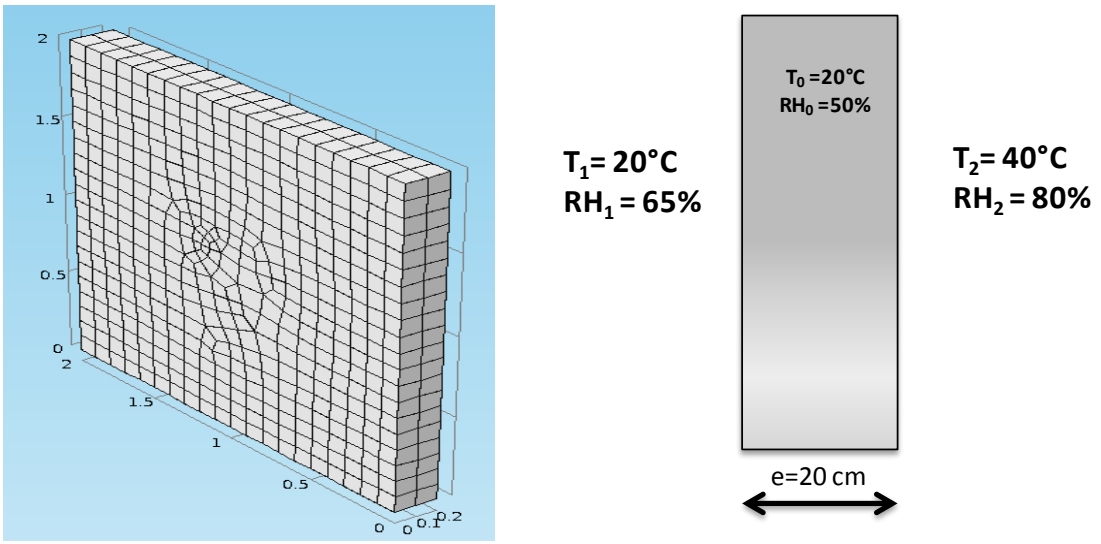


Figure IV. 42. Configuration étudiée

Afin de mener à bien cette démarche, nous avons choisi un cas d'étude simple : un voile en béton avec des conditions initiales de T_0=20°C et HR_0=50% soumis à des conditions aux limites de type Dirichlet de (T_1=20°C, HR_1=65%) et (T_2=40°C, HR_2=80%) à l'intérieur et à l'extérieur, respectivement, comme présenté sur la Figure IV. 42.

IV.2.5.2. Simulation déterministe (approche classique)

Nous avons réalisé des simulations sous Comsol Multiphysics en considérant un champ uniforme de perméabilité à la vapeur d'eau égale à $\delta_p = 2{,}086 \times 10^{-12}\ kg/m.s.Pa$ (simulation déterministe). Le résultat de simulation est présenté dans la Figure IV. 43 qui illustre l'évolution en fonction du temps de la pression de vapeur et de l'humidité relative correspondante pendant 1 mois au milieu du voile (épaisseur x=0,18m, largeur y=1m, hauteur z=1m). La pression de vapeur en ce point à l'issue de la simulation est de 4914 Pa et l'humidité relative est de 72 % correspondant à une teneur en eau de 0,713% et un degré de saturation SR=12 % si l'on utilise l'isotherme de sorption A1 pour ces deux passages.

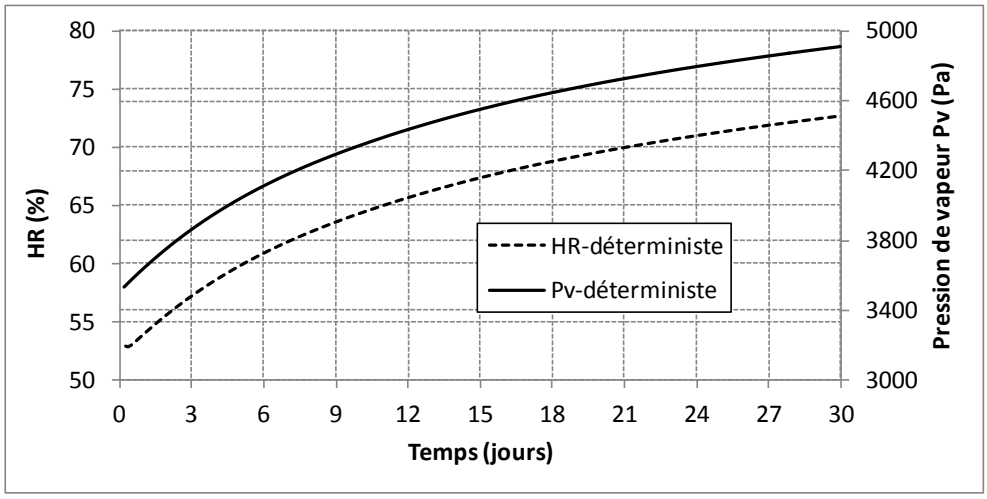


Figure IV. 43. Évolution de la pression de vapeur et de l'humidité relative dans le cas d'une simulation déterministe

La Figure IV. 44 représente : à gauche l'évolution de la pression de vapeur suivant une coupe verticale yz à une épaisseur de 0,1m et à droite suivant une coupe xz à une largeur de 1m. La pression de vapeur est supposée être constante sur toute la surface suivant une épaisseur donnée vu qu'on a un champ uniforme de perméabilité à la vapeur. Dans notre cas, nous remarquons une fluctuation numérique d'environs 100 Pa. Il est intéressant de noter que les lignes de pression de vapeur sur la deuxième coupe restent parallèles sur toute la hauteur du voile ce qui justifie un comportement identique sur tous les points du voile en considérant un champ uniforme.

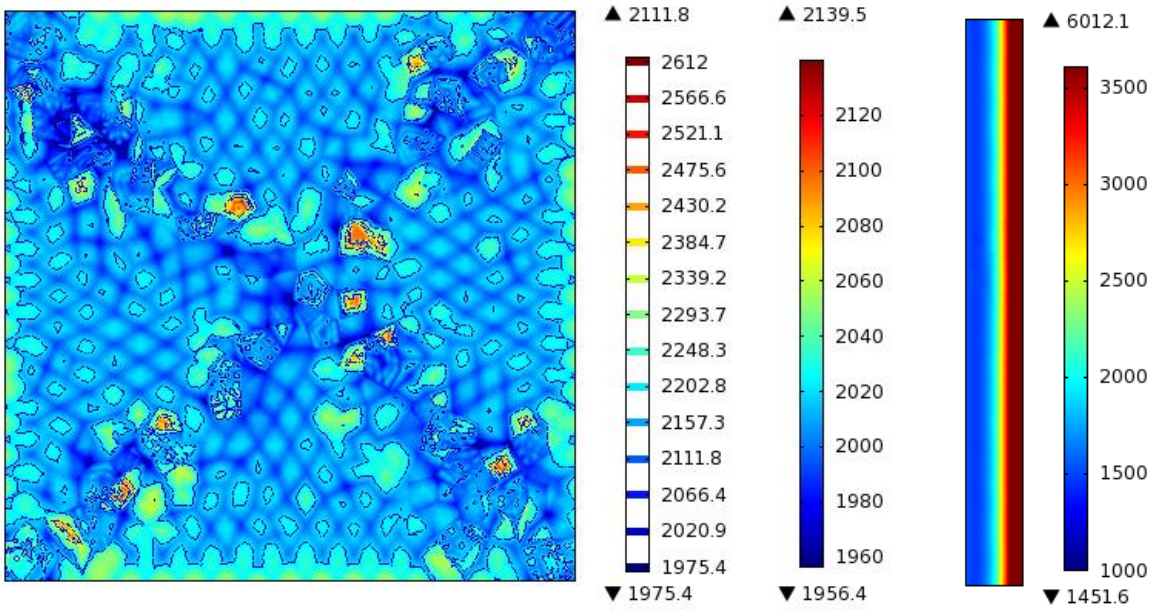


Figure IV. 44. Évolution de la pression de vapeur suivant une coupe surfacique du voile à une profondeur x=0,1m et une coupe suivant l'épaisseur à une hauteur de 1 m (déterministe)

IV.2.5.3. Réalisation des champs et analyse des résultats (approche probabiliste)

Dans un but purement illustratif sur l'intérêt de l'utilisation de l'approche probabiliste, nous montrons dans ce qui suit un résultat de simulation en considérant un seul champ aléatoire de perméabilité à la vapeur. Pour rappel, ce champ aléatoire (Figure IV. 45) est généré en considérant une variabilité élevée. Nous proposons de suivre l'évolution de l'humidité relative en 9 points de la surface du voile à une épaisseur de 0,18m (Figure IV. 46).

Les champs aléatoires respectant les moments statistiques observés sur le voile expérimental seront présentés par la suite avec leurs résultats respectifs. Dans ce cas notre quantité d'intérêt est la teneur en eau et le degré de saturation en ces 9 points.

La Figure IV. 47 présente une comparaison de l'évolution de l'humidité relative en différents points (point 1 à 9) avec l'évolution déterministe. Cette figure montre l'impact observé lorsqu'on considère un champ aléatoire de perméabilité à la vapeur. Dans ce cas, une variation de l'humidité relative entre par exemple les points 3 et 4 est estimée à 10% environ.

