



Contribution à l'étude de l'impact de l'environnement vis-à-vis d'éco-matériaux lignocellulosiques

Ali Al-Mohamadawi

► To cite this version:

Ali Al-Mohamadawi. Contribution à l'étude de l'impact de l'environnement vis-à-vis d'éco-matériaux lignocellulosiques. Autre. Université de Picardie Jules Verne, 2016. Français. NNT : 2016AMIE0040 . tel-03651163

HAL Id: tel-03651163

<https://theses.hal.science/tel-03651163>

Submitted on 25 Apr 2022

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.

Thèse de Doctorat

*Mention Sciences Pour l'Ingénieur
Spécialité Génie des Procédés*

présentée à *l'École Doctorale en Sciences Technologie et Santé (ED 585)*

de l'Université de Picardie Jules Verne

par

Ali Abdullah Hassan AL-MOHAMADAWI

Pour obtenir le grade de Docteur de l'Université de Picardie Jules Verne

*Contribution à l'étude de l'impact de l'environnement
vis à vis d'éco-matériaux lignocellulosiques*

Soutenue le 23/11/2016, après avis des rapporteurs, devant le jury d'examen

M. S. REMOND	Professeur	Rapporteur
M^{me} L. TIGHZERT	Professeur	Rapporteur
M. C. CASTEL	Professeur	Examineur
M^{me} R.-M. DHEILLY	Maître de Conférences HDR	Examinatrice
M^{me} A. GOULLIEUX	Maître de Conférences HDR	Directrice de thèse
M. K. BEN-HABIB	Maître de Conférences HDR	Directeur de thèse

À toi ma chère maman, je dédie ce modeste travail,
avec tout mon amour et mon respect, à toi qui a
sans cesse dépensé toute ton énergie et tes res-
sources pour nous assurer une éducation exem-
plaire à nous tes enfants.

Cinq ans déjà que je suis loin de toi et encore au-
jourd'hui, je mesure avec tristesse toute la peine
que tu dois ressentir.

REMERCIEMENTS

Un travail de thèse est rarement celui d'une seule personne. Je souhaite témoigner ma profonde reconnaissance à toutes les personnes qui m'ont soutenu au cours de ces années.

Je tiens tout d'abord à exprimer mes remerciements à celle que je définie comme ma « coach » tout au long de ce périple, Madame Adeline GOULLIEUX, Maître de conférences HDR à l'UPJV dans l'unité de recherche EPROAD (EA 4669), directrice de cette thèse. Sa nature positive, ses conseils avisés et sa patience vis à vis de la mauvaise qualité de ma langue française m'ont permis d'aller de l'avant et de découvrir les nombreux aspects de la vie de chercheur. Le caractère amical de nos échanges a contribué à rendre nos discussions ouvertes et les trois années passées à travailler ensemble des plus agréables. Honnêtement, elle m'a appris à penser scientifiquement et dire mon opinion sans crainte.

J'exprime toute ma gratitude à Monsieur Karim BEN-HABIB, Maître de conférences HDR à l'UPJV dans l'unité de recherche EPROAD, co-directeur de cette thèse, pour le temps consacré. Je le remercie également pour ses compétences scientifiques et les nombreux conseils donnés tout au long de ces années de travail.

Mes vifs remerciements s'adressent également à Monsieur Sébastien REMOND, Professeur à l'École des Mines de Douai, ainsi qu'à Madame Lan TIGHZERT, Professeur à l'Université de Reims Champagne Ardenne, qui ont accepté d'être les rapporteurs de ce travail. Je leur exprime ma grande reconnaissance pour le temps qu'ils ont consacré à la lecture approfondie de ce rapport ainsi qu'à l'attention portée à ce travail.

J'exprime mes remerciements également à M. Christophe CASTEL, Professeur à l'ENSIC à Nancy, qui a accepté d'être l'examineur de ce travail. Qu'il trouve ici l'expression de ma vive reconnaissance pour le temps consacré à la lecture approfondie de ce rapport ainsi qu'à l'attention portée à ce travail.

Merci à Madame Rose-Marie DHEILLY, Maître de conférences HDR à l'UPJV dans l'unité de recherche EPROAD, pour sa gentillesse, ses compétences en analyse microstructurale au service de ce projet, les nombreux conseils au long de ces années de travail et enfin pour avoir accepté d'être l'examinatrice de ce travail.

Je voudrais aussi remercier Monsieur Mhand HIFI, Professeur et directeur de l'unité de recherche EPROAD, de m'avoir accueilli au sein de son laboratoire. Son aide dans

la gestion des programmes de recherche franco-irakiens m'a permis de réaliser mon travail dans de bonnes conditions.

Je remercie vivement Monsieur Nicolas MONTRELAY, qu'il trouve là toute ma gratitude pour son aide, son soutien technique au cours de ce travail de thèse.

Merci au Professeur Michèle QUENEUDEC t'KINT pour son aide et ses conseils.

Je remercie très chaleureusement Messieurs Justin HOUESSOU et Brice MBOUM-BA MANBOUNDU, pour avoir partagé avec moi leurs connaissances sur les bétons lignocellulosiques, pour leur soutien au cours de ces années et leur aide précieuse apportée lors de l'étude des caractéristiques thermiques des matériaux. Les innombrables heures de discussion avec vous ont été une aide inestimable pour mener à bon terme ce travail de thèse.

J'associe à mes remerciements les différents stagiaires encadrés au cours de cette thèse qui ont contribué à l'aboutissement de ce travail.

Ma gratitude va à toute l'équipe, enseignants chercheurs, ingénieurs, doctorants, post-doctorants et personnel administratif, pour leur bonne humeur et leur disponibilité.

RÉSUMÉ

En raison de leurs faibles coûts, légèreté et propriétés d'isolation thermique, les co-produits lignocellulosiques ont reçu une attention particulière au cours des dernières années pour la fabrication de bétons légers. Cependant ces sous-produits ne sont pas totalement compatibles avec une matrice cimentaire, conduisant à un retard de prise, des variations dimensionnelles importantes et des résistances mécaniques faibles des matériaux résultants. Pour éviter de tels inconvénients, un procédé d'enrobage des anas de lin avec différentes substances a été adopté dans cette étude. Il conduit à une réduction de l'absorption d'eau par les anas de lin traités comparée à celle des anas de lin bruts mais également à une augmentation de leur masse volumique réelle.

Les composites obtenus dans ce travail présentent des améliorations significatives de leurs comportement hydrique et résistances mécaniques avec une augmentation modérée de masse volumique apparente et de conductivité thermique.

Les phénomènes de transfert d'humidité dans les composites obtenus peuvent influencer de manière significative la durabilité et la performance de ceux-ci. En effet la plupart des matériaux utilisés dans le secteur du bâtiment sont poreux, contenant de l'eau sous forme vapeur ou liquide. Par conséquent, la perméabilité à la vapeur d'eau, les isothermes de sorption et la capacité tampon à la vapeur d'eau ont été déterminées. Les résultats obtenus montrent la bonne performance hygrique des éco-composites élaborés dans ce travail.

Trois tests différents de lixiviation ont été proposés dans cette étude pour identifier la spéciation chimique des matériaux et évaluer leurs relargages dans l'environnement. Les conditions expérimentales ont été choisies pour simuler différents états de nos composites dans des environnements externes en service ou en fin de vie. Le comportement à la lixiviation des composites cimentaires élaborés diffère peu suivant le traitement subi par les anas de lin et la libération de substances toxiques n'a pas été mise en évidence.

Mots clés : anas de lin, ciment, béton léger, composite lignocellulosique, perméabilité, sorption, capacité tampon à la vapeur d'eau, lixiviation

Contribution to study of environment impact towards lignocellulosic eco-materials

ABSTRACT

Due to their low cost, lightness and thermal insulation properties, lignocellulosic by-products received a particular attention, in the recent years, for manufacturing lightweight concretes. However, these byproducts are not fully compatible with the cement matrix, leading to setting delay, significant dimensional variations, and low mechanical strengths of the composites materials elaborated. To avoid such drawbacks, a coating process of flax shives using different substances has been adopted in this study. It leads to a reduction in treated shive water absorption compared to raw shives but also to an increase in their true density.

The composites obtained in this work exhibit significant improvement in hydrous behavior and mechanical strengths with moderate increase in the apparent bulk density and thermal conductivity.

The phenomena of moisture transfer in the produced composites can significantly influence their durability and performance. In fact, most of the materials used in the building sector are porous, containing water as vapor or liquid, therefore the water vapour permeability, sorption isotherms and moisture buffering capacity have been determined. The results obtained from these tests show the good hygric performance of these eco-composites elaborated in this work.

Three different leaching tests have been proposed in this study to identify the chemical speciation of the materials and to evaluate their releasing into the environment. The experimental conditions of the leaching tests have been chosen to simulate different states of our composites in external environments in service or end of life after deconstruction. The leaching behavior of the cement-based products elaborated differs little according to flax shive treatment and the leaching of toxic substances has not been identified.

Keywords: flax shives, cement, lightweight concrete, lignocellulosic composite, permeability, sorption, moisture buffering capacity, leaching

NOMENCLATURE

Certaines notations utilisées localement ne sont pas montrées dans la liste ci-dessous. Elles sont précisées lors de leur apparition dans le texte.

Symbole	Définition	Unités
A	surface	m^2
a, b, c	paramètres d'ajustement	-
Ac	coefficient d'absorption d'eau	$kg.m^{-2}.s^{-1/2}$
a_w	activité de l'eau	%
Cp	capacité thermique volumique	$MJ.m^{-3}.K^{-1}$
d	épaisseur de l'éprouvette	m
d_a	épaisseur de la couche d'air	m
Dm	diffusivité hygrique	$m^2.s^{-1}$
$d_{p,1\%}$	profondeur de pénétration	cm
Em	effusivité hygrique	$kg.m^{-2}.Pa^{-1}.s^{-1/2}$
F	force	N
G	flux de vapeur d'eau à travers l'éprouvette	$kg.sec^{-1}$
g_v	densité de flux de vapeur d'eau à travers l'éprouvette	$kg.m^{-2}.s^{-1}$
i	absorption capillaire	$mm^3.mm^{-2}$
L	dimension	m
m	masse	kg
m.v.a.	masse volumique apparente	$kg.m^{-3}$
$MBV_{idéale}$	capacité tampon hydrique idéale	$g.m^{-1}.HR^{-1}$
$MBV_{réelle}$	capacité tampon hydrique réelle	$g.m^{-1}.HR^{-1}$
p	pression de la vapeur saturée	Pa
P _s	pression de saturation	Pa
R _C	résistance à la compression	MPa
R _c	résistance corrigée	$m^2.s.Pa.kg^{-1}$
R _f	résistance à la flexion	MPa
S	coefficient de sorptivité	$mm.s^{-1/2}$
S_d	épaisseur d'air équivalente pour la diffusion de la vapeur d'eau	m
S_i	surface de la face immergée	m^2
t_p	période de temps	s
u	teneur en eau	%
V	volume	m^3
W _m , C _g , K	paramètres d'ajustement	-

Notations grecques symbole	Définition	Unités
α	diffusivité thermique	$\text{mm}^2.\text{s}^{-1}$
γ	conductivité thermique	$\text{W}.\text{m}^{-1} \text{K}^{-1}$
δ	perméabilité à la vapeur d'eau	$\text{kg}.\text{m}^{-1}.\text{s}^{-1}.\text{Pa}^{-1}$
Δm	changement de masse entre deux pesées	kg
Δt	différence de temps entre deux pesées	s
δ_a	perméabilité à la vapeur d'eau de l'air	$\text{kg}.\text{m}^{-1}.\text{s}^{-1}.\text{Pa}^{-1}$
ε	module de Young	MPa
μ	facteur de résistance à la vapeur d'eau	-
π	constante mathématique (= 3,14159)	-
ρ	masse volumique	$\text{kg}.\text{m}^{-3}$
ρ_w	masse volumique de l'eau	$\text{kg}.\text{m}^{-3}$
φ , HR	humidité relative	%
ω	perméance à la vapeur d'eau	$\text{kg}.\text{m}^{-2}.\text{s}^{-1}.\text{Pa}^{-1}$
ω_c	perméance corrigée à la vapeur d'eau	$\text{kg}.\text{m}^{-2}.\text{s}^{-1}.\text{Pa}^{-1}$

Abréviations Signification

HDL	Huile De Lin
HR _{haute}	Humidité Relative élevée (75% HR)
HR _{basse}	Humidité Relative faible (33% HR)
R^2	coefficient de détermination d'une régression linéaire
VDS	Variations Dimensionnelles au Séchage
VDE	Variations Dimensionnelles Extrêmes
$\pm$	écart type

LISTE DES FIGURES

CHAPITRE I : ETAT DE L'ART

Figure I. 1. Représentation schématique des différents types de béton léger.	7
Figure I. 2. Structure d'un monomère de la cellulose β -D- glucopyranosyl (1 4) D-glucopyranose	11
Figure I. 3. Structures de l'acide α -D-galacturonique composant principal des pectines	12
Figure I. 4. Les cinq premiers producteurs de lin (moyenne 2013 – 2014) [FAO-15]	14
Figure I. 5. Méthode d'extraction de la fibre de lin et produits résultants (la perte de masse est due à la perte de composants solubles dans l'eau et de poussières) [HAR-04].	15
Figure I. 6. Morphologie du lin et localisation des anas au sein de la plante de lin [LIP-05].	16
Figure I. 7. Représentation schématique d'une coupe transversale d'un grain de ciment. Adapté de Ciment Microscopy, Halliburton Services (Duncan, OK, EUA).	23
Figure I. 8. Isotherme d'adsorption des matériaux de construction [SLA-09].	28
Figure I. 9. Les différentes classes d'isothermes [IUPAC-85]	29
Figure I. 10. Types de cycles d'hystérésis [IUPAC-85]	30
Figure I. 11. Les trois méthodes de la coupelle en fonction des conditions d'humidités relatives et des directions du flux de vapeur d'eau [SLA-09].	32
Figure I. 12. Évolution de la masse d'un matériau soumis à des cycles d'humidités relatives : détermination de la capacité tampon hydrique (MBV) (NORDTEST 2005).	34
Figure I. 13. Concentration de polluant dans le relargage durant la lixiviation en fonction du rapport L/S (ou du temps) [MAT-05]	35
Figure I. 14. Test de lixiviation en relation avec le cycle de vie d'un produit adapté [VAN-04].	37
Figure I. 15. Principaux essais de lixiviation utilisés en Europe	38

CHAPITRE II : ELABORATION ET CARACTERISATION DES ECO-COMPOSITES À BASE D'ANAS DE LIN

Figure II. 1. Dispositif d'analyse d'images.	50
Figure II. 2. Dispositif de mesure de la masse volumique apparente.	51
Figure II. 3. Dispositif permettant la mise en fusion de la cire de paraffine.	56
Figure II. 4. Dispositif pour traiter les anas de lin par la cire de paraffine	57
Figure II. 5. Effet de la température de la cire de paraffine fondue sur la masse volumique apparente des anas de lin.	58
Figure II. 6. Effet du temps de séjour dans l'unité batch sur la masse volumique apparente des anas de lin traités.	59
Figure II. 7. Anas de lin en vrac et composites élaborés.	60
Figure II. 8. Dispositif de la TPS	61
Figure II. 9. Essai de résistance à la flexion	62
Figure II. 10. Dispositif de rupture en compression	64
Figure II. 11. Évolution de la force en fonction du déplacement : détermination du module d'élasticité.	65
Figure II. 12. Schéma présentant le rétractomètre utilisé pour la mesure des variations dimensionnelles	66
Figure II. 13. Dispositif de mesure de l'absorption d'eau par capillarité	68
Figure II. 14. Dispositif expérimental pour l'essai d'imbibition.	69
Figure II. 15. Évolution de la capacité d'absorption d'eau des anas de lin en fonction du temps selon le procédé de traitement appliqué.	71
Figure II. 16. Caractérisation par MEB de la surface (A) et de la structure poreuse (B) des anas de lin bruts.	72
Figure II. 17. Caractérisation par MEB de la surface (à gauche) et de l'extrémité (à droite) des anas traités.	73
Figure II. 18. Distributions incrémentales (■) et cumulées (—) des largeurs et longueurs des anas de lin avant traitement.	75

Figure II. 19. Distributions incrémentales (■) et cumulées (—) des largeurs et longueurs des anas de lin après le traitement par la paraffine. _____	76
Figure II. 20. Masses volumiques réelles et apparentes des anas de lin bruts et traités. _____	77
Figure II. 21. Conservation de la structure alvéolée des anas de lin après enrobage. _____	80
Figure II. 22. Aspect caverneux des différents composites. _____	81
Figure II. 23. Conductivité thermique des différents types d'anas _____	82
Figure II. 24. Résistances à la compression et à la flexion, module d'élasticité des composites en fonction du type d'enrobage des anas. _____	84
Figure II. 25. Force exercée sur les différents types d'anas _____	85
Figure II. 26. Observation au MEB de l'adhérence granulats/matrice cimentaire (x500) des composites standards. _____	85
Figure II. 27. Observation au MEB de l'adhérence granulats/matrice cimentaire des composites élaborés avec les anas traités. _____	87
Figure II. 28. Développement de la microstructure au sein de la matrice cimentaire (A) et à proximité des anas bruts (B) (x5000). _____	88
Figure II. 29. Développement de la microstructure au sein de la matrice cimentaire selon le traitement des anas. _____	88
Figure II. 30. Observation en MEB de l'aspect de la matrice cimentaire à proximité des anas enrobés. _____	90
Figure II. 31. Évolution au cours du temps de la variation dimensionnelle au séchage des composites d'anas de lin en fonction des procédés d'enrobage appliqués. _____	92
Figure II. 32. Évolution au cours du temps de la variation dimensionnelle d'extrême des composites d'anas de lin en fonction des procédés d'enrobage appliqués. _____	94
Figure II. 33. Évolution de l'absorption capillaire i en fonction de la racine carrée de temps pour les différents composites. _____	96
Figure II. 34. Premières parties linéaires des courbes d'absorption capillaire en fonction de la racine carrée du temps. _____	97
Figure II. 35. Effet de l'enrobage des anas de lin sur l'absorption d'eau par imbibition des composites. _____	99

CHAPITRE III : COMPORTEMENT HYGRIQUE DES COMPOSITES À BASE D'ANAS DE LIN

Figure III. 1. Dispositif expérimental pour étudier la sorption. _____	107
Figure III. 2. Dispositif expérimental de la coupelle sèche. _____	109
Figure III. 3. Dispositif expérimental de la coupelle humide. _____	110
Figure III. 4. Principes des coupelles sèche et humide _____	111
Figure III. 5. Dispositif expérimental utilisé pour déterminer la capacité tampon à la vapeur d'eau des composites d'anas de lin. _____	112
Figure III. 6. La physisorption _____	113
Figure III. 7. Cinétique d'adsorption pour les composites d'anas de lin bruts (standard) et traités. _____	115
Figure III. 8. Isothermes de sorption des composites d'anas bruts (standard) et traités _____	117
Figure III. 9. Teneur maximale en humidité d'équilibre des composites d'anas de lin à 97% HR. _____	120
Figure III. 10. Cinétique de la variation de masse en fonction du temps en coupelle sèche pour les composites d'anas bruts et traités. _____	124
Figure III. 11. Cinétique de la variation de masse en fonction du temps en coupelle humide pour les composites d'anas bruts et traités. _____	125
Figure III. 12. Différents mécanismes de transport de vapeur et de liquide [SLA-09]. _____	129
Figure III. 13. Facteur de résistance à la vapeur d'eau des composites d'anas de lin en fonction de l'humidité relative. _____	131
Figure III. 14. Evolution de la perméabilité à la vapeur d'eau en fonction de l'humidité relative pour les composites d'anas bruts et traités (données expérimentales et théoriques). _____	133
Figure III. 15. Diffusivité hydrique des différents composites d'anas en fonction de l'humidité relative (A) et de la teneur en eau (B). _____	136
Figure III. 16. Effusivité hydrique en fonction de l'humidité relative pour les différents composites. _____	138
Figure III. 17. Cinétiques de sorption des différents composites. _____	141

Figure III. 18. MBV en adsorption et désorption des composites d'anas de lin bruts et traités en fonction du nombre de cycles. _____	142
Figure III. 19. Comparaison entre les résultats expérimentaux et analytiques des MBV pour les composites d'anas de lin bruts et traités. _____	143

CHAPITRE IV : COMPORTEMENT DES COMPOSITES D'ANAS DE LIN À LA LIXIVIATION

Figure IV. 1. Dispositif expérimental pour la titration. _____	150
Figure IV. 2. Schéma du système de percolation en mode axial descendant. _____	152
Figure IV. 3. Étapes de réalisation du test de lixiviation _____	153
Figure IV. 4. Stabilité de quelques hydrates en fonction du pH (source Fried [FRI-06] d'après Benzaazoua, 1996). _____	157
Figure IV. 5. pH en fonction de la quantité d'acide ajoutée à des échantillons de ciment Portland hydraté [GLA-99]. _____	158
Figure IV. 6. Évolution du pH en fonction de la quantité d'acide ajoutée (courbe de capacité de neutralisation acide). _____	160
Figure IV. 7. Mobilisation des ions calcium (haut) et des ions sodium (bas) en fonction du pH pour les composites d'anas bruts et traités. (bleu : pH=2, rouge : pH=4,2, vert : pH=5,6) _____	163
Figure IV. 8. Evolution du pH des percolats en fonction du temps. _____	164
Figure IV. 9. Courbes de relargage des ions Ca^{2+} des différents composites lors du test de percolation. _____	166
Figure IV. 10. Courbe de relargage des ions Na^+ des différents composites lors du test de percolation _____	167
Figure IV. 11. Courbes de relargage des ions F^- des différents composites lors du test de percolation _____	168
Figure IV. 12. Courbes de relargage des ions Cl^- des différents composites lors du test de percolation. _____	169
Figure IV. 13. Concentrations en ions Ca^{2+} , Na^+ et Mg^{2+} dans le lixiviat en fonction du type de composites _____	171
Figure IV. 14. Concentrations en ions halogénures dans le lixiviat en fonction du type de composites _____	173
Figure IV. 15. Concentrations en cations métalliques dans le lixiviat en fonction du type de composites _____	174
Figure IV. 16. Effet du pH du lixiviant sur la décomposition des granulats lignocellulosiques inclus dans les composites selon le traitement appliqué. _____	176

LISTE DES TABLEAUX

CHAPITRE I : ETAT DE L'ART

Tableau I. 1. Classification des bétons légers selon la norme AFNOR NF-EN206-1	7
Tableau I. 2. Classification des bétons légers selon la masse volumique et la résistance à la compression	7
Tableau I. 3. Différentes classes de bétons de granulats légers données par la RILEM [RILEM-75]	8
Tableau I. 4. Synthèse des études portant sur l'association de granulats lignocellulosiques et du ciment portland comme liant minéral	9
Tableau I. 5. Composition chimique de différents granulats lignocellulosiques	10
Tableau I. 6. Propriétés de quelques composites incorporant des granulats lignocellulosiques	18
Tableau I. 7. Les différents types d'enrobages utilisés pour traiter les granulats lignocellulosiques	22

CHAPITRE II : ELABORATION ET CARACTERISATION DES ECO-COMPOSITES À BASE D'ANAS DE LIN

Tableau II. 1. Propriétés physiques et chimiques du ciment	47
Tableau II. 2. Analyse chimique de l'eau utilisée	48
Tableau II. 3. Données issues des courbes d'absorption d'eau	71
Tableau II. 4. Morphologie des anas de lin bruts et traités (plages d'appartenance de 95% de la population)	77
Tableau II. 5. Paramètres des procédés de traitement influençant les masses volumiques des anas enrobés.	78
Tableau II. 6. Propriétés thermiques des composites à base d'anas de lin	79
Tableau II. 7. Récapitulatif des valeurs des variations dimensionnelles obtenues avec les différents traitements	95
Tableau II. 8. Paramètres de la cinétique d'absorption d'eau par capillarité des différents composites.	96
Tableau II. 9. Paramètres de la cinétique d'absorption d'eau par imbibition des différents composites.	100

CHAPITRE III : COMPORTEMENT HYGRIQUE DES COMPOSITES À BASE D'ANAS DE LIN

Tableau III. 1. Humidité relative d'équilibre des solutions d'acide sulfurique en fonction de leur densité [WIL-21].	106
Tableau III. 2. Paramètres d'ajustement de modèle de GAB pour les isothermes de sorption des différents composites étudiés.	118
Tableau III. 3. Résultats obtenus par la méthode de la coupelle sèche (0-85% HR).	126
Tableau III. 4. Résultats obtenus par la méthode de la coupelle humide (50-94% HR)	128
Tableau III. 5. Paramètres d'ajustement pour le facteur de résistance à la vapeur d'eau des composites d'anas de lin selon le modèle de Janssen et Roels [JAN-09].	132
Tableau III. 6. Paramètres d'ajustement pour la perméabilité à la vapeur d'eau des composites d'anas de lin selon une loi exponentielle.	133
Tableau III. 7. Propriétés de transport et de rétention de l'humidité des composites d'anas.	144

CHAPITRE IV : COMPORTEMENT DES COMPOSITES D'ANAS DE LIN À LA LIXIVIATION

Tableau IV. 1. pH des plateaux et quantité d'acide ajoutée correspondante.	161
Tableau IV. 2. Caractéristiques physico-chimiques des lixiviats	171

TABLE DES MATIÈRES

INTRODUCTION GENERALE	1
CHAPITRE I : ETAT DE L'ART	4
I. LES BETONS LIGNOCELLULOSIQUES : POURQUOI, COMMENT ?	5
I.1. CONTEXTE	5
I.2. DEFINITIONS	6
I.2.1. LES BETONS LEGRS	6
I.2.2. LES BETONS DE GRANULATS LEGRS	8
I.3. LES RESSOURCES LIGNOCELLULOSIQUES ASSOCIEES AU CIMENT	9
I.3.1. LES DIFFERENTES RESSOURCES LIGNOCELLULOSIQUES UTILISEES	9
I.3.2. LEURS PRINCIPAUX CONSTITUANTS	10
I.3.2.1. LA CELLULOSE	11
I.3.2.2. LES LIGNINES	12
I.3.2.3. LES PECTINES	12
I.3.2.4. LES HEMICELLULOSES	13
I.3.2.5. LES EXTRACTIBLES	13
I.3.3. LES ANAS DE LIN	13
I.4. LES PROPRIETES MECANQUES ET THERMIQUES DES BETONS LIGNOCELLULOSIQUES EXISTANTS	17
II. DE L'IMPORTANCE DE L'EAU	19
II.1. INTERACTIONS AVEC LES GRANULATS LIGNOCELLULOSIQUES	19
II.1.1. LA CAPACITE D'ABSORPTION D'EAU	19
II.1.2. LES TRAITEMENTS POSSIBLES	21
II.2. INTERACTIONS AVEC LE CIMENT	22
II.2.1. COMPOSITION DU CIMENT PORTLAND ARTIFICIEL (CPA)	22
II.2.2. LES REACTIONS CHIMIQUES DURANT L'HYDRATATION DU CIMENT	24
II.3. INTERACTIONS AVEC LE MATERIAU	25
II.3.1. COMPORTEMENT DES COMPOSITES LIGNOCELLULOSIQUES VIS A VIS DE L'EAU	25
II.3.2. CARACTERISATION HYGRIQUE DES MATERIAUX	26
II.3.2.1. GENERALITES	26
II.3.2.2. LES ISOTHERMES DE SORPTION	27
II.3.2.3. LA PERMEABILITE A LA VAPEUR D'EAU	31
II.3.2.4. LA CAPACITE TAMPON A LA VAPEUR D'EAU	32
II.3.3. CARACTERISATION ENVIRONNEMENTALE DES MATERIAUX	34
II.3.3.1. METHODOLOGIES D'EVALUATION DES RISQUES ENVIRONNEMENTAUX	34
II.3.3.2. LA LIXIVIATION	37
II.3.3.3. FACTEURS INFLUENCANT LA LIXIVIATION	39
II.3.3.4. LIXIVIATION DES ELEMENTS TRACES METALLIQUES PAR LES BETONS	43
III. CONCLUSION	44

CHAPITRE II : ELABORATION ET CARACTERISATION DES ECO-COMPOSITES A BASE D'ANAS DE LIN	46
INTRODUCTION	47
A. LES MATIERES PREMIERES	47
I. CONSTITUANTS DES ECO-COMPOSITES	47
I.1. LE CIMENT	47
I.2. LES ANAS DE LIN	48
I.3. L'EAU	48
II. METHODES DE CARACTERISATION DES ANAS DE LIN	48
II.1. CAPACITE D'ABSORPTION D'EAU	48
II.2. ANALYSE MORPHOLOGIQUE	49
II.3. MICROSCOPIE ELECTRONIQUE A BALAYAGE (MEB)	50
II.4. MASSES VOLUMIQUES	51
II.4.1. MASSE VOLUMIQUE APPARENTE	51
II.4.2. MASSE VOLUMIQUE REELLE	52
III. PROCEDES DE TRAITEMENT DES ANAS DE LIN	53
III.1. PROCEDE DE TRAITEMENT A BASE DE CHAUX	53
III.2. PROCEDES DE TRAITEMENT A BASE D'HUILE DE LIN	54
III.2.1. PROCEDE DE TRAITEMENT A BASE D'HUILE DE LIN BRUTE	54
III.2.2. PROCEDE DE TRAITEMENT A BASE D'EMULSION D'HUILE DE LIN	54
III.3. PROCEDE DE TRAITEMENT PAR LA CIRE DE PARAFFINE	55
III.3.1. ETUDE PRELIMINAIRE	56
III.3.2. OPTIMISATION DE LA METHODE D'ENROBAGE	57
B. LES ECO-COMPOSITES	59
I. FABRICATION ET CONSERVATION DES EPROUVETTES	59
II. METHODES DE CARACTERISATION DES MATERIAUX	60
II.1. DETERMINATION DES PROPRIETES THERMIQUES	60
II.2. DETERMINATION DES PROPRIETES MECANIQUES	62
II.2.1. RESISTANCE A LA FLEXION	62
II.2.2. RESISTANCE A LA COMPRESSION	63
II.2.3. MODULE D'ELASTICITE	64
II.3. DETERMINATION DES VARIATIONS DIMENSIONNELLES	65
II.3.1. VARIATIONS DIMENSIONNELLES AU SECHAGE	66
II.3.2. VARIATIONS DIMENSIONNELLES EXTREMES	67
II.4. ANALYSE MICROSTRUCTURELLE	67
II.5. MESURE DU COMPORTEMENT VIS-A-VIS DE L'EAU	67
II.5.1. DETERMINATION DE LA CAPILLARITE	67
II.5.2. DETERMINATION DE L'IMBIBITION	69

C. L'INFLUENCE DES PROCEDES DE TRAITEMENT SUR LES GRANULATS ET LES MATERIAUX	70
I. IMPACT SUR LES PROPRIETES DES ANAS DE LIN	70
I.1. CAPACITE D'ABSORPTION D'EAU	70
I.2. MORPHOLOGIE DES ANAS DE LIN AVANT ET APRES TRAITEMENT	75
I.3. MASSES VOLUMIQUES	77
II. IMPACT DES PROCEDES SUR LES PROPRIETES DES ECO-COMPOSITES	79
II.1. PROPRIETES THERMIQUES	79
II.2. RESISTANCES MECANIQUES	83
II.3. VARIATIONS DIMENSIONNELLES	90
II.3.1. VARIATIONS DIMENSIONNELLES AU SECHAGE	91
II.3.2. VARIATIONS DIMENSIONNELLES EXTREMES	93
II.4. MESURE DU COMPORTEMENT VIS-A-VIS DE L'EAU	95
II.4.1. LA CAPILLARITE	95
II.4.2. L'IMBIBITION	98
III. CONCLUSION	101
 CHAPITRE III : COMPORTEMENT HYGRIQUE DES COMPOSITES A BASE D'ANAS DE LIN	 103
III.1. INTRODUCTION	104
III.2. ETUDE EXPERIMENTALE	105
III.2.1. LES ISOTHERMES DE SORPTION	105
III.2.2. LA PERMEABILITE A LA VAPEUR D'EAU	107
III.2.3. LA CAPACITE TAMPON A LA VAPEUR D'EAU	111
III.3. RESULTATS ET ANALYSES	113
III.3.1. LA SORPTION D'HUMIDITE	113
III.3.1.1. LES MODES DE FIXATION D'HUMIDITE DANS UN MATERIAU POREUX	113
III.3.1.2. LES ISOTHERMES DE SORPTION	114
III.3.2. LA PERMEABILITE A LA VAPEUR D'EAU	120
III.3.2.1. METHODE DE LA COUELLE SECHE	126
III.3.2.2. METHODE DE LA COUELLE HUMIDE	127
IV.3.2.3. EVOLUTION DU TRANSPORT DE LA VAPEUR D'EAU EN FONCTION DE L'HUMIDITE RELATIVE	130
IV.3.2.4. LA DIFFUSIVITE ET L'EFFUSIVITE HYDRIQUES	134
IV.3.3. LA CAPACITE TAMPON HYDRIQUE	138
III.4. CONCLUSION	145
 CHAPITRE IV : COMPORTEMENT DES COMPOSITES D'ANAS DE LIN A LA LIXIVIATION	 147
IV.1 INTRODUCTION	148
IV.2 METHODES EXPERIMENTALES	149
IV.2.1 TEST DE DEPENDANCE AU PH	149

IV.2.2. TEST DE PERCOLATION	151
IV.2.3. TEST DE LIXIVIATION	153
IV.3. CARACTERISATION ANALYTIQUE	154
IV.3.1. MESURE DE LA TURBIDITE, DE LA CONDUCTIVITE ELECTRIQUE ET DU PH	154
IV.3.2. CHROMATOGRAPHIE IONIQUE	154
IV.3.3. DOSAGE DES SUCRES TOTAUX	155
IV.4. RESULTATS ET ANALYSES	156
IV.4.1. TESTS DE DEPENDANCE AU PH	157
IV.4.1.1. CAPACITE DE NEUTRALISATION ACIDE	157
IV.4.1.2. INFLUENCE DU PH SUR LA MOBILISATION DES IONS CALCIUM ET SODIUM	162
IV.4.2. TEST DE PERCOLATION	163
IV.4.2.1 SUIVI DU PH DES PERCOLATS	163
IV.4.2.2. DISPONIBILITE DES IONS EN FONCTION DU TEMPS	164
IV.4.3. TEST DE LIXIVIATION	170
IV.4.3.1 DISPONIBILITE DES PRINCIPAUX IONS DANS LES COMPOSITES CIMENTAIRES	170
IV.4.3.2. DECOMPOSITION DES GRANULATS LIGNOCELLULOSIQUES DANS LES COMPOSITES	175
IV.5. CONCLUSION	178
CONCLUSION GENERALE ET PERSPECTIVES	180
REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES	184
GLOSSAIRE	201
ANNEXES	205
ANNEXE I: DISTRIBUTION MORPHOLOGIQUE DES ANAS TRAITES	206
ANNEXE II: CHROMATOGRAPHIE IONIQUE METROHM 883 BASIC IC PLUS	206
ANNEXE III: SPECTROPHOTOMETRE SERIE 67	206

INTRODUCTION GENERALE

Une grande quantité de déchets agricoles est générée chaque année de toutes les régions du monde. Différentes ressources lignocellulosiques sont donc disponibles localement comme des déchets de cultures à vocation alimentaire (pailles de diverses céréales), non alimentaire (pailles de lin oléagineux et déchets agro-forestiers) et textile (pailles de lin fibre et de chanvre).

La réutilisation de ces déchets, ou co-produits, dans le domaine des matériaux de construction comme matière première en substitution de granulats minéraux non renouvelables, offre une alternative intéressante pour relever le défi de leur élimination et résoudre un problème environnemental.

Au cours des quatre dernières décennies, plusieurs rapports sur l'utilisation de matières lignocellulosiques dans la fabrication de composites cimentaires ont été publiés [BED-09] [KAR-05] [KHA-14] [LED-00] [MBO-04] [MON-11]. Les avantages les plus importants obtenus sont une réduction de la masse volumique des matériaux, permettant de les qualifier de légers, et une augmentation de leur caractère isolant thermique et acoustique.

La France étant le leader mondial dans la culture du lin [FAO-15], son industrie linière génère une grande quantité de co-produits dont la paille de lin, appelée anas. Les anas de lin possèdent une faible valeur et ils sont traditionnellement utilisés en paillage, en litière animale, en fabrication de bois aggloméré ou encore brûlés afin de fournir de l'énergie thermique [SAN-00]. Par conséquent, la recherche sur les matériaux de construction à base de ressources renouvelables comme les anas de lin est nécessaire.

Cette thèse traite de l'utilisation des anas de lin comme granulats légers dans une matrice cimentaire et plus spécifiquement des interactions entre les éco-composites élaborés et l'environnement. Depuis plus d'une décennie, des équipes internationales et françaises se sont structurées de manière à fournir des connaissances sur l'élaboration et les performances des bétons lignocellulosiques afin de disposer d'arguments permettant de convaincre les acteurs du bâtiment de leur intérêt. La valorisation des coproduits végétaux est l'un des thèmes principaux de l'équipe IMaP (Ingénierie des Matériaux et Procédés) de l'unité de recherche. Eco-Procédés, Optimisation, Aide à la Décision (EPROAD, EA 4669) de l'Université de Picardie Jules Verne.

Bien que certains chercheurs aient étudié les propriétés hydriques et hygriques à long terme de quelques types de bétons lignocellulosiques, il n'y a pas de recherches antérieures se rapportant aux composites cimentaires d'anas de lin, ni à la dégradation à long terme de ces granulats au sein de la une matrice de ciment. Les propriétés de tels composites doivent être déterminées par différents tests spécifiques (mécaniques, thermiques, hydriques, hygriques)

avant qu'ils puissent être utilisés en tant que matériau dans la construction. Cependant les anas de lin n'étant pas totalement compatibles avec une matrice cimentaire, ils conduisent à un retard de prise, des variations dimensionnelles importantes et des résistances mécaniques faibles des matériaux résultants. Pour éviter de tels inconvénients, il est nécessaire de traiter les anas avant leur mélange avec le ciment. Ainsi différents procédés de traitement ont été mis au point au cours du travail doctoral de M. Khazma [KHA-08].

Ce travail doctoral a impliqué le traitement des anas de lin et leur caractérisation. Puis ces anas ont été utilisés comme granulats légers pour formuler des composites cimentaires. Ces composites ont été soumis à de nombreux tests afin de déterminer leurs propriétés thermiques, mécaniques, hydriques et hygriques. Quatre substances enrobantes ont été utilisées pour le traitement des anas de lin : la chaux, l'huile de lin, une émulsion d'huile de lin et la cire de paraffine.

Le manuscrit de thèse se compose de la présente introduction, de quatre chapitres, d'une conclusion générale, de recommandations pour les recherches futures, d'une liste des références bibliographiques et d'annexes.

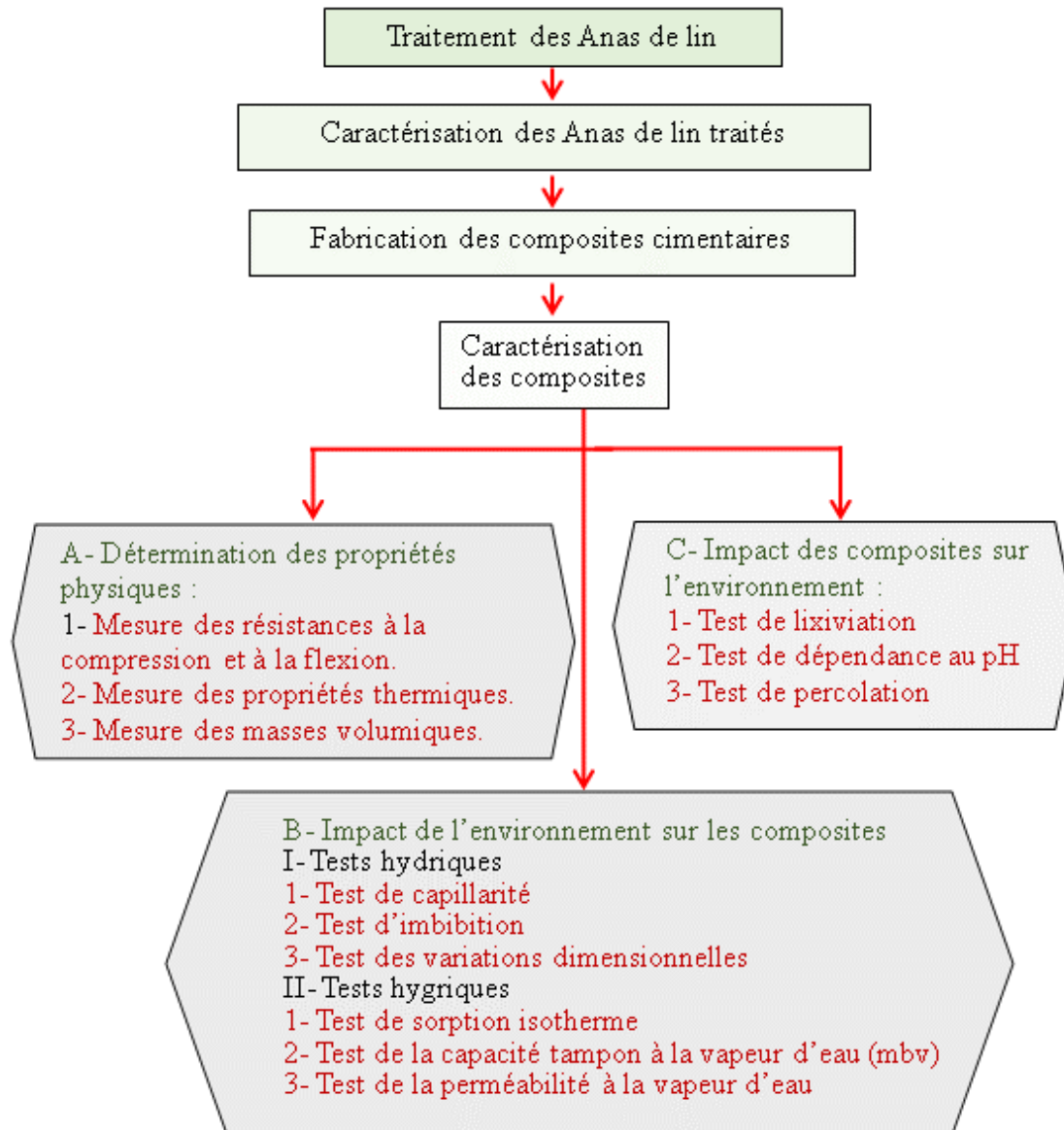
Le premier chapitre est une analyse bibliographique concernant les caractéristiques de base des bétons légers et lignocellulosiques, les granulats végétaux utilisés dans la fabrication de ce type de matériaux et les essais disponibles pour déterminer les propriétés hygriques et hydriques.