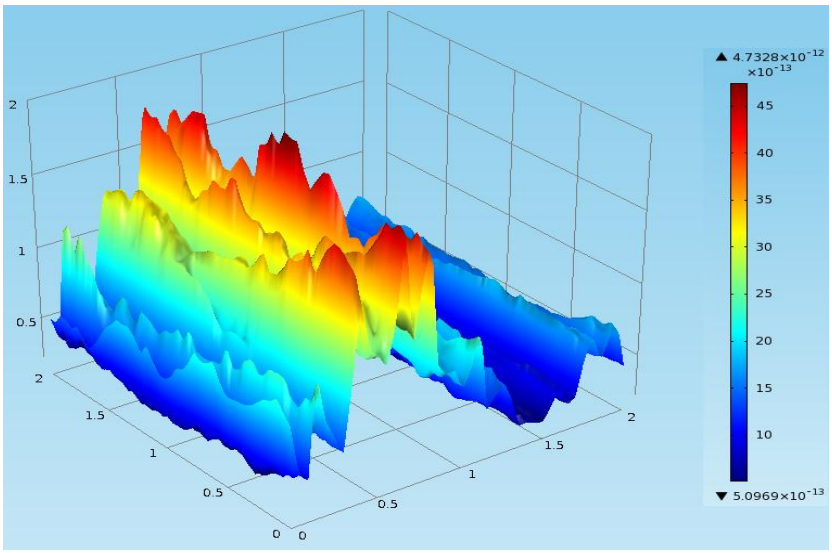


Figure IV. 45. Champ aléatoire de perméabilité à la vapeur d'eau

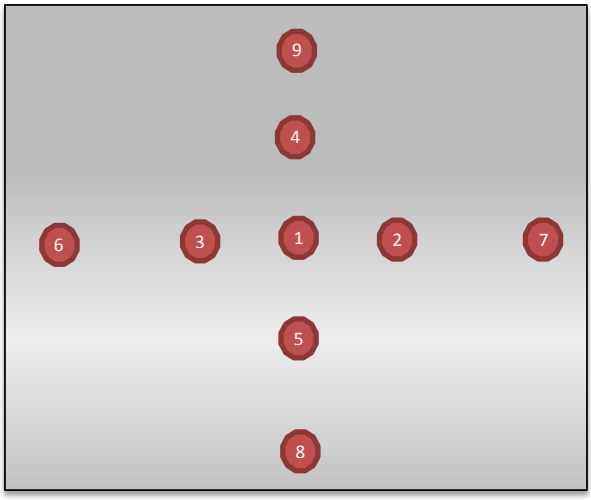


Figure IV. 46. Points de suivi

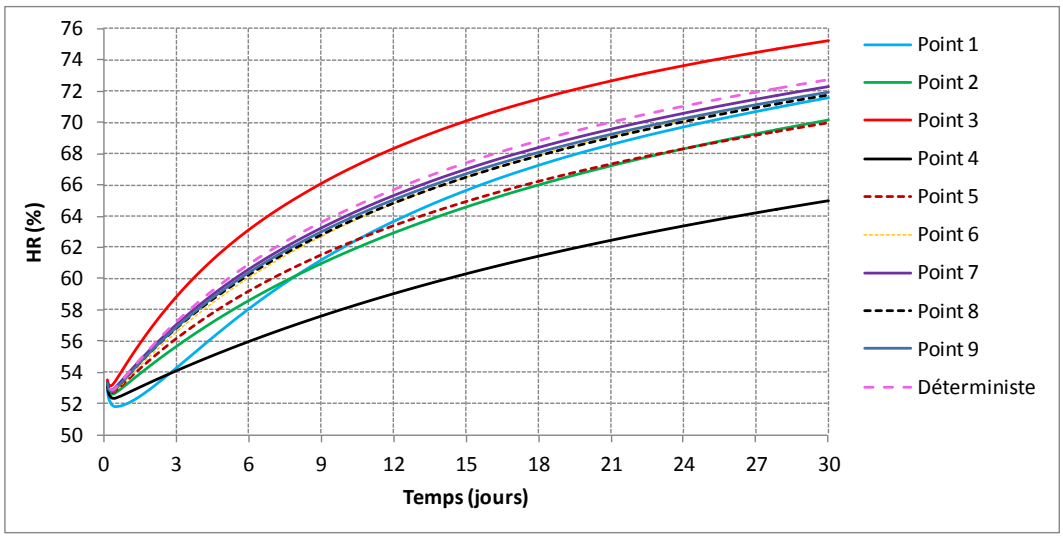


Figure IV. 47. Comparaison de l'évolution de HR en différents points de suivis

La Figure IV. 48 montre l'impact de la variabilité spatiale de la perméabilité à la vapeur d'eau sur la distribution de la pression de vapeur suivant la surface (figure à gauche) et suivant l'épaisseur (figure à droite). Nous observons une distribution non uniforme de cette dernière suivant la surface qui varie entre 1100 et 2600 Pa. Cela aura une incidence sur la durabilité de la structure avec des risques de développement de moisissure, de carbonatation ou de diffusion de chlorures plus prononcés d'un point à un autre. Dans ce cas, nous observons des lignes de pression non parallèles suivant l'épaisseur à l'instar du résultat déterministe en considérant un champ uniforme (Figure IV. 48 à droite).

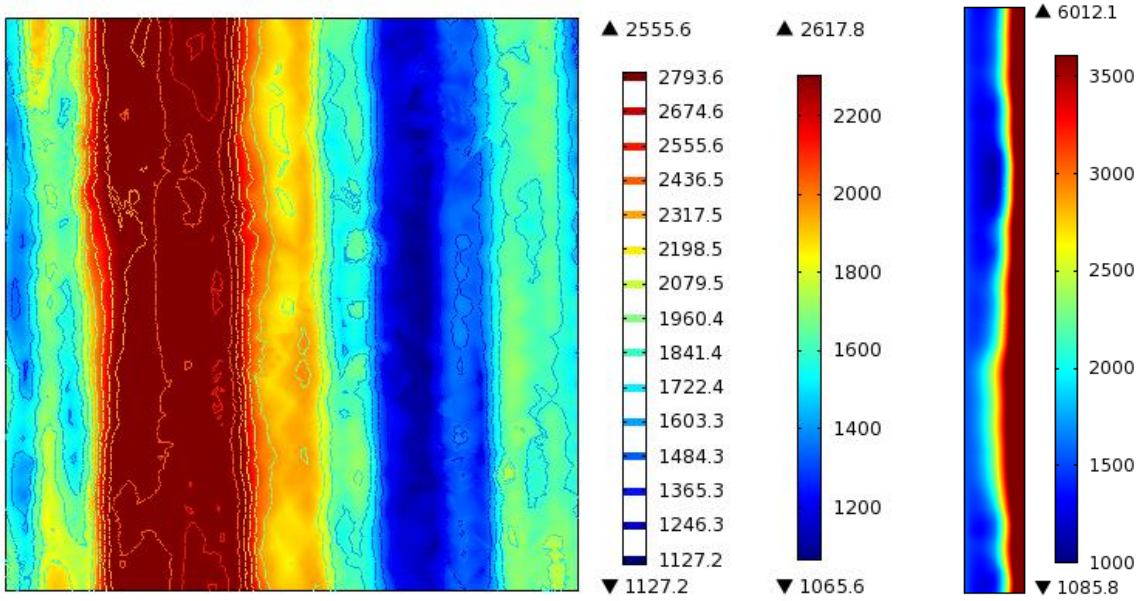
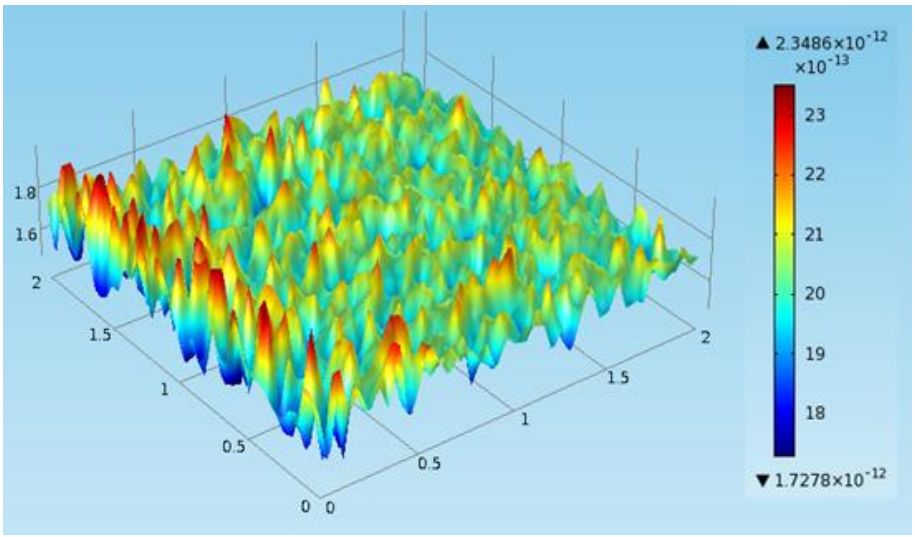


Figure IV. 48. Évolution de la pression de vapeur suivant une coupe surfacique du voile à une profondeur x=0,1m et une coupe suivant l'épaisseur à une hauteur de 1 m

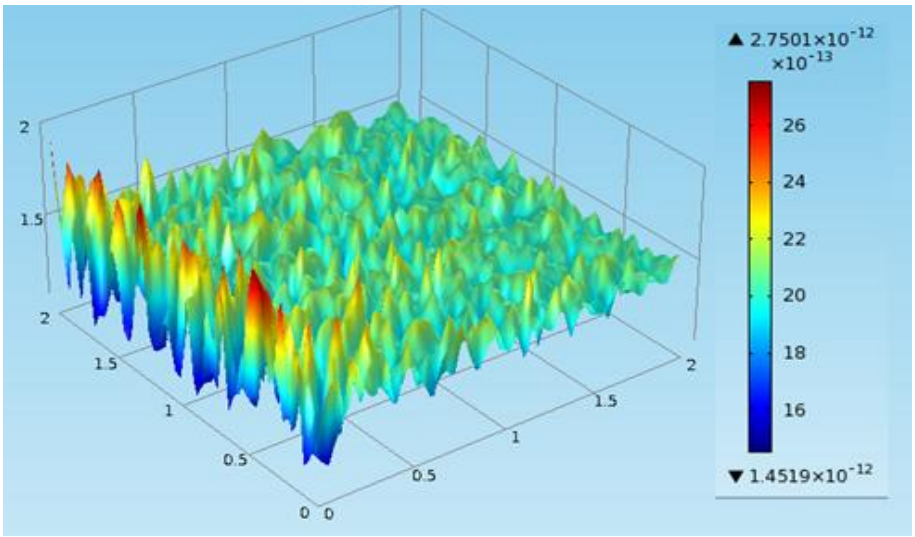
Pour chaque valeur de longueur de corrélation testée (0,3 m ; 0,5 m et 1 m), 1000 réalisations indépendantes de champ de perméabilité à la vapeur ont été générées, et pour ces 1000 réalisations, une simulation de transfert couplés de chaleur et d'humidité suivant la configuration donnée par la Figure IV. 42 a été menée pour estimé la valeur de l'humidité relative aux différents points de la surface (point 1 à 9).

Le traitement statistique sur le comportement hygrothermique de notre voile consiste à rassembler les résultats des simulations. La quantité d'intérêt pour chacune d'elle étant la teneur en eau et le degré de saturation aux différents points de 1 à 9 à l'issue du transfert qui dure 1 mois suivant la configuration de la Figure IV. 42.

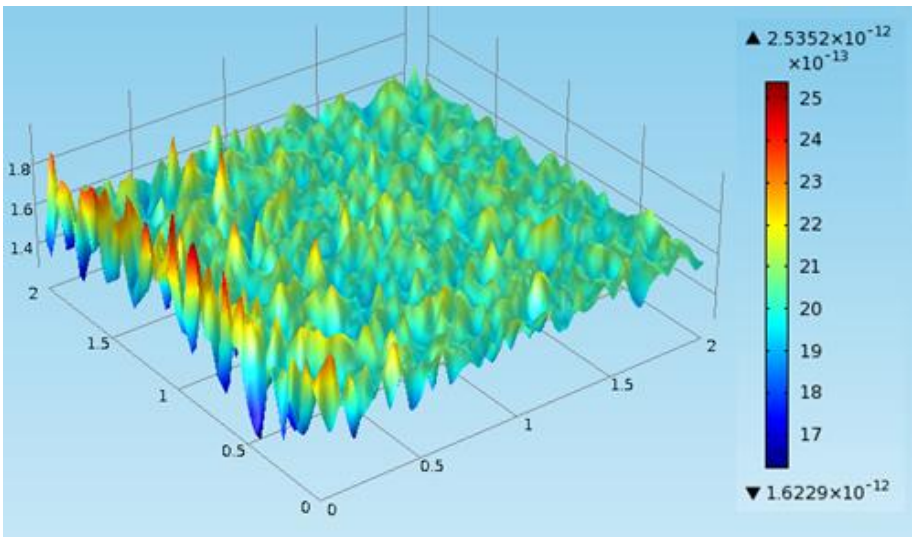
Pour chaque cas de longueur de corrélation étudié, la première étape a été consacrée à la vérification que le champ aléatoire considéré à bien les caractéristiques statistiques requises : espérance, écart-type et longueur de corrélation. La Figure IV. 49 présente des exemples de réalisations de champ aléatoire de perméabilité à la vapeur pour une longueur de corrélation de 0,3 m.



(a) Réalisation 1



(b) Réalisation 2



(c) Réalisation 3

Figure IV. 49. Trois réalisations du champ de perméabilité à la vapeur

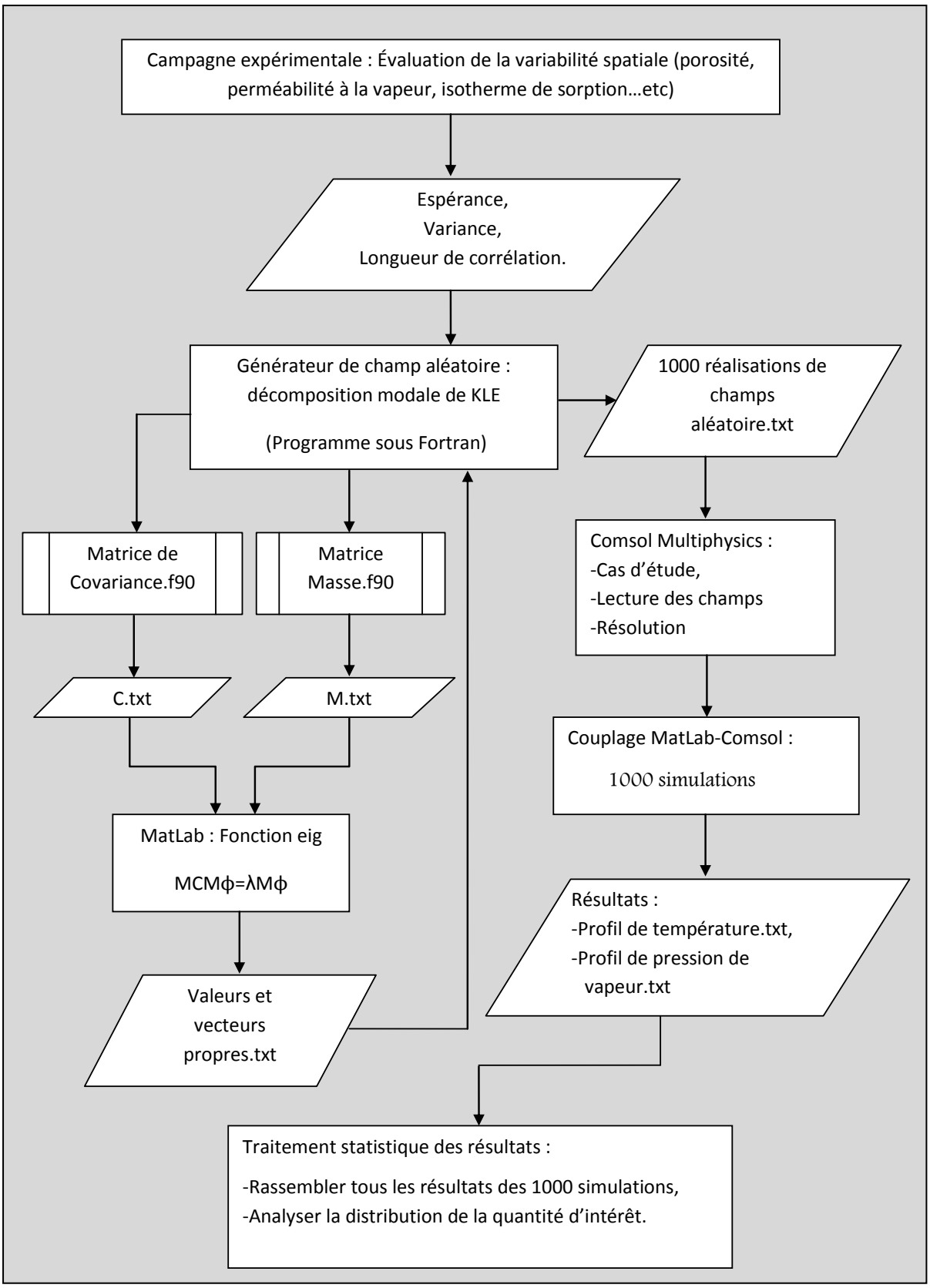


Figure IV. 50. Organigramme de la démarche de prise en compte de la variabilité spatiale

La mesure de l'isotherme d'adsorption et de désorption de la vapeur d'eau est une étape essentielle dans le processus de prédiction du comportement hygrothermique des matériaux poreux de construction. Cette propriété peut être retrouvée dans la capacité de stockage d'humidité considérée comme paramètre d'entrée du modèle de transfert couplé de chaleur et d'humidité. Elle est aussi utilisée pour déduire la teneur en eau du matériau en connaissant son humidité relative. Le modèle de transfert utilisé dans cette partie, comme mentionné précédemment, est un modèle qui considère la pression de vapeur et la température comme moteurs de transfert. À l'issue des simulations numériques, nous obtenons en sortie un profil de pression de vapeur et de température. Notre quantité d'intérêt étant la teneur en eau et le degré de saturation, ce qui fait que nous somme tenus d'utiliser la courbe d'isotherme de sorption pour assurer le passage vers la teneur en eau, et la teneur en eau à saturation pour en déduire ainsi le degré de saturation "SR" correspondant. Nous présentons dans Tableau IV. 11 les paramètres associés aux modèles GAB et GDW choisis comme modèles de représentation des isothermes d'adsorption des échantillons prélevés suivant la ligne A. Aussi, le Tableau IV. 12 présente la variabilité spatiale de la teneur en eau à saturation suivant la ligne A du voile expérimental.

Tableau IV. 11. Paramètres associés aux modèles GAB et GDW pour les échantillons prélevés suivant la ligne A

Matériau	Modèle	K	k	m	w	C	R^2
A1	GDW	0,001682	0,9976	512,4	0,05269	-	0,9904
A2	GAB	0,913	-	0,3912	-	9,953	0,9893
A3	GDW	0,001297	1,016	656,3	0,08367	-	0,9262
A4	GDW	0,02342	0,9899	43,99	0,03775	-	0,9958
A5	GAB	0,8943	-	0,3621	-	9,41	0,9926
A6	GAB	0,9318	-	0,2404	-	23,6	0,9736
A7	GAB	0,8532	-	0,4955	-	11,77	0,9889
A8	GDW	3,132	0,961	1,256	0,181	-	0,9938
A9	GAB	0,9203	-	0,488	-	52,16	0,9827

Tableau IV. 12. Variabilité de la teneur en eau à saturation

Matériau	A1	A2	A3	A4	A5	A6	A7	A8	A9
U_{sat}(%)	5,79	5,86	6,40	5,72	6,26	6,08	6,73	6,61	6,67

La Figure IV. 51 donne la distribution de la teneur en eau suivant les 9 points de suivi définis précédemment (Figure IV. 46). Ce résultat est obtenu après 1000 simulations numériques en considérant à chaque fois une réalisation du champ aléatoire de perméabilité à la vapeur et les paramètres associés aux modèles GAB et/ou GDW pour obtenir la teneur en eau

correspondante. Nous remarquons une distribution non uniforme de la teneur en eau suivant la surface à l'instar lors d'une simulation déterministe. En effet, la teneur en eau du voile peut varier de 0,66% (point 6) à 1,36% (point 9). Nous avons aussi décidé d'aller plus loin dans le calcul en intégrant la variabilité spatiale de la teneur en eau à saturation qui intervient dans le cas où nous voulons connaitre la distribution du degré de saturation. Nous avons précédemment évalués la variabilité spatiale de la porosité accessible à l'eau et pour rappel, la mesure de cette propriété nécessite une saturation totale du matériau et aussi de connaître la masse sèche de ce dernier, de ce fait nous pouvons facilement calculer la teneur en à saturation (Tableau IV. 12).

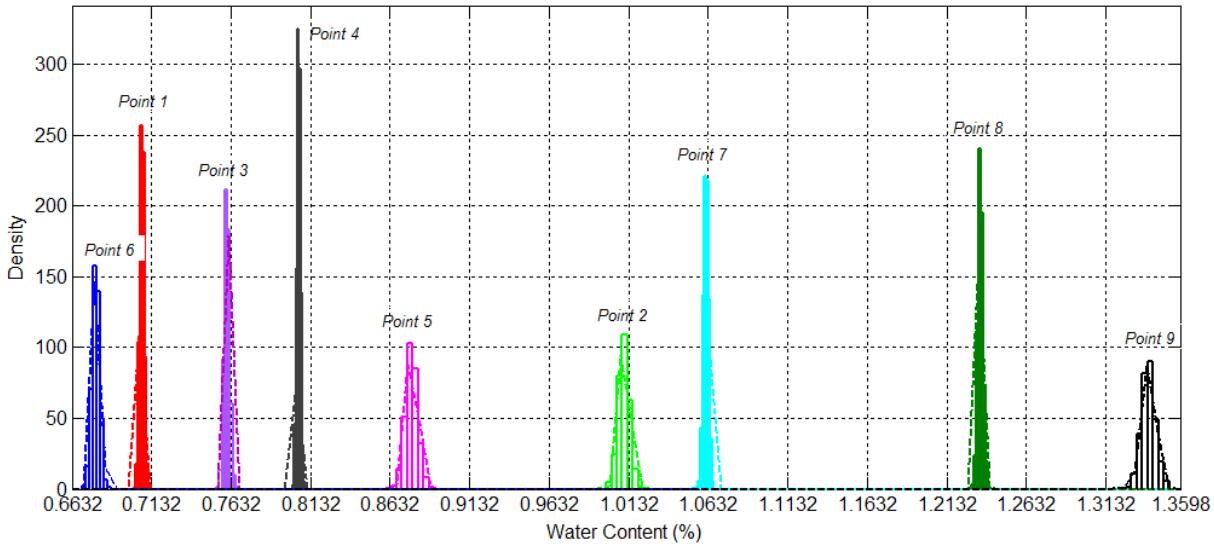
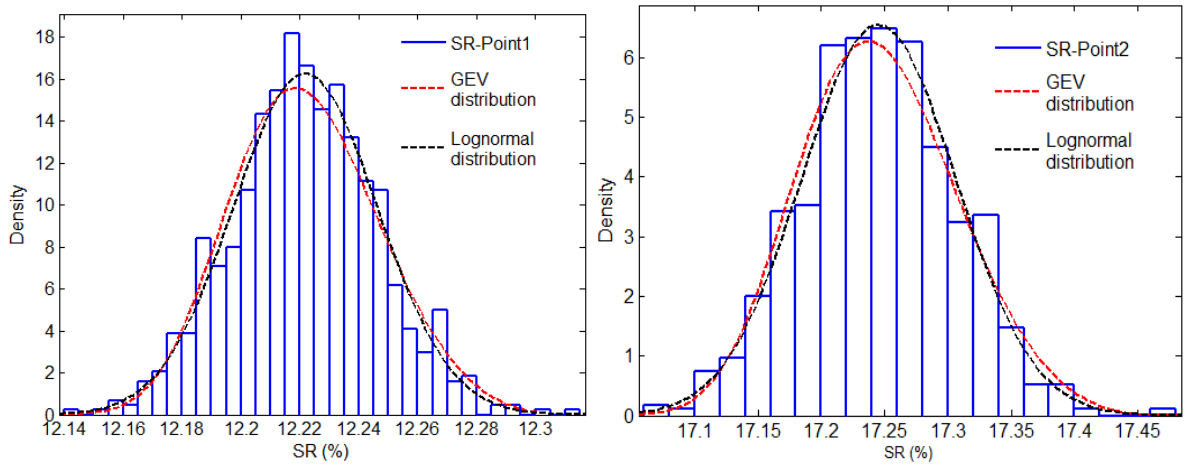