Le second chapitre porte sur l'élaboration et la caractérisation des éco-composites à base d'anas de lin. Outre la description de l'ensemble des techniques expérimentales permettant le traitement et la caractérisation des anas de lin, l'élaboration des composites et la détermination de leurs propriétés thermiques, mécaniques et physiques, ce chapitre discute l'effet des traitements d'enrobage d'une part sur les anas et d'autre part sur les composites.

Le troisième chapitre porte sur l'étude du transfert d'humidité dans les composites lignocellulosiques. En effet ce type de transfert peut considérablement influencer la durabilité et les performances des matériaux. Des dégradations peuvent être générées par des fluctuations de la teneur en humidité, entraînant une baisse des résistances mécaniques et thermiques. Les techniques expérimentales permettant de déterminer les propriétés hygriques des composites sont présentées, puis leur performance vis-à-vis de la vapeur d'eau est discutée.

Enfin le quatrième chapitre est consacré à l'étude de l'impact des éco-composites lignocellulosiques sur l'environnement. Pour étudier la capacité de relargage des éco-composites élaborés, différents tests de lixiviation ont été mis en place dont des percolations et des simulations de l'effet de pluies acides. Une conclusion générale et des perspectives clôturent ce manuscrit.

L'organigramme ci-dessous schématise la structuration des travaux doctoraux conduits.



CHAPITRE I : ETAT DE L'ART

I. LES BÉTONS LIGNOCELLULOSIQUES : POURQUOI, COMMENT ?

I.1. CONTEXTE

La COP 21 (Conference Of the Parties), qui a eu lieu à Paris en décembre 2015, a convenu d'un accord visant à renforcer la riposte mondiale à la menace des changements climatiques. Il s'agit de contribuer à l'atténuation des émissions de gaz à effet de serre et de promouvoir le développement durable, notamment par la gestion des ressources naturelles [CON-15].

Le secteur résidentiel constitue un secteur clé pour la réalisation des objectifs de la politique environnementale et climatique française tels que définis par la loi relative à la transition énergétique pour la croissance verte : division par quatre des émissions de gaz à effet de serre par rapport à leur niveau de 1990 et division par deux de la consommation d'énergie finale, à l'horizon 2050. La construction de logements neufs est mise à contribution dans la poursuite des objectifs de sobriété énergétique et de diminution des émissions de GES avec la montée en puissance de la réglementation thermique des bâtiments neufs, en complément de la rénovation des bâtiments existants. Depuis la réglementation thermique (RT) de 1974, dont la création répondait principalement à des préoccupations d'ordre économique dans le contexte du premier choc pétrolier, les normes de construction se sont renforcées successivement et prennent désormais en considération à la fois l'enjeu énergétique et l'enjeu climatique [COM-15]. Depuis le 1er janvier 2013, les logements doivent respecter les normes de la réglementation thermique 2012 (RT 2012). Celle-ci s'articule autour de trois dimensions : l'efficacité énergétique du bâti, qui influence les besoins en chauffage et en éclairage du logement ; la consommation d'énergie primaire, qui dépend, en plus de l'optimisation du bâti, du recours à des équipements énergétiques performants ; et enfin le confort thermique d'été, qui renvoie à l'évolution des températures du logement en cas de forte température extérieure [COM-15].

Les travaux du Grenelle de l'Environnement en 2007-2008, ont fait émerger de nouvelles priorités, et notamment celle de la construction durable. En effet, les matériaux biosourcés peuvent contribuer à la réduction de l'impact environnemental des bâtiments : non seulement ils sont issus d'une ressource renouvelable, mais ils permettent également de stocker le carbone pendant la durée de vie de la construction tout en présentant de bonnes performances d'isolation thermique. Ils peuvent aussi apporter des performances techniques améliorées par rapport aux produits existants : allègement des produits permettant de faciliter leur manipulation, bonne isolation phonique, etc. Enfin, ils présentent un intérêt socio-économique fort : les ressources végétales utilisées par cette filière sont produites sur le territoire national. Leur

exploitation nécessite cependant une structuration forte des filières, qui pourraient potentiellement générer des emplois [ADE-14].

Les ressources en matières premières susceptibles de fournir des granulats pour confectionner des bétons végétaux sont extrêmement larges. Si le bois et le chanvre sont aujourd'hui prégnants sur le marché, beaucoup d'autres végétaux – lin, miscanthus, roseaux, colza, tournesol, cosses de riz ou d'arachides, etc. – font l'objet de travaux de développement ambitieux. La diversification vient également du côté des liants, qu'il s'agisse de nouvelles formulations ou de l'utilisation de matériaux telle la terre crue [KOR-15].

Le marché des bétons est guidé à l'heure actuelle par une triple exigence [MON-07] :

- l'optimisation des matériaux existants (allègement, durabilité, fiabilité,..) ;
- la préservation de l'environnement en favorisant les procédés d'élaboration non polluants, le recyclage des produits, leur biodégradabilité ;
- la conception de matériaux nouveaux qui seront utilisés dans les technologies de demain (matériaux dits « intelligents », matériaux à propriétés spécifiques et innovantes, etc.).

Les domaines d'application des bétons lignocellulosiques sont variés, la plupart des industriels qui ont investi ce domaine, proposent :

- des chapes isothermiques et isophoniques ultra légères ;
- des dalles isolantes ;
- des panneaux « coupe son » pour routes et autoroutes ;
- des sols de terrains sportifs, qui offrent un confort de jeu exceptionnel.

I.2. DÉFINITIONS

I.2.1. LES BETONS LEGRS

Les bétons légers sont caractérisés par une masse volumique comprise entre 300 et 1900 kg/m³ alors que celle d'un béton ordinaire varie de 2200 à 2600 kg/m³.

Ils se différencient par l'emplacement de l'air au sein de leur structure. Si l'air est directement incorporé dans la matrice, on parle de béton cellulaire (Figure I. 1-a). S'il se situe entre de gros granulats, il s'agit de béton caverneux (Figure I. 1-b). Enfin si l'air se trouve au sein de granulats légers, on est en présence de béton de granulats légers (Figure I. 1-c). L'air qui est emprisonné dans le béton favorise la réduction de masse et augmente la résistance thermique. Ces caractéristiques peuvent se révéler techniquement et économiquement intéressantes.

Ces bétons légers peuvent être utilisés dans les structures lorsque leurs résistances sont élevées ou bien constituer une isolation thermique efficace lorsqu'elles sont faibles.

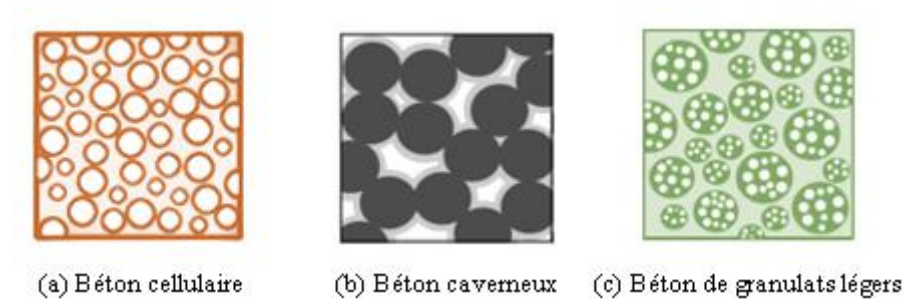


Figure I. 1. Représentation schématique des différents types de béton léger

La norme EN206-1 classe les bétons légers en cinq catégories suivant leur masse volumique (Tableau I.1).

Tableau I. 1. Classification des bétons légers selon la norme AFNOR NF-EN206-1

Classe	D 1,0	D 1,2	D 1,4	D 1,6	D 1,8
ρ (kg/m ³)	$800 < \rho \leq 1000$	$1000 < \rho \leq 1200$	$1200 < \rho \leq 1400$	$1400 < \rho \leq 1600$	$1600 < \rho \leq 1800$

Ils peuvent également être classés en prenant en compte leur résistance à la compression (Tableau I. 2).

Tableau I. 2. Classification des bétons légers selon la masse volumique et la résistance à la compression

Nom	ρ (kg/m ³)	R _c (MPa)
Caverneux	400 à 900	4 à 8
Semi-caverneux	1000 à 1200	6 à 15
Isolants et porteurs	1000 à 1400	15 à 22
Structurels	1500 à 2000	plus de 25

Les bétons **caverneux** sont utilisés pour leur qualité isolante. Ils sont destinés au remplissage de plancher ou aux dalles sur terre-plein lorsque la hauteur à rattraper est importante. On les recouvre d'une chape de mortier ou de béton armé.

Les bétons semi-caverneux sont un peu moins isolants mais plus résistants que les précé-

dents. Ils remplissent les mêmes fonctions et servent en plus à créer des dalles de béton légères sur un plancher de hourdis.

Les bétons isolants et porteurs sont destinés à la réalisation de dalles et à la construction de murs isolants.

Enfin les bétons structurels sont réservés aux dalles de compression, aux planchers en poutrelles de béton, voire à la réalisation des structures d'immeubles ou d'ouvrages d'art, dans lesquels le poids propre joue un rôle prépondérant.

En fonction de leurs résistances à la compression et flexion, les bétons de granulats légers peuvent être utilisés dans des ouvrages extérieurs pour construire des murs en maçonnerie, des murs en panneaux, des murs anti bruit... Ces bétons peuvent être également utilisés dans des ouvrages divers, des éléments de cave, des pavés autobloquants [PIM-94].

I.2.2. LES BÉTONS DE GRANULATS LÉGERS

En ce qui concerne les bétons de granulats légers, ils peuvent être classés selon leur fonction, la conductivité thermique (λ) étant également prise en compte. Le Tableau I.3 donne les caractéristiques des différentes classes fonctionnelles des bétons de granulats légers [RILEM-75].

Tableau I. 3. Différentes classes de bétons de granulats légers données par la RILEM [RILEM-75]

Classe	I	II	III
Type de bétons	Construction	Construction et isolation	Isolation
ρ (kg/m ³)	<2000	Non précisée	Non précisée
Rc (MPa)	>15,0	>3,5	>0,5
λ (W/mK)	-	<0,75	<0,3

Un béton lignocellulosique est un simple mélange de particules lignocellulosiques qui jouent le rôle de granulats légers et d'un liant, hydraulique dans notre cas, qui joue le rôle de la matrice. Ces granulats lignocellulosiques ont reçu une attention particulière dans les dernières années pour leur utilisation dans la fabrication de bétons légers en raison de leur faible coût, leur légèreté et leurs propriétés d'isolation thermique et acoustique liées à leur structure poreuse [KAR-05]. Les particules lignocellulosiques utilisées sont souvent des coproduits végétaux ce qui permet leur valorisation et l'obtention de composites aux qualités fonctionnelles et environnementales intéressantes à faible coût. De plus, l'importance de développer de tels composites réside dans le fait que la demande de matériaux isolants augmente de plus en plus

dans le but de réaliser une économie d'énergie et ainsi participer à la politique de développement durable.

I.3. LES RESSOURCES LIGNOCELLULOSIQUES ASSOCIÉES AU CIMENT

I.3.1. LES DIFFÉRENTES RESSOURCES LIGNOCELLULOSIQUES UTILISÉES

L'ajout de matières lignocellulosiques d'origine végétale à des matériaux de construction a été fait intuitivement depuis l'Antiquité. Récemment les fibres et les granulats lignocellulosiques ont été considérés en remplacement des fibres minérales ou synthétiques. Leurs sources sont nombreuses telles que le bois dur et mou, le chanvre, la noix de coco, le sisal, le palmier dattier (écorce de l'arbre et coque du fruit), le bambou ou bagasse (Tableau I. 4).

Tableau I. 4. Synthèse des études portant sur l'association de granulats lignocellulosiques et du ciment portland comme liant minéral

Plante	Matière valorisée	Source (s)	Références
Lin	Anas de lin	Co-produit agricole	[KHA-08-2]
Lin	Poussières de lin	Co-produit agricole	[AAM-08]
Betterave	Pulpe de betterave déshydratée	Déchet industrie alimentaire	[MON-07] [MBO-04]
Palmier à huile	coque de palmier à huile	Déchet industrie alimentaire	[TEO-07] [YEW-14]
Canne à sucre	bagasses	Déchet industrie alimentaire	[AGG-97] [BIL-03]
Noix de coco	Coque	Déchet industrie alimentaire	[OLO-09]
Chêne-liège	liège granulat	Déchet industrie du liège	[KAR-05] [KAR-06] [HAC-89]
Sapin	Copeaux de bois	Déchet industrie du bois	[BED-07] [LED-00] [BEL-14]
Miscanthus	Tige	Co-produit	[LEN-01]

La partie ligneuse de la tige est maintenant considérée avec un intérêt croissant, ainsi que les fibres de l'épiderme. Ceci est lié au souhait des concepteurs de bâtiments d'utiliser, autant que possible, des matériaux locaux, qui sont des sous-produits ou des déchets [BEC-09]. En France, les ressources utilisées sont principalement issues du chanvre et du lin, plantes cultivées pour leur tige fibreuse. La partie ligneuse de ces plantes est principalement employée pour la production d'énergie thermique et le paillage des animaux [KAR-04]. La filière du chanvre français et belge est mieux structurée pour développer des applications de la

chènevotte que celle du lin. Le béton de ciment et d'anas de lin est l'objet de recherches depuis plus de 10 ans principalement en France.

I.3.2. LEURS PRINCIPAUX CONSTITUANTS

Il existe une très grande variété de matériaux cellulosiques naturels dont la composition est complexe et inégale. La cellulose, l'hémicellulose et la lignine sont les principaux constituants des parois cellulaires des plantes supérieures, mais elles contiennent également des protéines, des ions, des cendres et de l'eau. Les molécules de cellulose déterminent le cadre de la paroi cellulaire et la pectine se trouve entre les microfilaments de cellulose de la paroi cellulaire. Les propriétés et fonctions de ces molécules ainsi que leurs interactions sont complexes [COS-05]. La compréhension de la composition chimique et de la structure des matériaux lignocellulosiques naturels contribuerait à la recherche et au développement des composites incorporant des granulats lignocellulosiques naturels.

Tableau I. 5. Composition chimique de différents granulats lignocellulosiques

Granulat	Composition chimique %						Références
	Cellulose	Hémi-cellulose	Lignine	Pectine	Cire	Cendres	
Anas de lin	53	13	24	0,4-5	-	2,7	[KHA-08]
Pulpe de betterave	21	23	2-6	30	-	5	[MON-07]
Chènevotte	48	12	28	6	4	2	[GAR-98]
Tige de tournesol	42,1	29,7	13,4	5,9	1	7,9	[JIM-03]
Canne à sucre	41,7	28	21,8	10		3,5	[SIE-11]
Coco	43	0,3	45	4	-	1,1	
Liège	9	11	22	-	-	0,7-1,1	[KAR-11]
Bois	38,8	26,3	29,3	-	-	-	[BEL-14]
Coque de palmier à huile	14,7	16,4	53,6	-	2,3	2,3	[YUL-12]

Dans le Tableau I. 5, la composition chimique de quelques granulats lignocellulosiques naturels est donnée. La teneur en cellulose des granulats de lin (anas) est relativement élevée par rapport aux autres granulats présentés dans ce tableau. Plus la teneur en cellulose dans la particule est élevée, plus celle-ci présente une résistance à la traction et un module d'élasticité élevés [BOS-04]. Le bois, la coque de palmier à huile et la pulpe de betterave ont des quantités relativement faibles de cellulose en comparaison avec les autres granulats végétaux du tableau.

I.3.2.1. LA CELLULOSE

La cellulose est le composant organique le plus important dans la paroi de la cellule végétale. De formule $(C_6H_{10}O_5)_n$, son degré de polymérisation est d'environ 15000 unités.

Il s'agit d'un homopolymère linéaire constitué d'unités β -D- glucopyranose, liées entre elles par des liaisons glycosidiques en β 1 $\rightarrow$ 4 [LIP-05] (Figure I. 2). La présence de nombreux groupes hydroxyles dans la cellulose autorise la formation de liaisons hydrogène, intermoléculaires et intramoléculaires, et donne à la cellulose sa linéarité et sa rigidité considérable.

Les liaisons hydrogène favorisent l'organisation de la cellulose sous forme cristalline et la rendent insoluble dans l'eau. Grâce aux liaisons hydrogène, les chaînes de cellulose se regroupent en microfibrilles qui forment des régions cristallines et amorphes. Ensuite les microfibrilles sont agglomérées en fibrilles puis en fibres de cellulose. Cette organisation est responsable de l'élasticité et de la résistance à la traction des fractions végétales en contenant.

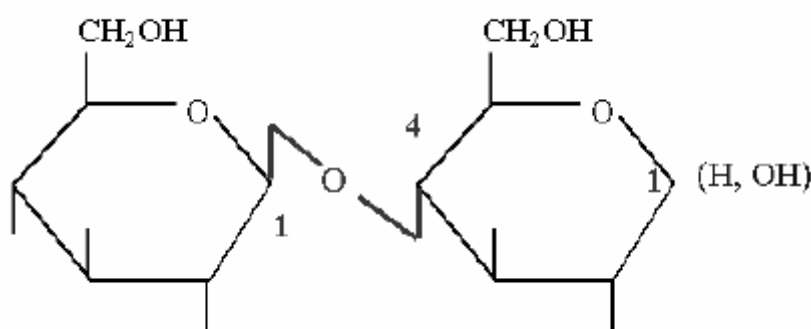


Figure I. 2. Structure d'un monomère de la cellulose β -D- glucopyranosyl (1 4) D-glucopyranose

I.3.2.2. LES LIGNINES

Les lignines sont le principal constituant des tissus vasculaires des plantes. Elles représentent 20 à 30% du carbone de la biomasse végétale ; c'est donc, après la cellulose, le deuxième composé organique de la biosphère. La concentration en lignine varie selon les espèces. Il s'agit d'un réseau complexe de polymères aromatiques de masse moléculaire élevée, celui-ci étant composé d'unités phényl-propane diversement substituées [SAR-71]. Cependant la structure de la lignine reste complexe et non entièrement élucidée. Elle assure le soutien structurel de la plante, la pigmentation ou encore la défense contre d'éventuelles infections pathogènes. La lignine est distribuée tout autour de la paroi secondaire qui compose la lamelle moyenne. Sa grande majorité (environ 70 à 80%) est localisée dans cette région [ERI-90] d'où la richesse des anas en lignine.

I.3.2.3. LES PECTINES

Les substances pectiques sont des complexes macromoléculaires glycosidiques (polysaccharides), de grande masse moléculaire (25 à 360 kDa), chargées négativement. Elles sont présentes dans toutes les plantes (0,5 - 4% de la masse des plantes) et sont localisées dans la lamelle moyenne (espace séparant deux cellules adjacentes) sous forme de pectates de sodium ou de magnésium [SAK-93]. Elles contribuent à la rigidité de la cellule végétale lorsqu'elles sont liées à la cellulose de la paroi cellulaire. La pectine est la famille la plus structurellement complexe de polysaccharides dans la nature. La pectine est une famille de polysaccharides riches en acide galacturonique [MOH-08]. Elle est composée de trois éléments principaux : le rhamnogalacturonane I (RGI), le rhamnogalacturonane II (RGAI) et l'homogalacturonane (Hg). La chaîne primaire consiste en des unités α -D-galacturonate (Figure I. 3) unies par des liaisons α (1 $\rightarrow$ 4). Les chaînes secondaires sont constituées d'arabinose, de galactose, d'arabinogalactanes, de xyloses et fucoses.

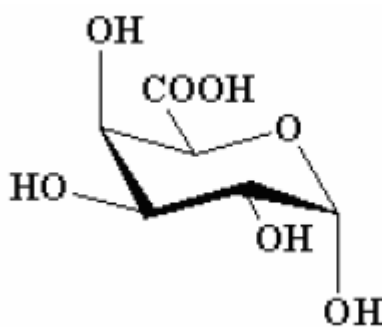


Figure I. 3. Structures de l'acide α -D-galacturonique composant principal des pectines

I.3.2.4. LES HÉMICELLULOSES

Les hémicelluloses sont des polysaccharides dont la chaîne principale linéaire est constituée de xylose, de mannose et de galactose. Elles sont présentes dans la plupart des parois des cellules de la plante sous forme de chaînes courtes ramifiées et repliées sur elles-mêmes. Leur structure amorphe et leur degré de polymérisation (situé entre 200 et 300 unités) sont fonction de l'espèce végétale [SCH-10].

Les hémicelluloses se lient à la cellulose avec de la pectine pour former un réseau de fibres réticulées de manière à conférer résistance aux chocs, à la flexion et à la compression [CRA-76]. Les hémicelluloses sont solubles dans l'eau et peuvent être extraites de la paroi des cellules végétales par des solutions alcalines.

I.3.2.5. LES EXTRACTIBLES

Les matériaux lignocellulosiques contiennent un certain nombre de molécules solubles dans l'eau ou dans des solvants (alcool, éther, benzène), désignés comme extractibles. Les principaux extractibles sont de nature organique (les tanins hydrolysables et catéchiques, les terpènes et terpénoïdes, les composés aliphatiques (acides gras, cires, alcools gras, alcanes) et les sucres simples) ou inorganique (sels minéraux à base de calcium, de magnésium et de potassium). Ils apportent aux fractions végétales des propriétés comme l'odeur, la couleur, l'hygroscopicité et la durabilité.

I.3.3. LES ANAS DE LIN

Les anas de lin sont les granulats lignocellulosiques choisis pour élaborer les composites cimentaires dans cette étude. Nous allons donc parler de ce genre de granulats en détail. Le lin (*Linum usitatissimum*) est un membre du genre *Linum*. Il s'agit d'une plante de la famille *Linaceae* cultivée soit pour ses graines oléo-protéagineuses (lin oléagineux) dont la teneur en huile varie de 35 à 45%, soit pour les fibres contenues dans sa tige (lin fibre).

Le lin est cultivé dans les régions froides, en particulier en Europe, depuis le Moyen-âge. La France est le leader mondial dans la culture du lin teillé (Figure I. 4).

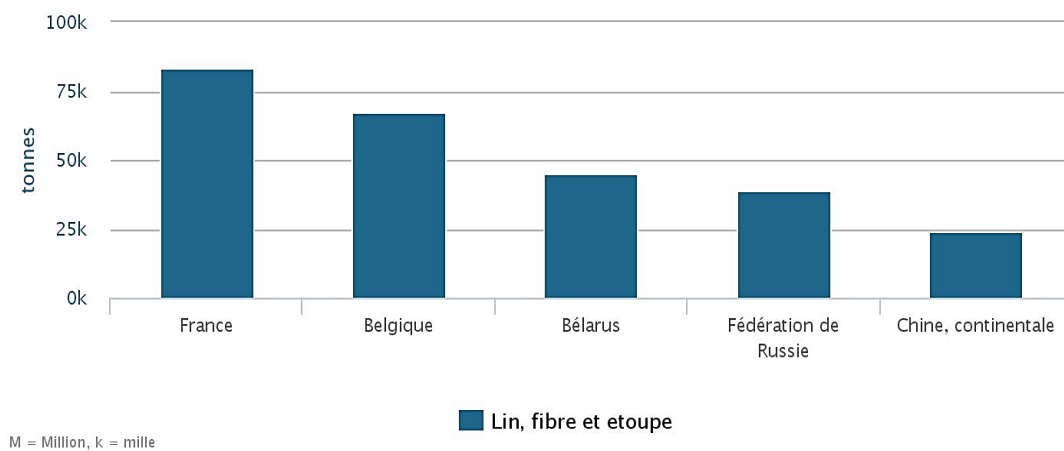


Figure I. 4. Les cinq premiers producteurs de lin (moyenne 2013 – 2014) [FAO-15]

Sa production de fibres de lin et d'étoupes en 2013 atteignait 83100 t [FAO-15]. La majorité de cette production devient des anas de lin (co-produit) comme le montre la Figure I.5. Cela équivaut à environ 194 000 tons d'anas de lin [THF-14].

La tige de lin est haute de 40 à 80 cm et riche en fibres longues. Le lin est arraché lorsque les capsules sont jaune-vert et laissé au sol en andains pour effectuer le rouissage. Le rouissage permet la décomposition des ciments qui lient les fibres grâce aux microorganismes du sol. À la fin de l'extraction des fibres longues, on obtient des étoupes (fibres courtes), des poussières de lin et les anas de lin comme coproduits peu valorisés.

La paille de lin, aussi connue sous le nom d'anas de lin, provient de l'intérieur de la tige de lin. Les anas de lin sont une fraction lignocellulosique qui aide la plante à rester rigide pendant la phase de croissance et la production de la graine. En masse, la teneur des anas de lin représente jusqu'à 70% du contenu de la tige de lin. Leur diamètre ne dépasse pas 2 mm soit le diamètre de la tige et leur longueur dépend du procédé de teillage. Les anas de lin sont caractérisés par une structure poreuse d'où une capacité d'absorption d'eau élevée.

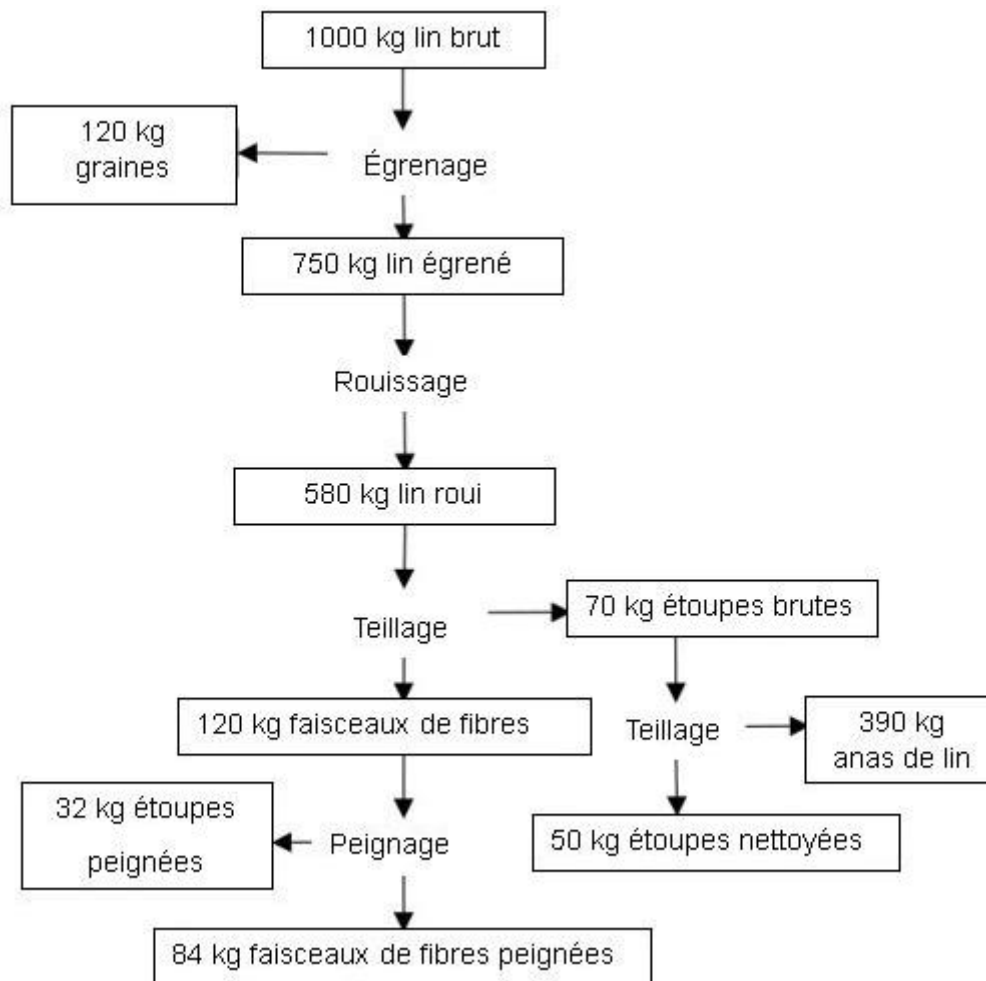


Figure I. 5. Méthode d'extraction de la fibre de lin et produits résultants (la perte de masse est due à la perte de composants solubles dans l'eau et de poussières) [HAR-04]

Traditionnellement, les anas de lin sont considérés comme un déchet (26 €/T) [GON-09] ou utilisés dans des applications de faible valeur (panneaux de fibres, litière animale, paillage et combustible pour l'énergie thermique) [KHA-12]. La grande quantité produite (50% des produits de lin) et la difficulté à écouler les anas de lin sur le marché expliquent l'intérêt pour de nouvelles utilisations. Les anas proviennent de la partie centrale de la tige (Figure I. 6).

Les anas possèdent une structure alvéolaire caractéristique. Les vides entre les particules représentent entre 5 et 10% du volume. Les anas de lin renferment de nombreuses macromolécules susceptibles d'interagir directement ou non dans une matrice cimentaire comme les pectines, les hémicelluloses et les extractibles. Les hémicelluloses et les pectines (produit majoritaire des extractibles) sont capables de passer dans le milieu cimentaire au cours du malaxage [KHA-08].

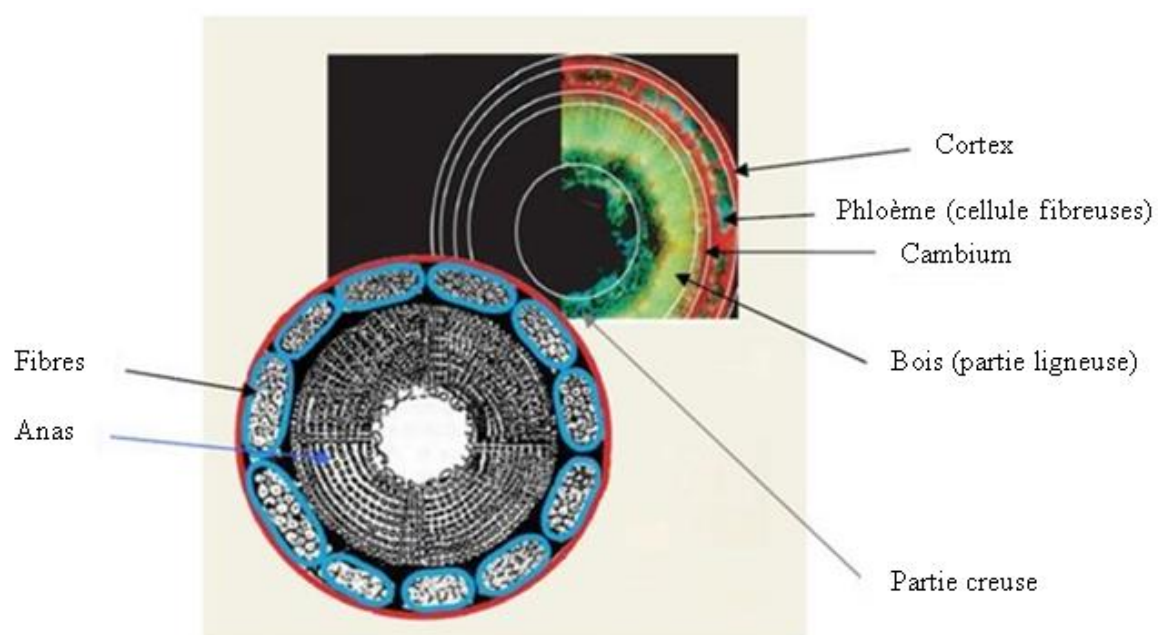


Figure I. 6. Morphologie du lin et localisation des anas au sein de la plante de lin
[LIP-05]

I.4. LES PROPRIÉTÉS MÉCANIQUES ET THERMIQUES DES BÉTONS LIGNOCELLULOSIQUES EXISTANTS

La combinaison des fractions lignocellulosiques dans une matrice cimentaire génère un certain nombre de problèmes en raison des interactions pouvant exister entre les granulats lignocellulosiques hydrophiles et le ciment [DUP-05]. En conséquence un traitement des granulats peut s'avérer nécessaire pour mieux fonctionnaliser les bétons lignocellulosiques. Deux types de liaison entre les granulats et le ciment se présentent du point de vue structure à l'échelle microscopique : (i) l'adhérence est liée à la rugosité et à la structure poreuse des granulats [PAR-77], ou (ii) l'adhérence est expliquée par des liaisons hydrogènes et des ponts hydroxydes formés entre les groupements hydroxyles du ciment et les groupements hydroxyles, phénoliques et carboxyliques des granulats [COU-84] [RAM-92]. Le ciment contient des groupes hydroxyles liés aux atomes de carbone, de calcium, de silicium et d'aluminium. L'adhérence fragile des granulats et du ciment influe sur le durcissement du composite durant toute la période d'hydratation du ciment dans le béton [APP-02] [POP-87] [SUK-06]. Cela peut avoir deux conséquences, une diminution de la résistance mécanique due à un défaut d'hydratation du ciment lié à la grande capacité de rétention d'eau par les granulats [HAC-88] [HAC-89], et un retard de prise dû au relargage de certaines substances dans le ciment et notamment des sucres. En effet, le pH fortement basique du ciment en présence d'eau déclenche une réaction d'hydrolyse de certains polysaccharides. Les produits d'hydrolyse de masse moléculaire faible sont solubles et passent facilement dans la matrice cimentaire ce qui peut se traduire par un phénomène de retard de prise [PIM-94]. Ce retard serait lié à la complexation des extraits organiques avec les ions métalliques présents. Cela abaisserait la concentration des ions Ca^{2+} dans la solution et pourrait perturber son équilibre, entraînant un retard dans la nucléation de la Portlandite $\text{Ca}(\text{OH})_2$ et du gel de C-S-H [KAR-05]. Les propriétés mécaniques et thermiques des bétons lignocellulosiques diffèrent d'une ressource lignocellulosique à l'autre de par leur composition chimique et leur morphologie différentes, mais aussi de par les proportions et les méthodes de fabrication. Le Tableau I. 6 présente les propriétés physiques de quelques composites incorporant des granulats lignocellulosiques bruts et traités. Dans une matrice cimentaire, les végétaux bruts conduisent d'une part à l'amélioration des propriétés thermiques et d'autre part à une diminution de la masse volumique et un affaiblissement des propriétés mécaniques.

Concernant les anas de lin, quel que soit le traitement qui leur est appliqué, le temps de prise a été réduit de 37 à 68% [KHA-08], les résistances mécaniques ont été améliorées et la conductivité thermique a été légèrement augmentée en comparaison avec le composite d'anas bruts [KHA-08].

Tableau I. 6. Propriétés de quelques composites incorporant des granulats lignocellulosiques

Type de granulats lignocellulosiques	Rapport granulats/ciment (%)	Résistance mécanique (MPa)	λ (W.m ⁻¹ .K ⁻¹)	Masse volumique (kg.m ⁻³)	Références
Pulpes de betterave					
- Brut	300 (R.V.)	0,11 ⁽¹⁾	0,08	500	[MON-07]
-Traité par hdl	300	0,10 ⁽¹⁾	0,19	630	
-Traité par chaux	300	0,13 ⁽¹⁾	0,09	650	
-Traité par ciment	200	0,17 ⁽¹⁾	0,16	670	
Bagasse de tige de canne	0- 20 (R.M.)	8,85-9,60 ⁽²⁾	-	1550-1650	[AGG-97]
Chènevotte	16 (R.M.)	0,18-0,40 ⁽³⁾ 0,83-1,19 ⁽³⁾	0,179-0,485	291-485 430-601	[ELF-08]
Copeaux de bois					
-Brut	-	8,9 ⁽³⁾ et 3,8 ⁽¹⁾	0,22 - 0,25	850	[LED-00]
-Traité par hu		7,5- 8,8 ⁽³⁾		900-980	
-Traité par HDL		1,8-2,7 ⁽¹⁾		900-980	
-Traité par HDL		8,5-8,8 ⁽³⁾ 2,9-3,3 ⁽¹⁾		900-1000	
Miscanthus					
- Brut	5 (R.M.)	25 ⁽³⁾ et 3,1 ⁽²⁾	-	-	[LEN-01]
-Traité par AER		10 ⁽³⁾ et 3,2 ⁽²⁾	-	1420	
-Traité par NER		12 ⁽³⁾ et 3,1 ⁽²⁾	-	1414	
Particules de bois de pin	-	1.10-6,64 ⁽³⁾ 0,57-1,65 ⁽²⁾	-	800 à 1220	[WOL-99]

(1) : résistance à la traction ; (2): résistance à la flexion; (3) : résistance à la compression; hu : huile usagée ; HDL : huile de lin; AER : résidus enzymatiques prétraités avec de l'acide avant saccharification ; NER : les résidus enzymatiques prétraités avec de l'ammoniaque avant la saccharification ; R.V. : rapport volumique; R.M. : rapport massique.

II. DE L'IMPORTANCE DE L'EAU

II.1. INTERACTIONS AVEC LES GRANULATS LIGNOCELLULOSIQUES

II.1.1. LA CAPACITE D'ABSORPTION D'EAU

Le processus par lequel le liquide pénètre dans les granulats et l'augmentation de masse (ou de volume) qui en résulte sont appelés absorption. L'absorption peut varier dans de très larges mesures suivant la nature du granulat.

Les granulats lignocellulosiques sont connus pour leur forte capacité de rétention d'eau car il s'agit de matériaux poreux. En d'autres termes, ils comportent des pores ou vides. Ces pores sont déterminants pour la capacité d'absorption d'eau. En effet, une forte porosité indique la forte capacité d'absorption d'eau.

L'étude de la capacité d'absorption d'eau par les granulats lignocellulosiques a fait l'objet de l'attention de nombreux chercheurs [KHA-12] [LED-00] [NOZ-12-2]. En effet, le comportement d'absorption d'eau a été étudié de manière intensive car c'est une caractéristique importante qui détermine les applications d'utilisation finale des composites granulats végétaux-ciment.

Les anas, en raison de leur origine biologique, ont la capacité d'interagir avec l'eau. La sorption/désorption d'humidité est accompagnée d'un gonflement/rétraction et d'un ramollissement/durcissement de sa structure. Les anas absorbent une certaine quantité d'eau afin d'établir un équilibre avec leur environnement. La faible résistance des anas à l'absorption d'humidité peut modifier leurs propriétés (densité, dimensions, propriétés mécaniques, résistance aux champignons) et provoquer des effets indésirables sur les propriétés mécaniques des matériaux dans lesquels ils sont incorporés. L'effet de l'eau sur les anas doit donc être considéré.

L'étude de cette propriété est fondamentale car les composites à base des anas sont souvent soumis à l'environnement où les conditions d'humidité changent rapidement.

Les anas sont caractérisés par une capacité d'humectation faible (peu de remontée d'eau capillaire) [LEL-15]. Le pH est relativement élevé, environ 7,2, lors de leur trempage dans l'eau, mais la capacité d'échange cationique est assez faible (21 meq/l). L'utilisation des fibres naturelles comme renforcement a été limitée par leur sensibilité à l'absorption d'eau, en raison de leur composition chimique qui est riche en cellulose, de nature hydrophile [MUN-15].

L'absorption d'eau se produit par des liaisons hydrogènes via les groupements hydroxyles accessibles de la lignine, des hémicelluloses et de la cellulose. Durant l'absorption d'eau, les

parois cellulaires commencent à gonfler à cause de l'eau occupant un espace dans le polymère et les matériaux lignocellulosiques se dilatent jusqu'à l'état de saturation en eau de ces parois. Ce phénomène est réversible parce que les particules lignocellulosiques se contractent quand elles perdent de l'humidité [KOL-68] [ROW-88]. L'eau joue un rôle de plastifiant pour les chaînes de polymères constituant les parois cellulaires et augmente la mobilité de ces chaînes. Le taux d'humidité doit alors être connu, voire maîtrisé avant toute mesure de chacune des propriétés des anas. L'hygroscopie a pour conséquence de rendre délicate l'utilisation des particules lignocellulosiques comme granulats dans des matrices cimentaires.

La norme française (NF B 51-004 Septembre 1985) préconise de mesurer la masse anhydre d'un échantillon après séchage à $103 \pm 2^\circ\text{C}$ jusqu'à obtention d'une masse constante. Au sein des substances lignocellulosiques, trois formes d'eau peuvent être répertoriées [SHE-05] :

- **L'eau libre** : la majeure partie de l'eau contenue dans le lumen des cellules est maintenue uniquement par des forces capillaires. Elle n'est pas liée chimiquement et est appelée eau libre. L'eau libre n'est pas dans le même état thermodynamique que l'eau liquide : l'apport d'énergie est nécessaire pour surmonter les forces capillaires. En outre, l'eau libre peut contenir des produits chimiques, modifiant les caractéristiques de séchage des particules lignocellulosiques.
- **L'eau liée ou hygroscopique** : des liaisons hydrogène lient cette eau aux particules lignocellulosiques. L'attraction des particules pour l'eau résulte de la présence de groupes hydroxyles libres (OH) dans la cellulose, les hémicelluloses et les molécules de lignine dans la paroi de la cellulose. Les groupes hydroxyles sont chargés négativement. Comme l'eau est un liquide polaire, les groupes hydroxyles libres de la cellulose attirent et retiennent l'eau par liaison hydrogène.
- **L'eau vapeur** : l'eau dans le lumen des cellules sous forme de vapeur d'eau est normalement négligeable à température et à humidité normales.

L'eau en contact avec les surfaces de particules lignocellulosiques est capable de pénétrer la structure cellulaire de trois manières : comme eau liquide dans le lumen cellulaire par capillarité ; comme vapeur d'eau par diffusion dans le lumen cellulaire ; comme eau liée par diffusion à l'intérieur de la paroi cellulaire. La capillarité est le procédé plus rapide et il peut être contrôlé par l'utilisation de cires hydrofuges ou de résines.

II.1.2. LES TRAITEMENTS POSSIBLES

Au cours des quatre dernières décennies, plusieurs rapports sur l'utilisation de fractions lignocellulosiques pour produire des composites liés au ciment ont été publiés. Ceux-ci comprennent divers déchets trouvés dans les différents pays [KAR-10] [SAV-03] [KHA-12].

Dans les granulats lignocellulosiques, les composants hydrophiles sont à l'origine de leur suction d'eau, un phénomène qui peut entraîner un défaut d'hydratation du béton. De plus, le relargage de certaines molécules hydrosolubles peut provoquer un retard de prise. Afin de limiter cet échange hydrique entre la matrice et les granulats, une isolation et une réduction de l'absorption d'eau par les granulats doit être obtenue.

Pour surmonter ce problème, il y a trois façons principales : (1) extraire les substances polysaccharidiques responsables du retard de prise par des procédés physiques, biologiques ou thermiques, (2) changer la structure des granulats par hydrophobisation chimique en masquant les groupements hydrophiles, (3) isoler les granulats grâce à un enrobage par des substances minérales ou organiques peu perméables à l'eau. Plusieurs auteurs ont étudié le traitement des granulats lignocellulosiques par enrobage [KHA-12] [NOZ-12] [LED-00] [MON-11] [BED-09], trempage [AAM-08] méthodes chimiques [KHA-08-3] ou méthodes thermiques [YEW-14] [JAC-03].

Le principe des méthodes d'enrobage est de recouvrir la surface des granulats lignocellulosiques pour les isoler de la matrice cimentaire, tout en conservant leur structure poreuse responsable de leur capacité d'isolation. Un autre objectif est d'améliorer l'adhérence entre les particules végétales et la pâte de ciment car il existe une relation étroite entre l'adhérence et les propriétés mécaniques des composites [KHA-08-4]. Comme les traitements thermiques consomment de l'énergie et les traitements chimiques sont peu respectueux de l'environnement, l'accent sera mis ici sur les procédés d'enrobage.

Enrober les substances lignocellulosiques avec une substance minérale ou organique est un procédé très intéressant de point de vue développement durable. Ce procédé a déjà été étudié par plusieurs chercheurs (Tableau I. 7). Ceux-ci ont montré l'efficacité d'un tel enrobage vis-à-vis des propriétés physiques des composites cimentaires. L'enrobage des granulats lignocellulosiques peut être effectué en utilisant le ciment et la chaux hydraulique comme substances d'enrobage. Khazma et al. [KHA-07] et Monreal [MON-07] ont montré que ces enrobages améliorent les caractéristiques mécaniques et hydriques des matériaux durcis.

Les traitements qui ont été utilisés montrent leur capacité à changer le comportement hygroscopique des granulats. Le traitement par la chaux a augmenté considérablement la mouillabili-

té de la surface des granulats. Une surface hydrophobe est obtenue par l'enrobage par les matériaux agissant comme répulsif (huile de lin, paraffine,...). L'huile de lin absorbe lentement l'oxygène de l'air et forme une pellicule solide hydrophobe sur la surface du granulat [KHA-14]. En plus avec un traitement, les variations dimensionnelles des composites peuvent être réduites de moitié sans aucun changement des propriétés mécaniques ou de la conductivité thermique [LED-00] [KHA-12]. Le traitement des granulats lignocellulosiques conduit donc à une diminution dans la capacité d'absorption d'eau associée à une augmentation de la masse volumique des composites comme un effet secondaire.

Tableau I. 7. Les différents types d'enrobages utilisés pour traiter les granulats lignocellulosiques

Type de granulat	Type d'enrobage	Masse volumique (kg.m ⁻³)	Absorption eau (%)	Références
Anas de lin	Huile de lin	730	51,0	[KHA-14]
	Chaux	779	65,5	[KHA-07]
	Ciment	732	74,4	[KHA-07]
	Pectine/ polyéthylèneimine	725-850	97,1	[KHA-12]
	PEC élastomère	643	96,1	[KHA-11]
	Ciment /saccharose	827	-	[KHA-08-2]
Tiges de tournesol	Huile de lin	-	300	[NOZ-12]
	chaux calcique	-	275	[NOZ-12-2]
	Paraffine	-	150	
Pulpes de betterave	Huile de lin	750	100-160	[MON-11]
	Ciment	770	110-130	
Bois	Huile de lin	900-1000	53-80	[LED-00]
	Huile usagée	900-970	40-140	

II.2. INTERACTIONS AVEC LE CIMENT

II.2.1. COMPOSITION DU CIMENT PORTLAND ARTIFICIEL (CPA)

Le ciment portland artificiel commercial est un mélange de clinker et de gypse. Il y a quatre minéraux principaux présents dans un ciment Portland : les silicates tricalciques (ou alite) $3\text{CaO}.\text{SiO}_2$ ou C_3S , les silicates bicalciques (ou belite) $2\text{CaO}.\text{SiO}_2$ ou C_2S , les aluminates tricalciques $3\text{CaO}.\text{Al}_2\text{O}_3$ ou C_3A , les aluminoferrites tétracalciques (ou ferrite) $4\text{CaO}.\text{Al}_2\text{O}_3.\text{Fe}_2\text{O}_3$ ou C_4AF . La formule de chacun de ces minéraux peut être décomposée en oxydes basiques de calcium, silicium, aluminium et fer. Les chimistes du ciment utilisent la nomenclature abrégée à base d'oxydes de divers éléments pour indiquer la formule chimique des espèces : C = CaO (*Chaux*), S = SiO₂ (*Silice*), A = Al₂O₃ (*Alumine*), F = Fe₂O₃ (*Oxyde*

ferrique). La composition du ciment varie en fonction de l'application. Un exemple typique de ciment contient de 50 à 70% de C_3S , 15 à 30% de C_2S , 5-10% en C_3A , 5-15% C_4AF et 3-8% d'autres additifs ou minéraux (tels que les oxydes de calcium et de magnésium) (Figure I. 7). On retrouve également dans le clinker des alcalins et de la chaux libre.

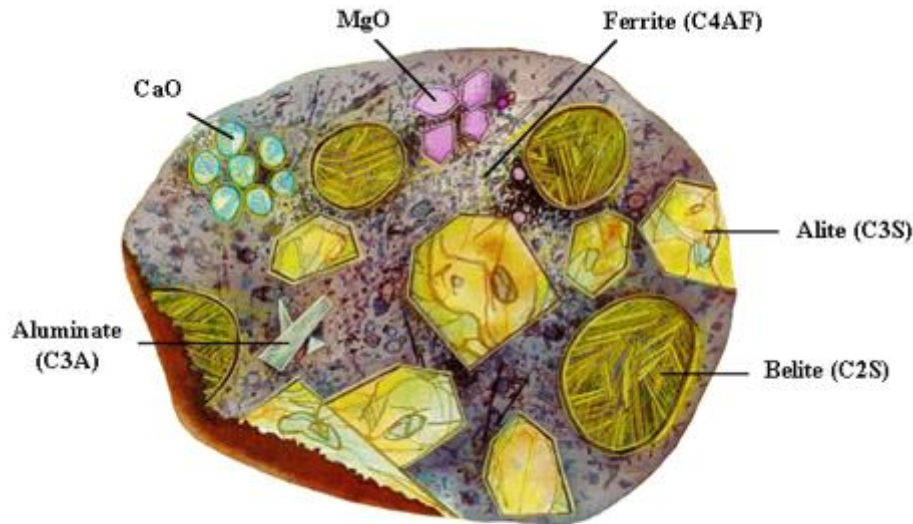


Figure I. 7. Représentation schématique d'une coupe transversale d'un grain de ciment.
Adapté de Ciment Microscopy, Halliburton Services (Duncan, OK, EUA)

L'hydratation de ciment est grandement influencée par la taille et la forme des grains de ciment. Taylor [TAY-97] a trouvé que dans un ciment Portland commercial usuel, la distribution de taille des grains est : 0 à 4% de grains grossiers de diamètre supérieur à 90 μm et 7 à 9% de grains très fins de diamètre inférieur à 2 μm . Plus un ciment est fin, plus sa surface spécifique est grande, ce qui permet alors d'augmenter sa réaction avec l'eau. Van Breugel [VAN-91] a trouvé également que le broyage du clinker permet d'obtenir des particules fines mais de forme angulaire. La Figure I. 7 représente un grain typique de ciment [TAY-97].

C'est l'hydratation du silicate de calcium, de l'aluminate et de l'aluminoferrite qui provoque le durcissement du ciment. Le ratio C_3S/C_2S aide à déterminer à quelle vitesse se produit la prise, sachant que celle-ci est d'autant plus rapide que la teneur en C_3S est élevée. Une faible teneur en C_3A , favorise la résistance aux sulfates. Des quantités importantes de ferrite provoquent une hydratation plus lente. L'aluminoferrite de calcium (C_4AF) forme une phase continue autour des autres espèces minérales.

II.2.2. LES REACTIONS CHIMIQUES DURANT L'HYDRATATION DU CIMENT

Une série des réactions chimiques a lieu suite à l'ajout d'eau au ciment :

- une hydratation des silicates tricalciques (alite) libère des silicates de calcium hydratés (C-S-H), de la chaux et de la chaleur.

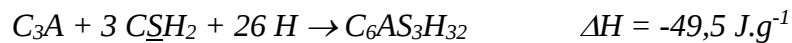
Silicate tricalcique + eau → silicate de calcium hydraté + chaux + chaleur



Les C-S-H possèdent une fine structure fibreuse en réseau qui est à l'origine de la résistance initiale à la pâte de ciment.

- une production d'ettringite avec un dégagement de chaleur a lieu lors de la réaction entre l'aluminate tricalcique et le gypse.

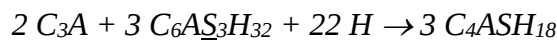
Aluminate tricalcique + gypse + eau → ettringite + chaleur



L'ettringite est composé de longs cristaux qui ne sont stables que dans une solution avec du gypse. Cette espèce ne contribue pas à la résistance de la pâte de ciment.

- l'ettringite peut réagir avec le reste d'aluminate tricalcique lorsque la totalité du gypse a été consommé. Il se forme alors le monosulfate d'aluminate hydraté.

Aluminate tricalcique + ettringite + eau → monosulfate d'aluminate hydraté



Les monosulfates d'aluminates hydratés sont stables dans des solutions déficitaires en sulfate. Mais dans le cas contraire, l'ettringite se reforme et comme sa taille est 2,5 fois plus importante que celle du monosulfate, les contraintes engendrées peuvent donner lieu à des fissures.

- l'hydratation des silicates dicalciques (belite) aboutit également à des silicates de calcium hydratés avec libération de chaleur.

Silicates dicalciques + eau → silicate de calcium hydraté + chaleur



Les silicates de calcium hydratés obtenus à partir des silicates dicalciques contribuent également au développement des propriétés mécaniques de la pâte du ciment. Cependant la cinétique plus lente et le caractère exothermique modéré de la réaction font que les C₂S sont responsables de la résistance à long terme d'un béton.

- l'hydratation de l'aluminoferrique de calcium (ferrite) fait intervenir le gypse selon réactions mal connues, dégageant peu de chaleur. Les C₄AF contribuent très peu au développement de la résistance de la pâte cimentaire.

II.3. INTERACTIONS AVEC LE MATERIAU

II.3.1. COMPORTEMENT DES COMPOSITES LIGNOCELLULOSIQUES VIS À VIS DE L'EAU

Plusieurs études ont été menées sur différents types de déchets agricoles incorporés à du ciment Portland. Les résultats ont indiqué que la masse volumique des composites était plus faible avec une isolation thermique et acoustique plus efficace. Ces recherches sur les propriétés d'isolation de ce type de matériau ont été satisfaisantes, mais du point de vue de la durabilité, le principal inconvénient est leur sensibilité à l'absorption de l'eau, leur instabilité dimensionnelle en présence d'eau et lors de changement d'humidité relative.

En raison de la présence de granulats végétaux, capables d'absorber l'eau, les bétons lignocellulosiques présentent d'importantes variations dimensionnelles [COA-06]. Afin de limiter ces échanges non souhaitables entre matrice et granulats, des traitements ne changeant pas la comptabilité à l'interface, sont donc nécessaires. Selon les normes NF EN 771-3, les variations dimensionnelles des bétons doivent être inférieures à 1mm.m^{-1} . De nombreuses études réalisées sur des composites de betteraves [MON-07], d'anas de lin [KHA-14] et de copeaux de sapin [LED-00] ont montré des variations dimensionnelles importantes même après une amélioration significative suite à un traitement des granulats lignocellulosiques.

Comme de nombreux matériaux de construction sont poreux [HAL-77], l'absorption, la libération et le transport de l'eau sont à l'origine d'un certain nombre de problèmes d'ingénierie dans la construction. La capillarité, le séchage de la structure, la condensation interstitielle, le lessivage par attaque du béton et la pénétration de la pluie dans la maçonnerie sont des exemples de tels problèmes. Dans tous ces cas, un seul processus fondamental est concerné: le mouvement de l'eau à travers un matériau perméable dont la teneur en eau est non uniforme et généralement inférieure à la saturation.

Parmi les principaux problèmes résultant du contact du béton avec de l'eau, on trouve la capillarité qui peut causer de graves dommages dans les bâtiments. Dans le cas d'une eau avec du sel voyageant à travers un matériau poreux par écoulement capillaire, l'évaporation de l'eau capillaire de la surface laisse le sel derrière. Alors que l'eau continue à s'évaporer de la surface, la concentration du sel dans le matériau croît. Cette augmentation de concentration en sel perturbe les équilibres et l'eau se déplace pour abaisser la concentration en sel. Cela peut conduire à de fortes pressions hydrostatiques dans le matériau poreux [HUT-83].

Al-Mohamadawi et al. [ALM-16] et Mboumba [MBO-04] ont montré la capacité du traitement des granulats lignocellulosiques pour réduire la quantité d'eau absorbée par capillarité

par leurs composites cimentaires d'anas de lin et de pulpes de betterave respectivement.

L'utilisation de matériaux hygroscopiques apparaît comme une bonne solution pour réduire les besoins en énergie tout en maintenant un haut niveau de confort intérieur [CER-09] [SIM-04]. Afin de comprendre et de prédire le comportement hygrothermique d'une enveloppe de bâtiment mise en œuvre avec de tels matériaux, de nombreuses études ont été conduites. Ces études sont généralement basées sur des données expérimentales de la perméabilité à la vapeur d'eau, de la valeur de la capacité tampon hydrique et d'isotherme de sorption. Les composites lignocellulosiques sont un matériau fortement hygroscopique (faible conductivité hygrique) avec une faible conductivité thermique.

Les problèmes d'humidité dans l'enveloppe du bâtiment ont été longtemps considérés comme une source de diminution de la qualité de vie et comme une raison d'un dommage permanent des structures de construction. À côté de l'impact sur les habitants, les problèmes d'humidité agissent également sur les qualités des matériaux de construction utilisés [VRA-07] car la teneur en humidité conduit à des changements de conductivité thermique et de propriétés mécaniques.

Collet et al.[COL-13], Rahim et al. [RAH-15] et Umurigirwa et al. [UMU-14] ont étudié les propriétés hygriques des bétons de pailles de chanvre et de lin. Ils ont montré leur transfert élevé d'humidité et leur capacité de stockage élevée. Ceci en fait de bons régulateurs hygriques.

II.3.2. CARACTERISATION HYGRIQUE DES MATERIAUX

II.3.2.1. GENERALITES

Le stockage et le transport de l'humidité dans les milieux poreux sont d'une grande importance dans divers domaines, tels que pour la transformation alimentaire, le génie énergétique, la science du sol, ainsi que pour la protection de l'environnement. En matière de physique du bâtiment, un bon aperçu et un contrôle adéquat des processus de transfert de l'humidité permettent de prolonger la durée de vie des éléments de construction, de réduire la consommation d'énergie par les systèmes de chauffage, ventilation et climatisation, afin d'atténuer les fluctuations de température et d'humidité intérieures, mais aussi d'améliorer la qualité de l'air intérieur [FEN-13].

Le comportement hygrothermique des enveloppes de bâtiment influence les besoins énergétiques, le confort intérieur et la qualité de l'air intérieur. Ce comportement dépend des propriétés thermiques et hygriques des matériaux de construction telle la conductivité thermique, la

capacité thermique, la courbe de sorption et la perméabilité à la vapeur d'eau matériaux hygroscopiques apparaît comme une bonne solution pour réduire les besoins en énergie tout en maintenant une qualité de l'air intérieur élevée [CER-09] [SIM-04] [OSA-04].

Afin de comprendre et de prédire le comportement hygrothermique d'une enveloppe de bâtiment mise en œuvre avec des matériaux lignocellulosiques, des études numériques peuvent être effectuées. Ces études sont généralement basées sur des données expérimentales de courbe de sorption et la perméabilité à la vapeur d'eau. Il a été montré que, pour des matériaux hygroscopiques, l'incertitude sur ce type de données empêche une simulation fiable de leur comportement hygroscopique [ROE-10].

II.3.2.2. LES ISOTHERMES DE SORPTION

En physique du bâtiment, l'isotherme de sorption est souvent utilisée pour décrire le stockage d'humidité des matériaux de construction dans la gamme hygroscopique : elle présente la teneur en eau d'un matériau en état d'équilibre lorsqu'il est exposé à une humidité relative déterminée (HR). En outre, de nombreuses autres propriétés hygrothermiques telles que la conductivité thermique, la perméabilité à la vapeur d'eau et la diffusivité de l'humidité dépendent fortement de la teneur en humidité des matériaux, et sont donc étroitement liés à l'isotherme de sorption [KUM-94].

Les isothermes de sorption des matériaux de construction poreux ont été testées dans le monde entier. De nombreux projets internationaux tels que le projet de recherche ASHRAE 1018-RP [KUM-02] ont été menés et des bases de données relativement complètes sur les propriétés hygrothermiques sont disponibles pour de nombreux matériaux de construction et d'isolation.

Généralement, la méthode gravimétrique statique est appliquée pour la détermination des isothermes de sorption. Le concept fondamental de cette méthode est d'exposer des échantillons à des séries d'humidité relative croissante et décroissante. Les teneurs en eau à l'équilibre à différentes humidités relatives peuvent être obtenues en comparant la masse sèche initiale et la masse humide à l'équilibre pour chaque niveau d'humidité relative.

La sorption de vapeur d'eau par les matériaux dépend de plusieurs facteurs parmi lesquels la composition chimique, l'état physico-chimique des constituants et la structure physique, le dernier facteur étant le plus important. Ces paramètres déterminent sensiblement la quantité d'humidité adsorbée et la cinétique du processus de sorption [ROC-87].

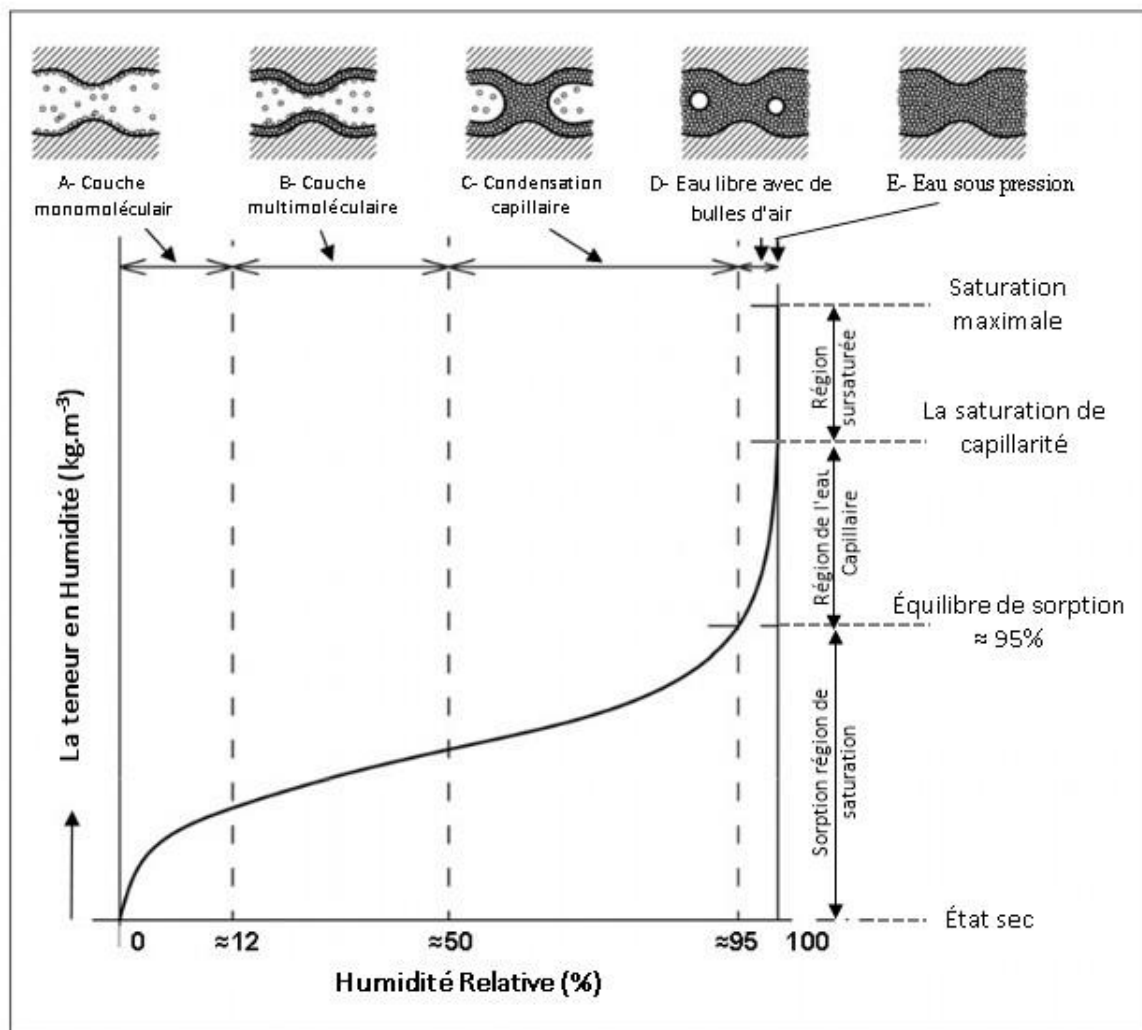


Figure I. 8. Isotherme d'adsorption des matériaux de construction [SLA-09]

L'isotherme de sorption relie la teneur en eau d'un matériau à l'équilibre à l'humidité relative. La Figure I. 8 montre que l'adsorption se décompose en plusieurs phases (A-E) permettant de décrire le comportement des matériaux à l'échelle microscopique. Il est possible de déterminer la surface intérieure du matériau en utilisant la théorie BET [BRU-38]. La zone d'humidité relative inférieure à 12% est caractérisée par la présence d'une couche monomoléculaire d'eau sur la surface des pores du matériau. Par la suite, une augmentation de l'humidité de 12 à 50% HR conduit à la transition vers une zone de transport de la vapeur d'eau dans les matériaux poreux qui a été représentée par une portion linéaire sur la Figure I. 8. Avec l'augmentation de l'humidité au-delà de 50%, une phase de condensation de la vapeur d'eau commence à l'intérieur des pores conduisant au transport de l'eau par le phénomène de la capillarité.

Un classement des isothermes en fonction de leur allure a été suggéré par Kenneth et al.

[IUPAC-85], comme le montre la Figure I. 9. Le type 1 correspond à l'isotherme de Langmuir décrivant l'adsorption monocouche sur des adsorbants microporeux (largeurs de pores inférieures à 2 nm). Le type 2 décrit l'adsorption sur un adsorbant macroporeux avec une interaction adsorbant-adsorbat. Il y a une formation initiale de monocouche et formation ultérieure de multicouches. Le type 3 illustre l'isotherme multicouche sur un adsorbant macroporeux avec une faible interaction adsorbant-adsorbat. Les types 4 et 5 représentent l'isotherme d'adsorption avec hystérésis où la condensation capillaire se produit dans les mésopores (largeurs de pores de 2 à 50 nm). Le type 6 comprend des étapes qui se produisent en raison de la transition de phase de la couche moléculaire adsorbée ou du fait de l'adsorption sur différentes faces de solides cristallins.

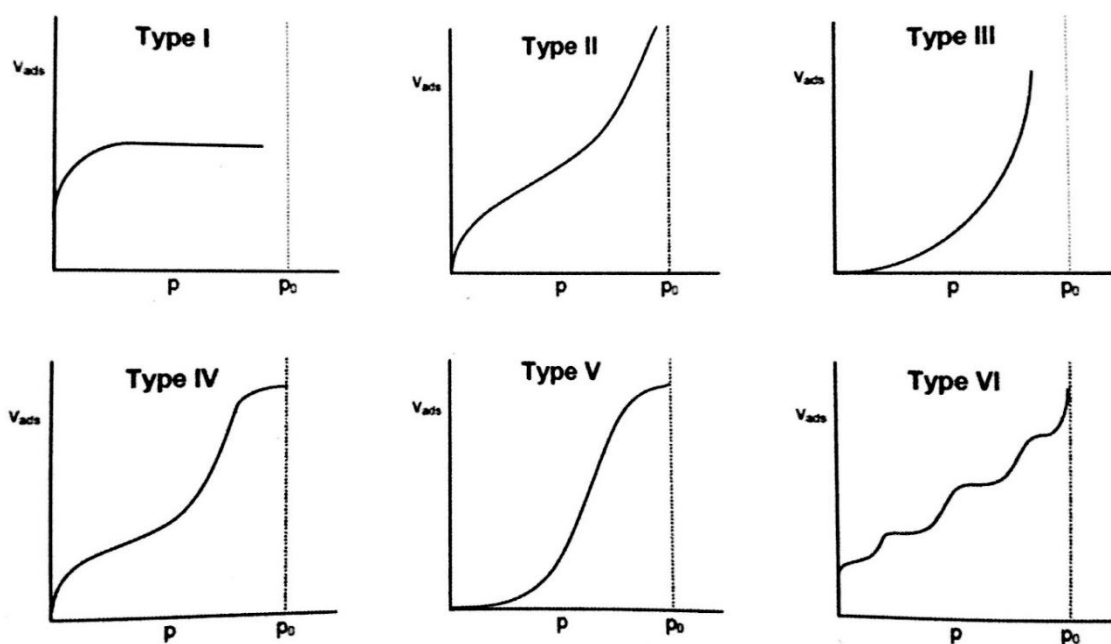


Figure I. 9. Les différentes classes d'isothermes [IUPAC-85]

Pour les matériaux de construction et d'isolation poreux hygroscopiques, l'isotherme de sorption présente deux courbes différentes d'adsorption et de désorption. La différence entre les deux courbes est appelée l'effet d'hystérésis. La teneur en eau observée en adsorption peut être inférieure à la teneur en eau mesurée en désorption. L'hystérésis a été classée en quatre types selon la corrélation à différentes formes de pores (Figure I. 10).

L'hystérésis est employée couramment pour représenter le résultat des différentes caractéristiques de mouillage pour l'adsorption et la désorption. Une explication de l'hystérésis peut

être trouvée par exemple chez Derome et al. [DER-08]. Les cycles d'hystérésis peuvent être divisés en quatre catégories basées sur la recommandation de l'UICPA, comme le montre la Figure I. 10. Les Types H1 et H4 représentent deux cas extrêmes, alors que les types H2 et H3 sont des situations intermédiaires. Les courbes d'adsorption et de désorption de type H1 sont quasi verticales et presque parallèles sur une plage appréciable de l'absorption du gaz. Les courbes d'adsorption et de désorption de type H4 sont, elles, quasi horizontales et presque parallèles sur une large marge de pression partielle.

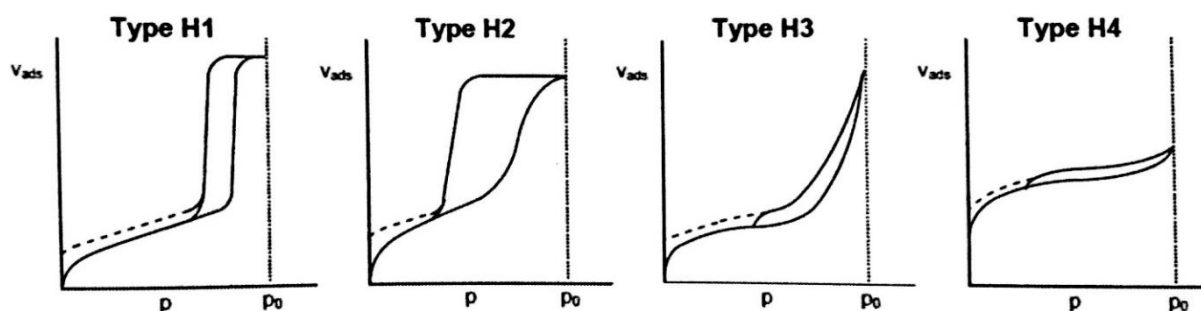


Figure I. 10. Types de cycles d'hystérésis [IUPAC-85]

Les allures des cycles d'hystérésis sont associées à des structures de pores spécifiques. Par exemple, les matériaux qui sont constitués de pores bien alignés (sphères et briquettes) peuvent produire une hystérésis de type H1, et en général ils ont une tendance à avoir des distributions relativement étroites de taille de pores. Pour les courbes de type H2, le cycle d'hystérésis est large et la courbe de désorption est plus rapide que celle d'adsorption. Cette situation se produit généralement lorsque les distributions de taille de pores sont larges. La présence de pores en forme de fentes génère les courbes de types H3 et H4. Toutefois, l'observation de cycles H4 indique l'existence des micropores. Les courbes d'adsorption et désorption pour plusieurs matériaux de construction peuvent être trouvées dans Tveit [TVE-66]. Cependant, Künzel [KUN-95] a montré que pour la plupart des matériaux de construction, l'effet d'hystérésis est faible donc l'isotherme d'adsorption est suffisante pour caractériser la région de sorption de l'humidité. Il y a deux méthodes pour réaliser le test de sorption. La méthode continue consiste à mesurer la courbe de sorption dans des conditions de quasi-équilibre. La méthode discontinue consiste à mesurer la quantité de vapeur d'eau adsorbée par l'échantillon en utilisant des étapes successives d'augmentation puis diminution de pression de vapeur d'eau. La méthode discontinue peut être réalisée simplement avec des dessiccateurs et des solutions salines saturées dans des chambres climatiques.

D'un point de vue hygrique, un béton de chanvre, qui a été caractérisé par la méthode de l'état d'équilibre (courbe de sorption, perméabilité à la vapeur d'eau) montre un transfert d'humidité élevé et des capacités de stockage élevées. Il s'agit donc d'un excellent régulateur hygrique [COL-12]. La composition du béton lignocellulosiques, les conditions de cure et la mise en œuvre influenceront la courbe de sorption et l'hystérésis. Les études de Collet et al. [COL-12] et Nozahic et al. [NOZ-12] sur le béton de chanvre ont contribué à mettre en évidence l'effet des conditions de séchage des composites lignocellulosiques sur leur teneur en eau.

II.3.2.3. LA PERMÉABILITÉ À LA VAPEUR D'EAU

La capacité d'un matériau à se laisser traverser par un fluide sous l'action d'une pression entre ses deux faces opposées est définie comme sa perméabilité. La perméance " ω " est définie comme la capacité d'un matériau à se laisser traverser par la vapeur d'eau sous l'action d'une pression entre ses deux faces opposées, rapportée à son épaisseur. Plusieurs méthodes expérimentales existent pour mesurer la perméabilité ou la perméance à la vapeur d'eau des matériaux de construction et d'isolation mais les méthodes de la coupelle restent les plus répandues dans le monde. Leur principe consiste à créer deux environnements à température constante sur les deux côtés d'un échantillon au cours de toute la période de temps de la mesure. Seule une différence d'humidité relative sur les surfaces de l'échantillon représente la force motrice pour le transport de vapeur d'eau. Les résultats sont calculés lorsque le flux de vapeur d'eau atteint une valeur constante donc à l'état d'équilibre isotherme. La méthode consiste à imposer un gradient de pression de vapeur constant et unidimensionnel en condition isotherme à un échantillon d'épaisseur. Les méthodes de la coupelle peuvent être divisées en trois catégories : coupelle humide, coupelle sèche et coupelle inversée (Figure I. 11). Elles sont très bien décrites dans plusieurs normes internationales comme par exemple ASTM E 96/E 96M (2005) et NF EN ISO standard 12571 (AFNOR, 2000). Chaque méthode de coupelle est nommée selon les humidités relatives utilisées sur les côtés d'un échantillon et selon la direction du flux de vapeur. La taille et la forme du matériau et des pores influencent le degré de perméabilité.

La perméabilité mesurée dépend de l'état de saturation du matériau, de la température mais aussi de la taille des pores au sein du matériau. Dans les matériaux saturés, le transfert est lent tandis que dans les matériaux secs, le transfert est rapide.

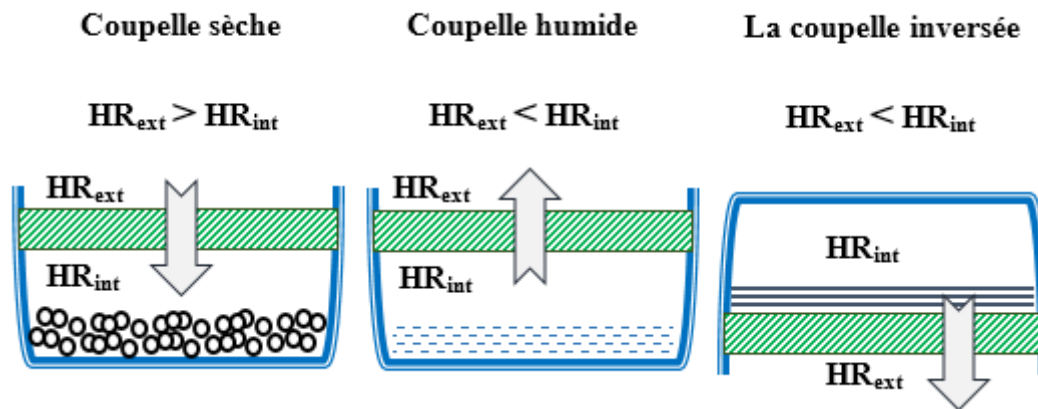


Figure I. 11. Les trois méthodes de la coupelle en fonction des conditions d'humidités relatives et des directions du flux de vapeur d'eau [SLA-09]

II.3.2.4. LA CAPACITÉ TAMPON À LA VAPEUR D'EAU

La demande pour contrôler les consommations énergétiques et les émissions de gaz a conduit plusieurs états européens à adopter de faibles valeurs de transmittance thermique de l'enveloppe du bâtiment. Pour cette raison, des couches épaisses de matériau isolant dans les murs et les toits sont proposées, même dans les climats doux et de nouveaux produits hautement performants sur le plan thermique et de la perméabilité à l'air sont utilisés comme éléments de construction. Ces changements provoquent une réduction générale de la perméabilité à la vapeur d'eau et une augmentation des niveaux d'humidité relative intérieure de l'enveloppe du bâtiment. L'importance de l'humidité relative intérieure sur le confort respiratoire [TOF-98-2], l'humidité de la peau [TOF-98] et la qualité de l'air intérieur perçu [FAN-98] est bien connue. De plus, des niveaux élevés d'humidité relative peuvent provoquer la dégradation des matériaux de construction [LUC-02] et même la croissance de moisissures si la capacité nutritive des matériaux est suffisante [SED-02]. L'utilisation de matériaux hygroscopiques peut être une stratégie prometteuse pour réduire les variations d'humidité intérieure.

En laboratoire, plusieurs matériaux utilisés dans la construction et l'isolation du bâtiment (bétons de chanvre, béton de lin-chaux et de chanvre-chaux, agro-composite à base de fibres de chanvre et d'amidon de blé) ont montré qu'ils pouvaient interagir dynamiquement avec la vapeur d'eau [COL-12], [RAH-15] [UMU-14]. Ainsi il serait possible d'améliorer le climat intérieur, en termes de conditions d'hygiène, de confort et de qualité de l'air [SIM-02] et de contribuer à réduire la consommation d'énergie pour le chauffage et le refroidissement [SED-02] [OSA-04].

La capacité d'un matériau à absorber et libérer l'humidité peut être définie comme la capacité tampon hydrique (Moisture Buffering Value en anglais ou MBV). Le projet NORDTEST a défini cette capacité et les procédures d'essai pour les matériaux de construction [ROD-05]. Une méthode similaire a été proposée dans la norme industrielle japonaise [JIS-02]. La capacité tampon hydrique n'est pas une propriété fondamentale de la matière, mais elle peut être utile pour la comparaison des matériaux. Les propriétés qui contribuent à cette caractéristique sont la perméabilité à la vapeur d'eau et les phénomènes d'adsorption/désorption d'humidité. Le MBV, tel que défini dans le projet NORDTEST, indique la quantité d'eau qui est transportée dans ou hors du matériau par sa surface ouverte au cours d'une certaine période de temps lorsqu'il est soumis à des variations d'humidité relative de l'air environnant. Une exposition cyclique quotidienne, alternant des humidités relatives élevée et faible pendant 8 et 16h, respectivement, permet d'évaluer la valeur du MBV.

La capacité tampon hydrique réelle (MBV réel) est calculée à l'état d'équilibre par l'Équation 1 et s'exprime en $\text{kg.m}^{-2}.\%\text{HR}^{-1}$.

$$\text{MBV}_{\text{Réal}} = \frac{\Delta m}{A * (\text{HR}_{\text{haute}} - \text{HR}_{\text{basse}})} \quad \text{Eq.1}$$

Avec Δm la variation de masse pendant la période d'étude, $\text{HR}_{\text{haute}} / \text{basse}$ les niveaux haut et bas d'humidité relative et A la surface du matériau exposée.

Le protocole NORDTEST détermine la valeur MBV à un état d'équilibre, lorsqu'entre trois cycles consécutifs (figure II. 12), le matériau satisfait aux deux conditions suivantes :

- la variation de masse est inférieure à 5% entre les derniers trois cycles,
- la différence entre le gain et la perte de masse à l'intérieur de chaque cycle est inférieure à 5% de Δm .

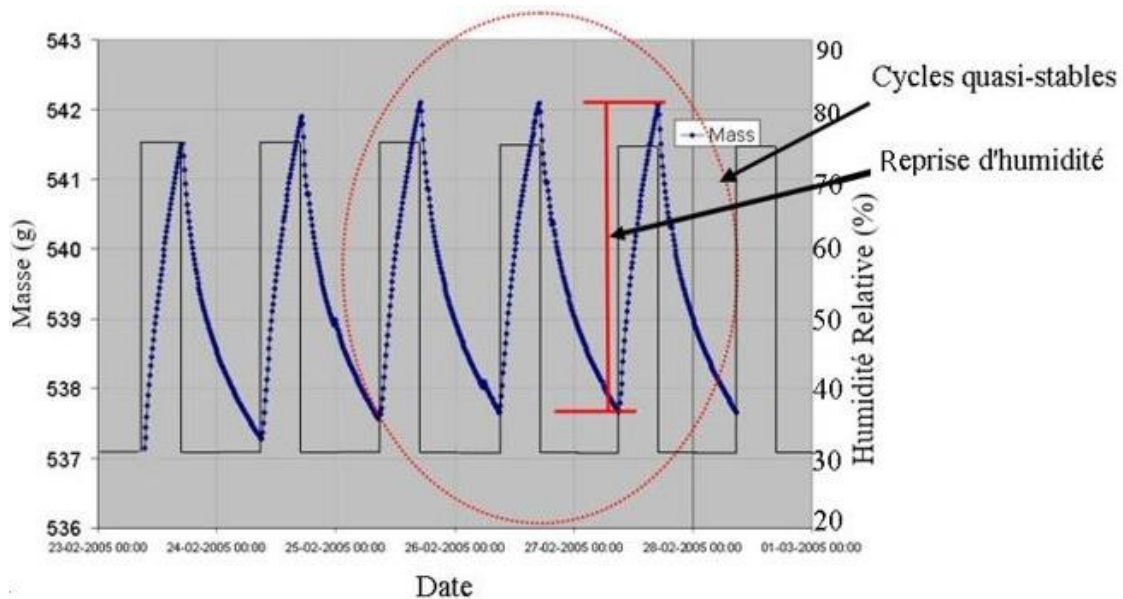


Figure I. 12. Évolution de la masse d'un matériau soumis à des cycles d'humidités relatives : détermination de la capacité tampon hydrique (MBV) (NORDTEST 2005)

II.3.3. CARACTÉRISATION ENVIRONNEMENTALE DES MATERIAUX

II.3.3.1. MÉTHODOLOGIES D'ÉVALUATION DES RISQUES ENVIRONNEMENTAUX

Dans une démarche de valorisation de déchets ou co-produits, il est devenu indispensable de mettre en place la caractérisation environnementale des matériaux les contenant.

Les matrices cimentaires sont complexes et subissent des attaques de l'environnement. Il s'en suit des échanges et des libérations d'espèces chimiques qui peuvent conduire à des altérations à la fois des matériaux et de l'environnement.

Il est reconnu que la performance environnementale doit être fondée sur la libération plutôt que la teneur totale des composants potentiellement dangereux [VAN-04] comme le montre la Figure I. 13.

Actuellement, dans le cadre de la directive concernant les produits de construction et d'isolation, des essais harmonisés doivent être sélectionnés ou développés pour évaluer et mesurer le risque de substances dangereuses pouvant être émises à partir de ceux-ci.

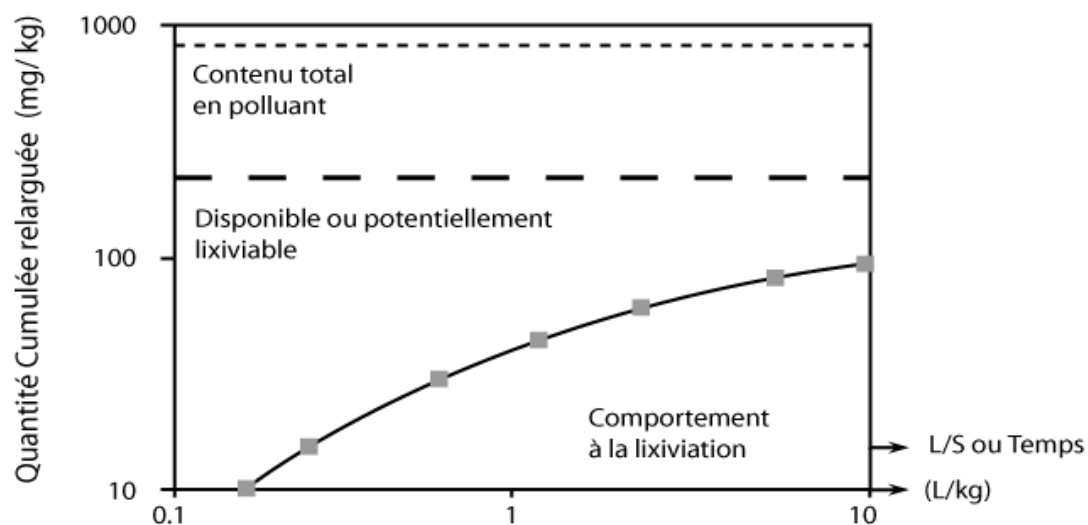


Figure I. 13. Concentration de polluant dans le relargage durant la lixiviation en fonction du rapport L/S (ou du temps) [MAT-05]

Les libérations de substances peuvent se produire lors de l'utilisation du matériau initial ou pendant son stockage en fin de vie. Les contaminants, qui sont libérés et transportés lors d'un contact avec de l'eau, peuvent présenter un risque pour la qualité des eaux souterraines, des eaux de surface et les sols [VAN-04].

Grâce aux tests de lixiviation, un ensemble de résultats peut être utilisé pour évaluer la performance de matériau, de son utilisation initiale à sa mise en décharge.