Figure IV. 51. Distribution de la teneur en eau aux différents points de suivi pour Lc=0,3m



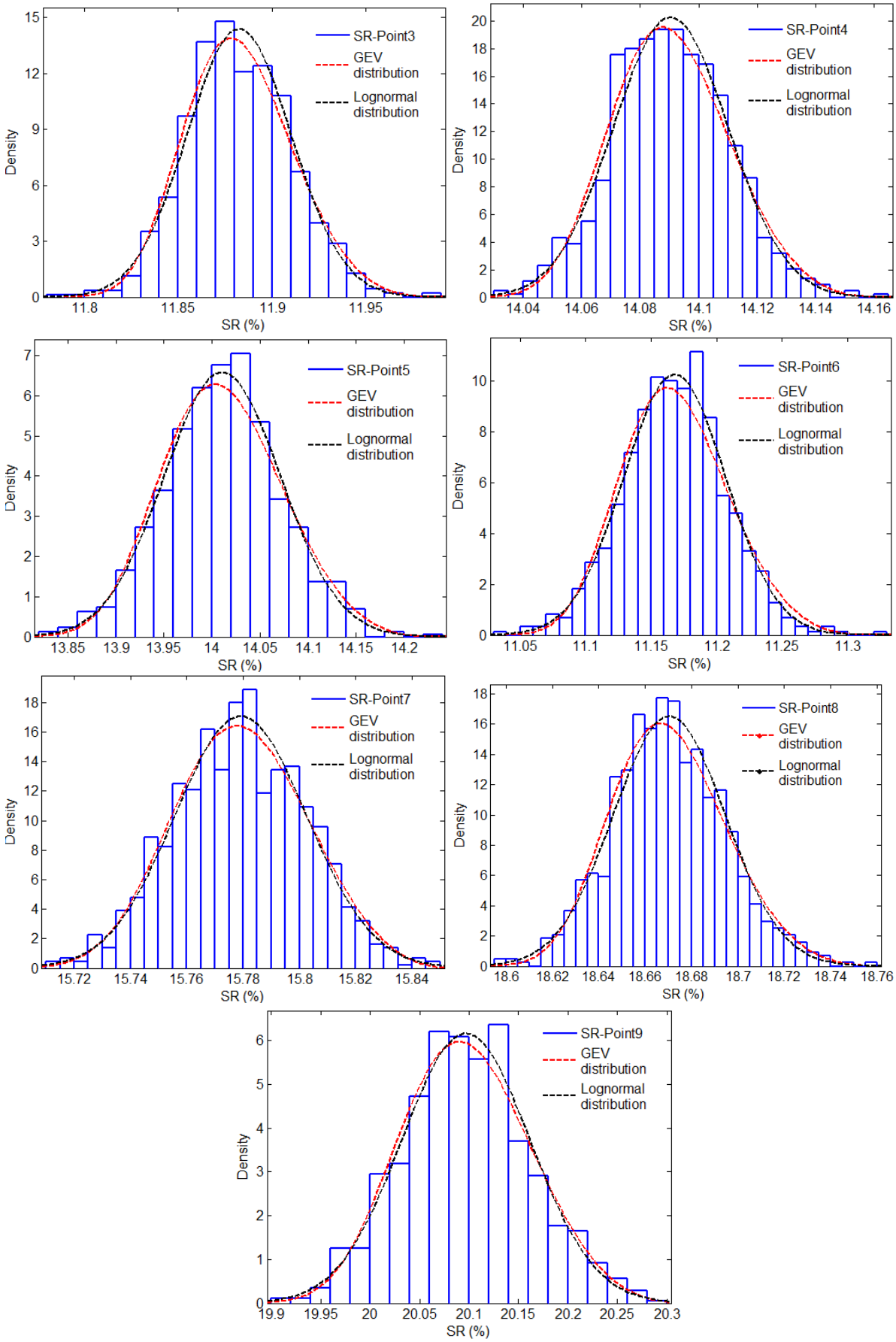


Figure IV. 52. Distribution du degré de saturation aux différents points de suivi pour Lc=0,3 et calage des lois de distribution log-normal et aux valeurs extrêmes généralisées (GEV)

La Figure IV. 52 présente les distributions du degré de saturation en chaque point de la surface pour L_c=30cm et le calage des lois de distribution log-normal et aux valeurs extrêmes généralisées (GEV). Le degré de saturation moyen en chaque point, le coefficient de variation ainsi que les valeurs identifiées des paramètres de ces deux lois de distribution sont résumés dans le Tableau IV. 13. Ces résultats montrent que l'espérance du degré de saturation en chaque point à l'exception des points 1 et 3 est sensiblement supérieure à la valeur déterministe. Cette différence est non négligeable avec une distribution hétérogène du degré de saturation qui aura un impact inévitable sur la durabilité du matériau avec une possible dégradation en un point de la surface qui sera non identifiable lors d'une simulation déterministe.

Tableau IV. 13. Moyenne, Cdv et valeurs identifiées des paramètres pour les lois de distribution log-normal et aux valeurs extrêmes généralisées

Points	Moyenne (%)	Cdv (%)	Distribution Log-normal		Distribution aux valeurs extrêmes généralisées		
			μ	σ x10^{-3}	μ	σ	ζ
1	12,22	0,20	2,503	2,01	12,21	0,024	-0,225
2	17,24	0,35	2,847	3,53	17,22	0,060	-0,222
3	11,88	0,23	2,475	2,33	11,87	0,027	-0,212
4	14,09	0,14	2,645	1,40	14,08	0,019	-0,223
5	14,16	0,43	2,639	4,32	13,98	0,060	-0,232
6	11,16	0,35	2,413	3,48	11,15	0,038	-0,215
7	15,78	0,15	2,758	14,81	15,77	0,023	-0,269
8	18,67	0,13	2,927	1,29	18,66	0,023	-0,210
9	20,09	0,32	3,000	3,22	20,07	0,063	-0,243

IV.2.5.4. Effet de la longueur de corrélation

Le paramètre gouvernant la corrélation spatiale des champs aléatoires générés est la longueur de corrélation Lc. Les Figure IV. 53 IV.55 donnent les résultats des simulations obtenus en considérant trois cas de longueur de corrélation Lc=0,3 m, 0,5 m et 1 m sur l'effet de la variabilité spatiale de la perméabilité à la vapeur d'eau.

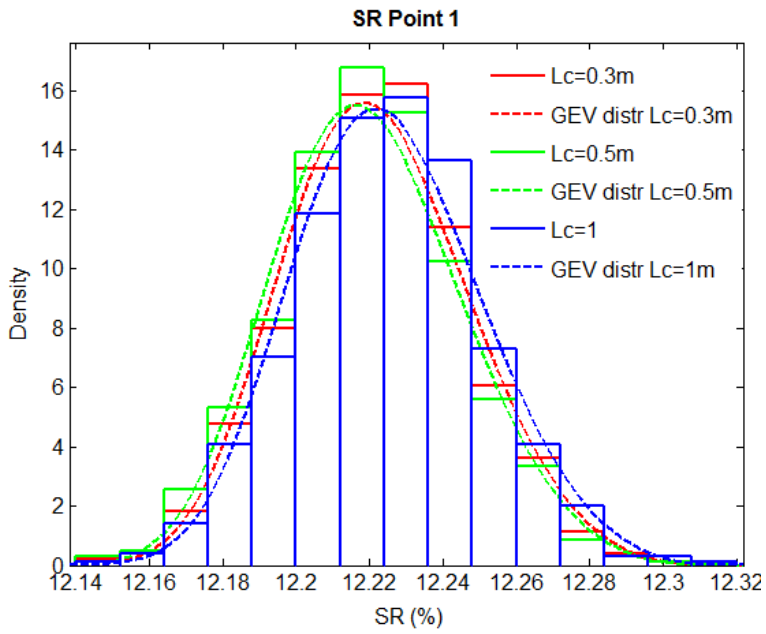


Figure IV. 53. Distribution de SR au point 1 pour les trois cas de longueur de corrélation

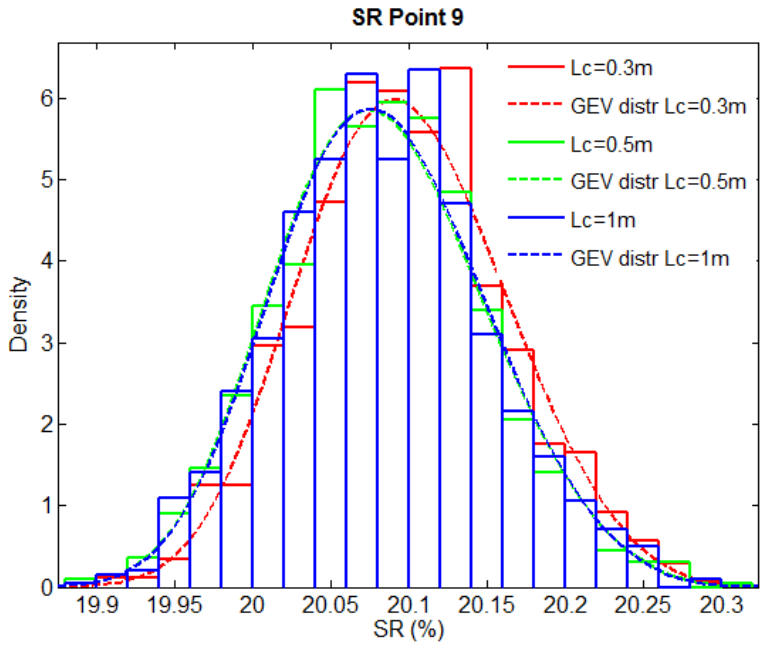


Figure IV. 54. Distribution de SR au point 9 pour les trois cas de longueur de corrélation

Nous ne remarquons presque aucun effet de la longueur de corrélation de perméabilité à la vapeur sur nos résultats. Le coefficient de variation est de 0,20% pour Lc=0,3 m, 0,21% pour Lc=0,5 m et 0,33% pour Lc=1m.

IV.3. Conclusion

Dans la première partie de ce chapitre, le séchage d'un mortier réalisé avec un ciment Portland CEM-I 52,5N a été étudié. Ceci a été réalisé moyennant l'utilisation d'un modèle macroscopique de transferts couplés de chaleur et d'humidité. Ces paramètres d'entrées ont été déduits de la caractérisation expérimentale menée au laboratoire.