L'expression « lixiviation » est vue dans son sens général de contact liquide/solide. Afin d'obtenir une évaluation environnementale du matériau, il faut déterminer ses impacts potentiels sur l'environnement pendant son cycle de vie dans des conditions normales ou exceptionnelles. Pour cela il est possible de réaliser :

- une Analyse de Cycles de Vie (ACV) où le matériau est considéré comme un ensemble d'éléments échangeant matière et énergie avec l'extérieur durant la totalité de son cycle de vie [OSS-04].
- une évaluation détaillée des risques où le matériau est classé comme un émetteur de polluants pour l'environnement dans un espace et un temps fixés.

Les risques peuvent être appréciés selon trois classes méthodologiques [CRE-07] :

- des méthodologies générales destinées à être exhaustives et estimant les risques écologiques provoqués par tout type de stress (de nature chimique, physique, ou biologique) pour tout type d'écosystèmes. La méthode élaborée par l'US EPA (1998) sert souvent de référence.

- des méthodologies « substances » se concentrant sur les impacts associés à une substance particulière. La toxicité de chaque polluant est donc considérée indépendamment des autres, sans intégrer les effets de synergie ou d'antagonisme que leur mélange peut occasionner.
- des méthodologies « matrice » mises au point pour l'évaluation des risques associés à une matrice solide particulière : déchets, sédiments pollués, sites pollués,...

En France deux méthodologies « matrice » ont été principalement appliquées :

- la méthodologie de l'écocompatibilité, développée sous l'impulsion de l'ADEME [ADE-02], s'appliquant spécifiquement à la valorisation et au stockage de résidus minéraux.
- la méthodologie du comportement à la lixiviation des déchets dans des conditions spécifiées.

La caractérisation environnementale des matériaux doit être mise en place à l'aide de tests pouvant retranscrire les conditions extérieures auxquelles ils vont être exposés.

Comme les situations pouvant être rencontrées au cours d'un cycle de vie sont très variées, la prédiction de l'impact d'un matériau sur l'environnement doit passer par des conditions de test différentes. Le danger potentiel pour l'environnement et la santé peut survenir à différents stades du cycle de vie d'un produit de construction. Pendant la phase de durée de vie, la libération de substances due au contact avec l'eau de pluie est la source potentielle principale de danger, comme une conséquence du phénomène de lixiviation [SCH-09]. La Figure I. 14 présente la caractérisation environnementale du matériau, aux différentes étapes de sa vie, par des essais de lixiviation.

La mise en place d'un scénario de test des risques liés aux déchets de construction permet de réduire les comportements non-respectueux vis à vis de l'environnement, tels que le stockage dans des décharges sauvages, les incinérations non contrôlées ou les enfouissements directs sur le chantier. Toutes ces pratiques irresponsables et illégales génèrent des pollutions importantes de l'air (dégagements toxiques, risques importants d'incendie, fermentation et production de méthane...), du sol (contamination des sols par des métaux lourds ou hydrocarbures...), de l'eau (ruissellements des eaux de pluie, infiltrations dans les nappes phréatiques, eutrophisation...), sans oublier les risques importants sur la faune locale et la santé publique.

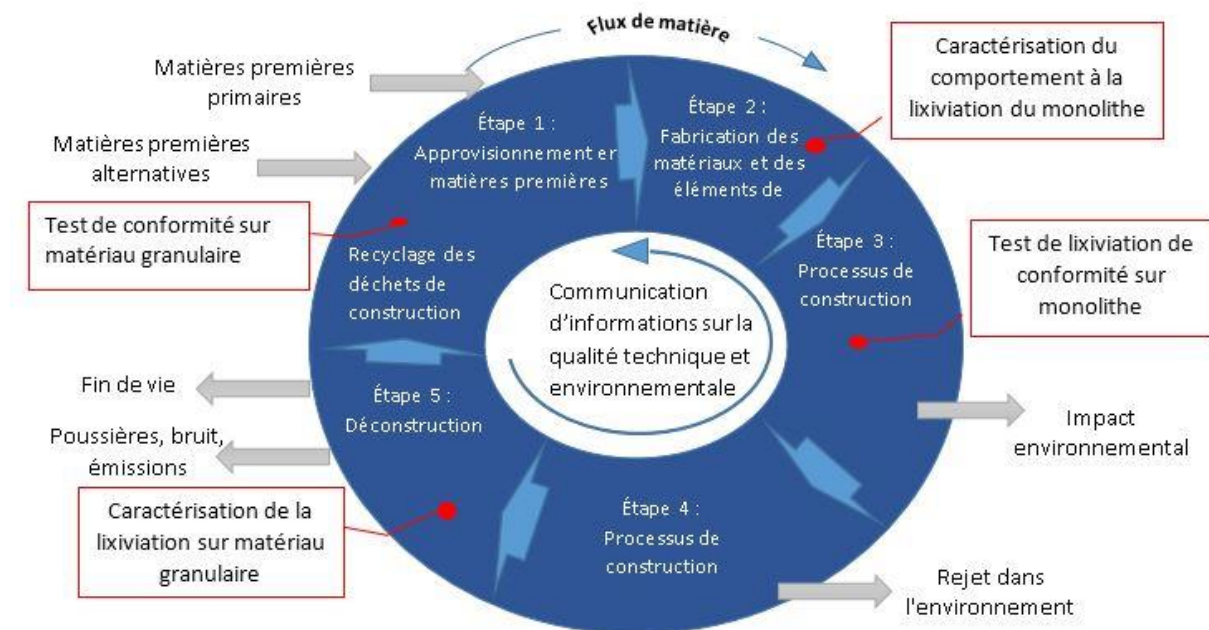


Figure I. 14. Test de lixiviation en relation avec le cycle de vie d'un produit adapté [VAN-04]

II.3.3.2. LA LIXIVIATION

L'objectif principal des tests de lixiviation est de déterminer et évaluer la mobilité des éléments chimiques existant dans des matrices solides (type granulaire, massif ou monolithique) sous l'action d'un lixiviant donné. Le matériau soumis à la lixiviation peut être lessivé ou percolé. Dans le premier cas le matériau est en contact prolongé avec un liquide et dans le second le liquide, qui le traverse, est sans cesse renouvelé.

Le comité technique responsable de la caractérisation des déchets au Comité Européen de Normalisation a classé les tests de lixiviation en trois catégories :

- les tests de caractérisation de base permettent d'obtenir des informations sur le comportement du matériau ou déchet à la lixiviation, à court et long terme dans les conditions imposées par le scénario choisi, mais aussi sur ces propriétés caractéristiques ;
- les tests de conformité permettent de savoir si le matériau ou déchet est conforme à un comportement ou à des valeurs de référence spécifiques ; ces essais portent sur le comportement à la lixiviation, identifié à l'avance par les tests de caractérisation de base ;
- les tests de vérification sur site constituent un contrôle rapide pour vérifier que le ma-

tériau ou déchet est le même que celui qui a subi les essais de conformité.

Les tests de caractérisation de base peuvent être classés en deux catégories [MAT-05] et normalisés (Figure II. 15) :

- les essais statiques qui permettent d'obtenir l'état d'équilibre pour un certain nombre de paramètres comme le pH ;
- les essais dynamiques qui permettent de déterminer le relargage du matériau et sa dynamique de relargage dans des conditions normalisées.

Les essais de caractérisation de base permettent de représenter le comportement du matériau en termes de relargage [VAN-04], alors que les essais de conformité présentent simplement des informations pratiques et financières. Lorsque le comportement à la lixiviation a été défini par un test de caractérisation, une simple mesure de test de conformité est suffisante pour évaluer si le matériau ou déchet vérifie toujours ce comportement ou s'il montre des changements importants. Afin de vérifier et de justifier l'utilisation d'un test de conformité, il est nécessaire de relier ce test à celui de caractérisation de base [VAN-01].

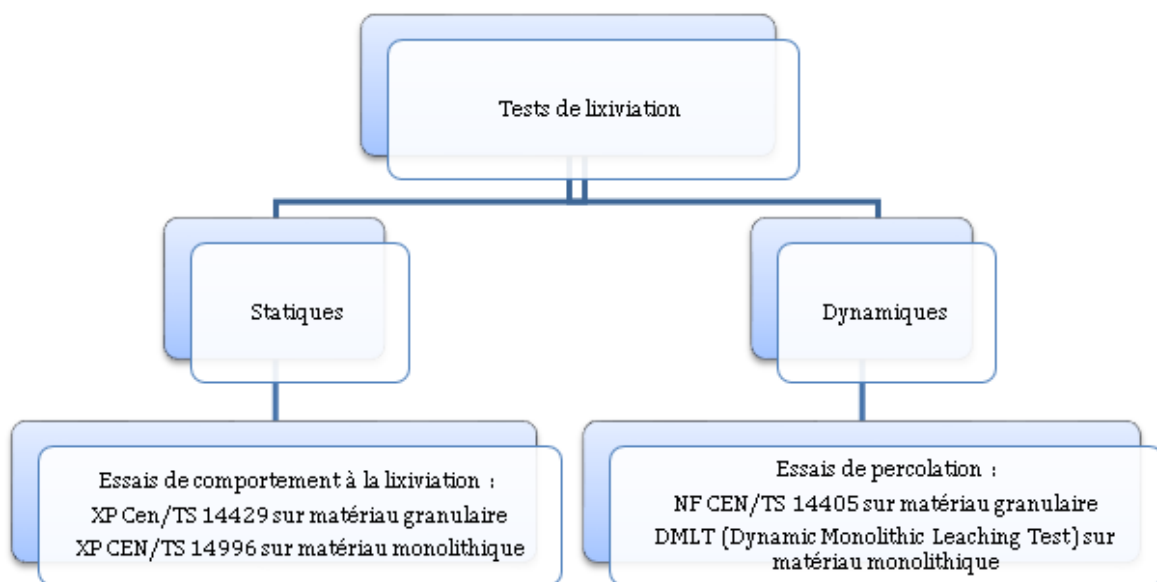


Figure I. 15. Principaux essais de lixiviation utilisés en Europe

Ils existent plusieurs protocoles de conduite des essais de lixiviation pour évaluer et définir le comportement à long et court terme des matériaux dans le but de prédire leur devenir. Ces tests peuvent être réalisés avec renouvellement ou non du lixiviant [HAR-99], des matériaux monolithiques, broyés ou granulaires. Dans le cas du renouvellement de lixiviant, la solution

de lixiviation peut être renouvelée de façon continue ou par intermittence afin de maintenir un gradient de concentration de lessivage.

II.3.3.3. FACTEURS INFLUENCANT LA LIXIVIATION

Les facteurs qui agissent sur le relargage sont nombreux. Ils peuvent être liés au matériau ou au lixiviant, d'ordre physique (matériau monolithique, massif ou granulaire, perméable, tortueux, poreux) ou chimique (présence de matière organique, forme chimique, pH, température, force ionique...) [TRI-10].

A. CARACTÉRISTIQUES DU MATÉRIAU

Le ciment et les bétons ne sont pas en équilibre thermodynamique avec leur environnement local. Des infiltrations et des mouvements de solutés provenant du voisinage modifient la composition de la solution dans les pores du béton mais aussi celle de la phase solide. Il s'en suit des modifications de solubilité et de sorption des substances contaminants [JAC-10].

Dans le cadre du stockage de déchets poreux comme les bétons légers, la porosité, la capillarité et la perméabilité sont considérées comme des propriétés très importantes car elles contrôlent la vitesse de lixiviation. Au cours de la lixiviation des matériaux cimentaires, trois types de mécanismes physiques sont rencontrés [TRI-10] :

- la percolation : le fluide passe à travers le matériau ; il s'agit du phénomène majeur dans le cas des matériaux poreux (à l'état massif) ;
- la diffusion : ce type de transfert de masse correspond au transport de composants uniquement par le mouvement de molécules en l'absence d'écoulement de fluide. Ce mécanisme se rencontre dans le cas des matériaux à faible perméabilité, l'eau dans et en dehors des pores étant stagnante ;
- le lessivage : il s'agit d'un phénomène d'entraînement par l'eau de substances solubles fixées principalement en périphérie des matériaux monolithiques ou granulaires.

Le transport de constituants par diffusion, à cause de gradient de concentration entre la solution agressive et la solution interstitielle du matériau cimentaire, est soumis à la loi de Fick. La loi de Fick est à la base du processus de lixiviation des matériaux cimentaires. Dans le cas d'un transfert dans une dimension, la première loi de Fick s'écrit selon l'Équation 2.

$$q_x = -D_{i,j} \frac{\partial C_i(x,t)}{\partial x} \quad \text{Eq.2}$$

Où q_x est le flux de diffusion ($\text{mol.s}^{-1}.\text{m}^{-2}$),

$D_{i,j}$, est le coefficient de diffusion ou la diffusivité de l'espèce i dans le milieu poreux ($\text{m}^2.\text{s}^{-1}$),

C_i (pour les mélanges idéaux) est la concentration de la substance diffusante i (mol.m^{-3}),

x est une coordonnée dans l'espace (m).

B. LES DIFFÉRENTS LIXIVIANTS

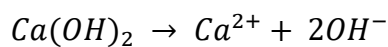
- L'EAU

L'eau déminéralisée est considérée comme agressive vis à vis des mortiers si l'on compare son pH de 7 à 7,5, avec celui de la solution interstitielle du mortier qui peut atteindre 13,5 [CAR-97]. De plus l'eau en contact avec des mortiers induit des gradients de concentration entre la solution externe et la solution interstitielle. Ces gradients provoquent la diffusion des ions (dont Ca^{2+} et HO^-) à partir de la solution interstitielle du matériau vers la solution externe. Ce mécanisme conduit à une perte de la capacité portante et de la qualité du matériau lessivé [MAK-12]. Les eaux déminéralisées ou légèrement minéralisées sont classées dans la catégorie des environnements chimiques très agressifs (exposition de classe XA3) selon la norme européenne FD P18-011.

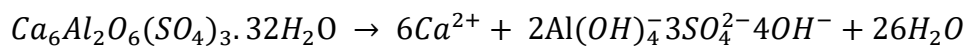
Généralement dans les matériaux à base de ciment, les réactions de dégradation chimique qui apparaissent en présence d'eau sont la décalcification, la dissolution et le lessivage des composants du ciment, et la carbonatation [GLA-08].

Les mécanismes de modification chimique de la matrice cimentaire commence par une dissolution de la Portlandite (CH), puis une dissolution progressive d'ettringite et des silicates de calcium hydratés (C-S-H) [BER-88]. Les principales réactions chimiques sont les suivantes [MAK-12] :

- dissolution de la Portlandite :



- dissolution de l'ettringite :



- dissolution d'un certain nombre de formes distinctes de C-S-H :



La dissociation se traduira par l'apparition de cations Ca^{2+} , de différents anions et d'eau. Les équations indiquent la pertinence de la quantité d'ions calcium dans la solution interstitielle à l'équilibre chimique local. La concentration des ions calcium régit l'état de dégradation chimique de la matrice cimentaire et le gradient de leur concentration régit le transport de la dissolution des substances dans la solution interstitielle [BER-88].

- LES SOLUTIONS ACIDES

La lixiviation naturelle étant un processus très lent (quelques centimètres par siècle) [TOR-08], pour les expériences en laboratoire, l'utilisation de l'eau déminéralisée n'est pas un choix optimal [MAK-12]. S'il est nécessaire d'étudier plusieurs vitesses de dégradation alors une lixiviation accélérée doit être réalisée pour lessiver les échantillons dans un délai raisonnable. La lixiviation peut être accélérée en utilisant la température [KAM-03], un champ électrique [SAI-92] ou des matériaux sous forme granulaire avec une agitation [NF EN 02]. Il est également possible pour augmenter les gradients de concentration entre la solution interstitielle et l'environnement agressif de remplacer l'eau déminéralisée par une solution de chlorure d'ammonium [YAN-12], une solution fortement concentrée de nitrate d'ammonium [ULM-03] ou une solution d'acide acétique ou nitrique [HAN-10], [TRI-10]. La plupart des expériences sur la lixiviation d'échantillons de matériaux cimentaires sont réalisées en utilisant le dernier procédé. Il a été montré que l'attaque d'une solution de nitrate d'ammonium est proche de celle de l'eau désionisée, mais avec une cinétique environ 200 fois plus rapide [CAR-96]. La lixiviation est accompagnée au cours du temps par la propagation de la dégradation correspondant à la dissolution des principaux composants du mortier.

Le pH est le facteur le plus important influençant la lixiviation des constituants. Il gouverne le relargage des constituants de la phase solide vers la solution. Cette relation entre le pH et le relargage est valide pour tout type de matériaux (granulaire, monolithe, déchets, ciments, sédiment, sols...) [VAN-04]. Chaque matériau a sa propre courbe de relargage qui dépend de la valeur du pH. La forte influence du pH sur le relargage est due au fait que la dissolution de la plupart des minéraux en est dépendante.

Ces dernières années, la caractérisation du comportement des matériaux à la lixiviation sous condition contrôlée de pH s'est développée [VAN-97]. L'objectif principal de l'utilisation d'un lixiviant acide est de simuler les pluies acides ou de déterminer le comportement à la lixiviation des matériaux granulaires dans des conditions de pH imposés. Afin de couvrir les différentes valeurs de pH pouvant être rencontrées dans l'environnement, il est recommandé de déterminer la capacité tampon du matériau [TRI-10] [VAN-04] [VAN-01].

La pluie agit de deux façons sur les composites cimentaires placés sous conditions extérieures. Elle a d'abord une action mécanique, plus ou moins importante suivant la composition des composites, et une action chimique. La pluie n'est que très faiblement chargée en sels

solubles, mais même en l'absence de pollution, elle a un pH légèrement acide, dû à la dissolution du dioxyde de carbone naturellement présent dans l'atmosphère. Les composites cimentaires sont très sensibles à la dissolution par la pluie [JAC-10]. En traversant une atmosphère polluée, la pluie ne se charge pas seulement en dioxyde de carbone, mais également en oxydes d'azote et de soufre entraînant une diminution du pH. Donc la pluie, même en petites quantités, peut entraîner d'importantes altérations. L'évaluation de la durabilité et de l'impact des matériaux sur l'environnement nécessite de prendre en compte les paramètres environnementaux ainsi que les caractéristiques physico-chimiques des pluies susceptibles d'interagir avec la surface des éprouvettes [MOR-08].

La capacité de neutralisation acide est une propriété clé des composites cimentaires, la résistance à l'attaque acide affectant la durabilité et le lessivage des contaminants, à la fois parce que leur solubilité est fortement influencée par les conditions de pH et parce que l'intégrité de la matrice solide dépend de sa capacité à maintenir des conditions alcalines [GIA-02].

Peyronnard [PEY-08], Giampaolo et al. [GIA-02] et Glass et al [GLA-99] [GLA-00] ont étudiés la capacité de neutralisation acide de matériaux contenant du ciment portland comme liant. Ils ont démontré d'une part que le lessivage des ciments est contrôlé par la dissolution de divers minéraux et d'autre part ils ont prouvés que la capacité de neutralisation d'acide était élevée pour le ciment. Il est donc nécessaire de conduire des essais de lixiviation en faisant varier le pH du lixiviant, ou des essais de dépendance au pH [DIJ-04] [KIN-99]. La courbe de lixiviation de l'élément d'intérêt, obtenue avec l'essai de dépendance au pH, peut être considérée comme une caractéristique du matériau, une « empreinte géochimique » de celui-ci.

La lixiviation de granulats de bétons recyclés, utilisés comme couche de fondation des routes, a montré que le relargage des éléments majeurs et traces était dépendant du pH du milieu. De plus, le relargage des éléments traces n'excédait pas les critères d'acceptation lors de la dilution avec les eaux souterraines et/ou les eaux de surface [ENG-12]. Selon une étude conduite sur un béton drainant, la lixiviation des ions majoritaires et des éléments traces est principalement contrôlée par des réactions de dissolution, précipitation et complexation en surface. Par ailleurs la lixiviabilité des métaux traces augmente sous condition acide et l'effluent a un pH acide (pH~10) même après 325h de vaporisation avec de l'eau à pH faible (pH~4,3) [SOL-14]. Des produits à base de ciment, produits de construction et déchets stabilisés par du ciment, ont montré un comportement à la lixiviation similaire après évaluation des caractéristiques de lixiviation grâce à un essai de dépendance au pH [VAN-02].

II.3.3.4. LIXIVIATION DES ELEMENTS TRACES METALLIQUES PAR LES BÉTONS

Les produits de construction contiennent de nombreuses substances susceptibles d'être relarguées dans l'environnement quand ils se trouvent en contact avec l'eau pendant leur utilisation ou après démolition. Les émissions peuvent représenter une menace pour la santé humaine ou les éco-systèmes. Parmi les composés inorganiques relargués par les matériaux de construction, les métaux lourds sont les plus fréquents et dangereux. Ils peuvent être présents à différentes concentrations selon le matériau et montrer des comportements en matière d'accumulation dans les sols particuliers. Au niveau européen, le règlement sur les produits de construction [EUR-11] définit sept exigences de base concernant les ouvrages comprenant explicitement les questions d'hygiène, de santé et d'environnement (BR n°3).

Une attention grandissante est portée à la lixiviation possible d'éléments traces métalliques à partir d'éléments structurels en béton, étant donnée l'augmentation de l'utilisation de combustibles secondaires dans la production du ciment et l'addition de mâchefers ou de cendres volantes dans le ciment. Cela conduit généralement à de grandes quantités d'éléments traces métalliques dans les bétons [MUL-12].

Les éléments traces métalliques sont lessivés dans l'eau en contact avec les surfaces des bétons, par dissolution directe des phases cimentaires présentes à la surface et/ou diffusion à travers la solution présente dans les pores vers la surface du béton. La solubilité des éléments traces dépend des liaisons qu'ils ont pu former avec les produits d'hydratation mais aussi de leur capacité à former des complexes aqueux et à précipiter les phases contrôlant la solubilité. Ainsi van der Sloot [VAN-02] observe une corrélation différente entre les quantités totales de chrome, molybdène, plomb, vanadium et zinc dans le mortier et leur disponibilité comme définie par le test de disponibilité hollandais [NEN-7341], i.e. leur contenu soluble par rapport à la masse sèche de l'échantillon. En conséquence l'évaluation des risques environnementaux ne peut être basée sur les quantités totales d'éléments traces métalliques contenus dans le seul béton, mais elle nécessite une meilleure compréhension des mécanismes en jeu durant la lixiviation.

Dans une étude portant sur la lixiviation à long terme d'éléments traces toxiques provenant de mortiers de ciment Portland dans un milieu aqueux, Hillier et al. [HIL-99] ont montré que les concentrations en arsenic, chrome, béryllium, plomb et nickel étaient toutes dans la gamme de valeurs présentées par les accords de partenariat et de coopération de la Kiln Dust Task Force [PCA-92]. En conséquence le ciment Portland utilisé dans cette étude sur la lixiviation a pu être qualifié de normal sans concentrations élevées anormales d'éléments traces métalliques.

Lupsea et al. [LUP-14] ont appliqué un test de lixiviation sur un produit commercial, une plaque associant ciment et fibres de cellulose afin d'évaluer le relargage des polluants. Les espèces potentiellement dangereuses sont relarguées en quantités significatives comparées à leur contenu total. Les auteurs expliquent que la présence d'éléments dangereux tels le chrome, le molybdène et le cuivre serait due au ciment utilisé pour fabriquer la plaque.

Le comportement à la lixiviation des matériaux à base de ciment (et plus particulièrement les déchets stabilisés) a été largement étudié [VAN-02][ENG-12][VAN-95][WAN-09] [ULM-03]. Cependant la plupart des études se sont concentrées sur les propriétés mécaniques en relation avec la structure du matériau et son usure [CAR-97]. Plus précisément, aucune information n'existe encore sur le comportement à la lixiviation et l'émission de polluants dans le cas des bétons lignocellulosiques utilisant des granulats naturels.

La lixiviation des bétons lignocellulosiques n'a pas été considérée jusqu'à présent et aucune étude n'a été trouvée sur la dégradation de matériaux cimentaires incluant des granulats lignocellulosiques par lixiviation.

III. CONCLUSION

La revue des travaux antérieurs a montré les problèmes des composites lignocellulosiques résultant des granulats qui peuvent absorber une grande quantité d'eau et rejeter des composés solubles organiques. Ces phénomènes engendrent des variations dimensionnelles importantes, un retard de prise du ciment, une baisse des résistances mécaniques. La solution proposée par ces travaux est de traiter le granulat avant son mélange avec le ciment. Elle a également permis de faire le point sur les différents traitements d'hydrophobisation applicables à la matière lignocellulosique et de dégager la piste d'un nouveau traitement des anas de lin utilisant la cire de paraffine.

La plupart des travaux menés dans le domaine des bétons de bois décrivent les interactions avec l'humidité sachant qu'ils seront utilisés comme isolants dans l'enveloppe intérieure du bâtiment. Ces composites ont montré un transfert d'humidité élevé et des capacités de stockage de l'eau sous forme de vapeur. Ils sont classés comme d'excellents (ou presque excellents) régulateurs hygroscopiques.

L'étude bibliographique a également permis de mettre en évidence la complexité d'évaluer l'impact des composites lignocellulosiques sur l'environnement à l'échelle du laboratoire.

Il existe de nombreuses normes internationales pour caractériser des matériaux par un test de

lixiviation Il est clair qu'il n'est possible de comparer les résultats d'analyses de lixiviation des matériaux qu'en utilisant la même échelle. Comme les composites d'anas de lin et les matériaux lignocellulosiques en général sont nouveaux, il est donc possible de choisir un test pour découvrir leur impact environnemental.

Dans cette étude, cinq types des bétons lignocellulosiques seront caractérisés. Pour cela nous utiliserons plusieurs méthodes expérimentales pour identifier leur comportement mécanique, thermique, hydrique et hygrique. Ces tests se réaliseront sur les composites lignocellulosiques à l'état massif et sous forme granulaire.

CHAPITRE II :
ELABORATION ET CARACTERISATION DES
ECO-COMPOSITES À BASE D'ANAS DE LIN

INTRODUCTION

Les composites lignocellulosiques étudiés sont fabriqués par un simple mélange de granulats lignocellulosiques, les anas de lin, avec du ciment Portland et de l'eau du réseau. Avant l'élaboration des composites, quatre substances d'enrobages ont été utilisées pour traiter les anas dont une minérale et trois organiques. L'objectif des traitements est d'améliorer la compatibilité entre les anas de lin et la matrice cimentaire, tout en valorisant un sous-produit local. Ce travail présentera les résultats de l'étude menée sur un procédé d'enrobage, ses effets sur les anas de lin et les composites à base de ciment-anas élaborés. Une discussion est aussi menée sur les propriétés hydriques, mécaniques, thermiques et microstructurales des éco-composites obtenus. Leurs avantages, limites et applications possibles dans la construction sont également discutés.

A. LES MATIÈRES PREMIÈRES

I. CONSTITUANTS DES ÉCO-COMPOSITES

I.1. LE CIMENT

Le ciment que nous avons utilisé pour la confection des bétons est un ciment Portland ordinaire CEM I 52,5 N CP2 fourni par la Société Calcia (usine de Gaurain) dont la composition chimique est donnée dans le Tableau II. 1. Sa masse volumique apparente est de $993 \pm 13 \text{ kg.m}^{-3}$.

Tableau II. 1 : Propriétés physiques et chimiques du ciment

Caractéristiques physiques						Composition (%)					
Masse volumique (g/cm³)				3,11		Clinker				95	
Surface Blaine (cm²/g)				3400		Gypse				5	
Composition chimique du ciment (valeurs moyennes en %)											
Oxydes	CaO	SiO ₂	Al ₂ O ₃	SO ₃	Fe ₂ O ₃	MgO	K ₂ O	TiO2	MnO	Na ₂ O	P ₂ O ₅
%	63,8	19,6	5,3	3,6	2,7	2,4	2,4	0,3	0,04	0,1	0,2

I.2. LES ANAS DE LIN

Les granulats utilisés sont des anas de lin fournis par la CALIRA (Coopérative Agricole Linnière de la Région d'Abbeville, France). Ces particules lignocellulosiques sont des coproduits végétaux issus du teillage du lin. Elles sont composées principalement de cellulose (53%), de lignine (24%), d'hémicelluloses (13%), de minéraux (2%) et d'extractibles (terpènes, tannins, cires...) [SAI-02].

I.3. L'EAU

Tous les composites cimentaires ont été fabriqués avec l'eau qui provient du réseau d'eau de la ville d'Amiens. Les résultats de l'analyse chimique de l'eau utilisée répondent aux prescriptions de la norme [NF EN 08]. Ceux-ci sont représentés dans le Tableau II. 2.

Tableau II. 2 : Analyse chimique de l'eau utilisée

pH	T (°C)	Dureté TH (°f)	Calcium (mg/L)	Conductivité (µS/cm)
7,5	18	26	104	580

II. MÉTHODES DE CARACTÉRISATION DES ANAS DE LIN

Pour chaque type d'anas de lin, traités ou non, les caractéristiques physiques suivantes ont été déterminées :

- la capacité d'absorption d'eau ;
- les masses volumiques apparente et réelle ;
- la morphologie.

II.1. CAPACITÉ D'ABSORPTION D'EAU

L'absorption est un processus par lequel un liquide pénètre dans les matériaux. Elle conduit à l'augmentation de masse (ou de volume) des matériaux. Le taux d'absorption dépend de la nature des matériaux. Les matériaux lignocellulosiques sont connus pour leur capacité d'absorption élevée. Les granulats lignocellulosiques gonflent durant l'absorption lorsque leur teneur en eau augmente et vice versa [NOR-16].

Pour déterminer la capacité d'absorption d'eau des granulats, il existe plusieurs méthodes afin d'éliminer l'eau en surface. Il est possible d'utiliser la force centrifuge [JON-15], un récipient maillé [NOZ-12-2] ou du papier d'essuyage [KHA-08].

La méthode utilisant le papier d'essuyage a été choisie pour sa facilité de mise en œuvre. Les

anas (enrobés ou non) sont séchés à 50°C jusqu'à masse constante avant les expériences d'absorption d'eau. Une quantité connue d'anas est immergée dans de l'eau distillée pendant un temps donné. Une pesée est réalisée après élimination de l'eau de surface en utilisant du papier absorbant. Ces opérations sont répétées jusqu'à masse constante. Le gain de masse est calculé selon l'Équation 1.

La capacité d'absorption d'eau $W(t)$, exprimée en %, est la masse d'eau absorbée au temps "t" par unité de masse de matériau sec.

$$W(t) = \frac{M_h(t) - M_s}{M_s} \times 100 \quad Eq.1$$

Où $M_h(t)$ représente la masse des anas humides au temps "t" et M_s la masse des anas secs.

II.2. ANALYSE MORPHOLOGIQUE

Afin de caractériser la morphologie des anas de lin, avant et après traitement, nous avons utilisé un dispositif d'analyse d'images (Figure II. 1) constitué :

- d'un microscope (Controlab®) VH-Z25 muni d'un zoom 175x,
- d'un éclairage annulaire à source de lumière froide, non diffus, semi-rasant, positionné sur la base du microscope,
- d'un système d'acquisition équipé du logiciel ELLIX (Controlab®) permettant la numérisation et la visualisation des images via un écran haute résolution (507x688 pixels).

Le dispositif permet de déterminer les distributions incrémentales et cumulées des longueurs et largeurs des anas de lin avant et après traitement d'enrobage.

Nous avons également utilisé la microscopie électronique à balayage pour mettre en évidence la microstructure des anas de lin et en particulier leur porosité.

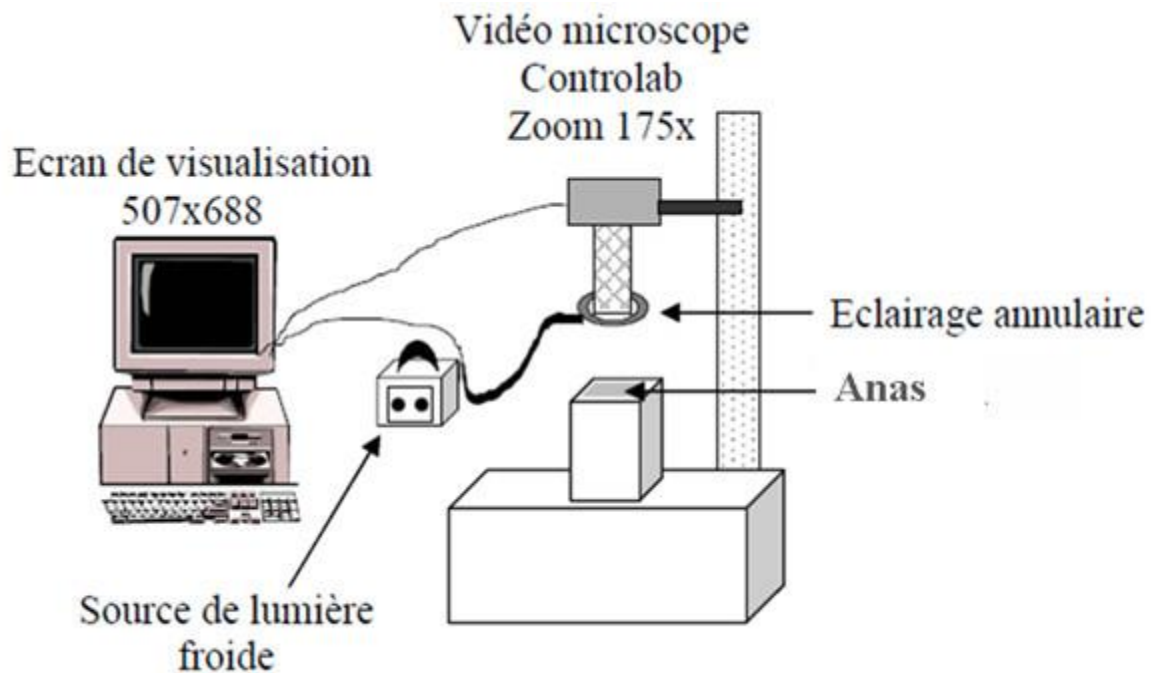


Figure II. 1: Dispositif d'analyse d'images.

II.3. MICROSCOPIE ELECTRONIQUE A BALAYAGE (MEB)

La microscopie électronique à balayage (MEB) permet d'évaluer la microstructure des anas de lin ainsi que des composites cimentaires.

La microscopie électronique à balayage (MEB) est une technique de microscopie basée sur le principe des interactions électrons-matière, capable de produire des images en haute résolution de la surface d'un échantillon. Le MEB permet d'observer les minéraux à un très fort grossissement. Il permet également de déterminer la nature des éléments constitutifs de l'échantillon observé. La microscopie réalisée dans ce travail utilise un microscope électronique FEG de type XL 30, commercialisé par FEI. Il est équipé d'une pointe à émission de champ. La tension maximale du canon est de 30kV.

L'échantillon d'anas est métallisé en utilisant un métalliseur à pulvérisation cathodique sous vide partiel avant d'effectuer l'observation.

Cette technique permet de déterminer les répercussions des traitements sur la structure des anas et d'apprécier la qualité de l'enrobage.

II.4. MASSES VOLUMIQUES

II.4.1. MASSE VOLUMIQUE APPARENTE

La masse volumique apparente est une propriété caractéristique des poudres, granulés et autres solides divisés. Elle est définie, à une température donnée, comme la masse de l'unité de volume du matériau pris tel quel, comprenant les vides entre particules ainsi que les vides perméables et imperméables de la particule. En d'autres termes il s'agit de la masse de plusieurs particules d'une matière divisée par le volume total qu'elles occupent. Le volume total inclut le volume de particules, le volume des vides inter-particules et le volume de pores internes.

La masse volumique apparente a été déterminée par le remplissage d'un récipient d'un litre préalablement taré avec des granulats secs jusqu'à débordement, puis arasage de la surface supérieure à l'aide d'une règle, sans tassement (Figure II. 2). Après mesure de la masse totale des granulats dans le récipient, la masse volumique apparente des anas de lin est calculée selon l'Équation 2.

$$\rho_{app} = \frac{M_{totale} - M_{récipient}}{V} \quad Eq.2$$

Où M_{totale} est la masse du récipient rempli de granulats en kg, $M_{récipient}$ la masse du récipient vide en kg et V le volume du récipient en L.

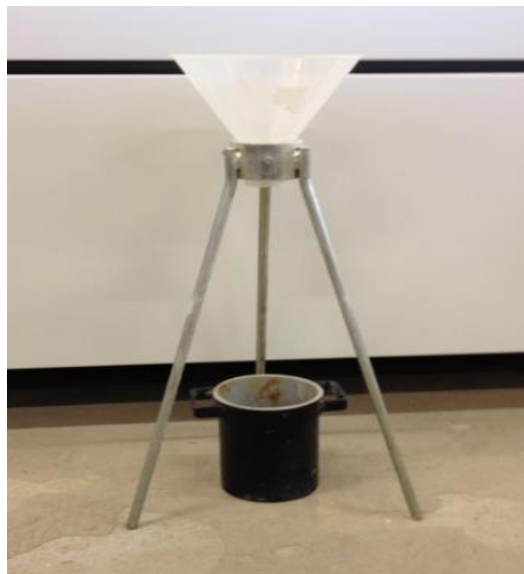


Figure II. 2 : Dispositif de mesure de la masse volumique apparente

II.4.2. MASSE VOLUMIQUE RÉELLE

La masse volumique réelle de particules est la masse de l'unité de volume de ces particules à l'exclusion de tous les vides entre particules. La déduction ne concerne que les vides entre les particules et non les vides compris dans le matériau.

La masse volumique réelle est définie comme le rapport de la masse de l'échantillon sec par le volume de sa partie solide, les vides internes étant inclus dans le volume de la particule. Ce concept est applicable à des matériaux granulaires poreux. Par exemple, en supposant une masse (M) d'un volume non compacté (V), le volume des vides entre les particules (Ve) et le volume des vides à l'intérieur des particules (vi), la masse volumique réelle est égale à $M / (V - V_e)$.

Une méthode pycnométrique est utilisée pour déterminer la masse volumique réelle des anas (traités ou non). Le pycnomètre est un récipient jaugé dont on pèse le contenu à l'aide d'une balance de précision au 10^{ème} de mg. Un liquide visqueux comme le glycérol est utilisé pour évaluer la masse réelle des anas de lin pour éviter une absorption rapide par la fraction végétale.

Pour évaluer la masse volumique réelle, au début il faut peser le pycnomètre (P0), prendre un échantillon de 20 g d'anas (Pe), introduire cet échantillon dans le pycnomètre, ajouter du glycérol jusqu'à un repère fixé et peser l'ensemble (P1) après avoir éliminé les bulles d'air en agitant le pycnomètre ou en faisant le vide. Ensuite le pycnomètre est vidé et rempli de glycérol jusqu'au repère fixé et pesé, (P2). Une nouvelle fois, le pycnomètre est vidé, rincé, rempli d'eau distillée et pesé (P3). La masse volumique réelle est alors calculée suivant les Équations 3 à 5. Les masses sont exprimées en kg et $\rho_{eau}=1 \text{ kg/L}$.

$$\text{Masse volumique du glycérol : } \rho_g = \frac{P2-P0}{(P3-P0)/\rho_{eau}} \quad Eq.3$$

Volume réel de l'échantillon (Ve) = Volume d'eau distillée - Volume de glycérol ajouté

$$\text{Volume réel de l'échantillon : } (V_e) = \frac{(P3-P0)}{\rho_{eau}} - \frac{P1-(P0+Pe)}{\rho_g} \quad Eq.4$$

$$\text{Et ainsi la masse volumique réelle de l'échantillon s'écrit : } \rho_r = \frac{Pe}{V_e} \quad Eq.5$$

III. PROCÉDÉS DE TRAITEMENT DES ANAS DE LIN

Les procédés de traitement des anas de lin ont pour objectif d'éviter ou de limiter les échanges d'eau et de molécules hydrosolubles entre les granulats végétaux et la matrice cimentaire. De plus la structure des granulats étant intéressante du point de vue de l'isolation thermique et acoustique grâce à la présence d'une porosité naturelle, les procédés appliqués doivent la garder intacte. Dans ce travail, des traitements d'enrobage sont réalisés en utilisant une substance minérale (chaux hydraulique) et des substances organiques (huile de lin, émulsion à base d'huile de lin, cire de paraffine), et en minimisant l'apport de chaleur.

Le choix des substances d'enrobage a été basé sur leur caractère peu hydrophile ou hydrophobe ainsi que sur leur résistance vis à vis du milieu cimentaire. D'autre part, les traitements thermiques consomment de l'énergie et les traitements chimiques ne sont pas très respectueux de l'environnement. La plupart des traitements (chimique et thermique) des fibres végétales sont dommageables pour leurs propriétés mécaniques mais aident à augmenter leur résistance à la dégradation au cours du temps [OLU-10].

Les procédés de traitement par la chaux, l'huile de lin et l'émulsion à base d'huile de lin ont été mis au point lors du travail de doctorat de Khazma [KHA-08]. Un nouveau procédé d'enrobage utilisant la cire de paraffine a été mis en place et est détaillé plus loin.

III.1. PROCÉDÉ DE TRAITEMENT À BASE DE CHAUX

L'enrobage minéral des anas a été effectué en utilisant la chaux hydraulique naturelle NHL 5 commercialisée par Holcim France. Cette chaux est obtenue à partir d'un calcaire plus ou moins siliceux cuit et éteint, issu d'une carrière dont le gisement est d'une extrême homogénéité. Elle contient environ 12% de silice mais aucun additif, ni ajout visant à modifier ses caractéristiques naturelles. L'indice 5 indique sa résistance en méga pascal (MPa) au bout de 28 jours. Elle durcit à court terme au contact de l'eau (prise hydraulique), puis progressivement au contact de l'air (prise aérienne) (Holcim). Sa masse volumique apparente est de $460 \pm 8 \text{ kg.m}^{-3}$. L'enrobage des anas à la chaux hydraulique est réalisé avec les rapports massiques eau/chaux=1 et anas/chaux =2/3 précédemment optimisés [KHA-08]. Les anas de lin, la chaux et l'eau sont malaxés ensemble pendant 2 minutes à 140 t/min dans un malaxeur à mortier normalisé [EN-95]. Ils sont ensuite conservés dans une chambre à température et humidité contrôlées (98% HR, 20°C) pendant 28 jours avant la préparation des composites cimentaires.

III.2. PROCÉDÉS DE TRAITEMENT À BASE D'HUILE DE LIN

III.2.1. PROCÉDÉ DE TRAITEMENT À BASE D'HUILE DE LIN BRUTE

Un enrobage organique des anas a été effectué grâce à une huile de lin commercialisée pour le traitement du bois (ONYX). Les principaux acides gras qu'elle contient sont, par ordre décroissant, l'acide linoléique, l'acide oléique, l'acide linoléique, l'acide palmitique et l'acide stéarique [POP-12]. Elle présente une masse volumique de $934 \pm 2 \text{ kg.m}^{-3}$ et un indice d'iode de 190 ± 15 indiquant un degré d'insaturation élevé [KHA-14]. En effet les acides gras présents étant riches en insaturations, l'huile de lin possède une forte capacité d'oxydo polymérisation sous l'effet de l'oxygène de l'air. L'huile de lin s'oxyde en absorbant lentement l'oxygène de l'air et forme une pellicule solide.

Pour le traitement à l'huile de lin, les anas de lin sont mélangés avec l'huile suivant le rapport massique huile de lin/anas de 2/1, avant d'être placés 40 jours en étuve à 50°C [KHA-08].

Une oxydo polymérisation partielle d'un film d'huile de lin ayant nécessité 21 jours à 50°C , la décision a été prise de prolonger la durée à 40 jours. Dans de telles conditions ce traitement est peu réaliste d'un point de vue économique.

Le temps nécessaire à l'oxydo polymérisation de l'huile peut être assez longue car l'huile de lin absorbe lentement l'oxygène de l'air et forme une pellicule solide qui freine le processus. Ce phénomène est causé par une réaction d'oxydation produisant un dégagement de chaleur. De plus le temps d'oxydo polymérisation dépend de la quantité d'huile, de l'exposition à l'oxygène et de la température.

III.2.2. PROCÉDÉ DE TRAITEMENT À BASE D'ÉMULSION D'HUILE DE LIN

Comme mentionné dans le Chapitre 1 (paragraphe II.1.2), l'enrobage des anas de lin par une émulsion polymérisée d'huile de lin est intéressant du point de vue développement durable. Dans ce travail, nous avons adopté les procédures de traitement par l'émulsion d'huile de lin décrites par Khazma et al. [KHA-14]. Les poussières de lin, coproduit du teillage, sont utilisées comme émulsifiant. Le procédé de traitement est donc conforme à notre objectif de technologie durable puisqu'il n'utilise que des produits issus de la culture du lin.

Dans l'industrie linière les poussières constituent environ 10% des produits du lin. Elles sont essentiellement utilisées pour la fabrication de terreaux. Le développement de ce type d'émulsion pour l'enrobage de granulats lignocellulosiques représente une autre voie de valorisation de ces poussières.

La technique d'obtention de l'émulsion consiste à mélanger l'huile de lin avec les poussières

de lin tamisées à 0,08 mm. Le tamisage a été mis en place pour diminuer au maximum la quantité de particules lignocellulosiques et augmenter la concentration de la charge minérale.

Le mélange est ensuite chauffé par micro-ondes pour réaliser l'extraction et la dissolution de molécules liposolubles présentes dans la poussière. Ces molécules permettent la formation et la stabilisation de l'émulsion en se portant à l'interface huile/eau.

Après chauffage, le mélange résultant est refroidi et centrifugé pour obtenir deux phases, le surnageant et le culot de centrifugation. Après l'addition d'eau au surnageant, on obtient par agitation une émulsion stable.

Ensuite, pour enrober les anas par l'émulsion résultante, l'émulsion est mélangée avec les anas de lin bruts selon le rapport massique 2/1. Le mélange anas-émulsion est malaxé pendant 2 minutes à 140t/min. Les anas traités sont alors placés dans une étuve à 50°C.

Il convient de mentionner que la quantité d'huile utilisée dans ce procédé est moindre par rapport à un traitement avec l'huile de lin brute.

III.3. PROCÉDÉ DE TRAITEMENT PAR LA CIRE DE PARAFFINE

Un nouveau procédé de traitement utilisant la cire de paraffine a été élaboré au cours de ce travail. La paraffine est connue par ces propriétés physiques et chimiques. Elle est hydrophobe et insoluble dans l'eau, mais soluble dans l'éther, le benzène et certains esters. La paraffine est non affectée par la plupart des réactifs chimiques communs mais brûle facilement avec une chaleur de combustion est de 42 kJ/g. Elle se compose d'un mélange des molécules d'hydrocarbures non toxiques et n'est pas classée comme dangereuse au sens de la Directive 67/548/CEE. Cependant il est conseillé d'éviter la formation de poussière et la respiration de ces vapeurs, brouillards de pulvérisation ou gaz.

La cire de paraffine utilisée provient de chez Sigma Aldrich. Elle est caractérisée par un grade de 68-70, un faible point de fusion de 66-70°C, une masse volumique de 900 kg.m⁻³, une masse molaire moyenne de 430 g.mol⁻¹ et une viscosité égale à 3-6 mm²/s à 100°C. Elle est claire et sans odeur.

La cire de paraffine a été choisie en raison de ses propriétés physiques et chimiques. Elle se trouve principalement sous forme de solide blanc, léger, inodore et hydrophobe. Elle est également caractérisée par son inertie chimique et sa stabilité [HIM-94]. L'objectif est ici d'améliorer la compatibilité entre les anas de lin et la matrice cimentaire, et de proposer une méthode de récupération pour un sous-produit local.

III.3.1. ETUDE PRÉLIMINAIRE

Une étude préliminaire a été menée pour déterminer le rapport cire de paraffine/anas de lin afin de minimiser la masse volumique apparente des anas de lin après l'enrobage par le paraffine, de réduire la quantité de cire à la valeur optimale, et par conséquent de minimiser le coût de production. Le rapport obtenu est égal à 20 g de cire de paraffine pour 1 litre d'anas de lin. Les anas ont été traités en deux étapes. Au cours de la première étape, les anas de lin ont été immergés dans la cire fondue (Figure II. 3). Différentes températures ont été utilisées pour étudier leur impact sur la masse volumique apparente des anas de lin.

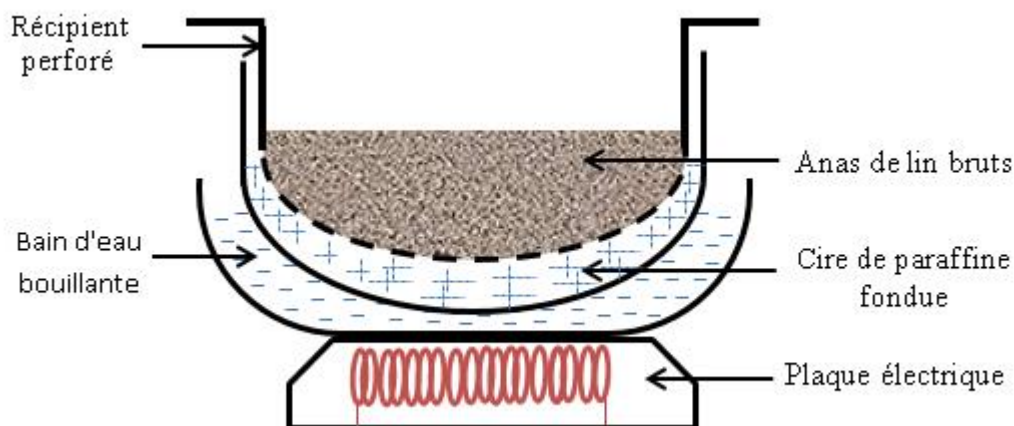


Figure II. 3 : Dispositif permettant la mise en fusion de la cire de paraffine

Un bain d'eau a été utilisé pour contrôler la température de la cire fondue. Les anas de lins produits par l'étape précédente présentaient une masse volumique apparente élevée indésirable. Cela est dû à l'excès de cire sur la surface des particules d'anas de lin. Ainsi, une deuxième étape a été effectuée en utilisant une technique innovante (unité de traitement par lots), comme représentée sur la Figure II. 4. L'unité batch a une capacité de 1,5 L anas et elle a été conçue pour éliminer l'excès de cire de la surface d'anas. L'excès de cire est fondu à l'aide d'un flux d'air chaud passant verticalement à travers les anas de lin traités et il est retiré vers le bas de l'appareil pour une réutilisation ultérieure. Différents temps de séjour ont été étudiés afin de déterminer le temps nécessaire pour que les anas de lin enrobés à la paraffine atteignent une masse volumique apparente finale minimale réalisable. Trois minutes ont été choisies comme temps de séjour optimal. La température de l'air chaud et le débit étaient constants et respectivement égaux à 60-65°C et 0,026 m³.s⁻¹.

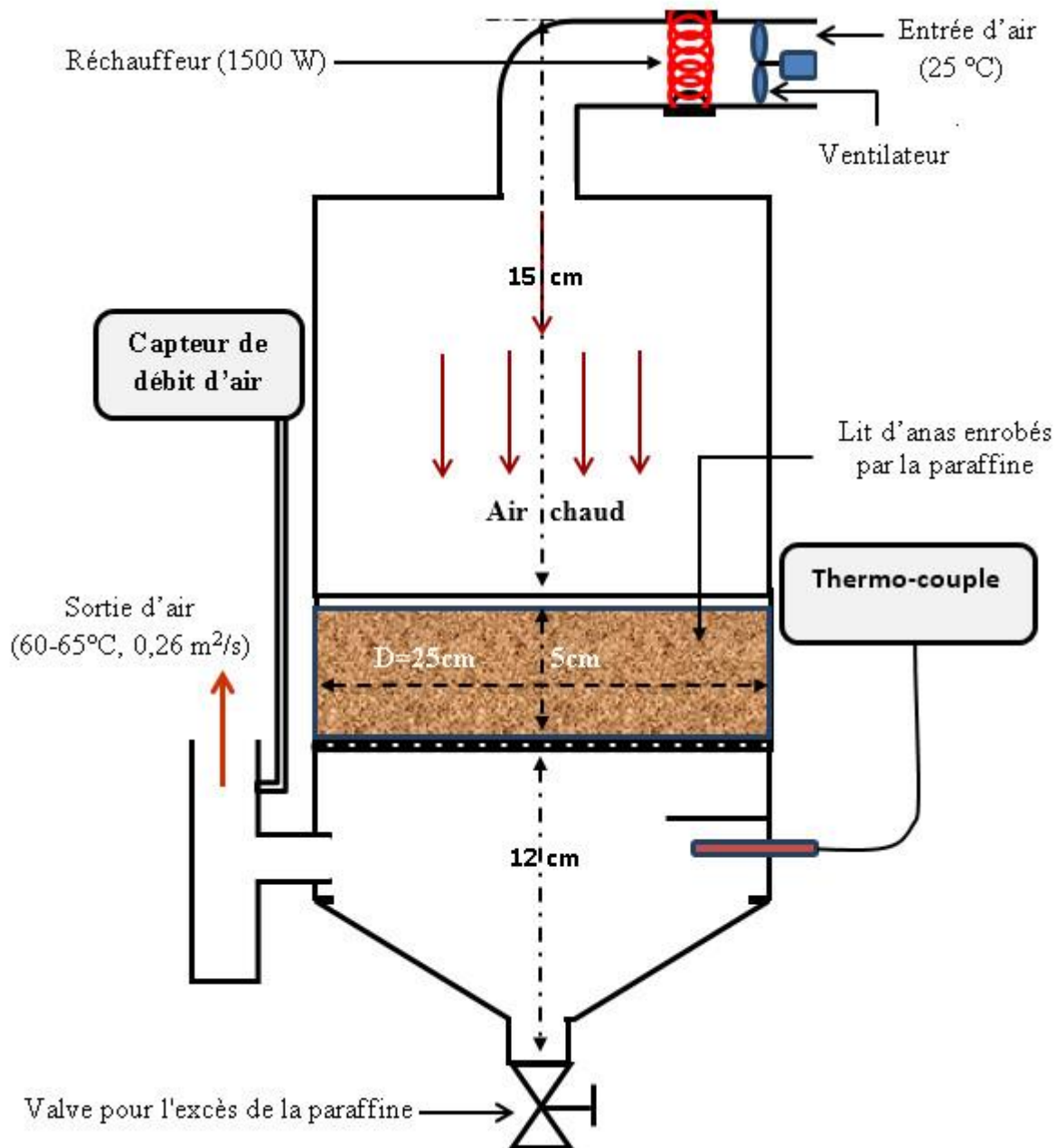


Figure II. 4 : Dispositif pour traiter les anas de lin par la cire de paraffine

III.3.2. OPTIMISATION DE LA MÉTHODE D'ENROBAGE

Afin d'optimiser le traitement par enrobage avec la cire de paraffine, différentes températures de la paraffine fondue ont été testées pour réduire la masse volumique apparente des anas de lin enrobés. Selon la Figure II. 5, la masse volumique apparente des anas diminue avec l'augmentation de la température de la cire fondue. Avec une température inférieure à 90°C, les anas sont agglomérés à cause de la quantité de la cire résiduelle. Par conséquent, des valeurs élevées de masse volumique apparente ont été mesurées.

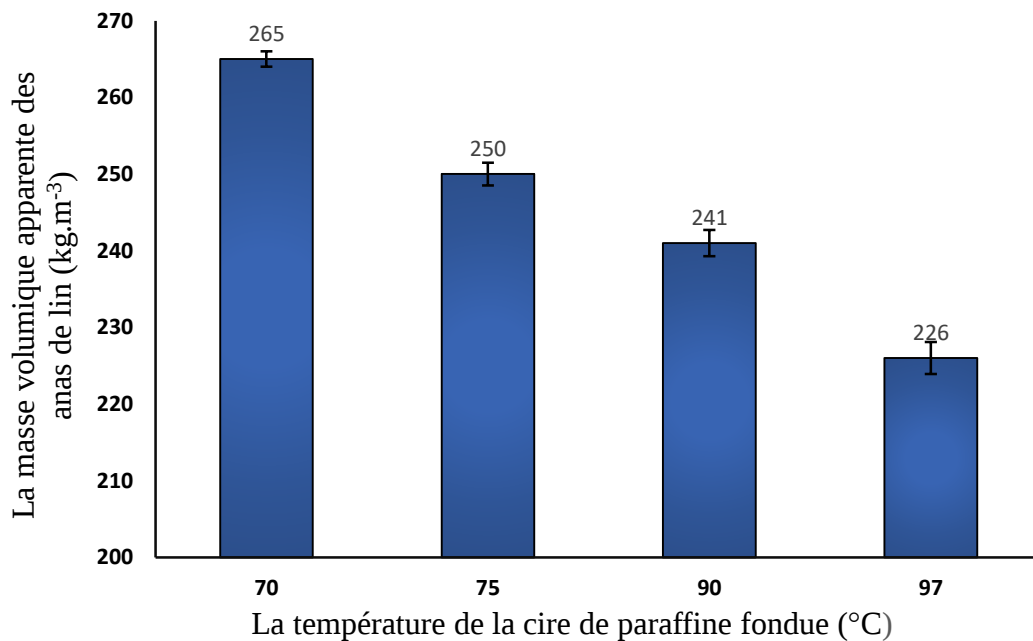


Figure II. 5: Effet de la température de la cire de paraffine fondue sur la masse volumique apparente des anas de lin

La plus faible masse volumique apparente est obtenue avec une température de la paraffine fondue de 97°C. Donc, cette température est retenue pour le traitement des anas. Malgré la sélection d'une température élevée dans le traitement initial, la masse volumique apparente est restée élevée (226 kg.m⁻³) par rapport à celles des anas non enrobés (88 kg.m⁻³). Par conséquent, l'unité batch, présentée en Figure II. 4, a été utilisée pour éliminer l'excès de la paraffine de la surface des anas traités. Ainsi des anas traités avec une masse volumique apparente minimale de $189,8 \pm 2,14$ kg.m⁻³ ont été obtenus pour un temps de séjour de trois minutes dans l'unité batch de traitement (Figure II. 6). Ce temps optimal a été choisi pour éviter l'accumulation de fumée de paraffine dans l'unité de traitement et réduire la consommation d'énergie.

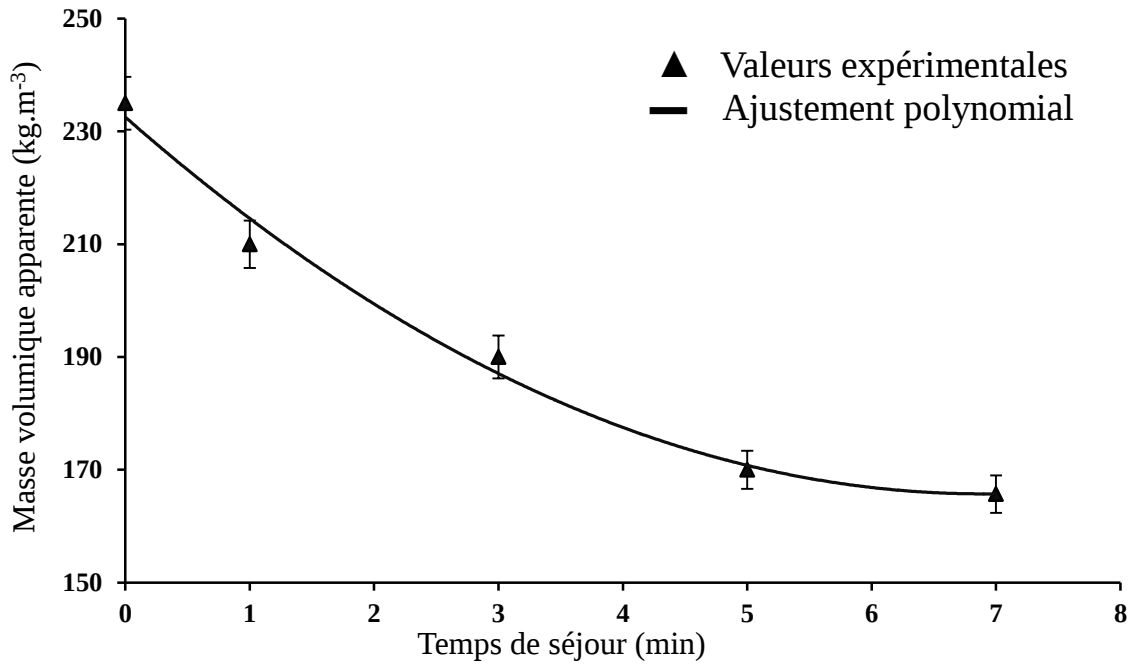


Figure II. 6: Effet du temps de séjour dans l'unité batch sur la masse volumique apparente des anas de lin traités

B. LES ÉCO-COMPOSITES

I. FABRICATION ET CONSERVATION DES ÉPROUVETTES

Les anas de lin sont mélangés avec le ciment dans un malaxeur normalisé [EN-95] de 4 litres pendant 30 s à 140t/min, pendant les 30 s suivantes l'eau est ajoutée sans arrêt. Le mélange obtenu est alors malaxé 30 s à 285t/min. Le malaxeur est arrêté 1 min 30 s pour enlever le mélange adhérent aux parois. Puis le malaxage est repris à grande vitesse pour 30 s. Les moules sont alors remplis à moitié, placés sur une table à choc pour 60 chocs puis complétés avant de subir à nouveau 60 chocs. Un arasage de la surface est alors effectué.

Les différents matériaux ont été réalisés avec un rapport volumique anas/ciment de 4/1 et un rapport massique eau/ciment de 0,5. Les éprouvettes réalisées ont pour dimensions 40x40x160 mm³.

Les éprouvettes sont démoulées après 24 heures, puis conservées 28 jours à 98% d'humidité relative à 21°C±2°C. Elles sont alors séchées à 50°C jusqu'à masse constante avant de mesurer certaines de leurs caractéristiques (conductivité thermique, résistances mécaniques, masse volumique apparente). Les anas de lin brut et traités ainsi que les composites résultants sont présentés sur la Figure II.7.

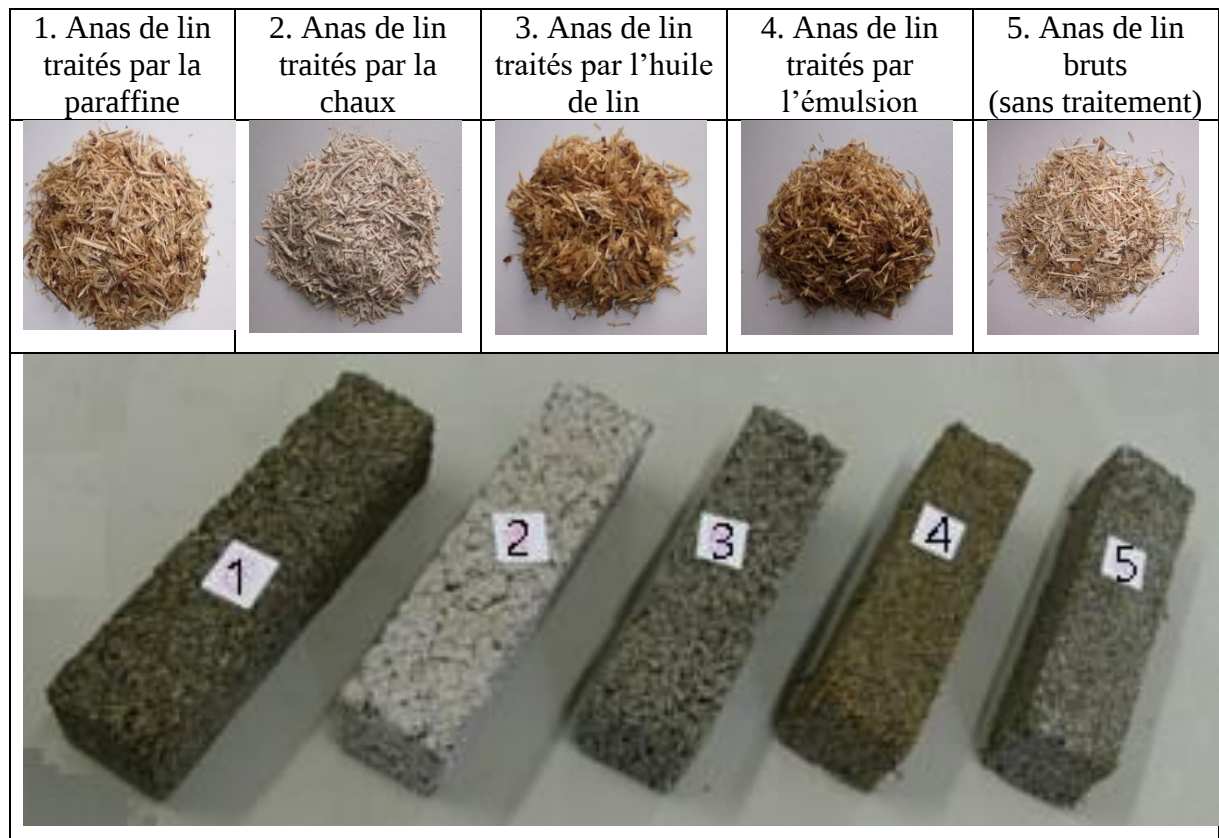


Figure II.7 : Anas de lin en vrac et composites élaborés

II. MÉTHODES DE CARACTÉRISATION DES MATÉRIAUX

II.1. DÉTERMINATION DES PROPRIÉTÉS THERMIQUES

Les bétons lignocellulosiques présentent des propriétés d'isolation thermique. Ainsi, la conductivité thermique des composites a été déterminée en utilisant une méthode de mesure dynamique transitoire électrothermique (transient dynamic electrothermal measurement method). La technique utilisée est la Source Plane Transitoire (TPS), qui découle de développements de la technique Transient Hot Strip (THS) [GUS-91] (Figure II. 8).

Les essais ont été effectués à l'état sec, à pression normale, sur des échantillons de dimensions $10 \times 10 \times 2,5 \text{ cm}^3$ placés dans une chambre à température constante. Chaque mesure a été réalisée deux fois. Une sonde Hot-Disk, à la fois émettrice de chaleur et sonde de température a été utilisée. Cette méthode permet de déterminer les propriétés thermiques suivantes :

- la conductivité thermique λ (W/m.K) qui représente l'énergie ou la quantité de chaleur transférée par unité de surface et de temps, sous un gradient de température de un Kelvin par mètre ;
- la capacité thermique volumique (J/m³.K) qui est la capacité du composite à emmagasiner de la chaleur.

siner la chaleur par rapport à son volume. C'est l'énergie qu'il faut apporter à un mètre cube de composite pour augmenter sa température de un kelvin ;

- la diffusivité thermique (m^2/s) qui est la capacité du composite à transmettre un signal de température d'un point à un autre de ce composite. Elle dépend de sa conductivité et de sa capacité thermique.

La méthode TPS (Source Plane Transitoire) est une méthode basée sur l'utilisation d'une source plane électrique de forme circulaire. Elle traite la variation du flux de chaleur en phase transitoire. Le capteur a été développé par Gustafsson et al. [GUS-91].

En pratique, un pont de Wheatstone est initialement équilibré, avec un réglage à faible tension, sur un générateur de tension stabilisée, en ajustant une résistance variable de sorte que la différence de potentiel aux bornes du galvanomètre soit nulle. La résistance initiale de la sonde TPS est ainsi déterminée. Ensuite, un flux constant est émis par le générateur de tension stabilisée dans le matériau étudié grâce au capteur TPS qui joue le rôle simultané d'élément chauffant et de capteur de température. L'essai consiste à serrer la sonde TPS entre deux blocs de composition et de dimensions identiques.



Figure II. 8: Dispositif de la TPS

La TPS (Transient Plane Source) a également été utilisée pour mesurer les conductivités thermiques des anas de lin. Pour obtenir les deux blocs d'anas, deux cylindres métalliques ont été remplis par un échantillon d'anas (à ras) puis le capteur a été placé entre les deux cylindres.

II.2. DÉTERMINATION DES PROPRIÉTÉS MÉCANIQUES

Pour évaluer l'effet des traitements des anas sur le comportement mécanique des composites élaborés, des tests de flexion trois points et de compression ont été effectués selon la norme [EN-95]. Les résistances mécaniques à la compression et à la flexion sont des paramètres essentiels dans l'appréciation des performances d'un matériau de construction.

II.2.1. RÉSISTANCE À LA FLEXION

Le test mécanique de flexion trois points conduit à la déformation de l'éprouvette de composite qui se traduit par une courbure.

Le principe de ce test est de déterminer la contrainte de rupture par flexion sous une charge progressivement croissante, exercée perpendiculairement à l'éprouvette. En pratique, les étapes de l'expérimentation sont les suivantes :

- on mesure à mi- longueur de l'éprouvette, les dimensions de la section transversale et la longueur ;
- on place l'éprouvette en appui sur le banc de flexion de façon que la charge soit appliquée parallèlement aux points d'appui selon les indications de la Figure II. 9.

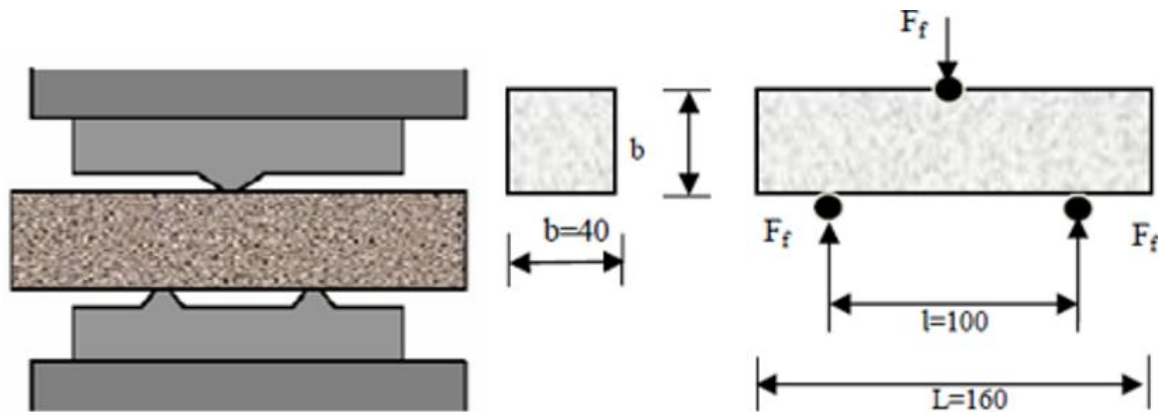


Figure II. 9: Essai de résistance à la flexion

Si F_f est la charge de rupture de l'éprouvette en flexion, le moment de rupture vaut $F_f.l/4$ et la résistance de traction correspondante, sur la face inférieure de l'éprouvette, est donnée par l'Équation 6.

$$R_f = \frac{1,5 F_f.l}{b^3} \quad \text{Eq. 6}$$

Cette contrainte indique la résistance à la flexion, R_f exprimée en MPa, avec F_f la charge de rupture en kN, l la distance entre les appuis ($l = 100$ mm), b le côté de la section carrée de l'éprouvette ($b = 40$ mm).

Les mesures sont réalisées à l'aide d'une machine hydraulique de type SHIMADZU (AUTO-GRAPH AG-X). Celle-ci permet d'appliquer une charge jusqu'à 10 kN.

Pour estimer la résistance en flexion des composites, des éprouvettes prismatiques $40 \times 40 \times 160$ mm³ sont utilisées après cure et séchage (5°C dans une étuve ventilée) jusqu'à masse constante. La valeur de la résistance à la flexion retenue pour chaque composite est la moyenne de mesures effectuées sur trois éprouvettes.

II.2.2. RÉSISTANCE À LA COMPRESSION

La résistance à la compression concerne la contrainte maximale admissible par un matériau soumis à une charge d'écrasement. Plus la valeur de cette résistance est élevée, plus le matériau peut supporter une charge élevée.

La résistance à la compression des composites est déterminée sur les deux demi éprouvettes obtenues à l'issue de l'essai de traction par flexion, par application d'un effort de chargement dans le sens perpendiculaire à l'axe de l'éprouvette, jusqu'à la rupture. Les mesures sont réalisées à l'aide d'un dispositif expérimental fourni par PROVITEK. Celui-ci permet d'appliquer une charge jusqu'à 250 kN. La résistance à la compression d'un composite, R_c exprimée en MPa, est donnée par l'Équation 7.

$$R_c = \frac{F_c}{b^2} \quad \text{Eq. 7}$$

Avec b le côté de la section ($4.10^{-2} \times 4.10^{-2}$ m²), F_c la charge maximale à la rupture de l'éprouvette appliquée en Newton (Figure II. 10).

Un test de compression complémentaire a été effectué pour les anas de lin bruts et traités. Ce test permet de donner une valeur à la force exercée sur l'échantillon pour le compresser et ainsi évaluer la dureté des anas de lin avant et après traitement. En effet, le test consiste à remplir un cylindre métallique d'anas de lin puis à fixer la distance de déplacement du piston de l'appareil et enfin à lire la valeur de la force résultante.

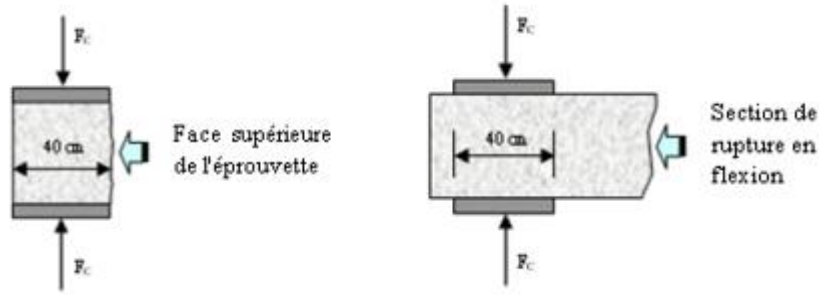


Figure II. 10: Dispositif de rupture en compression

II.2.3. MODULE D'ÉLASTICITÉ

Le module d'élasticité (également connu sous le nom de module de Young) est une grandeur qui permet de mesurer la résistance d'un objet ou d'une substance à se déformer de manière élastique, lorsqu'une force lui est appliquée. Il s'agit d'une propriété mécanique des matériaux solides élastiques linéaires. Il définit la relation entre la contrainte et la déformation dans un matériau soumis à une sollicitation mécanique.

Le module élastique d'une éprouvette (ϵ) est défini comme la pente de sa courbe de contrainte-déformation dans la zone de déformation élastique. C'est une grandeur intrinsèque d'un matériau, définie par le rapport de la contrainte à la déformation élastique provoquée par cette contrainte (Equation.8). La contrainte et la déformation étant respectivement exprimées en MPa et sans dimension, l'unité du module est le MPa. Plus un matériau est rigide, plus son module d'élasticité est élevé.

$$\epsilon = \frac{\text{Contrainte}}{\text{Déformation}} = \frac{F/A}{\Delta L/L} \quad \text{Eq.8}$$

Où la contrainte est la force (F) provoquant la déformation divisée par la surface (A) sur laquelle la force est appliquée et la déformation est le rapport de la variation de longueur (ΔL) provoquée par la sollicitation à la valeur initiale de la longueur (L).

En réarrangeant l'Équation 8 on obtient l'Équation 9 où $F/\Delta L$ est la pente de la courbe représentant l'évolution de la force en fonction du déplacement. Cette pente est calculée à partir des données entre deux points en utilisant la méthode des moindres carrés, comme montré sur la Figure II. 11.

$$\varepsilon = \frac{F}{\Delta L} \cdot \frac{L}{A} \quad \text{Eq. 9}$$

Un corps solide se déforme lorsqu'une charge est appliquée. Si le matériau est élastique, il reprend sa forme d'origine après suppression de la charge. Le matériau est linéaire si le rapport de la charge à la déformation reste constant durant le processus de chargement. Peu de matériaux sont linéaires et élastiques au-delà d'une petite déformation. Un module d'élasticité constant s'applique uniquement aux matériaux élastiques linéaires. Un matériau parfaitement rigide a un module de Young infini car une force infinie est nécessaire pour le déformer. Un matériau dont le module de Young est très élevé peut être considéré comme rigide.

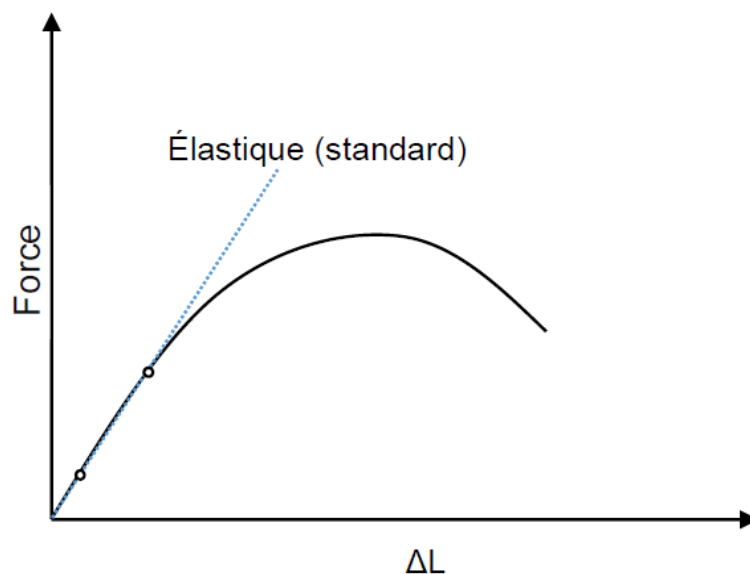


Figure II. 1. Évolution de la force en fonction du déplacement :
détermination du module d'élasticité

II.3. DÉTERMINATION DES VARIATIONS DIMENSIONNELLES

La stabilité dimensionnelle des matériaux de construction est un paramètre important puisqu'elle peut entraîner des déformations de la matrice qui risquent d'affecter la durabilité du matériau.

Les bétons lignocellulosiques présentent d'importantes variations dimensionnelles parce que les granulats végétaux sont capables d'absorber l'eau. Ces variations peuvent être dues aux processus physico-chimiques qui se produisent lors de l'hydratation ou au gradient hydrique qui peut exister entre le matériau et le milieu extérieur. Afin de quantifier l'impact de l'enro-

bage d'anas sur le comportement du composite hydraté, la détermination du retrait de séchage (VDS pour Variations Dimensionnelles au Séchage) et des variations dimensionnelles extrêmes (VDE) a été réalisée selon la norme [NFP-94]. Dans la pratique, ces essais sont effectués en mesurant la cinétique des variations dimensionnelles des éprouvettes des composites à l'aide d'un rétractomètre Controlab à affichage digital, qui offre une précision de 10^{-3} mm. Les résultats sont exprimés en millimètres par mètre (mm.m^{-1}). Les variations dimensionnelles sont déterminées sur des éprouvettes prismatiques de dimensions $40 \times 40 \times 160 \text{ mm}^3$ munies à leurs extrémités de plots métalliques (Figure II. 12).

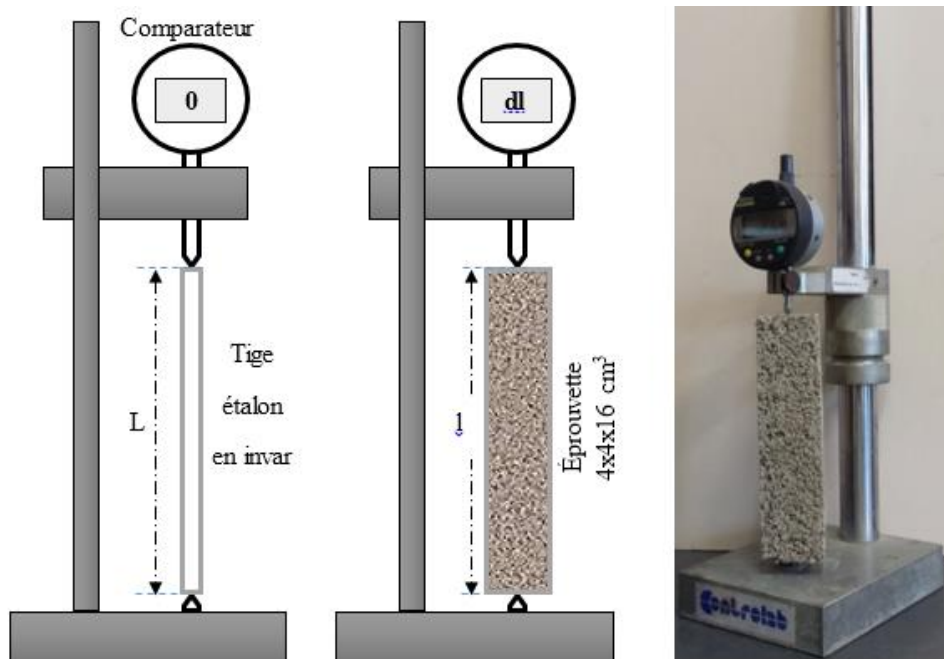


Figure II. 12 : Schéma présentant le rétractomètre utilisé pour la mesure des variations dimensionnelles

II.3.1. VARIATIONS DIMENSIONNELLES AU SÉCHAGE

Après un séjour de 24 heures dans la salle de conservation ($\text{HR}=98\%$ et $T=20 \pm 2^\circ\text{C}$), les éprouvettes sont démoulées et conservées dans une salle à une humidité relative égale à 65% et une température de 20°C (conditions hygrothermiques simulant les conditions climatiques réelles auxquelles sont soumis les matériaux en service). Les mesures sont effectuées pendant 28 jours, durée pour laquelle l'hydratation du matériau est considérée totale, puis elles sont poursuivies jusqu'à stabilisation de la masse.

II.3.2. VARIATIONS DIMENSIONNELLES EXTRÊMES

Pour simuler les variations climatiques extrêmes, les éprouvettes, après la cure de 28 jours, ont subi un séchage dans une étuve à 50°C jusqu'à masse constante, cela afin d'éliminer l'eau libre. Cela conduit à un retrait maximum du matériau cimentaire. Puis les éprouvettes ont été immergées dans l'eau jusqu'à masse constante, ce qui entraîne un gonflement maximum. La différence des dimensions, après stabilisation dans chacun des cas (états sec et saturé), représente la variation dimensionnelle extrême. Ces conditions d'essai correspondent à la transition d'un climat sec à un contact accidentel avec de l'eau.

II.4. ANALYSE MICROSTRUCTURELLE

L'objectif de cette analyse était d'évaluer l'influence des anas enrobés sur le développement des espèces au sein de la matrice et sur l'adhérence entre les granulats et la matrice.

L'étude microstructurale des composites a été réalisée grâce au microscope électronique à balayage de la Plateforme de Microscopie Électronique (PME) de l'UPJV et a permis de visualiser à fort grossissement la morphologie des matériaux. Après les essais mécaniques, des morceaux de la surface fracturée des échantillons ont été utilisés pour réaliser cette analyse.

Le détecteur d'électrons secondaires (ES) qui donne le contraste topographique de l'échantillon a été utilisé pour réaliser cette analyse. Les images électroniques sont formées, suite à la focalisation d'un faisceau d'électrons sur l'échantillon et à l'interaction électrons-matière, par réémission d'électrons secondaires. Pour être observable en microscopie électronique à balayage, un échantillon doit donc répondre aux conditions suivantes : supporter le vide et un bombardement électronique intense. Il doit aussi présenter une conductibilité électrique superficielle pour éviter la formation de charges électriques qui déforment l'image.

Pour faciliter l'observation des composites, une fine couche d'or a été pulvérisée sur les échantillons, préalablement séchés, afin de rendre leur surface conductrice.

II.5. MESURE DU COMPORTEMENT VIS-À-VIS DE L'EAU

II.5.1. DÉTERMINATION DE LA CAPILLARITE

L'action capillaire représente la capacité d'un liquide à s'écouler dans les espaces étroits sans l'aide et en opposition à des forces extérieures comme la gravité. Ces essais apportent des

informations sur l'importance du réseau capillaire et la structure interne des matériaux. Ils sont également nécessaires pour caractériser la durabilité des composites cimentaires en complément à d'autres essais. L'absorption capillaire se produit lorsque le matériau est en contact avec l'eau. La durabilité des matériaux, leurs propriétés mécaniques et thermiques sont également affectées par le mouvement de l'eau dans les capillaires. L'essai a été effectué selon la méthode décrite dans la norme européenne [NF EN 06]. Il consiste à déterminer le taux d'absorption par l'action capillaire, en raison des forces de succion. Des échantillons prismatiques de dimension ($40 \times 40 \times 160 \text{ mm}^3$), préalablement séchés à l'étuve à 50°C jusqu'à stabilisation de masse, sont recouverts latéralement par un film plastique thermo rétractable. Ce film isole les quatre faces latérales de l'échantillon de tout contact avec l'ambiance extérieure. Il favorise un écoulement unidirectionnel et empêche tout échange latéral. L'approvisionnement en eau liquide est effectué par contact d'une des faces transversales de l'échantillon avec l'eau contenue dans un bac. Pour chaque éco-matériau, trois éprouvettes sèches sont utilisées pour effectuer l'essai d'absorption capillaire. Les échantillons sont immergés sur une hauteur de $5 \pm 1 \text{ mm}$. Le niveau d'eau dans le bac est maintenu constant automatiquement pour fixer les conditions et ne pas perturber l'essai (Figure II. 13).