Lors de cette étude, l'accent a été mis sur l'incidence de la variabilité de deux propriétés du matériau les plus influentes sur le temps de séchage nécessaire pour atteindre un degré de saturation donné. D'une part, l'impact de la variabilité du paramètre gouvernant le transfert de la phase liquide ou vapeur qui est le coefficient de diffusion d'humidité. Il a été mis en évidence qu'à l'issue de la phase séchage le degré de saturation visé n'était pas atteint. D'autre part, il a été révélé un lien étroit entre la méthode adoptée pour la déduction de Usat et le degré de sa variabilité. En effet, plusieurs techniques de mesures permettant de remonter à cette propriété ont été présentées. Leurs effets sont importants au point qu'ils puissent affecter la validité des résultats de simulation.

Dans la deuxième partie l'incidence de la variabilité spatiale de quelques propriétés du matériau sur la prédiction de son comportement hygrothermique a été entreprise. Une importante campagne expérimentale a été effectuée afin d'évaluer la variabilité spatiale en identifiant les deux moments statistiques (espérance et variance) ainsi que la longueur de corrélation de chaque propriété. Pour cela, trois propriétés ont été retenues. Il s'agit de la perméabilité à la vapeur d'eau, la porosité ou la teneur en eau à saturation et l'isotherme d'adsorption et de désorption de la vapeur d'eau. La variabilité spatiale de la perméabilité à l'air a été évaluée. Elle a permis d'enrichir la base de données, peu abondante, de la littérature.

Ainsi l'influence de la prise en compte de la variabilité spatiale des propriétés de transport, prises séparément puis d'une façon simultanée, dans la prédiction de son comportement hygrothermique a été déterminée.

En conclusion, cette étude a fait ressortir les limites des approches déterministes et l'importance du recours aux approches probabilistes pour prédire le comportement hygrothermique des matériaux poreux de construction. Elle a mis en évidence l'importance de la prise en compte de la combinaison des trois variabilités (perméabilité à la vapeur, isotherme de sorption et teneur en eau à saturation) en développant une approche probabiliste qui mérite d'être prise en compte.

Conclusions générales et perspectives

Lors de ce travail doctoral, une investigation relative à l'évaluation de l'incidence de la variabilité des propriétés des matériaux poreux de construction sur leur comportement hygrothermique a été réalisée. Pour cela, une campagne expérimentale de caractérisation hygrothermique de quelques matériaux à base cimentaire : béton, mortier et pâte de ciment a été effectuée dans l'optique de collecter les principales propriétés intrinsèques des matériaux testés et d'alimenter les modèles avec des paramètres d'entrée fiables. Nous avons notamment déterminé l'évolution des propriétés hydriques (isotherme de sorption, perméabilité à la vapeur) et des propriétés thermiques (chaleur spécifique) en fonction de l'âge du matériau. Au cours de cette phase, nous avons montré l'importance des phénomènes de transfert qui s'opèrent dans la zone de condensation capillaire et avons pu, grâce au recours à la presse de Richards (essai de rétention d'eau), compléter l'isotherme de sorption au voisinage de la saturation. L'effet de l'ajout du laitier, caractérisé par son hydratation lente et tardive, sur l'évolution des propriétés hygrothermiques des matériaux a été aussi abordé.

Dans l'optique de choisir la technique d'arrêt d'hydratation la plus adéquate permettant l'étude des propriétés des matériaux à différents âges, une analyse comparative de différentes solutions a été entreprise. Ceci a permis de retenir la technique d'arrêt d'hydratation par immersion sous vide de l'échantillon dans un bain d'acétone pendant sept jours suivi d'une mise sous vide (sans acétone) pendant trois jours, notée "AH Acétone 7j".

Sur le volet de la modélisation, nous avons présenté différents modèles de transferts couplés de chaleur et d'humidité développés et validés au sein de notre laboratoire. Après une étude de sensibilité aux principaux paramètres, une implémentation du modèle de transfert sous Comsol Multiphysics a permis : (i) dans un premier temps, de simuler une configuration du séchage des matériaux caractérisés précédemment. Ainsi, l'impact de l'évolution des isothermes de sorption et de la perméabilité à la vapeur en fonction de l'âge du matériau a été mis en évidence. En effet, une forte incidence sur les profils hydriques à l'issue du

séchage avec une diminution de la teneur en eau à 28 jours au centre de l'échantillon d'environ 20%, 12%, 45% et 30% pour le mortier 1, pâte 1, mortier L30 et pâte L30, respectivement a été notée ; (ii) dans un deuxième temps, nous avons mis en exergue l'importance de la prise en compte du palier de saturation dans l'isotherme de désorption obtenu par rétention d'eau sur le séchage, nous avons relevé une teneur en eau à saturation supérieure dans le cas où l'on considère ce palier de saturation avec une erreur relative au centre de l'échantillon qui peut atteindre 55%.

En guise d'application, des simulations numériques ont été entreprises afin d'analyser deux méthodes de pré-conditionnement avant l'essai de carbonatation accélérée. Les résultats obtenus ont montré les limites de ces méthodes de pré-conditionnement et ce pour tous les matériaux cimentaires.

Une étude de l'effet de la variabilité aléatoire du coefficient de diffusion et de la teneur en eau à saturation a été entreprise en considérant une variabilité de ±30% du coefficient de diffusion du mortier et de ±20% du BHP A1. Nous avons observé une incidence notable sur les profils d'humidité relative. En effet, des écarts de l'ordre de 20 % sur la prédiction de l'hygrométrie a été mis en évidence à l'issue du séchage. Aussi, il a été montré des variations importantes sur l'évaluation du temps de séchage assurant un degré de saturation global de 30% pour le mortier (1,7h à 3,5h) et de 60% pour le BHP A1 (104 jours à 150 jours). Les mêmes constatations ont été notées sur les effets des variabilités de la teneur en eau à saturation sur les profils de degré de saturation.

Par ailleurs, afin de prendre en compte la variabilité spatiale des propriétés des matériaux dans la prédiction du comportement hygrothermique, une approche probabiliste intégrant cette variabilité dans le processus de prédiction des transferts de masse et de chaleur a été développée moyennant la génération de champs aléatoires spatialement corrélés qui ont requis, au préalable, la connaissance de l'espérance, de la variance et de la longueur de corrélation des champs étudiés. Pour cela, nous avons construit au laboratoire (coffrage, coulage, décoffrage et carottage), un voile expérimental de 2 m de hauteur, 1,20 m de largeur et de 20 cm d'épaisseur où l'on a prélevé des carottes suivants six lignes dans le sens de la hauteur. Une vaste campagne expérimentale a été réalisée pour évaluer cette variabilité spatiale. Nous nous sommes intéressés aux propriétés suivantes : porosité à l'eau, perméabilité à l'air, perméabilité à la vapeur et isothermes de sorption.

Moyennant l'utilisation de la décomposition de Karhunen-Loève, des champs aléatoires spatialement corrélés ont été générés. Cette méthode propose la décomposition en série infinie du champ aléatoire avec un atout permettant un découplage des variables spatiales et

stochastiques. Enfin, les limites des approches déterministes ont été mises en évidence suite à leurs confrontations avec les résultats issus de l'approche probabiliste utilisée.

L'ensemble des travaux réalisés dans cette thèse ouvrent de nombreuses perspectives tant au niveau modélisation et élaboration d'outils qu'au niveau de la caractérisation des propriétés des matériaux.

Une amélioration de la démarche stochastique doit être envisagée pour permettre la prise en compte à la fois de la variabilité spatiale par champs aléatoires et de la variabilité des conditions aux limites par processus aléatoires.

De plus, dans la prise en compte de cette variabilité spatiale, la longueur de corrélation est évaluée suivant une seule direction "la hauteur du voile". Une longueur de corrélation définie en fonction des trois axes principaux de la paroi étudiée pourrait être envisagée afin de se rapprocher davantage de la réalité.

Par ailleurs, l'extension de cette démarche stochastique à l'échelle du bâtiment, moyennant son implémentation dans un code de simulation hygro-thermo-aéraulique des bâtiments, permettrait de quantifier l'effet de la variabilité sur les performances énergétiques et environnementales et sur le confort des occupants.

Enfin, l'étude de l'incidence de la variabilité des propriétés des matériaux poreux de construction sur les mécanismes de dégradation des ouvrages (transfert de chlorures, phénomène de carbonatation, corrosion des armatures, etc.) s'avère primordiale pour prédire la durabilité des constructions.

Références

[1] CPCET, «Centre de ressources pour les Plans Climat-Energie Terriotoriaux. Bâtiments : Contexte et enjeux,» Agence de l'Environnement et de la Maitrise de l'Energie (ADEME). [En ligne].

[2] M. Qin, R. Belarbi, A. Aït-Mokhtar et L. O. Nilsson, «Coupled heat and moisture transfer in multi-layer building materials,» *Construction and Building Materials,* vol. 23, pp. 967-975, 2009.

[3] C. Raduluscu, «Caractérisation de l'influence de l'humidité sur les interactions entre les polluants gazeux et les matériaux du bâtiment,» Thèse de Doctorat de l'Université de La Rochelle, 2006.

[4] J.-F. Daïan, Équilibre et transfert en milieu poreux, 2013.

[5] D. Quenard, «Adsorption et transfert d'humidité dans les matériaux hygroscopiques, approche de type percolation et expérimentation,» Thèse de Doctorat, Institut Nationale Polytechnique de Toulouse, 1989.

[6] T. Duforestel, «Bases métrologiques et modèles pour la simulation du comportement Hygrothermiques des composants et ouvrages du bâtiment,» Thèse de Doctorat, Ecole Nationale des Ponts et Chaussées, 1992.

[7] S. A. Bories, «Natural convection in porous media,» *Advances in Transport Phenomena in porous media,* vol. 77, p. 141, 1987.

[8] S. Brunauer, P. H. Emmett et E. J. Teller, «Adsorption of gases in multimolecular layers,» *Journal of American Chemical society,* p. 309, 1938.

[9] P. Safinowski, B. Piwakowski, M. Kaczmarek et A. Koseck, «Caractérisation du béton à l'aide de la réflectométrie ultrasonore,» chez *Cofrend,* Toulouse, 2000.

[10] X. Lu, «Modeling of heat and moisture transfer in buildings: (I) Model program,» *Energy and Buildings,* vol. 34, pp. 1033-1043, 2002.

[11] D. Assia, «Influence de l'endommagement mécanique sur la perméabilité au gaz et sur la diffusion des ions chlorure des bétons,» Thèse de Doctorat, Université de Nantes, 2007.

[12] P. Mounounga, «Étude expérimentale du comportement de pâtes de ciment au très jeune âge : hydratation, retraits, propriétés thermophysiques,» Thèse de Doctorat, Université de Nantes, 2003.

[13] V. Baroghel-Bouny, Caractérisation des pâtes de ciment et des bétons : méthodes,analyse, interprétations, Paris: LCPC, 1994.

[14] H. Li, H. Xiao, J. Yuan et J. Ou, «Microstructure of cement mortar with nano–particles,» *Composites Part B: engineering,* vol. 35 , pp. 185-189, 2004.

[15] A. E. A. Hamami, «Vers une prédiction de la perméabilité au gaz à partir de la composition des matériaux cimentaires,» Thèse de Doctorat, Université de La Rochelle, 2009.

[16] T. C. Powers et T. L. Brownyard, «Studies of the physical properties of hardened Portland cement paste,» *ACI Journal, Proc.,* vol. 43 Part 1 to 9, pp. 47-48, 1946.