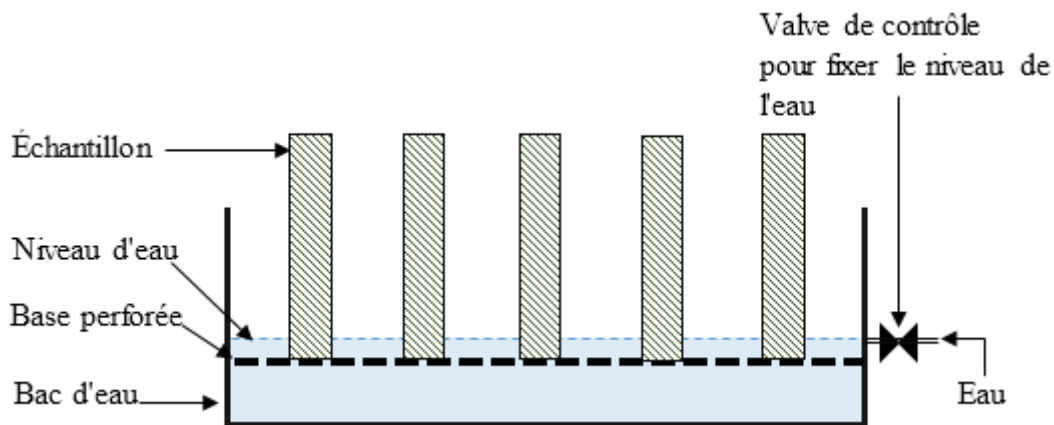


Figure II. 13: Dispositif de mesure de l'absorption d'eau par capillarité

Les échantillons sont pesés régulièrement jusqu'à stabilisation de leur masse. L'absorption capillaire, notée i , est le volume d'eau absorbée par unité de surface (mm^3/mm^2). Elle est calculée selon l'Équation 10 où S_i est la surface de la face immergée et M_t la masse de l'échantillon au temps t .

$$i = \frac{M_t - M_i}{\rho_w \cdot S_i} \quad \text{Eq. 10}$$

L'absorption capillaire "i" est représentée en fonction de la racine carrée du temps pour chaque éco-matériau. Pour les premiers temps d'absorption, la courbe obtenue est généralement une droite croissante de type $i = S \cdot t^{-1/2}$, dont le coefficient directeur est appelé coefficient de sorptivité (S en $\text{mm} \cdot \text{s}^{-1/2}$), suivie d'un palier de saturation qui est atteint relativement rapidement. Ce coefficient et l'absorption capillaire maximale traduisent la capacité d'absorption d'eau du composite.

II.5.2. DÉTERMINATION DE L'IMBIBITION

L'immersion totale est une méthode qui permet d'évaluer la fin de vie des matériaux stockés par enfouissement en contact avec des sols saturés ou placés sous conditions extérieures donc exposés à la pluie [ISO-02].

La méthode expérimentale consiste à immerger entièrement les éprouvettes dans un bac d'eau. La masse de ces éprouvettes est régulièrement mesurée au cours du temps jusqu'à stabilisation. Les échantillons ayant une densité inférieure à celle de l'eau, ils sont maintenus immergés entre une grille métallique et des supports (Figure II. 14). Pour chaque type d'éco-matériau, l'essai est répété trois fois en utilisant trois éprouvettes différentes.

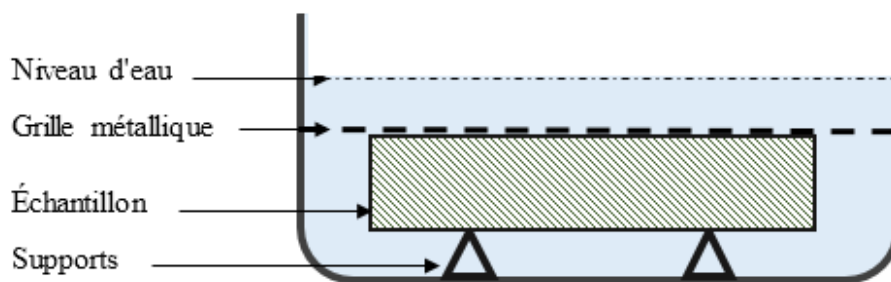


Figure II. 14: Dispositif expérimental pour l'essai d'imbibition

L'essai d'imbibition permet d'évaluer le coefficient d'absorption d'eau A_c ($\text{kg} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1/2}$) mais également la capacité maximale d'absorption d'eau des composites. Parallèlement la porosité accessible à l'eau des composites est estimée. Le coefficient d'absorption d'eau représente le rapport de la masse d'eau absorbée ΔM (kg) par la surface extérieure totale d'une éprouvette S (m^2) et la racine carrée du temps (Équation 11).

$$A_c = \frac{\Delta M}{S \cdot \sqrt{t}} \quad \text{Eq. 11}$$

De plus, la mesure de la différence entre la masse finale après immersion (M_f) et la masse initiale de l'éprouvette sèche (M_i) permet de déterminer la capacité maximale d'absorption d'eau du composite (W) suivant l'Équation 12.

$$W(\%) = \frac{M_f - M_i}{M_i} \times 100 \quad \text{Eq. 12}$$

La porosité représente la fraction du volume des vides sur le volume total d'un matériau (V). Le volume des vides accessibles à l'eau par capillarité peut être obtenu en divisant le gain de masse par la masse volumique de l'eau (ρ_{eau}). La valeur de la porosité, exprimée en pourcentage, est comprise entre 0 et 100. L'essai d'imbibition permet d'estimer la porosité accessible à l'eau des composites selon l'Équation 13 [MBO-04] :

$$\text{Porosité}(\%) = \frac{M_f - M_i}{\rho_{\text{eau}} \cdot V} \cdot 100 \quad \text{Eq. 13}$$

C. L'INFLUENCE DES PROCÉDÉS DE TRAITEMENT SUR LES GRANULATS ET LES MATÉRIAUX

I. IMPACT SUR LES PROPRIÉTÉS DES ANAS DE LIN

Ils existent deux critères pour évaluer l'efficacité des procédés de traitement appliqués aux anas de lin : la capacité d'absorption d'eau et la morphologie des anas. En effet la capacité d'absorption d'eau doit être réduite à une valeur minimale afin d'éviter la compétition pour l'eau entre le ciment et les anas de lin. Par ailleurs la forme et la structure interne des anas doivent être modifiées le moins possible après traitement pour garantir la préservation de leurs propriétés isolantes.

I.1. CAPACITÉ D'ABSORPTION D'EAU

Le but des procédés de traitement par enrobage utilisés est d'isoler les granulats lignocellulo-

siques de la matrice cimentaire et, donc, d'empêcher l'absorption d'eau par ces granulats. Ainsi l'eau ajoutée au moment du malaxage peut servir à l'hydratation des espèces cimentaires et la migration des molécules hydrosolubles des granulats vers la matrice est réduite. L'efficacité de l'enrobage des anas de lin par l'émulsion, l'huile de lin, la chaux et la cire de paraffine a été évaluée par un test d'absorption d'eau où l'eau de surface a été éliminée par du papier d'essuyage.

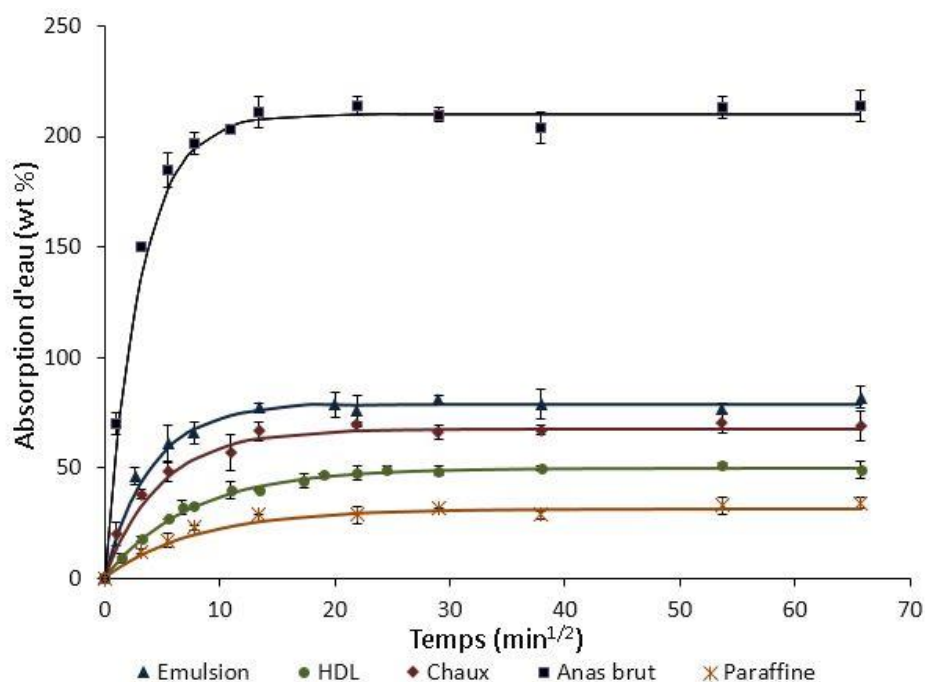


Figure II. 15 : Évolution de la capacité d'absorption d'eau des anas de lin en fonction du temps selon le procédé de traitement appliqué

Le temps nécessaire pour atteindre l'état de saturation augmente avec l'application d'un traitement: 4 à 7h sont nécessaires pour les anas enrobés contre 3h pour les anas non enrobés (Figure II. 15, Tableau II. 3).

Tableau II. 3. Données issues des courbes d'absorption d'eau

Traitement subi par les anas de lin	Absorption à la saturation (%)	Réduction d'absorption (%)	Temps de saturation (min)
Aucun	210,0	-	120
Émulsion	79,0	62	190
HDL	49,0	77	360
Chaux	67,7	68	180
Paraffine	31,5	85	420

De plus, la capacité d'absorption maximale pour les anas enrobés par l'émulsion, l'huile de lin, la chaux et la paraffine est de 79, 49, 67,7 et 31,5% respectivement, contre plus de 210% pour les anas non enrobés. Ce résultat montre la capacité des matériaux non polaires, comme la paraffine et l'huile de lin, pour isoler les granulats lignocellulosiques et réduire leur caractère hydrophile.

La Figure II.16, montre que la capacité d'absorption d'eau par les anas bruts peut-être due d'une part à la structure poreuse à l'intérieur des anas, et d'autre part à la présence de rugosités superficielles reparties de façon hétérogène avec la présence de quelques pores en surface.

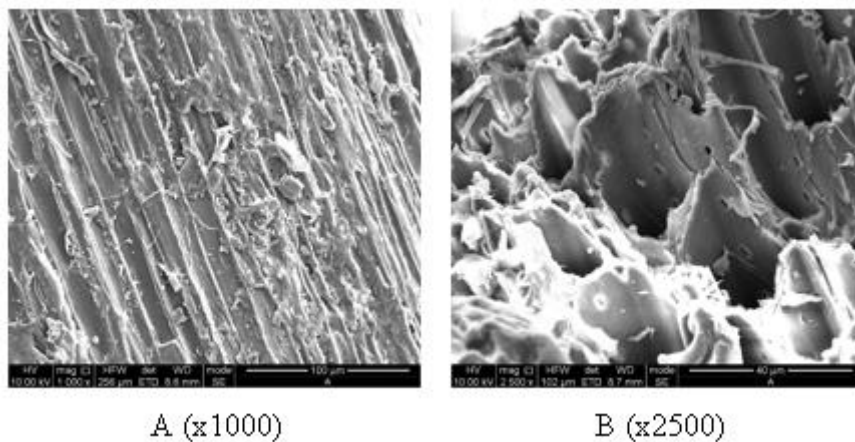


Figure II. 16: Caractérisation par MEB de la surface (A) et de la structure poreuse (B) des anas de lin bruts

À partir des résultats ci-dessus, nous concluons que traiter les granulats lignocellulosiques n'a pas éliminé complètement le phénomène d'absorption d'eau. Les anas enrobés continuent à absorber l'eau mais en quantité moindre car la couche de revêtement peut être imparfaite et ainsi entraîner une capacité d'absorption d'eau différente de zéro.

Ce phénomène peut être expliqué soit par un revêtement incomplet des anas, soit par la présence de microporosité ou/et de fissures détectées dans la couche d'enrobage (Figure II. 18). D'autres raisons permettent d'expliquer la persistance du phénomène d'absorption d'eau après le traitement. Par exemple, le traitement ne forme pas toujours un bouchon à l'extrémité des anas et la structure capillaire va permettre à l'eau d'entrer (Figure II. 17 A et B). Dans le cas des traitements par la paraffine et la chaux, les extrémités des granulats sont fermées pratiquement complètement (Figure II. 17 C et D). L'existence d'un bouchon de chaux à l'extrémité des anas n'a pas réduit de façon significative leur absorption d'eau à cause du caractère hydrophile de la chaux (la chaux est capable d'absorber l'eau). De plus, l'enrobage à la chaux présente un important réseau de craquelures comme montré sur la Figure II. 17. C.

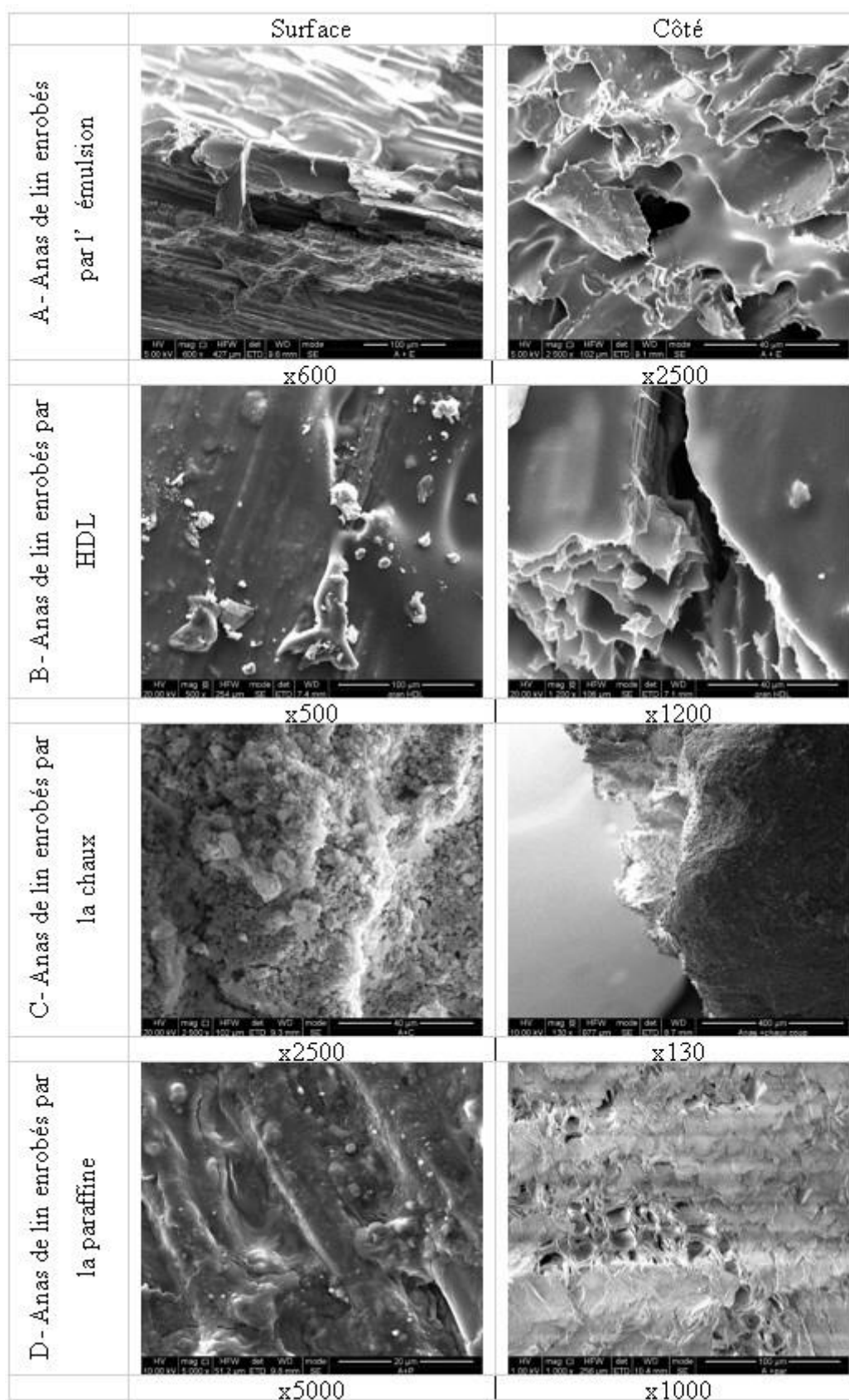


Figure II. 17: Caractérisation par MEB de la surface (à gauche) et de l'extrémité (à droite) des anas traités

Nous pouvons remarquer qu'il n'y a pas de différence importante entre l'enrobage par l'huile de lin et la paraffine. Les courbes de la Figure II. 15 présentent une évolution lente de l'absorption en fonction du temps.

Les anas enrobés par la chaux auraient dû posséder le plus haut taux d'absorption d'eau par rapport aux autres types d'enrobages à cause du caractère hydrophile de la chaux. Le résultat obtenu est probablement dû à la perte d'une quantité de chaux dans l'eau lors de ce test minimisant le gain de masse lié à l'absorption d'eau.

Les courbes d'absorption montrent que l'absorption d'eau se fait à vitesse non constante selon le type de traitement. La vitesse est directement proportionnelle à la capacité d'absorption à la saturation : les granulats qui ont une valeur élevée de vitesse d'absorption d'eau, ont une valeur élevée de capacité d'absorption à la saturation.

Dans tous les cas les anas enrobés présentent une cinétique plus lente que les anas bruts. Ce phénomène est probablement dû au passage lent de certaines quantités d'eau dans les pores vides de la couche enrobante. Les résultats obtenus sont en accord avec la littérature.

Khazma et al. [KHA-12][KHA-11] ont observé une diminution de l'absorption d'eau d'environ 50-60% pour les anas de lin traités par un élastomère synthétique, le polyéthylèneglycol-co-acide citrique (PEC) et un mélange de pectine-polyéthylènimine. Le même rapport de réduction a également été obtenu pour de la pulpe de betterave enrobée par de l'huile de lin et un lait de ciment [MON-11].

Une réduction de la capacité d'absorption d'eau atteignant environ 75% a été obtenue pour des anas de lin enrobés par de l'huile de lin [KHA-14]. Le traitement de copeaux de bois avec de l'huile de lin a permis de diminuer de manière significative leur absorption d'eau de 240% à 70%, soit une réduction est 71% [LED-00].

La même réduction de l'absorption de l'eau a été observée dans le cas d'anas de lin enrobés par un mélange de ciment-saccharose [KHA-08]. Le revêtement de particules de tournesol broyées en utilisant de la chaux hydratée ($\text{Ca}(\text{OH})_2$), de l'huile de lin et de la cire de paraffine a été expérimenté [NOZ-12]. Les auteurs ont prouvé la haute capacité de la cire de paraffine et de l'huile de lin pour changer le comportement hygroscopique des granulats. Une réduction d'environ 67% a été obtenue suite au traitement par la chaux d'anas de lin [KHA-08].

I.2. MORPHOLOGIE DES ANAS DE LIN AVANT ET APRÈS TRAITEMENT

La distribution de taille des anas de lin (avant et après traitement) a été déterminée par analyse d'image. Les observations conduites sur différents échantillons d'anas de lin mettent en évidence des particules élémentaires de dimensions moyennes $7,39 \pm 4,41$ mm en longueur et $1,14 \pm 0,46$ mm en largeur. Les distributions incrémentales et cumulées des longueurs et largeurs pour les anas non traités sont présentées sur la Figure II. 18. Cette figure montre que 95% des anas ont une longueur comprise entre 1 et 16 mm et une largeur comprise entre 0,2 et 2 mm. Cependant, 70% de ces anas présentent une longueur de 3 à 9 mm et une largeur de 0,7 à 1,4 mm.

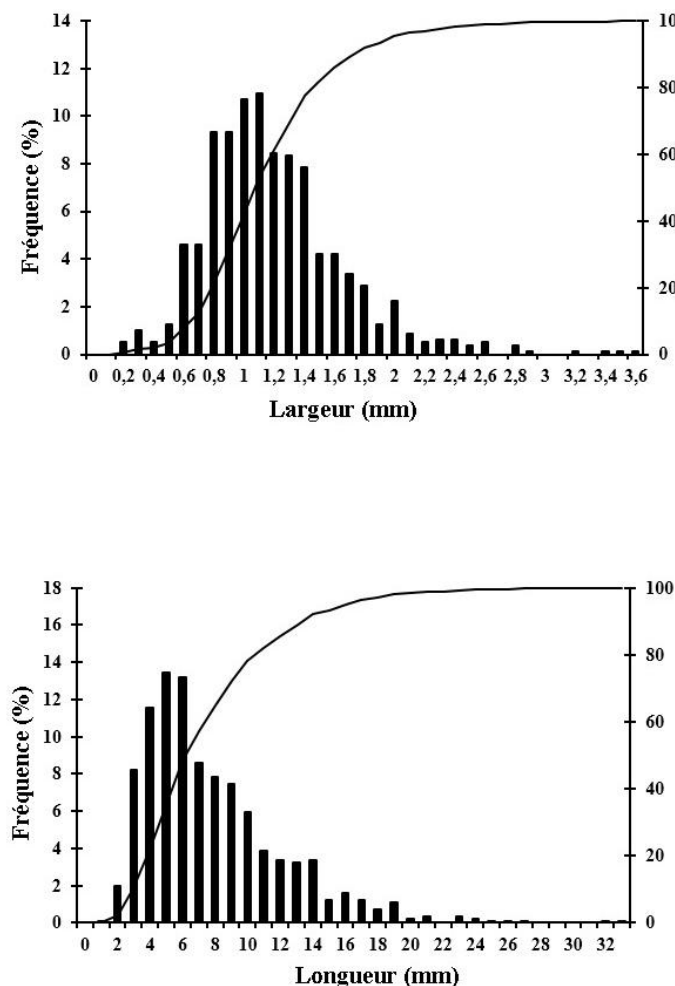


Figure II. 18: Distributions incrémentales (■) et cumulées (—) des largeurs et longueurs des anas de lin avant traitement

Les distributions incrémentales et cumulées des longueurs et largeurs pour les anas traités par la paraffine sont présentées sur la Figure II. 19. Cette figure montre que 95% des anas traités ont une longueur comprise entre 1 et 13 mm et une largeur comprise entre 0,5 et 1,9 mm.

Les distributions incrémentales et cumulées des longueurs, largeurs et surfaces pour les anas traités par l'huile de lin, l'émulsion et la chaux ont également été déterminées (Annexe I). Les résultats obtenus sont résumés dans le Tableau II. 4.

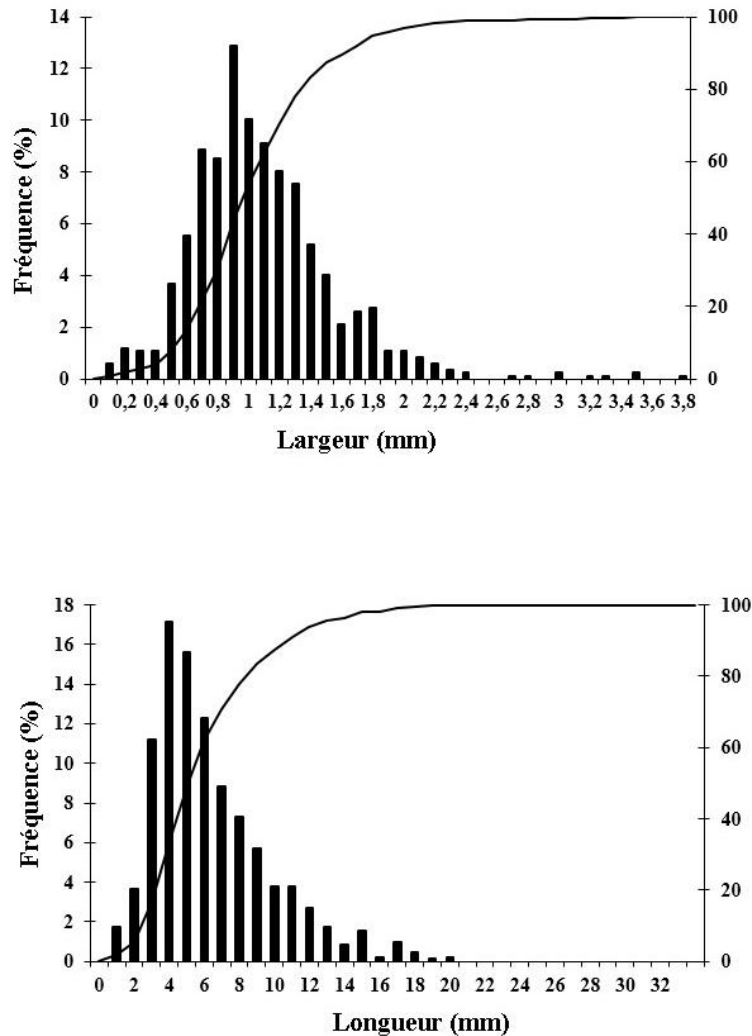


Figure II. 19: Distributions incrémentales (■) et cumulées (—) des largeurs et longueurs des anas de lin après le traitement par la paraffine

Les anas enrobés sont légèrement plus courts que ceux non traités quel que soit le traitement. En effet, les anas bruts, n'ayant subi aucun malaxage, sont ceux avec les plus grandes dimensions. Par contre, tous les anas traités subissent un malaxage lors de la réalisation de l'enrobage qui peut les casser. Ceci explique les valeurs inférieures de leurs longueurs et surfaces par rapport aux anas bruts.

Tableau II. 4. Morphologie des anas de lin bruts et traités (plages d'appartenance de 95% de la population)

Échantillons	Longueur (mm)	Largeur (mm)	Surface (mm ²)
Bruts	3-17	0,6-2,1	2-22
Chaux	1-10	0,4-1,9	1-13
Émulsion	1-12	0,5-1,8	2-15
Huile de lin	1-11	0,4-2,3	1-17
Paraffine	1-13	0,5-1,9	2-16

I.3. MASSES VOLUMIQUES

Les anas de lin sont des granulats intéressants de par leur légèreté. En effet ils présentent des masses volumiques apparentes et réelles ayant pour valeurs respectives $88,2 \pm 32,1$ et $389,8 \pm 1,5 \text{ kg.m}^{-3}$. Il est donc important d'évaluer l'influence des traitements d'enrobage sur leurs masses volumiques apparente et réelle. Une augmentation des masses volumiques est mise en évidence pour tous les anas de lin ayant subi un procédé de traitement (Figure II. 20).

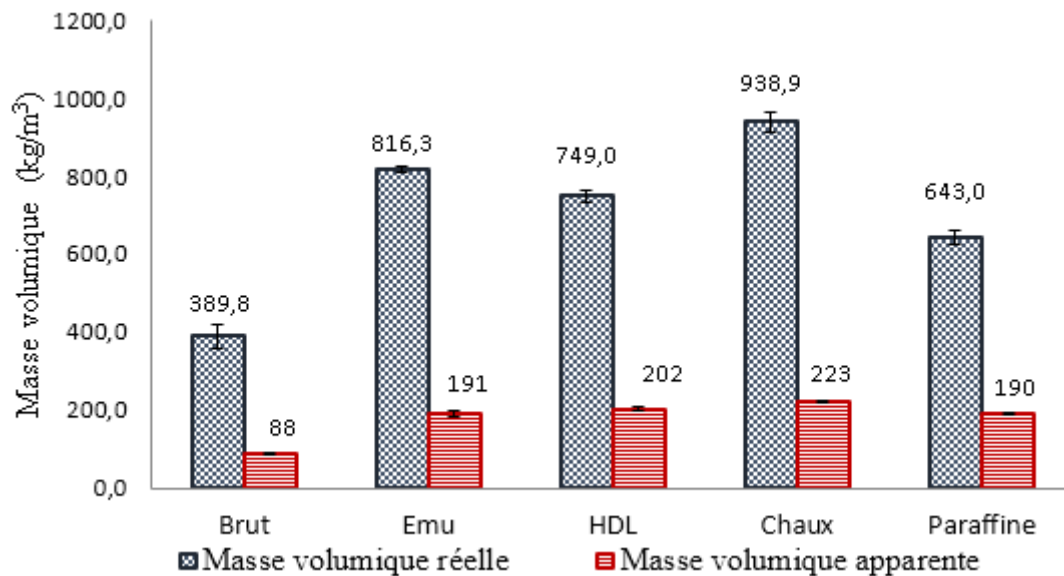


Figure II. 20 : Masses volumiques réelles et apparentes des anas de lin bruts et traités

La masse volumique réelle des granulats est affectée par la masse volumique réelle de la substance d'enrobage, le rapport massique anas/substance d'enrobage et la capacité de la substance à pénétrer dans les pores des granulats tandis que la masse volumique apparente est affectée par l'organisation et la taille des granulats après traitement, en plus des trois facteurs précédemment mentionnés (Tableau II. 5).

Tableau II. 5. Paramètres des procédés de traitement influençant les masses volumiques des anas enrobés

Paramètre	Émulsion	Huile de lin	Chaux	Paraffine
Masse volumique réelle (kg/m ³)	950	934	2750	900
Rapport massique anas/substance d'enrobage	2	2	1,5	0,24

L'augmentation de la masse volumique apparente est plus importante que celle de masse volumique réelle. Cette observation peut s'expliquer par : (i) la réduction de la taille des vides entre les granulats après traitement due à leur agglomération et (ii) la réduction de la taille des anas après traitement liée aux opérations de malaxage (comme montré au paragraphe I.2).

La structure en nid d'abeille à l'intérieur des anas bruts (Figure II. 16) et traités (Figure II. 21) étant préservée, la masse volumique réelle serait principalement affectée par les différences de substances d'enrobage.

Les anas de lin enrobés à la paraffine sont ceux qui présentent les plus faibles augmentations de masses volumiques apparente (+115%) et réelle (+65%). L'enrobage à la chaux conduit aux augmentations les plus importantes avec +150 et +140%, respectivement, pour les masses volumiques apparente et réelle. Ces résultats sont cohérents avec les paramètres des procédés de traitement indiqués dans le Tableau II. 5 : la paraffine est la substance la plus légère et la moins utilisée en quantité ; la chaux est la plus lourde.

Dans le cas de l'enrobage à l'huile de lin et à l'émulsion, les masses volumiques réelles ont augmenté respectivement de 92 et 101% (Figure II. 20). Les masses volumiques réelles de l'huile de lin et de l'émulsion d'huile de lin avant oxydo polymérisation sont très proches et égales à environ 2,4 fois celle des anas de lin. L'oxydo polymérisation de l'huile de lin avec le temps conduit à une augmentation de sa masse volumique et par conséquent la masse volumique des anas traités est également augmentée. L'augmentation légèrement plus importante dans le cas de l'émulsion peut être liée à la présence de poussières dans cette dernière.

Khazma et al. ont également obtenu des augmentations de masse volumique réelle des anas après enrobage : 40% avec un traitement par le polymère PEC (polyéthylène glycol-co-acide citrique) [KHA-11] et 60% avec un traitement par un mélange polyéthylèneimine-pectine [KHA-12]. Les autres auteurs ne donnent pas de valeurs de masse volumique réelle pour leurs granulats lignocellulosiques traités [MON-11] [KHA-08] [LED-00].

II. IMPACT DES PROCÉDÉS SUR LES PROPRIÉTÉS DES ÉCO-COMPOSITES

II.1. PROPRIÉTÉS THERMIQUES

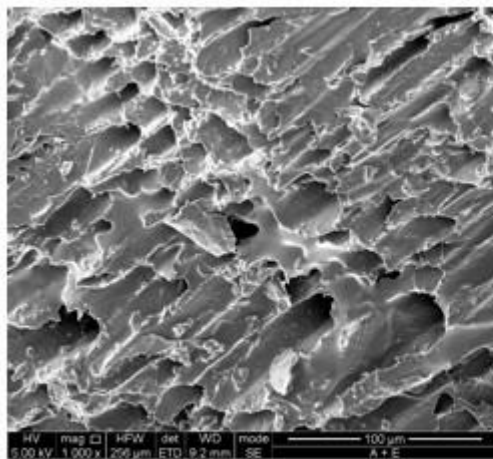
La technique de la source plane transitoire (TPS) est appliquée à l'évaluation de la capacité thermique et de la conductivité thermique des composites cimentaires après 28 jours de cure (HR=90% et $T=20\pm 2^{\circ}\text{C}$) et séchage à 50°C jusqu'à masse constante des éprouvettes.

La conductivité thermique et la capacité thermique volumétrique des bétons légers élaborés, à l'état sec, sont présentées dans le Tableau II. 6.

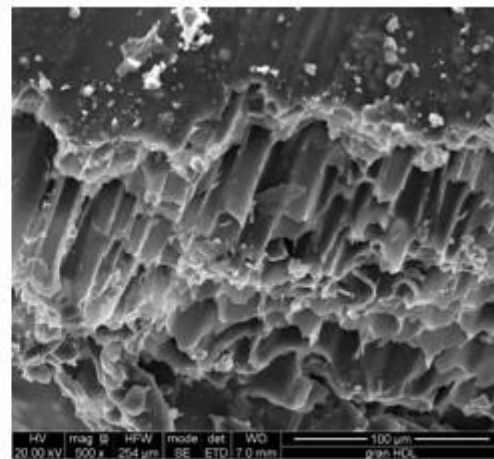
Tableau II. 6 : Propriétés thermiques des composites à base d'anas de lin

Échantillon	Masse volumique ρ_a (kg/m ³)	Conductivité λ (W/mK)	Diffusivité α (mm ² /s)	Capacité thermique v. C_p (MJ/m ³ K)
Standard	515,0 $\pm$ 13,0	0,114 $\pm$ 0,006	0,395 $\pm$ 0,036	0,312 $\pm$ 0,019
Émulsion	774,5 $\pm$ 8,0	0,124 $\pm$ 0,002	0,110 $\pm$ 0,014	1,001 $\pm$ 0,124
HDL	801,0 $\pm$ 6,0	0,160 $\pm$ 0,002	0,176 $\pm$ 0,014	0,907 $\pm$ 0,001
Chaux	825,0 $\pm$ 5,0	0,174 $\pm$ 0,002	0,098 $\pm$ 0,031	1,773 $\pm$ 0,033
Paraffine	750,0 $\pm$ 5,0	0,168 $\pm$ 0,005	0,250 $\pm$ 0,010	0,673 $\pm$ 0,009

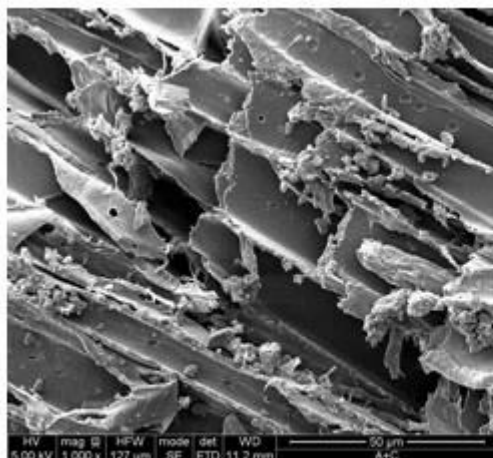
Les résultats obtenus montrent la faible conductivité thermique d'un composite cimentaire contenant des anas de lin bruts. Cette propriété est étroitement liée à la structure alvéolée des anas bruts (Figure II. 16). Les traitements des anas ne modifient pas significativement cette structure. En effet les matières d'enrobage n'obstruent pas dans les pores des anas, leur structure alvéolée reste ouverte (Figure II. 21- micrographes A, B, C et D). La structure caverneuse des composites élaborés avec les anas contribue également et fortement à la bonne capacité d'isolation thermique de ce type de matériaux. Comme le montre la Figure II. 22, le composite élaboré avec des anas bruts présente une structure caverneuse qui est conservée après le traitement des granulats.



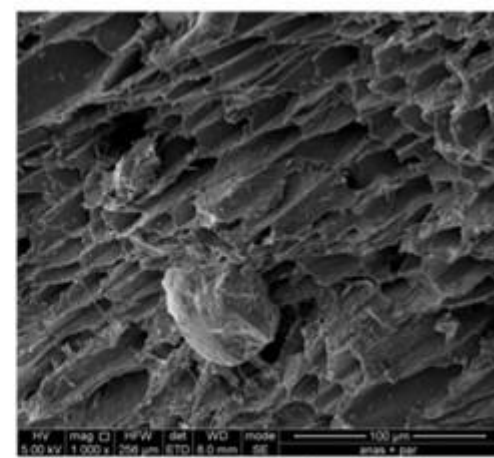
A- traitement par l'émulsion (x1000)



B- traitement par l'huile de lin (x500)

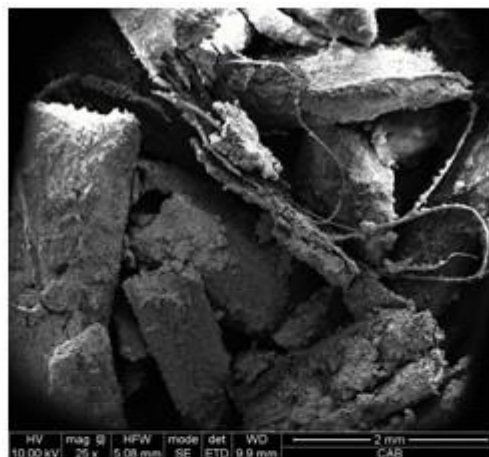


C- traitement par la chaux (x1000)

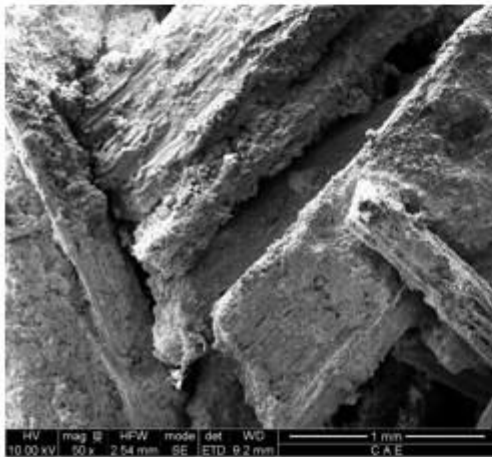


D- traitement par la paraffine (x1000)

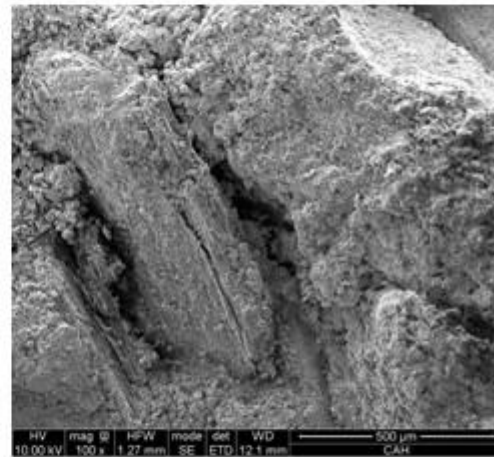
Figure II. 21 : Conservation de la structure alvéolée des anas de lin après enrobage



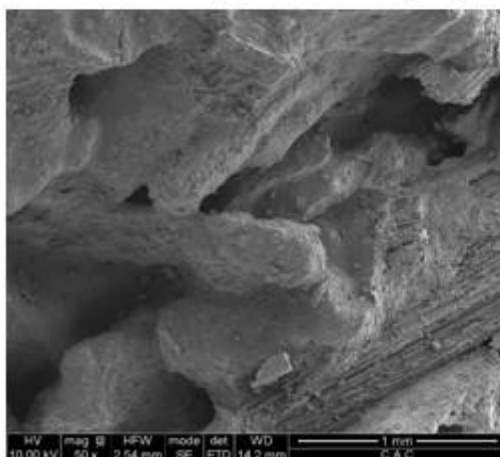
A- sans traitement (x25)



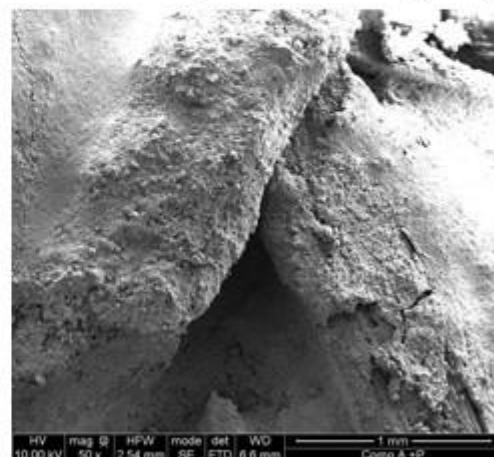
B- traitement par l'émulsion (x50)



C- traitement par l'huile de lin (x100)



D- traitement par la chaux (x50)



E- traitement par la paraffine (x50)

Figure II. 22. Aspect caveux des différents composites

Par ailleurs, les anas bruts ont une faible conductivité thermique de $0,06 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ comparé à $1,07 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ pour une pâte de ciment [ABD-10]. Une différence de conductivité thermique entre les composites d'anas bruts et traités a été observée. Cette dernière propriété augmente après traitement des anas comme le montre la Figure II. 23, alors qu'une conductivité thermique faible est préférable pour une meilleure isolation. En conséquence, grâce aux résultats obtenus, il est clair que l'augmentation de conductivité thermique de nos composites est due aux différents traitements que les anas ont subi.

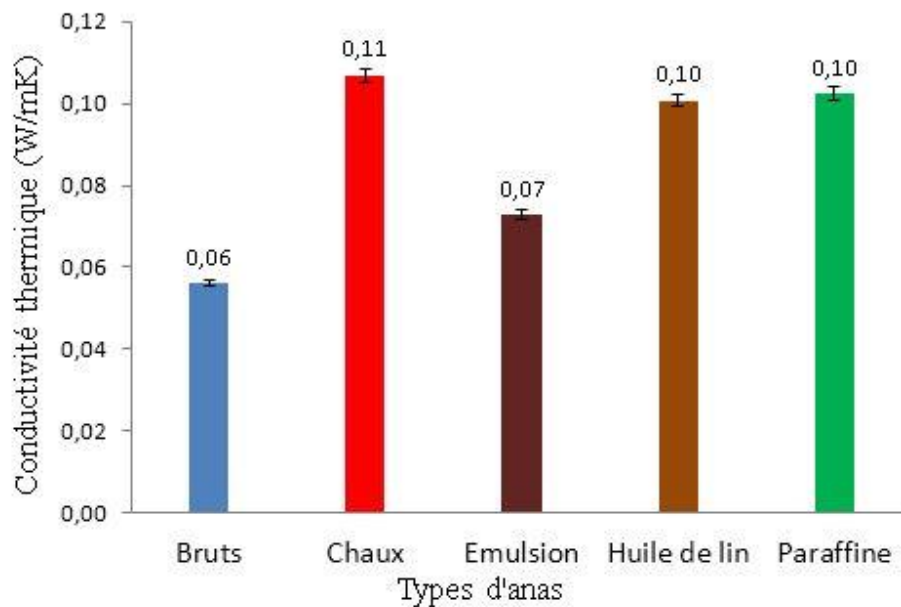


Figure II. 23. Conductivité thermique des différents types d'anas

Cette faible augmentation de la conductivité est accompagnée d'une diminution de la diffusivité de la chaleur à travers les composites qui reste faible après les traitements d'enrobage à l'émulsion, l'huile de lin et la chaux. La chaleur massique des composites reflète leur capacité à échanger l'énergie (chaleur) avec le milieu extérieur. L'augmentation de la valeur de ce paramètre se traduit par une diminution des performances thermiques des matériaux. La faible augmentation de la conductivité est également accompagnée d'une forte augmentation de la capacité thermique volumique qui est augmenté après les traitements.

La relation entre les propriétés thermiques (conductivité thermique, capacité thermique et diffusivité thermique), la porosité et la composition minérale de matériaux isolants poreux a été étudiée par de nombreux chercheurs [PIA-13] [LIH-15]. Nous utiliserons ici la masse volumique apparente à place de la porosité pour comparer les différents composites car il y a une forte relation entre ces deux propriétés pour des matériaux similaires.

L'enrobage peut affecter les propriétés thermiques des granulats par deux facteurs principaux : les propriétés thermiques de la substance d'enrobage et son effet sur la porosité des granulats due à la possible pénétration de cette dernière par les sections radiales.

On peut s'attendre à ce que les propriétés thermiques des granulats affectent les propriétés thermiques du composite qui les contient.

La conductivité thermique de l'huile de lin et de la paraffine ($0,17$ et $0,25 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ respectivement) comparée à celle d'anas de lin bruts ($0,06 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$) peut expliquer l'augmentation de la conductivité thermique des composites contenant des anas traités par l'huile de lin, l'émulsion et la paraffine par rapport au composite standard comme montré dans le Tableau II. 6.

La conductivité thermique ($0,124 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$) du composite contenant les anas traités par l'émulsion n'est pas significativement différente de celle du composite standard. Par contre elle est plus faible que celle du composite avec des anas enrobés à l'huile de lin. Ceci peut être lié à leur différence de masse volumique.

La forte augmentation de la conductivité thermique des composites avec anas traités par la chaux et la paraffine peut être liée à la conductivité thermique élevée de ces substances ($0,87$ et $0,25 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$, respectivement) comparée à celle des anas de lin bruts.

L'augmentation de la masse volumique apparente des différents composites élaborés avec les anas traités indique que ces derniers sont globalement plus compacts et donc moins isolants. Ces résultats sont en accord avec les travaux de Ledhem [LED-00].

Beaucoup de travaux ont confirmé que la conductivité thermique du matériau composite dépend de la microstructure de la matrice et des masses volumiques apparentes des granulats [TOL-00] [KHA-11].

Cependant cette augmentation de la conductivité thermique est très faible par rapport à la forte augmentation des résistances mécaniques. Ceci sera montré dans le paragraphe sur les essais mécaniques. Par conséquent, ce type de composite appartient toujours à la classe des bétons légers d'isolation : une conductivité thermique inférieure à $0,3 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$, une masse volumique apparente inférieure à 2000 kg.m^{-3} selon la classification de la RILEM [RILEM-78].

II.2. RÉSISTANCES MÉCANIQUES

L'objectif principal des procédés d'enrobage des anas de lin est d'élaborer un matériau isolant avec des propriétés mécaniques acceptables. Les propriétés mécaniques des composites prépa-

rés avec des anas de lin enrobés et non enrobés ont été évaluées par la mesure de leurs résistances à la flexion et à la compression, et la détermination du module d'élasticité. Les résultats présentés sur la Figure II. 24 montrent que les résistances mécaniques augmentent lorsque les anas sont enrobés. Cette amélioration des propriétés mécaniques dépend fortement de la nature des substances utilisées pour traiter les anas.

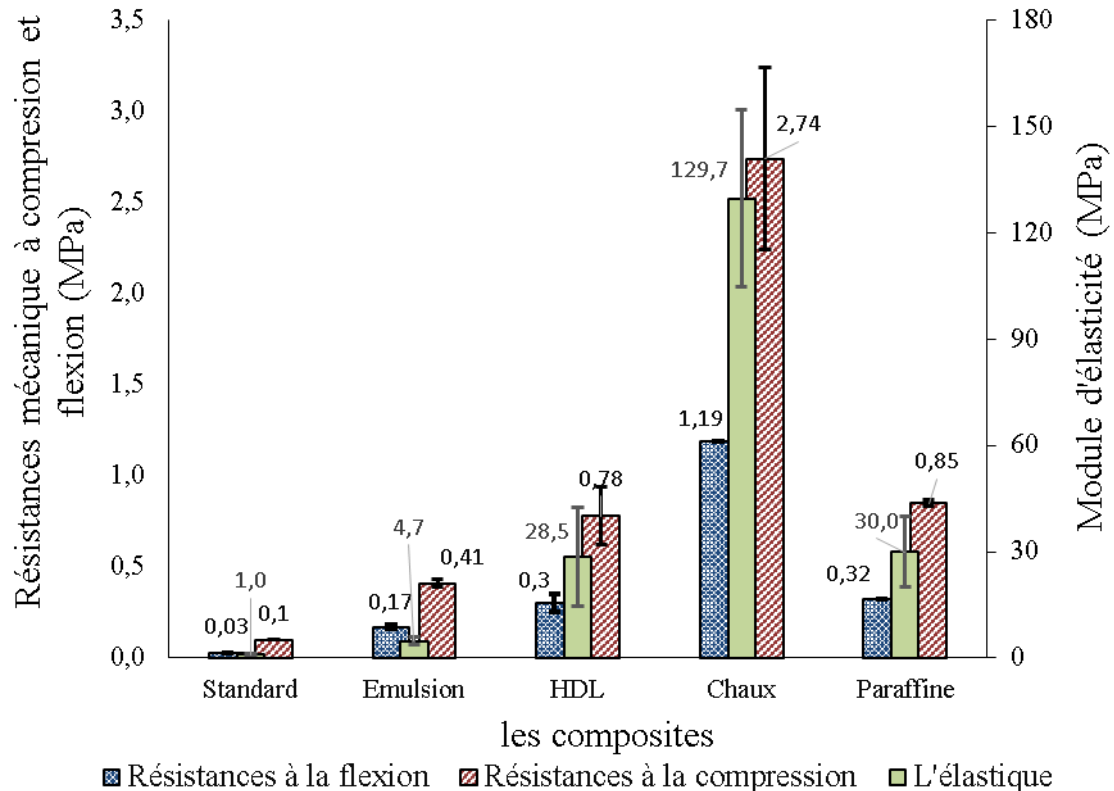


Figure II. 24. Résistances à la compression et à la flexion, module d'élasticité des composites en fonction du type d'enrobage des anas

Les résistances mécaniques, à la flexion et à la compression, des composites élaborés avec les anas traités ont fortement augmenté par rapport à celles du composite standard. Il en est de même pour le module d'élasticité. Ainsi l'augmentation de la résistance à la flexion se situe entre 300% (enrobage à l'émulsion) et 2600% (enrobage à la chaux) et celle de la résistance à la compression entre 460% (enrobage à l'émulsion) et 3800% (enrobage à la chaux).

Cette augmentation est probablement liée à l'amélioration des propriétés mécaniques et à l'augmentation de la force à la compression des anas de lin après traitements. En effet, les anas bruts qui résistent à une force inférieure à 1000 N, voient augmenter leur résistance avec un enrobage comme indiqué sur la Figure II. 25. Les anas enrobés à l'huile de lin opposent la

force la plus faible, ceux traités à la chaux la plus forte.

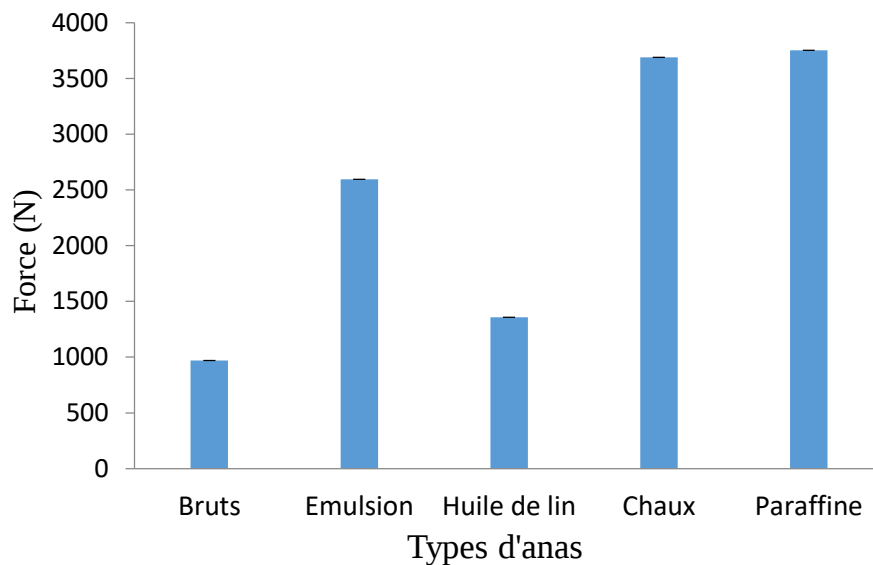


Figure II. 2. Force exercée sur les différents types d'anas

Cette amélioration des propriétés mécaniques des composites a lieu avec une augmentation de plus de 50% de leur masse volumique apparente. Dans les mêmes conditions d'élaboration des composites, Khazma et al. [KHA-08] ont obtenu une résistance mécanique plus élevée mais avec une augmentation plus importante de la masse volumique apparente dans le cas d'un traitement des anas de lin par un mélange ciment-saccharose. Ledhem et al. [LED-00] ont trouvé une légère baisse de résistance avec des copeaux de bois enrobés par de l'huile de lin.

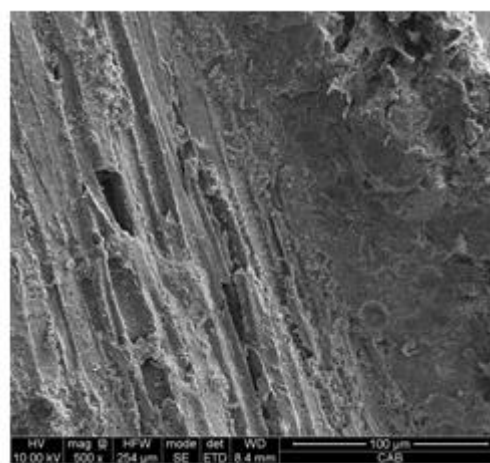


Figure II. 26. Observation au MEB de l'adhérence granulats/matrice cimentaire (x500)
des composites standards

Cette amélioration des résistances mécaniques peut être expliquée par la meilleure hydratation de la matrice cimentaire et une réduction de la zone interfaciale entre la matrice et les granulats lignocellulosiques [KHA-08] [BED-09] [BED-07]. Pour des granulats lignocellulosiques enrobés par de la paraffine, une amélioration de l'adhérence entre les granulats enrobés et une matrice de chaux a aussi été observée par Nozahic et Amziane [NOZ-12].

Selon Zimbelmann [ZIM-85] [ZIM-87] la moitié de la distance interfaciale est un film d'eau entourant les granulats après mélange. Pendant la cure, les produits d'hydratation du ciment se développent dans ce film d'eau, prennent sa place et suppriment la zone interfaciale entre les granulats et la matrice cimentaire. Dans le cas des granulats lignocellulosiques bruts, leur caractère hydrophile élevé empêche la formation de ce film d'eau. Donc, les produits d'hydratation ne sont pas capables de se propager dans la zone interfaciale et un vide apparaîtra entre les granulats et la matrice comme le montre la Figure II.26. Selon une autre hypothèse, en absorbant de l'eau, les granulats gonflent et occupent un espace plus important au sein du composite que dans leur état sec [ROW-98]. Après la cure de 28 jours (HR=97%, T=23°C) des échantillons cimentaires et durant le séchage, les granulats végétaux perdent l'eau absorbée et leur volume diminue. Un vide apparaît donc entre la matrice et les granulats la Figure II.26. Les différents enrobages réalisés rendent les anas moins hydrophiles de sorte que le film d'eau peut se former et les produits d'hydratation se propager dans la zone interfaciale. Ainsi la zone de vide a disparu (Figure II.27) et l'adhérence entre la matrice cimentaire et les granulats est améliorée.

L'amélioration significative des propriétés mécaniques des composites d'anas traités par la chaux est liée à la parfaite comptabilité de l'enrobage avec la matrice cimentaire.

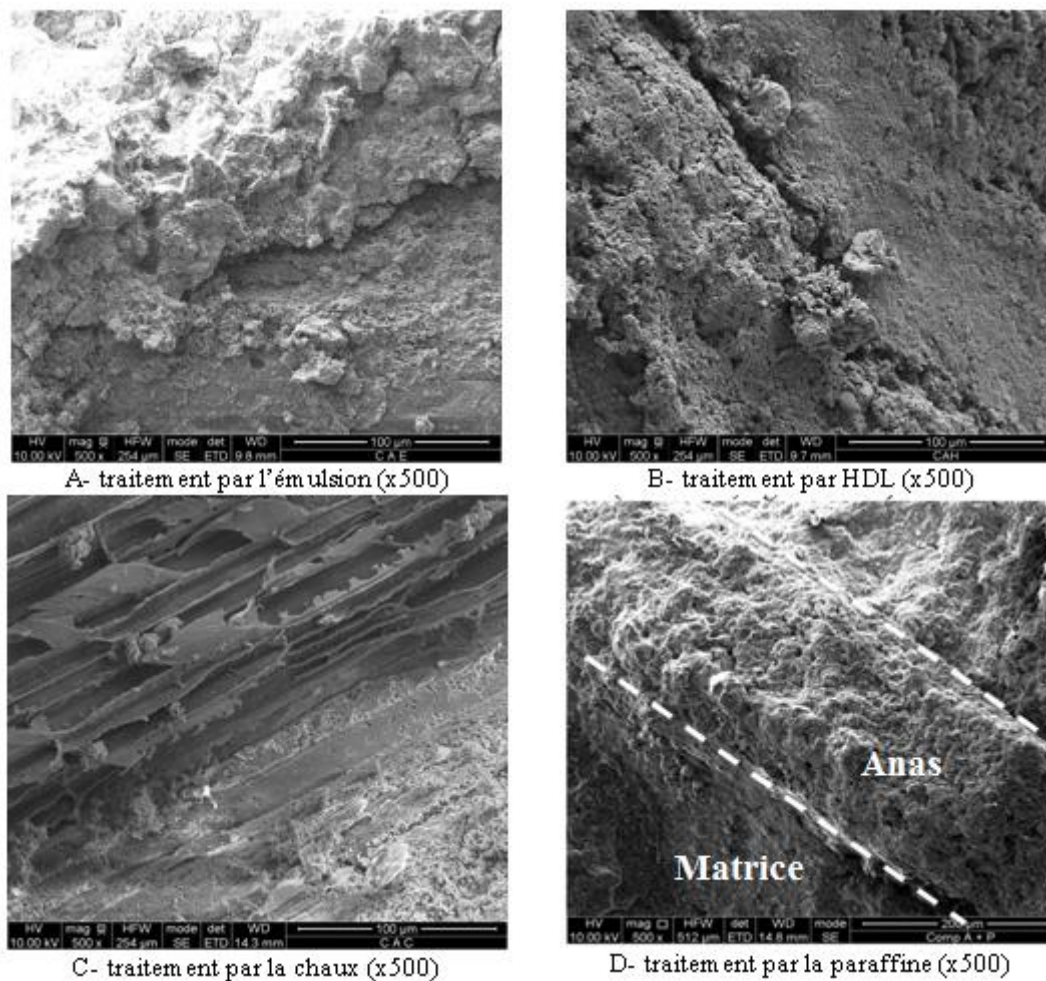


Figure II. 27. Observation au MEB de l'adhérence granulats/matrice cimentaire des composites élaborés avec les anas traités

Une étude en microscopie électronique à balayage a également été réalisée pour caractériser les espèces minérales formées et l'influence de l'enrobage sur l'hydratation du ciment. Pour le composite standard, de l'ettringite et des cubes de carbonate noyés dans un gel de C-S-H peuvent être observés dans la matrice et de l'ettringite est visible à proximité du granulats végétal (Figure II. 28).

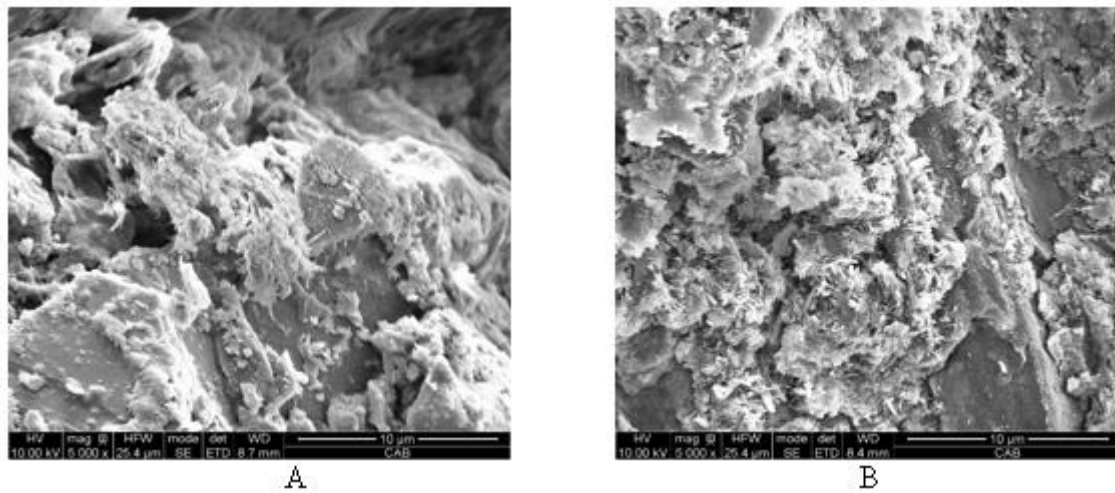


Figure II. 28. Développement de la microstructure au sein de la matrice cimentaire (A) et à proximité des anas bruts (B) (x5000)

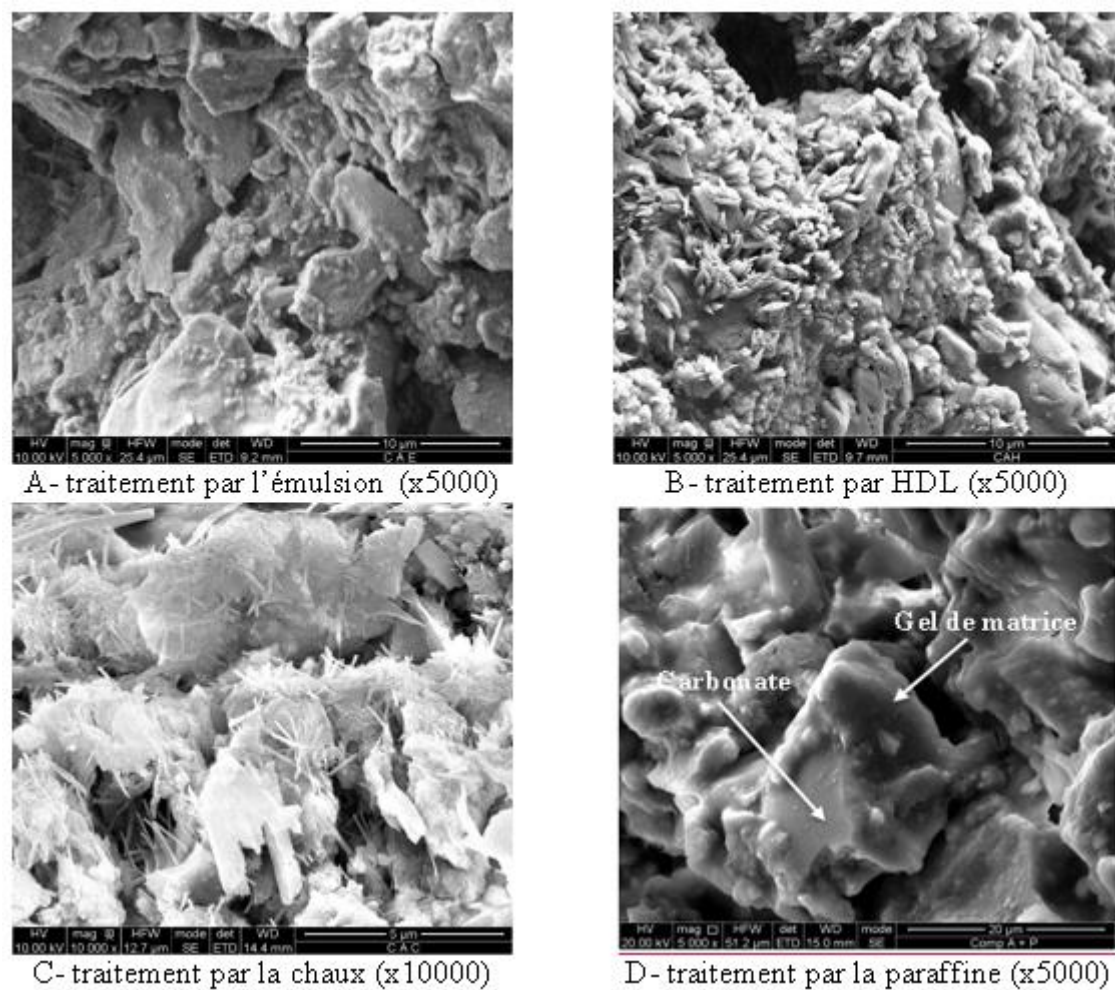


Figure II. 29. Développement de la microstructure au sein de la matrice cimentaire selon le traitement des anas

Pour le composite élaboré avec des anas traités, la microstructure montre des prismes de carbonate recouverts d'un gel de matrice (Figure II. 29). Ce gel de matrice est un entremêlement intime de C-H amorphe et de gel de C-S-H selon Mouret et al. [MOU-99]. Il est également possible d'observer dans le cas des composites avec anas traités à l'huile de lin et la chaux une présence marquée d'ettringite.

L'observation au MEB de la matrice cimentaire à proximité des anas enrobés par la paraffine montre un gel matriciel de C-S-H de structure filamenteuse et de la Portlandite ayant une morphologie plaquettaire (Figure II. 30, micrographe D). Ces deux espèces minérales sont dans des genres de sphères. L'enrobage des anas à la paraffine conduit à un meilleur développement des C-S-H dans la matrice comparé au composite standard. Cependant, les réactions d'hydratation du ciment semblent être incomplètes car la microstructure présente encore beaucoup de gel matriciel. Les anas de lin sont connus pour leur capacité hydrophile élevée. Les pectines et les hémicelluloses sont les composants qui peuvent se dissoudre dans le milieu cimentaire durant le mélange des anas avec le ciment et l'eau. Leur dissolution peut générer un retard de prise du ciment. Le peu de gel cimentaire hydraté observé avec le béton préparé avec des anas non enrobés conduit à une faible résistance. L'hydratation du ciment semble normale avec le traitement à la paraffine des anas.

Dans le cas des composites contenant des anas traités à l'huile (huile de lin ou émulsion), la matrice à proximité des granulats ne présente pas un développement optimal. Il est possible d'observer des sphères qui sont peut-être des gouttes d'huile résiduelle (Figure II.30, micrographes A et B). Le composite élaboré avec les anas enrobés par la chaux montre la présence d'ettringite au voisinage et sur les granulats.

La diminution de la capacité d'absorption d'eau des anas permet une meilleure adhérence entre le ciment et les granulats. Cependant quel que soit le traitement appliqué aux anas, l'hydratation du ciment semble incomplète. Toutefois, les résultats obtenus mettent l'accent sur l'impact de l'enrobage sur (i) l'inhibition de la diffusion de certains composants des anas dans la matrice (polysaccharide, par exemple), (ii) la diminution de l'absorption d'eau conduisant à une quantité d'eau suffisante dans le mélange pour l'hydratation du ciment. Avec les anas non enrobés, une partie de l'eau de gâchage est absorbée par les granulats et n'est pas disponible pour les réactions d'hydratation du ciment. En outre des molécules solubles dans l'eau peuvent être libérées par les anas et ralentir la prise. Ainsi l'amélioration des résistances mécaniques peut être due à la bonne adhérence entre les anas traités et la matrice cimentaire.

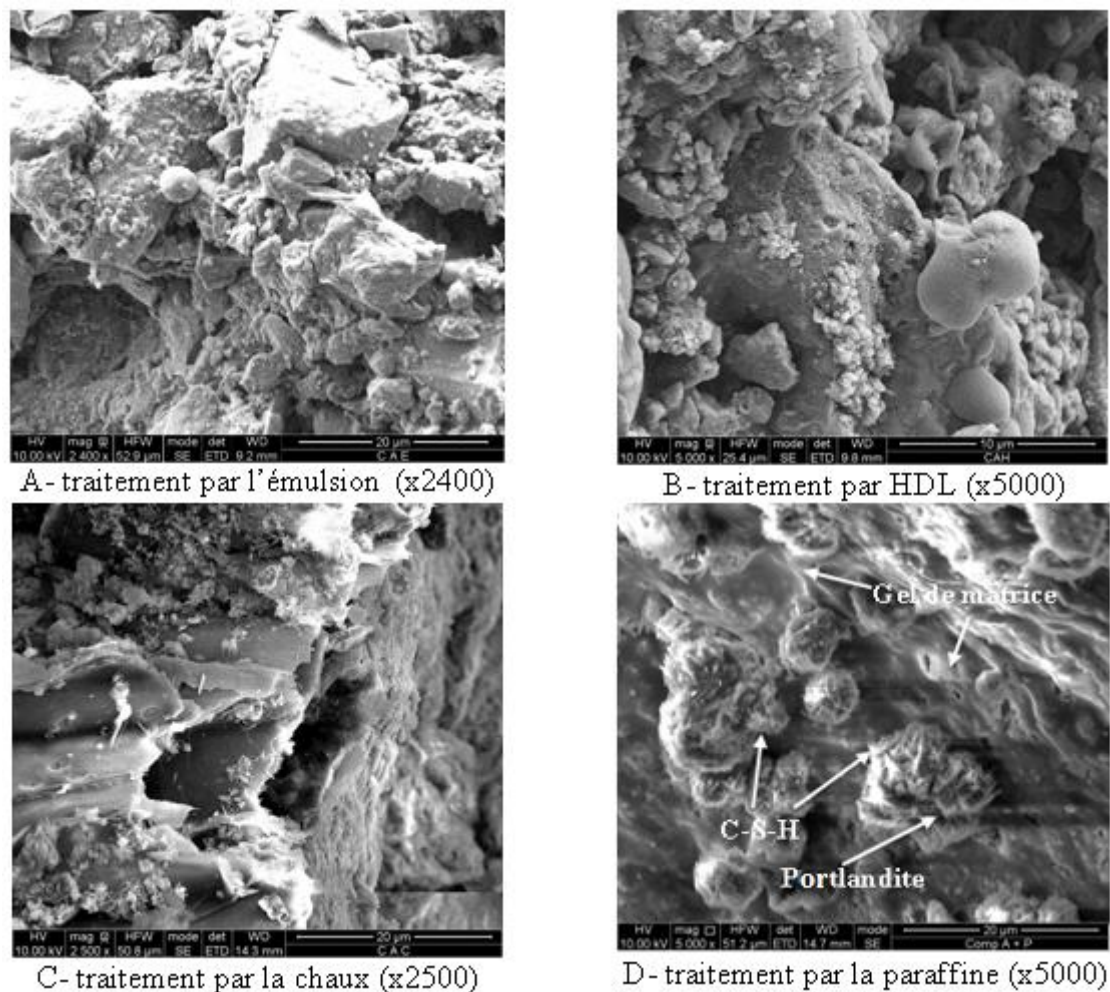


Figure II. 30. Observation en MEB de l'aspect de la matrice cimentaire à proximité des anas enrobés

II.3. VARIATIONS DIMENSIONNELLES

Les composites lignocellulosiques sont connus pour présenter des variations dimensionnelles élevées. Toutefois, il est nécessaire de se rapprocher au mieux de la valeur cible. Cette section concerne l'évaluation de l'impact des procédés d'enrobage sur les variations dimensionnelles au séchage et extrêmes. Ces variations doivent être inférieures à 1 mm.m^{-1} pour un mortier classique selon la norme [NF EN 04]. Ces variations sont susceptibles de créer des fissures dans les matériaux composites aux échelles macroscopiques et microscopiques à cause des contraintes développées. Ces fissures peuvent permettre aux agents agressifs de pénétrer dans le composite [MON-11].

II.3.1. VARIATIONS DIMENSIONNELLES AU SÉCHAGE

Le retrait a été mesuré durant 28 jours de séchage pour les composites élaborés avec des anas de lin bruts et enrobés par l'huile de lin, l'émulsion, la chaux et la paraffine

Les variations dimensionnelles des composites lignocellulosiques durant le séchage (VDS) sont une difficulté rencontrée car les granulats lignocellulosiques gonflent avec l'augmentation de la teneur en humidité et rétrécissent lorsqu'ils perdent leur humidité [MOH-05].

La Figure II. 31 montre l'effet des différents enrobages sur le comportement du retrait au séchage au cours du temps. Les courbes devraient être descendantes car il s'agit d'un retrait (diminution de la taille des éprouvettes au cours du séchage) mais nous avons choisi de présenter les résultats en valeur absolue.

Une évolution rapide des dimensions dans les premiers jours est détectée avec la majorité des enrobages. L'effet de l'enrobage est clair sur le temps de stabilisation et la valeur des VDS. Les VDS sont particulièrement importantes durant les premiers jours, mais elles ont tendance à se stabiliser après 10-15 jours pour les composites avec les anas traités et moins de 6 jours pour les composites avec des anas non traités. Ainsi, la capacité d'absorption d'eau, la porosité, le remplissage de la porosité et l'affinité de la substance d'enrobage pour l'eau jouent un rôle essentiel dans le changement dimensionnel des matériaux composites.

Après la diminution de leur pouvoir hydrophile, les anas traités n'arrivent plus à échanger l'eau comme les anas bruts. La quantité d'eau absorbée diminue mais elle ne s'annule pas. Cette eau absorbée va jouer un rôle important dans la réduction des VDS étant donné que les anas de lin au cours du séchage libèrent cette quantité d'eau absorbée progressivement, laissant le ciment se déshydrater lentement, ce phénomène augmente le temps de stabilisation et conduit aux variations dimensionnelles réduites [BAI-05] [KHA-08].

Ce phénomène est observé pour tous les enrobages car nous avons remarqué qu'aucun n'était parfait et qu'il existait de très petites zones non couvertes (Figure II. 17, micrographes A, B, C et D) permettant l'absorption et le stockage d'une faible quantité d'eau. Ce stock sera évacué petit à petit durant le séchage évitant le séchage rapide et diminuant par suite les VDS [BAI-05]. L'enrobage à la chaux conduit à une diminution plus importante des VDS qu'autres enrobages, sans doute de par la microporosité plus prononcée de la couche enrobante (Figure II. 17 C).

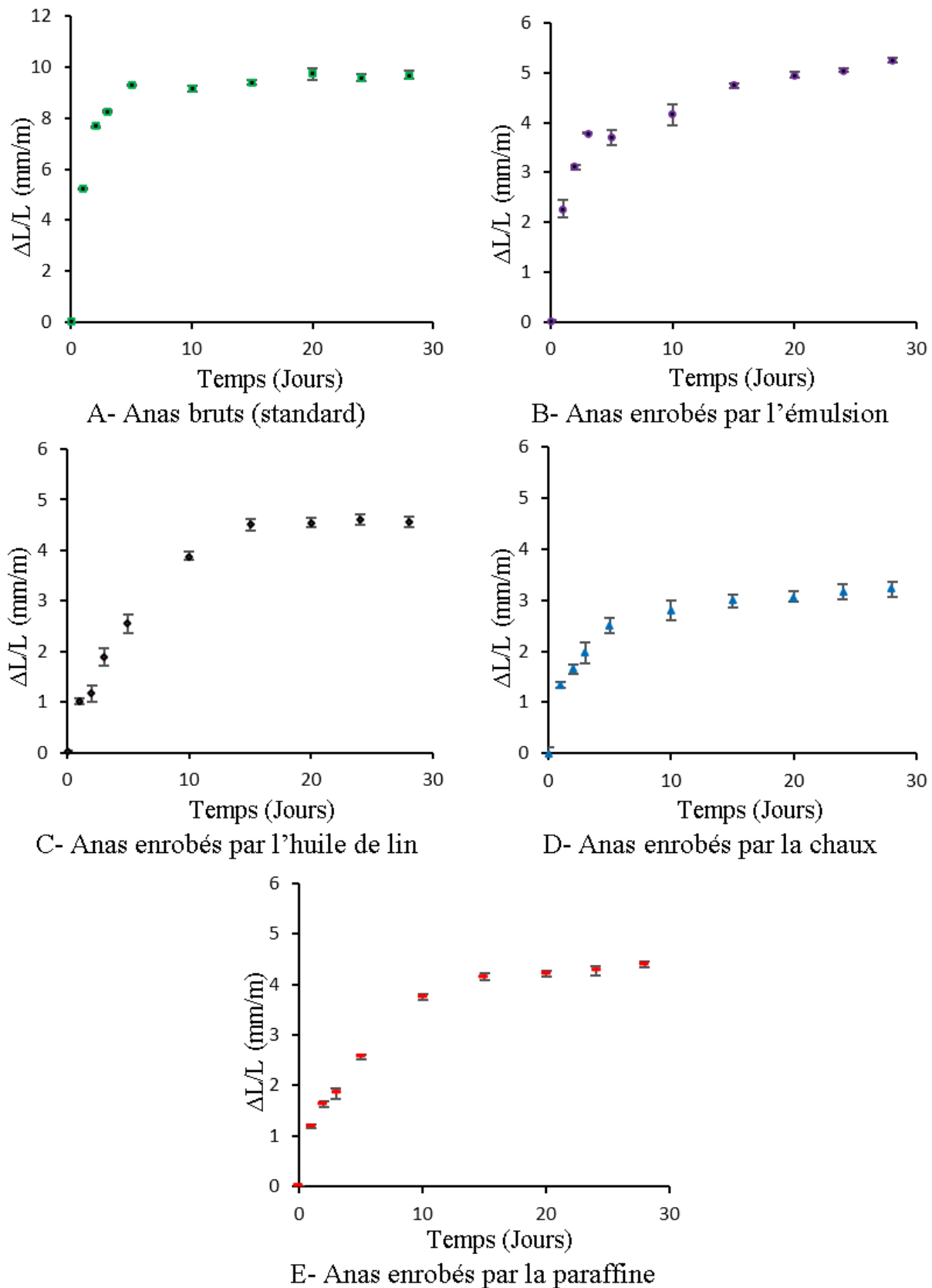


Figure II. 31. Évolution au cours du temps de la variation dimensionnelle au séchage des composites d'anas de lin en fonction des procédés d'enrobage appliqués

Il est probablement impossible d'éliminer complètement les variations dimensionnelles dans les composites à base d'anas, mais une diminution des VDS peut être obtenue par un revêtement. Dans tous les cas d'enrobage, les VDS diminuent d'un facteur 2 à 3 mais demeurent supérieures à la valeur cible (1 mm.m^{-1}). Les valeurs de VDS de nos composites avec des anas enrobés diffèrent peu de celles obtenues pour un composite contenant des anas enrobés par un mélange ciment-saccharose [KHA-08].

II.3.2. VARIATIONS DIMENSIONNELLES EXTRÊMES

Les bétons lignocellulosiques sont connus pour leurs importantes variations dimensionnelles extrêmes (VDE). Ce phénomène est dû à la grande capacité des matériaux lignocellulosiques à absorber l'eau. La mise en contact des particules lignocellulosiques avec l'eau conduit à un phénomène d'absorption responsable d'un gonflement structurel [NOR-16]. Ce gonflement arrive lorsque l'eau diffuse dans les parois cellulaires et vient former avec les composés hydrophiles des liaisons hydrogènes. Un phénomène de gonflement des granulats lignocellulosiques se produit au sein de ces matériaux conduisant à une augmentation des dimensions des composites [MON-11].

Les composites cimentaires formulés avec les anas enrobés ont un comportement dimensionnel qui diffère de ceux contenant des anas de lin bruts. Ce résultat est dû à la protection apportée par l'enrobage qui réduit l'absorption d'eau et ainsi empêche le phénomène de gonflement des anas lors de leur immersion dans l'eau. L'immersion de ces composites secs dans de l'eau conduit à une augmentation de leurs dimensions liée au gonflement des granulats lignocellulosiques à l'intérieur. L'évolution au cours du temps des variations dimensionnelles des composites élaborés est présentée sur la Figure II. 32. La valeur finale de cette évolution représente la variation dimensionnelle extrême (VDE). Le composite préparé avec des anas enrobés par la paraffine a donné la plus faible valeur de VDE ($3,2 \text{ mm.m}^{-1}$) avec une cinétique plus lente par rapport aux composites d'anas enrobés par les trois autres substances. Néanmoins, les valeurs de VDE obtenues pour nos composites d'anas enrobés sont également inférieures à $5,5 \text{ mm.m}^{-1}$, valeur obtenue pour un composite élaboré avec des pulpes de betterave enrobées au ciment [MON-11].

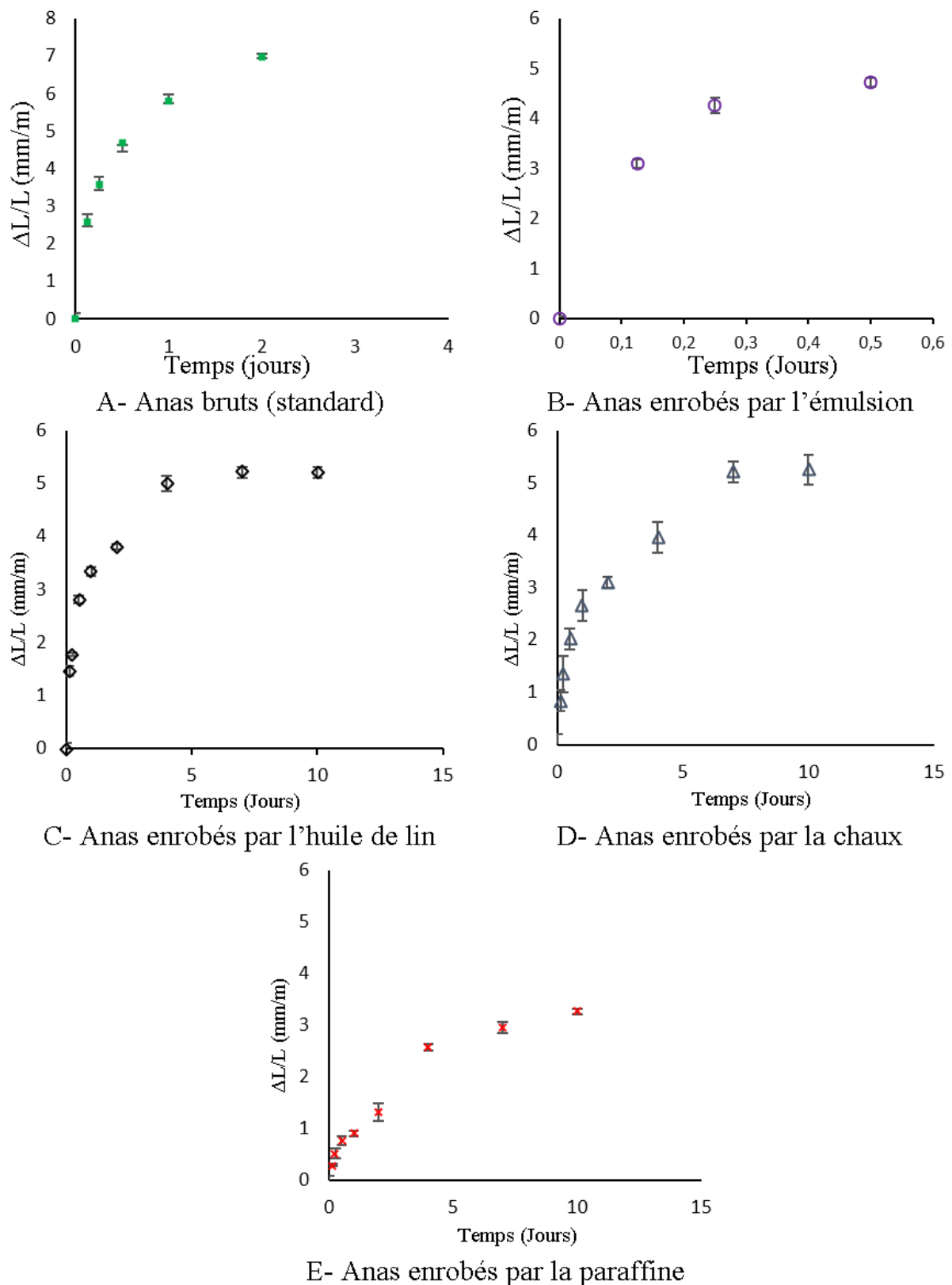


Figure II. 32. Évolution au cours du temps de la variation dimensionnelle d'extrême des composites d'anas de lin en fonction des procédés d'enrobage appliqués

Le composite standard et d'anas traités par l'émulsion n'ont pas résisté à l'immersion dans l'eau : les échantillons se sont écroulés après deux jours d'immersion. Cette faible résistance à l'eau peut être expliquée par la faiblesse de la matrice cimentaire de ces composites, qui résulte de la faible compatibilité entre les granulats et le ciment (molécules solubles dans l'eau libérées dans la pâte de ciment et également compétition pour l'eau entre les granulats et le ciment au cours du processus de fabrication). Les taux élevés d'absorption d'eau et le gonflement de ces granulats conduisent à des variations dimensionnelles insupportables pour le composite, responsable de sa défaillance mécanique [MON-11].

L'effet des variations dimensionnelles des granulats sur leur composite dépend de leur rigidité et de leurs variations dimensionnelles avant et après contact avec l'eau. Cette rigidité étant affectée par le type d'enrobage (comme montré au paragraphe II.2. Figure II.25).

Les valeurs des variations dimensionnelles au séchage et extrêmes obtenues avec les différents traitements sont résumées dans le Tableau II. 7. Ce tableau montre que pour tous les types d'enrobage, les VDS et VDE diminuent par rapport au standard. Les valeurs des VDS et VDE baissent d'au moins 47% et 26%, respectivement, suite aux traitements des anas.