[17] E. Nauleau, «Evolution au cours du temps des propriétés physiques et mécaniques des matériaux cimentaires d'un puit géothermique basse énergie,» Thèse de Doctorat, Université Paris-Est, 2013.

[18] V. Baroghel-Bouny, «Water vapour sorption experiments on hardened cementitious materials. Part I: Essential tool for analysis of hygral behaviour and its relation to pore structure,» *Cement and Concrete Research,* vol. 37, pp. 414-437, 2007.

[19] Langmuir, «The adsorption of gases on plane surfaces of glass, mica and platinum,» *Journal of American Chemical Society,* vol. 40, p. 1361, 1918.

[20] K. Abahri, «Modélisation des transferts couplés de chaleur, d'air et d'humidité dans les matériaux poreux de construction,» Thèse de Doctorat, Université de La Rochelle, 2012.

[21] M. Qin, «Etude des phénomènes de tranfert hygrothermiques dans les parois des bâtiments,» Thèse de Doctorat, Université de La Rochelle, 2007.

[22] S. Brunauer, L. S. Deming, D. W. S et E. Teller, *Journal of American Chemical Society,* 1940.

[23] IUPAC, «Reporting Physisorption data for Gas/solid Systems,» 1985, pp. Vol. 57, pp.603-619.

[24] R. F. Feldman, «Sorption and length-change scanning isotherms of methanol and water on hydrated Portland cement,» *Proc. of 5th Int. Congress on the Chemistry of Cement, Cem. Assoc. of Japan,Tokyo,* vol. 3, pp. 53-66, 1968.

[25] H. M. Jennings, «A model for the microstructure of calcium silicate hydrate in cement paste,» *Cement and Concrete Research 30 (1) (2000), pp. 101–116,* vol. 30, pp. 101-116, 2000.

[26] E. H. Atlassi, «Influence of silica fume on the pore structure of mortar when measured by water vapour sorption isotherms,» *The Modelling of Microstructure and its Potential for Studying Transport Properties and Durability, Springer,* pp. 257-270, 1996.

[27] H. M. Jennings, A. Kumar et G. Sant, «Quantitative discrimination of the nano-pore-structure of cement paste during drying: New insights from water sorption isotherms,» *Cement and Concrete Research,* vol. 76, pp. 27-36, 2015.

[28] M. Wu, B. Johannesson et M. Geiker, «A study of the water vapor sorption isotherms of hardened cement pastes: Possible pore structure changes at low relative humidity and the impact of temperature on isotherms,» *Cement and Concrete Research,* vol. 56, pp. 97-105, 2014.

[29] F. Radjy, E. J. Sellevold et K. K. Hansen, «Isoteric vapor pressure–temperature data for water sorption in hardened cement paste: enthalpy, entropy and sorption isotherms at different temperatures. Technical Report BYG-DTU R057,» Technical University of Denmark (DTU), Lyngby, Denmark , 2003.

[30] T. Ishida, K. Maekawa et T. Kishi, «Enhanced modeling of moisture equilibrium and transport in cementitious materials under arbitrary temperature and relative humidity history,» *Cement and Concrete Research,* vol. 37, pp. 565-578, 2007.

[31] S. Poyet, «Experimental investigation of the effect of temperature on the first desorption isotherm of concrete,» *Cement and Concrete Resaerch,* vol. 39, pp. 1052-1059, 2009.

[32] S. Poyet et S. Charles, «Temperature dependence of the sorption isotherms of cement-based materials: heat of sorption and Clausius–Clapeyron formula,» *Cement and Concrete Research,* vol. 39, p. 1060–1067, 2009.

[33] Z. P. Bazant et W. Thonguthai, «Pore pressure and drying of concrete at high temperature,» *Journal of the Engineering Mechanics Division,* vol. 104, p. 1059–1079, 1978.

[34] B. Bary, «A polydispersed particle system representation of the porosity for non-saturated cementitious materials,» *Cement and Concrete Research,* vol. 36, p. 2061–2073, 2006.

[35] F. Brue, C. A. Davy, F. Skoczylas, N. Burlion et X. Bourbon, «Effect of temperature on the water retention properties of two high-performance concretes,» *Cement and Concrete Research,* vol. 42, pp. 384-396, 2012.

[36] B. Kari, B. Perrin et J. C. Foures, «Modélisation macroscopique des transferts de chaleur et d'humidité dans des matériaux du bâtiment Les données nécessaires,» *Materials and Structures,* vol. 25, pp. 482-489., 1992.

[37] T. Duforestel, «Des transferts couplés de masse et de chaleur à la conception bioclimatique: recherches sur l'efficacité énergétique des bâtiments,» Mémoire HDR, EDF, 2015.

[38] P. Talukdar, S. O. Olutmayin, O. F. Osanyntola et C. J. Simon, «An experimental data set for benchmarking 1-D, transient heat and moisture transfer models of hygroscopic building materials. Part I: Experimental facility and material property data,» *International Journal of Heat and Mass Transfer,* vol. 50, pp. 4527-4539, 2007.

[39] H. R. Trechsel, Moisture Analysis and Condensation Control in Building Envelopes, ASTM International, 2001.

[40] R. C. MacLean et G. H. Galbraith, «Interstitial condensation: applicability of conventional vapour permeability values,» *Building Services Engineering Research and Technology,* vol. 9, p. 29–34, 1988.

[41] J. A. Clarke et P. P. Yaneskeb, «A rational approach to the harmonisation of the thermal properties of building materials,» *Building and Environment,* vol. 44, pp. 2046-2055, 2009.

[42] E. P. Kearsley et P. J. Wainwright, «Porosity and permeability of foamed concrete,» *Cement and Concrete Research* , vol. 31, pp. 805-812, 2001.

[43] W. H. Bray, «Diffusion of water in hardened Portland cement paste,» Dep.of Civ. Eng. Stanford University, Teckn. Rep. No 112, Standford, 1969.

[44] L. O. Nilsson, «Hygroscopic Moisture in Concrete Drying,measurements and related material properties,» Lund Institute of Technology, Division of Building Materials, Report TVBM-1003, Lund, 1980.

[45] D. Samri, «Analyse physique et caractérisation hygrothermique des matériaux de construction:approche expérimentale et modélisation numérique,» INSA Lyon, 2008.

[46] A. Missenard, Conductivité thermique des solides, liquides, gaz et de leurs mélanges, 307-325: Editions Eyrolles, 1965.

[47] V. Barbu, O. Mirsu et V. Menu, «Der Einfluss der Korngrosse auf die Festigkeit und die Wärmeleitzahl von Kesselschlackenbeton,» chez *Betonstein-Zeitung, Heft 5, cité par Monoungua 2004*, 1960.

[48] S. Yoon, D. E. Macphee et M. S. Imbabi, «measurements, Estimation of the thermal properties of hardened cement paste on the basis of guarded heat flow meter,» *Thermochimica Acta,* vol. 588, pp. 1-10, 2014.

[49] K. H. Kim, S. E. Jeon, J. K. Kim et S. Yang, «An experimental study on thermal conductivity of concrete,» *Cement and Concrete Research* , vol. 33, pp. 363-371, 2003.

[50] M. Khan, «Factors affecting the thermal properties of concrete and applicability of its prediction models,» *Buildinf Environnement,* vol. 37, pp. 607-614, 2002.

[51] D. Bentz, «Transient plane source measurements of the thermal properties of hydrating cement pastes,» *Material structure,* vol. 40, pp. 1073-1080, 2007.

[52] B. Milovanovic, I. Banjad Pecur et I. Gabrijel, «Measuring thermal properties of hydrating cement pastes,» chez *31st Cement and Concrete Science Conference,* , Imperial College London, United

Kingdom, 2011.

[53] A. Bouguerra, J. Laurent, M. Goual et M. Queneudec, «The measurement of the thermal conductivity of solid aggregates using the transient plane source technique,» *Journal of Physics D: Applied Physics,* vol. 30, p. 2900, 1997.

[54] D. Campbell-Allen et C. P. Thorne, «The thermal conductivity of concrete,» *Magazine of Concrete Research,* vol. 15, pp. 39-48, 1963.

[55] T. Z. Harmathy, «Thermal properties of concrete at elevated temperatures,» *Journal of Materials,* vol. 5, pp. 47-74, 1970.

[56] A. L. Marshall, «The thermal properties of concrete,» *Building Science,* vol. 7, pp. 167-174, 1972.

[57] G. Bastian et A. Khelidj, «Propriétés thermophysiques d'un béton fraîchement coulé,» *Bulletin de liaison des LPC,* vol. 200, pp. 25-35, 1995.

[58] 4.-C. RILEM Commision, «Properties of set concrete at early ages,» *Matériaux et Construction,* vol. 14, pp. 399-450, 1982.

[59] T. D. Brown et M. Y. Javaid, «The thermal conductivity of fresh concrete,» *Matériaux et Constructions,* vol. 3, pp. 411-416, 1970.

[60] J. C. Maréchal, «Détermination simultanée de la diffusivité et de la conductivité thermique du béton pendant son hydratation,» Réunion CIB W40, Holzkirchen, 1972.

[61] J. C. Maréchal, «Détermination simultanée de la diffusivité et de la conductivité thermique du béton pendant son hydratation,» *Essais Mes.,* vol. 306, pp. 95-96, 1973.

[62] H. W. Reinhardt, J. Blaauwendraad et J. Jongedijk, «Temperature development in concrete structures taking account of state dependent properties,» chez *Conférence on Concrete at Early Ages.* , Paris, 1982.

[63] P. F. Hansen, J. Hansen, K. Hougaard et E. J. Pedersen, «Thermal properties of hadening cement paste,» chez *Proceeding of RILEM international conference on concrete at early ages*, Paris, 1982.

[64] K. Van Breugel, «Simulation of hydration and formation of structure in hadening cement-based materials,» PhD thesis, TU Delft, 1991.

[65] J. P. Holman, Heat transfer, New York: McGraw-Hill, 1981.

[66] S. S. Todd, «Low-Temperature heat capacities and entropies at 298.16 K of crystalline calcium orthosilicate, zinc orthosilicate, and tricalcium silicate,» *Journal of American Chemical Society,* vol. 73, pp. 3277-3278, 1951.

[67] G. De Shutter et L. Taerwe, «Specific heat and thermal diffusivity of hardening concrete,» *Magazine of Concrete Research,* vol. 47, pp. 203-208, 1995.

[68] V. Baroghel-Bouny, «Caréctérisation microstructurale et hydrique des pâtes de ciment et des bétons ordinaires et à trés hautes performances,» Thèse de Doctorat, ENPC, Paris, 1994.

[69] A. Korpa et R. Trettin, «The influence of different drying methods on cement paste microstructures as reflected by gas adsorption: Comparison between freeze-drying (F-drying), D-drying, P-drying and oven-drying methods,» *Cement and Concrete Research,* vol. 36, pp. 634-649, 2006.

[70] K. K. Aligizaki, Pore structure of cement-based materials, Abigdon: Taylor & Francis, 2006.

[71] Z. Wu, H. S. Wong et N. R. Buenfeld, «Influence of drying-induced microcracking and related size effects on mass transport properties of concrete,» *Cement and Concrete Research,* vol. 68, pp. 35-48, 2015.

[72] D. Snoeck, L. F. Velasco, A. Mignon, S. Van Vlierberghe, P. Dubruel, P. Lodewyckx et N. De Belie, «The influence of different drying techniques on the water sorption properties of cement-based materials,»

Cement and Concrete Research, vol. 64, pp. 54-62, 2014.

[73] C. Gallé, «Effect of drying on cement-based materials pore structure as identified by mercury intrusion porosimetry: A comparative study between oven-, vacuum-, and freeze-drying,» *Cement and Concrete Research,* vol. 31, p. 1467–1477, 2001.

[74] G. G. Litvan, «Variability of the nitrogen surface area of hydrated cement paste.,» *Cement and Concrete Research,* vol. 6, pp. 139-144, 1976.

[75] R. Maggion, D. Tinet, P. Levitz, H. Van Damme et A. M. Faugere, «Microtextural evolution of CSH pastes during hydration,,» chez *in Proceedings of the "International RILEM workshop : Hydration and setting of cements",* Dijon, 1991.

[76] R. Feldman et J. Beaudoin, «Pretreatment of hardened hydrated cement pastes for mercury intrusion measurements,» *Cement and Concrete Research,* vol. 21, p. 297–308, 1991.

[77] G. A. Niklasson, «Adsorption on fractal structures : applications to cement materials,» *Cement and Concrete Research,* vol. 23, pp. 1153-1158, 1993.

[78] U. Costa et F. Massaza, «Permeability and pore structure of cements pastes,» *Materials Engineering,* vol. 1, pp. 459-466, 1989.

[79] L. J. Parrott, «An examination of two methods for studying diffusion kinetics in hydrated cements,» *Materials and Structures,* vol. 17, pp. 131-137, 1982.

[80] G. P. Johnston, D. M. Smith, I. Melendez et A. J. Hurd, «Compression effects in mercury porosimetry,» *Powder technology,* vol. 61, pp. 289-294, 1990.

[81] S. E. Pihlajavaara, «A review of some of the main results of a research on the ageing phenomena of concrete : effect of moisture conditions on strenagth., shrinkagae and creeeDp of mature concrete,» *Cement and Concrete Resaerch,* vol. 4, pp. 761-771, 1974.

[82] M. Moukwa et P. C. Aitcin, «The effect of drying on cement pastes pore structure as determined by mercury porosimetry,» *Cement and Concrete Research,* vol. 18, pp. 745-752, 1988.

[83] D. N. Winslow et S. Diamond, «Specific surface of hardened Portalnd cement paste as determined by Smal, Angle X-ray Scattering,» *Journal of the American Ceramic Society,* vol. 57, pp. 193-197, 1974.

[84] AFPC-AFREM, «Méthodes recommandées pour la mesure des grandeurs associées à la durabilité,» Compte rendu des journées techniques AFPC-AFREM, 1997.

[85] F. De Larrard, Construire en béton, Presses de l'ENPC, 2002.

[86] C. Pignat, «Simulation numérique de l'hydratation du silicate tricalcique, caractérisation de la structure poreuse et de la perméabilité,» Thèse de Doctorat, Ecole Polutechnique Fédérale de Lausanne, Suisse, 2003.

[87] «La résistance du béton au très jeune âge,» Bull. Liaison LPC, mai-juin 1992.

[88] J. M. Torrenti, «La résistance du béton au très jeune âge,» Bull. Liaison LPC, mai-juin 1992.

[89] H. M. Jenning et P. D. Tennis, «A model for two types of calcium hydrates on the microstructure of Portland cement pastes,» *Cement and Concrete Research,* vol. 30, pp. 855-863, 2000.

[90] T. Knudsen, «The dispersion model for hydration of Portland cement: 1. General concepts,» *Cement and Concrete Research,* vol. 14, pp. 622-630, 1984.

[91] V. G. Papadakis, C. G. Vayenas et M. N. Fardis, «A reaction engineering approach to the problem of concrete carbonation,» *Journal of the American Institute of Chemical Enginners,* vol. 1, pp. 110-122, 1989.

[92] j. Escoda, «Modélisation morphologique et micromécanique 3D de matéraiux cimentaires,» Ecole Nationale Supérieure des Mines de Paris, 2012.

[93] S. Tada et K. Watanabe, «Dynamic determination of sorption isotherm of cement based materials,» *Cement and Concrete Research,* vol. 35, pp. 2271-2277, 2005.

[94] A. Trabelsi, «Etudes numérique et expérimentale des transferts hygrothermiques dans les matériaux poreux de construction,» Thèse de doctorat, Université de La Rochelle, 2010.

[95] A. Anderberg et L. Wadsö, «Method for simultaneous determination of sorption isotherms and diffusivity of cement-based material,» *Cement and Concrete Research,* vol. 38, pp. 89-94, 2008.

[96] E. ASTM Annual book of standards, Standard test method for water vapour transmission of materials., Philadelphia, 2005.

[97] C. R. Pedersen, «Prediction of moisture transfer in building constructions,» *Building and Environment,* vol. 27, pp. 387-397., 1992.

[98] S. Degallaix et B. Ilschner, Caractérisation expérimentale des matériaux I. Propriétés physiques, thermiques et mécaniques.Traité des matériaux, vol. 2, Lausanne: Presse Polythechniques et Universitaire Romandes, 2007, pp. 121-144.

[99] E. Frawley, «Thermal testing of innovative building insulations,» Masters of Philosophy, Dublin, 2009.

[100] M. Filali, «Conductivité thermique apparente des milieux granulaires soumis à des contraintes mécaniques : modélisation et mesure,» Institue Natiolnal Polythechnique de Toulouse, 2006.

[101] Y. Jannot, «Théorie et pratique de la métrologie thermique,» Laboratoire d'Energétique et de Mécanique Théorique et Appliquée, Vandoeuvre, 2011.

[102] J. Jaeger, «Conduction of heat in an infinite region bounded internally by a circular cylinder of a perfect conductor,» *Australian Journal of Physics,* vol. 9, pp. 167-179, 1956.

[103] W. J. Parker, R. J. Jenkins, C. P. Bulter et G. L. Abbott, «Flash Method of Determining Thermal Diffusivity, Heat Capacity, and Thermal Conductivity,» *Journal of Applied Physics,* vol. 32, pp. 1679-1684, 1961.

[104] S. E. Gustaffson, «Transient plane source technique for thermal conductivity and thermal diffusivity measurements of solids materials,» *Review of Scientific Instruments,* vol. 62, pp. 797-804, 1991.

[105] H. Yi, «Rapid thermal conductivity measurement with a hot disk sensor, Part 1 : Theorical considerations,» *Thermochimica Acta,* vol. 436, pp. 122-129, 2005.

[106] B. Legendre, «Détermination des capacités thermiques spécifiques en fonction de la température,» *Téchniques de l'ingénieur; Base documentaire: Mesure des grandeurs thermophysiques,* R 2 970v2, 2011.

[107] J. Grenet et B. Legendre, «Analyse calorimétrique différentielle à balayage (DSC),» *Techniques de l'ingénieur. Base documentaire: Techniques d'analyse,* vol. P 1 205, 2010.

[108] M. Diot, «Capacités thermique,» *Téchniques de l'ingénieur. Base documentaire: Mesures physiques,* vol. R 2 970, 1979.

[109] A. V. Luikov, Heat and mass transfer in capillary-porous bodies 1er édition, Oxford: Pergamon press, 1966.

[110] M. Ferroukhi, R. Belarbi, K. Limam et M. Potard, «Incidence des transferts couplés de chaleur, d'air et d'humidité sur la qualité des ambiances habitables,» *Association Universitaire de Génie Civil (AUGC),* 2014.

[111] J. R. Philip et D. De Vries, «Moisture movement in porous material under temperature gradients,»

Transaction of american geophysical union, vol. 38, pp. 222-232, 1957.

[112] H. M. Künzel, Simultaneous Heat and Moisture Transport in Building Components One and two dimensional calculation using simple parameter, Fraunhofer IRB Verlag, 1995.

[113] C. E. Hagentoft, A. S. Kalagasidis, b. Adl-Zarrabi, S. Roels, J. Carmeliet, H. Hens, J. Grunewald, M. Funk, R. Becker, D. Shamir et O. Adan, «Assessment method of numerical prediction models for combined heat, air and moisture transfer in building components : Benchmarks for one-dimensional cases,» *Journal of Thermal Envelope and Building,* vol. 27, pp. 327-352, 2004.

[114] J. Carmeliet et S. Roels, «Determination of the moisture capacity of porous building materials,» *Journal of Thermal Envelope Building Science,* vol. 25, pp. 209-237, 2002.

[115] S. Furmaniak, A. Terzyk et P. Gauden, «The general mechanism of water sorption on foodstuffs - Importance of the multitemperature fitting of data and the hierarchy of models,» *Journal of Food Engineering,* vol. 82, pp. 528-535, 2007.

[116] P. B. Staudt, I. C. Tessaro, L. D. F. Marczak, R. d. P. Soares et N. S. M. Cardozo, «A new method for predicting sorption isotherms at different temperatures: Extension to the GAB model,» *Journal of Food Engineering,* vol. 118, p. 247-55, 2013.

[117] T. De Larrard, *Variabilité des propriétés du béton : caractérisation expérimentale et modélisation probabiliste de la lixiviation,* ENS Cachan, 2010.

[118] A. Aït-Mokhtar, R. Belarbi, F. Benboudjema et N. Burlion, «Experimental investigation of the variability of concrete durability properties,» *Cement and Concrete Research,* vol. 45, pp. 21-36, 2013.

[119] T. Defraeye, B. Blocken et J. Carmeliet, «Influence of uncertainty in heat–moisture transport properties on convective drying of porous materials by numerical modeling,» *Chemical engineering research and design* , vol. 91, pp. 36-42, 2013.

[120] A. Trabelsi, A. Hamami, R. Belarbi, P. Turcry et A. Aït-Mokhtar, «Assessment of the variability of moisture transfer properties of High Performance Concrete from multi-stages drying experiment,» *European Journal of Environmental and Civil Engineering* , vol. 16 , p. 352–361, 2012 .

[121] F. Dominguez-Munoz, B. Anderson, J. Cejudo-Lopez et A. Carrillo-Andres, «Uncertainty in the thermal conductivity of insulation materials,» *Energy and Buildings,* vol. 42, p. 2159–2168., 2010.

[122] DuraCrete, «DuraCrete Brite Euram III, Project BE95-1347,» eu édition, 2000.

[123] X. S. Nguyen, «Algorithmes probabilistes appliqués à la durabilité et à la mécanique des ouvrages de génie civil,» Thèse de doctorat, Université de Toulouse/INSA, 2007.

[124] F. Pérrin, «Prise en compte des données expérimentales dans les modèles probabilistes pour la prévision de la durée de vie des structures,» Thèse de doctorat, Université Blaise Pascal, 2008.

[125] F. Deby, «Approche probabiliste de la durabilité des bétons en environnement marin.,» Thèse de doctorat, Université de Toulouse III- Paul Sabatier, 2008.

[126] Colliat et J-B, *Mécanique numérique probabiliste: Méthodes et Implémentations,* Cours Magistrale; Ecole Cenrale de Lille, 2012.

[127] K. Karhunen, «Uber lineare methoden in der wahrscheinlichkeitsrechnung,» *American Academy of Sciences,* vol. 37, pp. 3-79, 1947.

[128] M. Loève, «Fonctions aléatoires du second ordre.,» chez *Supplement to P. Levy, « Processus stochastic et mouvement Brownien »*, Paris, 1948.

[129] J. Zhang et B. Ellingwood, «Orthogonal series expansion of random fields in reliability analysis,» *Journal of Enginnering Mechanics ASCE,* vol. 120, pp. 2660-2677, 1994.

[130] C.-C. Li et A. Der Kiureghian, «Optimal discretization of random fields.,» *Journal of Engeneering Mechanics,* vol. 119, pp. 1136-1154, 1993.

[131] A. Younsi, «Carbonatation de bétons à forts taux de substitution du ciment par des additions minérales,» Thèse de Doctorat, Université de La Rochelle, 2011.

[132] N. C. Collier, J. H. Sharp, N. B. Milestone, J. Hill et I. H. Godfrey, «The influence of water removal techniques on the composition and microstructure of hardened cement pastes 38, 737–744.,» *Cement and Concrete Research,* vol. 38, pp. 737-744, 2008.

[133] A. Darquennes, «Comportement au jeune âge de bétons formulés à base de ciment au laitier de haut fourneau en condition de déformations libre et restreinte,» Thèse de Doctorat, Université libre de Bruxelles, 2008.

[134] H. F. W. Taylor et A. B. Turner, «Reactions of tricalcium silicate paste with organic liquids,» *Cement and Concrete Research,* vol. 17, pp. 613-623, 1987.

[135] L. Konecny et S. Naqvi, «The effect of different drying techniques on the pore size distribution of blended cement mortars,» *Cement and Concrete Research,* vol. 23, p. 1223–1228, 1993.

[136] R. F. Feldman, «Diffusion measurements in cement paste by water replacement using Propan-2-ol,» *Cement and Concrete Research,* vol. 17, pp. 602-612, 1987.

[137] J. J. Beaudoin, P. Gu, J. Marchand, B. Tamtsia, R. E. Myers et Z. Liu, «Solvent replacement studies of hydrated Portland cement systems: the role of calcium hydroxide,» *Advanced Cement Based Materials,* vol. 8, pp. 56-65, 1998.

[138] G. F. P. Zhang L, «Critical examination of drying damage to cement pastes,» *Advanced Cement Resaerch,* vol. 12, p. 79–88, 2000.

[139] A. Loukili, «Étude du retrait et du fluage de béton à ultra-hautes performances,» Thèse de Doctorat,Ecole Centrale de Nantes, 1996.

[140] H. F. X. Taylor, Cement chemistry, San Diego: Academic Press Limited, 1990.

[141] R. H. Bogue, La chimie du ciment de Portland, Paris: Eyrolles, 1952.

[142] F. Lin et C. Meyer, «Hydration kinetics modeling of Portland cement considering the effects of curing temperature and applied pressure,» *Cement and Concrete Research,* vol. 39, pp. 255-265, 2009.

[143] W. Lerch et C. Ford, «Long-term study of cement performance in concrete: chapter 3. Chemical and physical tests of the cements,» *ACI Material Journal,* vol. 19, pp. 745-795, 1948.

[144] A. Bentur, R. Berger, J. Kung, N. Milestone et J. Young, «Structural properties of calcium silicate pastes: II, effect of the curing temperature,» *Journal of American Ceramic Society,* vol. 62, pp. 362-366, 1979.

[145] H. M. Künzel, «One and two-dimensional calculation of the simultaneous heat and moisture transport in building components, using simple parameters,» Thèse de Doctorat, Frauenhofer Institute for Building Physics, 1995.

[146] C. R. Pedersen, «Combined Heat and Moisture Transfer in Building Constructions,» Thèse de Doctorat (Report no.214), Thermal Insulation Laboratory, Technical University of Denmark, 1990.

[147] L. Tong, « Moisture Transport in Wood and Wood-based Panels,» Thèse de Doctorat, Department of Building Materials, Royal institute of Technology in Stockholm, Sweden, 1998.

[148] J. Beaudoin et B. Tamtsia, «Effect of dryingmethods onmicrostructural changes in hardened cement paste: an a.c. impedance spectroscopy evaluation,» *Advanced Concrete Technology,* pp. 113-120, 2004.

[149] F. H. Wittmann, Drying and Shrinkage of Hardened Cement Paste, Pore Solution in Hardened Cement

Paste, Freiburg: Aedificatio Publishers, 2000.

[150] R. M. Espinosa et F. Lutz, «Influence of the age and drying process on pore structure and sorption isotherms of hardened cement paste,» *Cement and concrete research,* p. 1969–1984, 2006.

[151] N. Issaadi, A. Nouviaire, R. Belarbi et A. Aït-Mokhtar, «Moisture characterization of cementitious material properties: Assessment of water vapor sorption isotherm and permeability variation with ages,» *Construction and Building Materilas 83 (2015) 237–247,* vol. 83, pp. 237-247, 2015.

[152] G. H. Galbraith, R. C. McLean et J. S. Guo, «Moisture permeability data presented as a mathematical relationship,» *Building Research & Information,* vol. 26, pp. 157-168, 1998.

[153] A. Hamami, P. Turcry et A. Aït-Mokhtar, «Influence of mix proportions on microstructure and gas permeability of cement pastes and mortars,» *Cement and Concrete Research,* vol. 42, pp. 490-498, 2012.

[154] H. N. Atahan, O. N. Oktar et M. A. Tasdemir, «Effects of water-cement ratio and curing time on the critical pore width of hardened cement paste,» *Construction and Building,* pp. 1996-1200, 2009.

[155] NFENISO12572, «Performance hygrothermique des matériaux et produits pour le bâtiment - Détermination des propriétés de transmission de la vapeur d'eau,» 2001.

[156] NFEN12667, «Performance thermique des matériaux et produits pour le bâtiment - Détermination de la résistance thermique par la méthode de la plaque chaude gardée et la méthode fluxmétrique - Produits de haute et moyenne résistance thermique,» Afnor, 2001.

[157] NFEN12664, «Performance thermique des matériaux et produits pour le bâtiment - Détermination de la résistance thermique par la méthode de la plaque chaude gardée et la méthode fluxmétrique - Produits secs et humides de moyenne et basse résistance thermique,» Afnor, 2001.

[158] T. Issiaka, «Transfert de chaleur et de masse dans les parois des bâtiments à ossature bois,» Univeristé de Nancy, 2011.

[159] N. Ukrainczyk et T. Matusinović, «Thermal properties of hydrating calcium aluminate cement pastes,» *Cement and concrete research,* vol. 40, p. 128–136, 2010.

[160] S. Mindess et J. Young, Concrete, New Jersey, 1981.

[161] K. Abahri, R. Belarbi et A. Trabelsi, «Contribution to analytical and numerical study of combined heat and moisture transfers in porous building materials,» *Building and Environment,* vol. 46, pp. 1354-1360, 2011.

[162] O. Omikrine-Metalssi et A. Aït-Mokhtar, «A proposed methodology for quantitative investigation of carbonation in polymer modified mortars,» *Exp. Tech.,* vol. 33, pp. 59-65, 2009.

[163] O. Omikrine-Metalssi, A. Aït-Mokhtar, P. Turcry et B. Ruot, «Consequences of carbonation on microstructure and drying shrinkage of a mortar with cellulose ether,» *Constrction and Building Materials,* vol. 34, pp. 218-225, 2012.

[164] F. Duprat, N. Vu et A. Sellier, «Accelerated carbonation tests for the probabilistic prediction of the durability of concrete structures,» *Construction and Building Materials,* vol. 66, pp. 597-605, 2014.

[165] X. P. 18–458, «Essai pour béton durci – Essai de carbonatation accélérée – Mesure de l'épaisseur de béton carbonaté,» *standard on accelerated carbonation test, in French,* 2008.

[166] R. Miragliotta, A. Aït-mokhtar, P. Rougeau et P. Dumargue, «Concrete carbonation, a predicting methology of the front advance, Proceedings of the RILEM workshop on life prediction and aging management of concrete life,» chez *D. Naus Ed. pp. 35,* Cannes, 2000.

[167] M. M. Y. Delmi, «Étude de l'hydratation et du couplage carbonatation-échanges hydriques dans les mortiers et bétons,» Thèse de Doctorat, Université de La Rochelle, 2004.

[168] O. O. Metalssi, «Étude des couplages hydratation-échanges hydriques-carbonatation dans les mortiers modifiés polymères,» Thèse de Doctorat; Université de La Rochelle, 2006.

[169] P. Turcry, L. Oksri-Nelfia, A. Younsi et A. Aït-Mokhtar, «Analysis of an accelerated carbonation test with severe preconditioning,» *Cement and Concrete Research,* vol. 57, pp. 70-78, 2014.

[170] F. Pacheco Torgal, S. Miraldo, J. Labrincha et J. De Brito, «An overview on concrete carbonation in the context of eco-efficient construction: evaluation, use of SCMs and/or RAC,» *Construction and Building Materials,* vol. 36, pp. 141-150, 2012.

[171] G. Verbeck, «Carbonation of hydrated Portland cement,,» *ASTM Spec. Tech. Publ.,* vol. 205, pp. 17-36, 1958.

[172] E. Drouet, «Impact de la température sur la carbonatation des matériaux cimentaires: prise en compte des transferts hydriques,» Thèse de Doctorat, ENS Cachan, 2010.

[173] M. Tahlaiti, «Etude de la pénétration des chlorures et de l'amorçage de la corrosion en zone saturée et en zone de marnage,» Thèse de Doctorat, Université de La Rochelle, 2010.

[174] P. Turcry, A. Younsi, F. Jacquemot, A. Aït-Mokhtar et P. Rougeau, «Influence of in-situ concrete variability on accelerated carbonation test,» *European Journal of Environmental and Civil Engineering,* vol. 16, pp. 288-297, 2012.

[175] G. Villain et M. Thiery, «Gammadensimetry: amethod to determine drying and carbonation profiles in concrete,» *NDT & E Internatinal,* vol. 39, pp. 328-337, 2006.

[176] K. Van Balen et D. Van Gemert, «Modelling lime mortar carbonation,» *Materials and Structures,* vol. 27, pp. 393-398, 1994.

[177] S. Roels, J. Carmeliet, H. Hens et O. ADAN, «Interlaboratory comparison of hygric properties of porous building materials,» *Thermal Envelope and Building Science,* vol. 27, p. 307–325, 2004.

[178] S. Roels, P. Talukdar, C. James et C. J. Simonson, «Reliability of material data measurements for hygroscopic buffering,» *International Journal of Heat and Mass Transfer,* vol. 23, pp. 5355-5363, 2010.

[179] C. Feng, H. Janssen, Y. Feng et Q. Meng, «Hygric properties of porous building materials: Analysis of measurement repeatability and reproducibility,» *Building Environment* , vol. 85 , pp. 160-172 , 2015 .

[180] P. D. Spanos et R. G. Ghanem, Stochastic finite element, a spectral approach, (Revised ed.). Dover Publication., 2002.

[181] J. B. Colliat, M. Hautefeuille, A. Ibrahimbegovic et H. G. Matthies, «Stochastic approach to size effect in quasi-brittle materials,» *Comptes Rendus Mécaniques,* vol. 335, p. 430–435, 2007.