Tableau II. 7 : Récapitulatif des valeurs des variations dimensionnelles obtenues avec les différents traitements

Composites	Variations dimensionnelles (mm.m ⁻¹)	
	Séchage	Extrême
Standard	9,5	7,0
Émulsion	5,0	4,5
HDL	4,5	5,2
Chaux	3,1	5,2
Paraffine	4,3	3,2

II.4. MESURE DU COMPORTEMENT VIS-À-VIS DE L'EAU

II.4.1. LA CAPILLARITE

Pour évaluer le comportement des éco-matériaux vis à vis de l'eau, des tests de capillarité ont été menés. La capillarité est la capacité d'un liquide à circuler dans des espaces étroits comme les ouvertures d'un matériau poreux sans l'aide et en opposition à des forces extérieures comme la gravité. Ces essais apportent des informations sur l'importance du réseau capillaire et la structure interne des matériaux. Ils sont également nécessaires pour caractériser la dura-

bilité des composites cimentaires en complément d'autres essais. Leurs propriétés mécaniques et thermiques sont aussi affectées par le mouvement de l'eau dans les capillaires. Ce test peut être considéré comme représentatif d'un béton exposé à l'eau. L'évolution de l'absorption capillaire (i) en fonction de la racine carrée du temps est représentée sur la Figure II. 33.

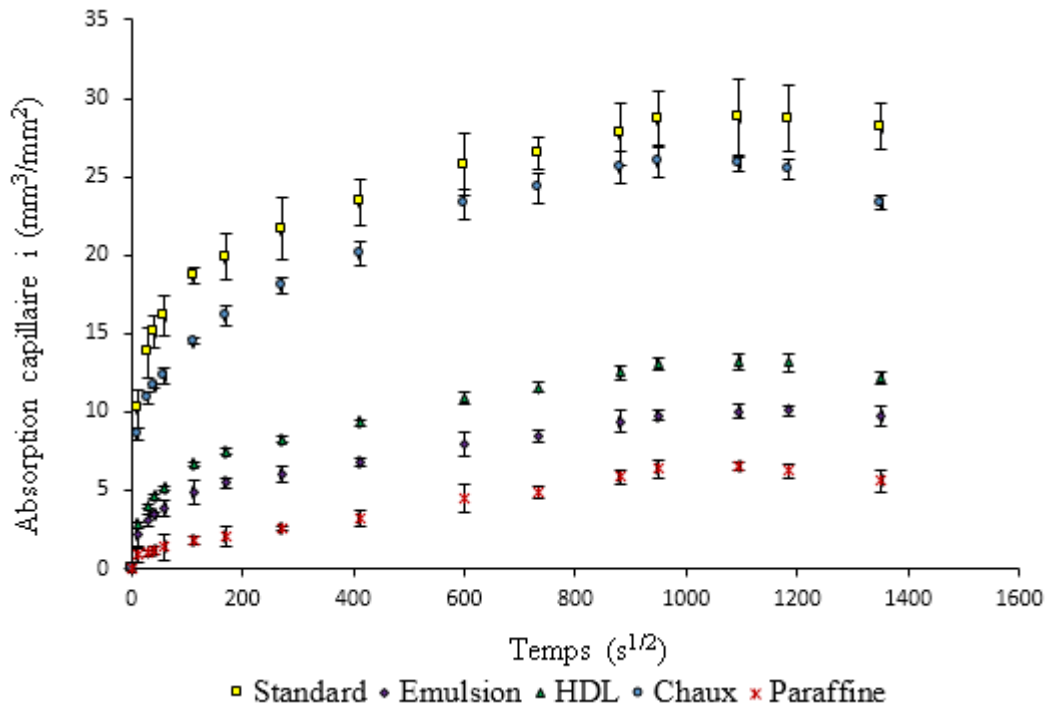


Figure II. 33: Évolution de l'absorption capillaire i en fonction de la racine carrée de temps pour les différents composites

Les courbes obtenues ont permis de calculer l'absorption capillaire d'eau $i_{\max}$ et la sorptivité S des matériaux (Tableau II. 8) pour chaque composite. La pente de la première partie linéaire de la courbe définit la sorptivité précoce [IOA-08], comme montré sur la Figure II. 34. La sorptivité représente la vitesse de montée d'eau par capillarité.

Tableau II. 8 : Paramètres de la cinétique d'absorption d'eau par capillarité des différents composites

paramètre	Standard	Émulsion	HDL	Chaux	Paraffine
$i_{\max}$ (mm^3/mm^2)	28,75	10,06	13,06	25,99	6,53
S ($\text{m/s}^{1/2}$)	0,0144	0,0062	0,008	0,0139	0,0046

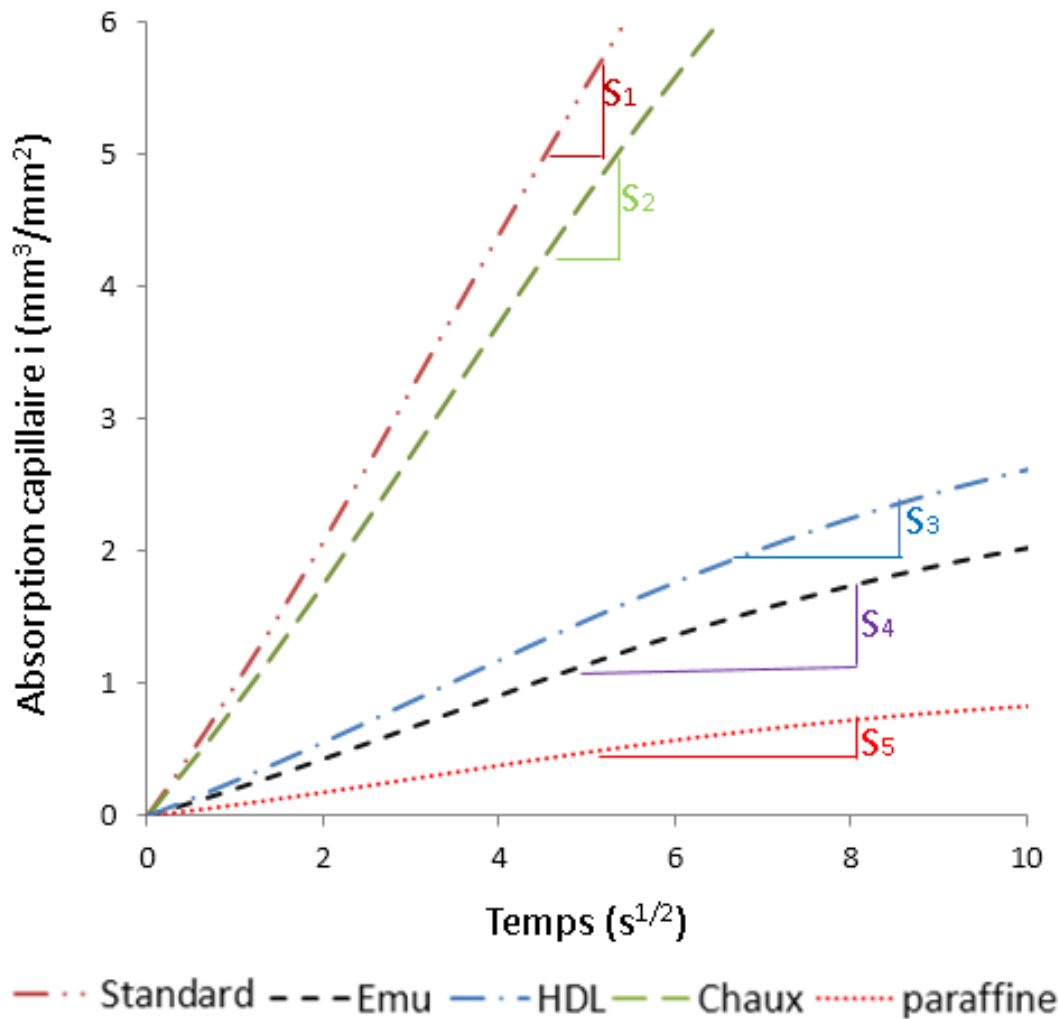


Figure II. 34 : Premières parties linéaires des courbes d'absorption capillaire en fonction de la racine carrée du temps

La diminution de la sorptivité des composites après l'enrobage des anas peut être principalement liée à une absorption moins importante des anas enrobés. Cependant les pores de la structure alvéolée des anas étant beaucoup moins accessibles à l'eau après l'enrobage, la sorptivité des anas pourrait baisser et donc entraîner la diminution de la sorptivité du composite.

Le composite élaboré avec des anas enrobés présente une structure caverneuse (Figure II 22, micrographes B, C, D et E) mais moins prononcée que dans le cas du composite standard comme le montre le micrographe A de la Figure II. 22. La structure caverneuse permet la pénétration d'une certaine quantité d'eau au sein des matériaux cimentaires et donc conduit à l'augmentation de l'absorption d'eau par capillarité.

Les plus hautes valeurs de sorptivité ($0,014 \text{ mm.s}^{-1/2}$) et d'absorption capillaire ($28,75 \text{ mm}^3.\text{mm}^{-2}$) ont été obtenues pour le composite standard. À l'inverse le composite préparé avec les anas de lin revêtus par la paraffine présente les plus basses valeurs de sorptivité

($0,0046 \text{ m.s}^{-1/2}$) et d'absorption capillaire ($6,53 \text{ mm}^3.\text{mm}^{-2}$). La sorptivité des composites élaborés avec des granulats traités a été réduite d'un facteur 1,8 ; 2,3 et 3,1, respectivement suite à l'enrobage à l'huile de lin, l'émulsion et la paraffine (Tableau II. 8). Dans le cas de l'enrobage à la chaux, la sorptivité du composite reste proche de celle du composite standard. Cela pourrait être attribué à l'existence d'une microporosité dans la couche enrobante [ALM-16].

Une valeur de sorptivité plus élevée ($0,17 \text{ mm.s}^{-1/2}$) a été observée pour un composite préparé avec des anas de lin fibre non traités [DUP-05]. Cependant ces anas présentaient des dimensions moins importantes : 95% avaient une longueur et une largeur comprises, respectivement, entre 0 et 14 mm et entre 0 et 1,3 mm. La réduction de la taille des granulats conduit à la diminution des pores dans le composite et à une moindre capillarité. Lorsqu'un composite contient de grands pores d'aération alors il a une faible capillarité [IOA-08]. Les différentes valeurs de sorptivité peuvent être liées au remplissage de la porosité de la matrice, à l'affinité de la substance d'enrobage avec l'eau mais aussi à la taille des pores dans le composite. Ceci montre la nécessité d'enrober les anas de lin pour diminuer la sensibilité du composite à l'eau.

II.4.2. L'IMBIBITION

Lors du séjour des composites cimentaires dans l'eau, leur masse a été mesurée. L'augmentation de la masse des composites préparés avec les anas bruts et traités est présentée dans la Figure II. 35. L'absorption d'eau W est représentée en fonction de la racine carrée du temps pour chacun des composites étudiés. Les courbes obtenues permettent de déterminer la capacité maximale ($W_{\max}$) et le coefficient (A_c) d'absorption d'eau.

L'enrobage des anas de lin modifie le comportement hydrique des éco-composites étudiés. En effet l'amélioration des propriétés hydriques des matériaux après traitement des granulats lignocellulosiques est notable. Les quatre traitements réduisent l'absorption maximale d'eau mais aussi le coefficient d'absorption et la porosité. Les traitements à la paraffine et à l'huile de lin réduisent le plus ces trois paramètres (~50%).

La Figure II. 35 montre, pour les premiers temps d'absorption d'eau des composites, une cinétique qui diffère selon le type d'enrobage : le composite avec les anas bruts est celui qui absorbe l'eau le plus rapidement ; le composite avec les anas traités à la paraffine présente l'absorption la plus lente. Les composites élaborés avec les anas de lin non traités et traités par émulsion n'ont pas résisté au-delà de deux jours d'immersion dans l'eau. Cette faible résistance à l'eau pour les composites élaborés avec les anas non traités peut s'expliquer par un mauvais développement de la matrice cimentaire de ce type de composite [KHA-14]. En ce

qui concerne la faible résistance pour les composites d'anas traités par émulsion, cela est dû probablement à la composition chimique des poussières ou éventuellement à l'oxydo polymérisation incomplète de l'émulsion qui peut causer sa décomposition dans la matrice cimentaire.

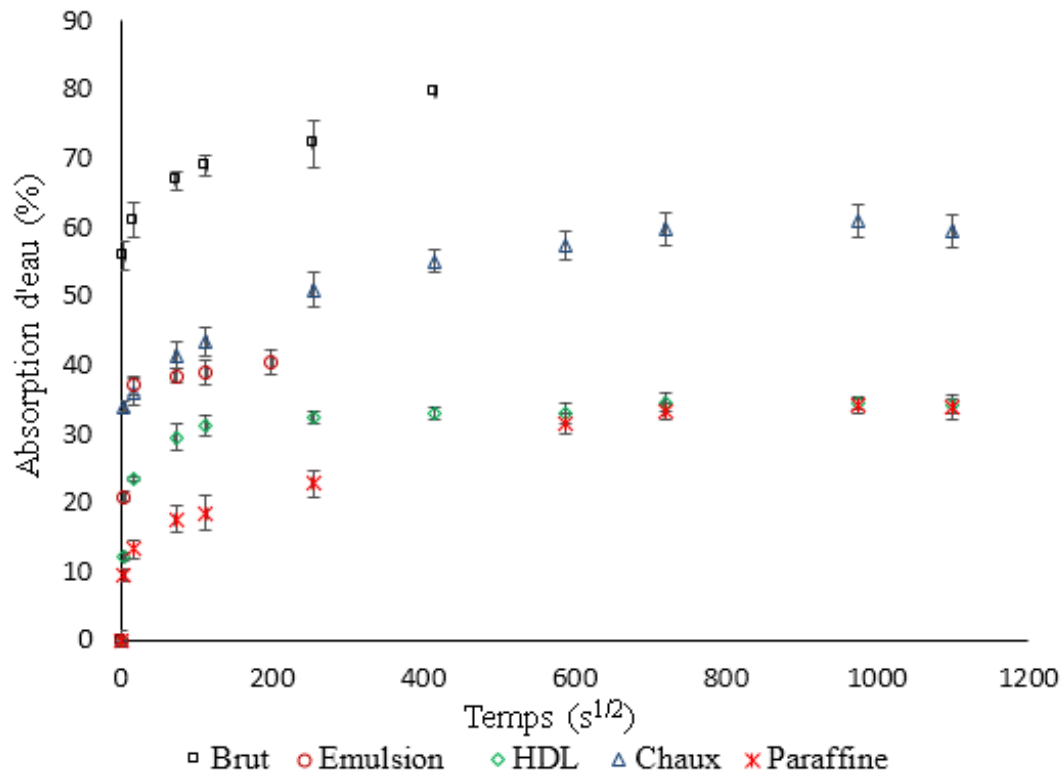


Figure II. 35: Effet de l'enrobage des anas de lin sur l'absorption d'eau par imbibition des composites

Les valeurs du Tableau II. 9 montrent que l'absorption maximale des composites préparés avec les anas bruts atteint environ 79%. Cette valeur est due à la porosité importante détectée par l'évaluation microscopique des composites. De plus, les anas au sein des composites absorbent une certaine quantité d'eau. Cette augmentation est moindre avec tous les traitements appliqués aux anas. La diminution de l'absorption des composites est due à la diminution du caractère hydrophile des anas traités. La littérature relate des travaux où le traitement de copeaux de bois avec de l'huile de lin a également permis de diminuer de manière significative l'absorption d'eau des composites obtenus de 48% à 24% [LED-00].

Tableau II. 9 : Paramètres de la cinétique d'absorption d'eau par imbibition des différents composites

Composites	Standard	Émulsion	Huile de lin	Chaux	Paraffine
Wmax (%)	79,2 ± 3,5	40,2 ± 1,7	34,0 ± 1,0	59,4 ± 2,3	33,8 ± 1,0
Ac (kg.m ⁻² .s ^{-1/2})	0,520±0,014	0,242±0,009	0,165±0,009	0,348±0,006	0,096±0,040
Porosité (%)	48,7 ± 1,8	29,0 ± 0,6	28,7 ± 0,8	40,6 ± 1,4	28,5± 0,1

Par ailleurs le coefficient d'absorption d'eau du composite avec les anas bruts est supérieur à ceux des composites fabriqués en utilisant les anas de lin traités. Le traitement des anas à la paraffine conduit au composite ayant le plus faible coefficient d'absorption d'eau. Des valeurs de coefficients d'absorption d'eau, comprises entre 1,6 et 2,3 kg.m⁻².s^{-1/2}, donc beaucoup plus élevées, ont été obtenues pour un composite cimentaire élaboré avec des pulpes de betteraves déshydratées [MBO-04]. Cet écart peut être expliqué par la différence de nature des granulats végétaux et de procédure d'élaboration. Cette étude permet de confirmer les bonnes propriétés des composites élaborés grâce à des anas de lin. Une absorption d'eau élevée témoigne de l'existence de pores et de vides au sein du matériau. Or ces pores sont déterminants pour la résistance et la durabilité du composite.

Les résultats obtenus par Al-Mohamadawi et al. [ALM-15] montrent logiquement qu'il existe une corrélation entre coefficient d'absorption d'eau, capacité maximale d'absorption d'eau et porosité. Les éco-matériaux formulés avec les anas de lin traités par la paraffine et l'huile de lin présentent les valeurs minimales de ces trois paramètres (Tableau II. 8).

Le comportement vis-à-vis de l'eau de la substance d'enrobage contrôle les propriétés hydriques des composites. Lorsque les anas ont été enrobés avec une substance hydrophobe comme la paraffine et l'huile de lin, le composite résultant présente des caractéristiques d'absorption d'eau inférieures à celles du composite contenant les anas enrobés à la chaux, l'enrobage à la chaux étant hydrophile.

Les résultats montrent également l'effet du traitement d'enrobage des granulats lignocellulosiques sur le comportement des composites élaborés vis à vis de l'eau. L'essai d'imbibition a montré l'amélioration de la résistance à l'eau des composites formulés avec les anas de lin traités comparés au composite standard. Le traitement réalisé avec une substance hydrophobe s'est montré le plus performant surtout en ce qui concerne la capacité d'absorption d'eau.

III. CONCLUSION

Le travail présenté dans ce chapitre montre l'effet du traitement par différentes substances d'enrobage (l'huile de lin, une émulsion d'huile de lin, la chaux et la cire de paraffine) sur les propriétés des anas de lin. Ces anas sont incorporés dans une matrice cimentaire et les propriétés hydriques, mécaniques, thermiques et microstructurelles des composites résultants déterminées. Les résultats obtenus sont en accord avec la majorité des travaux trouvés dans la littérature. Concernant l'effet des traitements sur les propriétés des anas plusieurs remarques peuvent être faites :

- les substances d'enrobage utilisées modifient le comportement des anas de lin vis à vis de l'eau en recouvrant leur surface et en empêchant celle-ci de pénétrer dans leur structure poreuse. Ainsi la capacité d'absorption d'eau a été réduite de 62, 77, 68 et 85%, respectivement, après traitement des anas par l'émulsion, l'huile de lin, la chaux et la paraffine ;
- les masses volumiques apparentes augmentent de 117, 130, 153 et 116% et les masses volumiques réelles de 109, 92, 141 et 65% pour les anas traités par l'émulsion, l'huile de lin, la chaux et la paraffine respectivement.

L'étude de l'effet des traitements d'enrobage des granulats lignocellulosiques sur le comportement des éco-matériaux élaborés conduit aux conclusions suivantes :

- l'incorporation d'anas traités au sein de la matrice cimentaire entraîne une augmentation de masse volumique apparente d'environ 50% par rapport à un composite d'anas bruts et induit également une augmentation de la conductivité thermique d'environ 30-40%. Cependant les résistances mécaniques sont améliorées comparées à celles du composite standard ;
- l'objectif de 1 mm.m⁻¹ pour les variations dimensionnelles n'est pas atteint. Cependant la réduction obtenue grâce aux enrobages est de 25 à 55% pour les VDE et de 45 à 67% pour les VDS;
- une amélioration de la résistance à l'eau des éco-matériaux formulés avec les anas de lin traités comparé à l'éco-matériau standard est obtenue, tout particulièrement avec le traitement utilisant la cire de paraffine (substance hydrophobe) qui se montre le plus performant en ce qui concerne la réduction de la capacité d'absorption d'eau;
- la capillarité des éco-matériaux s'est vue affectée par le traitement de granulats lignocellulosiques. Elle est réduite de 28,75 mm³/mm² à 25,99, 13,06, 10,06 et

6,53 mm³/mm² grâce au traitement des anas par la chaux, l'huile de lin, l'émulsion et la paraffine, respectivement. À d'autres égards, le comportement des composites vis à vis de l'eau est amélioré après traitement car une réduction de 9,6, 54,5, 65,0 et 77,3% de l'absorption capillaire est obtenue, par rapport au composite standard, pour les composites d'anas traités par la chaux, l'huile de lin, l'émulsion et la paraffine, respectivement.

Selon la classification de la RILEM [RILEM-78], les composites élaborés et étudiés dans ce travail appartiennent au classe "béton léger d'isolation" car ils présentent une masse volumique apparente inférieure à 2000 kg.m⁻³, leur résistance à la compression est supérieure à 0,5 MPa et leur conductivité thermique est inférieure à 0,3 W.m⁻¹.K⁻¹.

Nos composites d'anas de lin pourraient donc être utilisés comme matériaux isolants d'enveloppe. Il convient donc de connaître leur comportement en utilisation intérieure et en particulier leur comportement vis à vis de l'humidité. C'est la raison pour laquelle le troisième chapitre de ce travail sera consacré à l'étude de leurs propriétés hygriques.

CHAPITRE III:
COMPORTEMENT HYGRIQUE DES COMPOSITES À
BASE D'ANAS DE LIN

III.1. INTRODUCTION

L'utilisation de matériaux hygroscopiques, capables de fixer une certaine quantité d'eau sous forme vapeur ou liquide, apparaît comme une bonne solution pour réduire les besoins en énergie tout en maintenant un confort élevé à l'intérieur des habitations [CER-09] [SIM-04]. Afin de comprendre et de prédire le comportement hygrothermique d'une enveloppe de bâtiment construite avec de tels matériaux, des études numériques peuvent être faites. Ces études sont généralement basées sur des données expérimentales issues de courbes de sorption et de perméabilité à la vapeur d'eau.

Dans le précédent chapitre (Chapitre 2) nous avons étudié les méthodes de traitement des anas de lin, de formulation des composites et caractérisé les granulats et les composites résultants. Le but de ce présent chapitre est de caractériser les propriétés et le comportement hygrothermiques de nos différents bétons lignocellulosiques (ciment-anas de lin).

Les composites d'anas de lin ont été élaborés pour faire partie des matériaux de construction bio sourcés. Nous pouvons utiliser ces matériaux comme isolants hygrothermiques à l'intérieur d'une paroi de mur de maison ou bien comme revêtement intérieur afin de contribuer au confort hygrothermique et acoustique à l'intérieur d'un local. Dans cette étude, nous sommes concentrés sur le cas des bétons d'anas et nous avons utilisé plusieurs méthodes expérimentales pour identifier leur comportement hygrothermique.

Afin d'évaluer un isolant, il est également important de connaître son impact sur l'environnement et vice versa. Le plus souvent les isolants se trouvent en contact avec la vapeur d'eau et sont soumis à des conditions diverses. Pour cela, une étude du transfert de masse et des propriétés thermiques des matériaux d'isolation est aussi nécessaire.

En raison de l'importance du comportement hygrothermique des enveloppes de bâtiment sur les besoins énergétiques, le confort intérieur et la qualité de l'air intérieur, une attention particulière est portée à l'influence des conditions climatiques (humidité, température et durée d'exposition) sur ces composites, ainsi qu'à l'impact de ces éco-matériaux sur l'environnement. Pour cela des isothermes de sorption ont été établies, la perméabilité et la capacité tampon à la vapeur d'eau ont été déterminées.

Ce chapitre s'organise en deux parties. La première partie présente les méthodes expérimentales mises en œuvre ainsi qu'une identification des différents échantillons et des matériaux utilisés pour réaliser les tests. Les anas de lin bruts et traités par l'huile de lin, l'émulsion d'huile de lin, la chaux et la paraffine ont été utilisés pour élaborer les composites cimen-

taires. La seconde partie est consacrée à l'interprétation et aux discussions des résultats obtenus pour les propriétés hygrothermiques des cinq types de composites élaborés.

III.2. ETUDE EXPERIMENTALE

III.2.1. LES ISOTHERMES DE SORPTION

Les isothermes de sorption d'humidité décrivent la relation entre l'activité de l'eau et la teneur en humidité à une température constante. La nature de cette relation dépend de l'interaction entre l'eau et les constituants du matériau. La quantité de vapeur d'eau qui peut être absorbée par un produit dépend de sa composition chimique, de son état physico-chimique et de sa structure physique. Les isothermes de sorption peuvent être mesurées par des procédés continus ou discontinus [IUPAC-85], avec des chambres climatiques ou avec la technique SDV (sorption dynamique de vapeur). Cette technique a été mise au point afin de réduire le temps d'exécution de la mesure et elle utilise seulement des petits échantillons [XIE-11]. Dans cette étude les humidités relatives d'équilibre ont été obtenues par l'utilisation de diverses concentrations de solutions d'acide sulfurique [SOL-51]. La relation entre l'activité de l'eau et la teneur en humidité à une température donnée est appelée l'isotherme de sorption d'humidité.

Cette relation est complexe et unique pour chaque produit en raison des différentes interactions (capillaire et effets de surface) entre l'eau et les composants solides à différentes teneurs en humidité. Une augmentation de l'activité de l'eau (a_w) est presque toujours accompagnée par une augmentation de la teneur en eau, mais de façon non linéaire. Les isothermes de sorption d'humidité fournissent des informations précieuses pour tous les produits humides ou à sécher.

Dans cette étude, les isothermes de sorption sont mesurées selon le procédé discontinu. Celui-ci consiste à mettre un échantillon sec dans un environnement ayant une humidité relative fixée jusqu'à masse constante et à mesurer la quantité de vapeur adsorbée par cet échantillon. Puis nous avons varié l'humidité relative en suivant la même procédure. Ainsi la quantité de vapeur adsorbée par le matériau est déterminée sur une plage bien définie d'humidité relative. Les tests de sorption permettent d'obtenir une courbe de sorption pour une température donnée. Cette courbe représente la variation de la teneur en eau du matériau en fonction de l'humidité relative de l'air ambiant.

Les échantillons étudiés sont des composites d'anas bruts et traités de dimension $5 \times 5 \times 2 \text{ cm}^3$. Les différents échantillons ont été séchés jusqu'à masse constante dans une étuve à 50°C . Cette température a été choisie car Korpa et Trettin [KOR-06] ainsi qu'Espinosa et Franke

[ESP-06] ont analysé expérimentalement l'influence de différentes méthodes du séchage sur les isothermes de sorption de matériaux à base de ciment et ils ont constaté que le séchage à des températures élevées pouvait entraîner des changements dans la structure des pores.

Chaque échantillon est placé sur un support perforé en céramique à l'intérieur d'un dessiccateur d'une capacité d'un litre, contenant une solution d'acide sulfurique de concentration donnée correspondant à une humidité relative fixe (Tableau III. 1). Le dessiccateur est mis dans une étuve maintenue à $23 \pm 0.5^\circ\text{C}$ jusqu'à ce que l'équilibre hydrique soit atteint.

Tableau III. 1: Humidité relative d'équilibre des solutions d'acide sulfurique en fonction de leur densité [WIL-21]

Densité	HR (%)	Densité	HR (%)
1,44	30	1,25	70
1,39	40	1,20	80
1,34	50	1,14	90
1,29	60	1,04	97

L'échantillon est considéré en équilibre lorsque sa masse présente une variation inférieure à 1% de la masse totale, pour trois pesées successives. Après chaque pesée des différents échantillons, le dessiccateur est replacé dans l'étuve. Les solutions d'acide sont changées trois fois durant le test pour garder la même concentration donc la même humidité relative.

Le point du départ de la courbe de sorption correspond à la masse sèche des échantillons. Après avoir trouvé le point initial de la courbe, les échantillons sont placés à des humidités relatives de 30% puis 40, 50, 60, 70, 80, 90 et 97 % pour établir les isothermes d'adsorption et désorption. La Figure III. 1 montre le dispositif expérimental de sorption isothermique.

Nous avons utilisé une stratégie pour optimiser le temps du test en exposant simultanément des échantillons avec les mêmes caractéristiques à différents niveaux d'humidité relative [FEN-13] [KUM-02] [POY-09], au lieu de soumettre un même échantillon à différents niveaux d'humidité relative et d'attendre à chaque fois la stabilisation de masse [UMU-14-2] [UMU-14] [RAH-15] [COL-13]. Concernant l'isotherme de désorption, cette dernière est déterminée avec des humidités relatives allant de 97 jusqu'à 30%.

La variation de la quantité d'eau adsorbée par l'échantillon, soit par une augmentation, soit par une diminution de la pression d'adsorption ou de désorption est mesurée par méthode gravi-

métrique. La détermination des isothermes d'adsorption/désorption se fait par la mesure de la teneur en eau d'un échantillon à l'équilibre hygroscopique et à une humidité relative donnée. La mesure de la différence entre la masse à un temps donné t (M_t) et la masse initiale de l'éprouvette sèche (M_i) permet de déterminer la capacité d'adsorption de la vapeur d'eau du composite " $u(\%)$ " en fonction du temps, suivant l'équation 1. De plus, la différence entre la masse à l'état d'équilibre et la masse initiale nous donne la capacité maximale d'adsorption de la vapeur d'eau du composite pour l'humidité relative étudiée.

$$u(\%) = \frac{M_t - M_i}{M_i} \times 100 \quad \text{Eq. 1}$$

Où M_t est la masse de l'échantillon à une humidité relative donnée, M_i est la masse de l'échantillon à l'état sec ($HR=0\%$). Ces essais de sorption sont réalisés selon la norme NF EN ISO standard 1257 [NF EN 01].

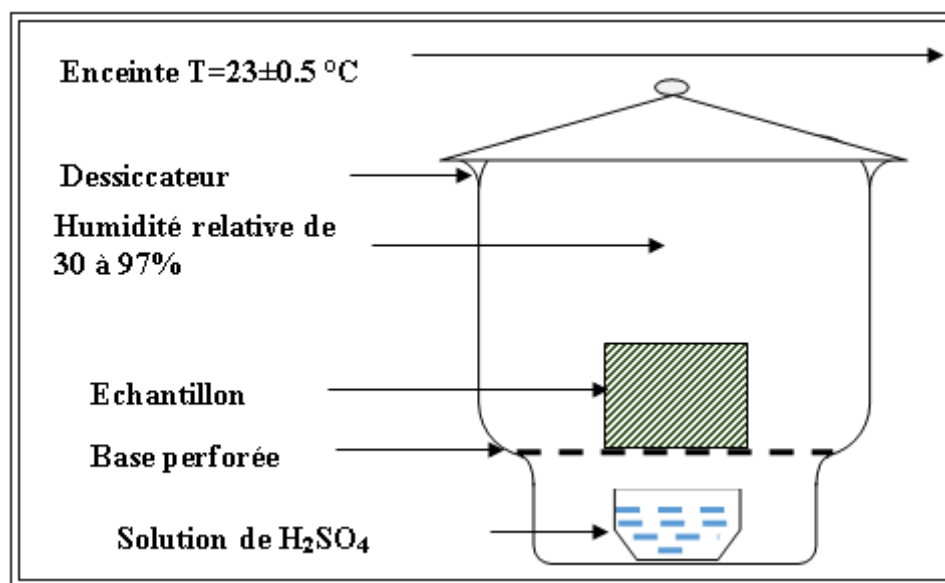


Figure III. 1. Dispositif expérimental pour étudier la sorption

III.2.2. LA PERMÉABILITÉ À LA VAPEUR D'EAU

La perméabilité à la vapeur d'eau des composites élaborés avec des anas bruts et traités a été déterminée conformément à la norme NF EN ISO 12572, Octobre 2001 [NF EN 01], en utilisant la méthode de la coupelle sèche et de la coupelle humide dans des conditions isothermes

(23°C) pour deux couples d'humidité relative: (0/85) et (94/50) % comme indiqué sur la Figure III. 2 et la Figure III. 3.

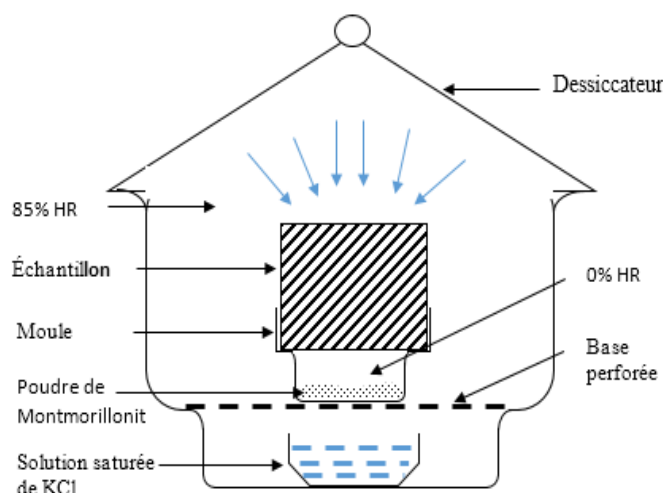
La perméabilité à la vapeur d'eau est une propriété importante du matériau qui caractérise la capacité de celui-ci à transférer l'humidité. Le principe de l'essai consiste à imposer à un échantillon d'épaisseur « e », un gradient de pression de vapeur d'eau constant et unidimensionnel jusqu'à atteindre l'état stable d'équilibre. La perméabilité à la vapeur comprend trois phases de transfert : la première est un transfert de vapeur par diffusion (transport par collision des molécules d'eau entre elles), la deuxième consiste au transfert de vapeur par effusion (transport par collision des molécules d'eau avec les parois des pores) et la troisième est le transfert du liquide (lié par condensation capillaire).

Les méthodes de la coupelle sèche et humide ont été appliquées sur les cinq types de composites d'anas de lin (bruts, huile de lin, émulsion, chaux et paraffine) avec des échantillons d'épaisseur 5 cm et de diamètre 9,5 cm.

Les essais ont été réalisés à partir de la plus faible humidité vers la plus élevée, soit de 0 à 85% dans le cas de la coupelle sèche et de 50 à 94% dans le cas de la coupelle humide.

Avant chaque essai, les échantillons ont été séchés puis stabilisés à la faible humidité relative de l'essai jusqu'à masse constante. Après la stabilisation de la masse, la surface latérale est recouverte par un papier adhésif et étanche pour assurer un transfert monodimensionnel. Puis l'éprouvette est scellée sur la partie supérieure de la coupelle en plastique contenant le dessicatif (i.e. poudre de montmorillonite) ou la solution aqueuse produisant des humidités relatives spécifiques. L'assemblage échantillon-coupelle est ensuite placé dans un dessiccateur dont l'humidité relative diffère de celle qui est créée à l'intérieur de la coupelle pour assurer un gradient de pression. L'humidité relative dans le dessiccateur est contrôlée par une solution saturée de sel ou d'acide.

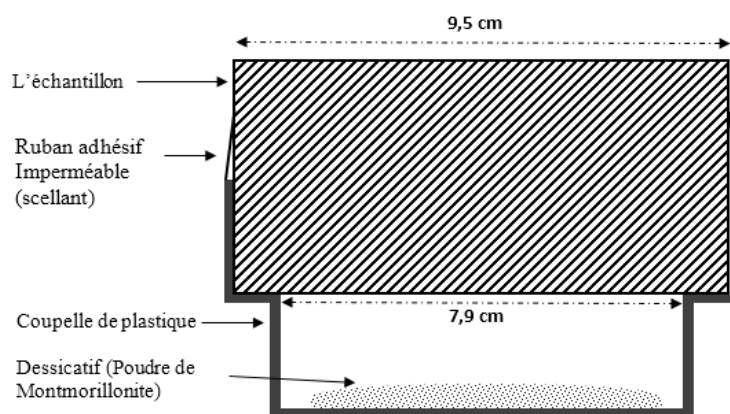
La Figure III. 2 montre le dispositif expérimental et le schéma de la coupelle sèche. La poudre de montmorillonite a été utilisée en tant que dessicatif pour créer une ambiance à 0 % d'humidité relative dans la coupelle (état sec à la surface inférieure de l'échantillon). La montmorillonite en poudre a été chauffée à 200°C pendant plus de 24 h, puis refroidie dans des dessiccateurs scellés avant son utilisation. La couche d'air entre l'échantillon et la poudre est d'environ 13 mm. Ensuite ce dernier assemblage coupelle-échantillon est placé dans le dessiccateur qui contient une solution saturée de chlorure de potassium (KCl) pour fixer l'humidité relative à 85%.



A. Schéma du dessiccateur avec l'assemblage
coupelle-échantillon



B. Assemblage coupelle-échantillon
dans le dessiccateur



C. Schéma de l'assemblage coupelle-échantillon

Figure III. 2: Dispositif expérimental de la coupelle sèche

Dans le cas de la coupelle humide présentée sur la Figure III. 3, une solution aqueuse saturée de nitrate de potassium (KNO_3) a été utilisée pour créer 94% d'humidité relative dans la coupelle, puis l'assemblage coupelle-échantillon est placé dans le dessiccateur qui contient une solution d'acide H_2SO_4 avec une densité de 1,34 pour fixer l'humidité relative à 50%. L'ensemble des dessiccateurs est conservé dans une étuve maintenue à 23°C.

Dans notre cas d'étude, une correction de la résistance des couches d'air s'impose suivant l'annexe G de la norme AFNOR, 2001 [AFNOR-01]. Un suivi de la variation de la masse est effectué par des pesées de l'assemblage coupelle-échantillon à l'aide d'une balance de précision à 0,001 g près. Les pesées sont effectuées jusqu'à l'obtention, pour chaque assemblage, de cinq points de mesure successifs identiques.

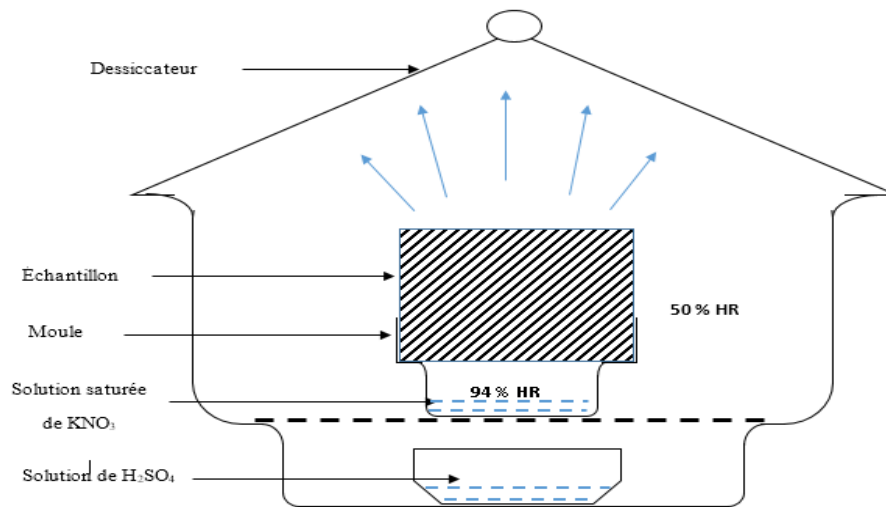


Figure III. 3: Dispositif expérimental de la coupelle humide

La Figure III. 4 montre les principes de la coupelle sèche (A) et de la coupelle humide (B). La vapeur d'eau se déplace de la zone à forte concentration en vapeur vers la zone à faible concentration à travers le matériau. Le flux du transfert de masse de vapeur (g_v) est inversement proportionnel à la résistance du matériau (μ).

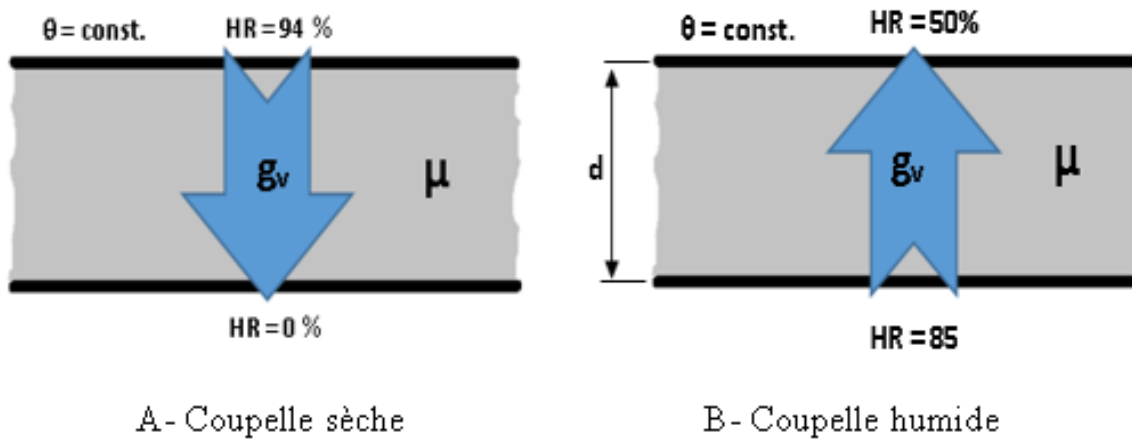


Figure III. 4 : Principes des coupelles sèche et humide

III.2.3. LA CAPACITÉ TAMPON À LA VAPEUR D'EAU

La capacité tampon hydrique d'un matériau (Moisture Buffering Value ou MBV) a été mesurée en suivant le protocole du projet de recherche NORDTEST [ROD-05]. Sa valeur est déterminée par la quantité d'eau adsorbée ou désorbée par unité de surface lorsque l'échantillon est soumis à une variation d'humidité relative extérieure pour un temps donné. Elle s'exprime en $\text{g/m}^2 \cdot \% \text{ HR}$. Des éprouvettes de dimension $40 \times 40 \times 120 \text{ mm}^3$ ont été utilisées. Cinq des six faces de chaque éprouvette sont enveloppées d'un film thermoscellable pour limiter le transfert d'humidité à une seule face (Figure III.5). Cela permet de comparer les résultats sur la base d'une même surface et représente également l'application réelle de ces composites où le transfert d'humidité à travers les côtés est minime.

Dans cette étude, l'échantillon est exposé à des cycles de 24 h au cours desquels l'échantillon est soumis à une humidité relative de 75% pendant 8 h, puis à une humidité relative de 33% pendant 16 h. Ce cycle est destiné à représenter les variations quotidiennes de l'humidité à l'intérieur d'un bâtiment et celui-ci est répété 3 fois. Le changement de masse des composites est mesuré par gravimétrie au cours du temps.

Les dispositifs expérimentaux sont constitués de bocaux en verre contenant de l'air à une humidité relative fixée grâce à des solutions saturées (Figure III. 5). De plus, un côté de l'échantillon est exposé à l'air dans le bocal. Avant l'essai, l'échantillon doit être conditionné à une teneur en humidité uniforme. Dans cette étude, les échantillons placés dans les bocaux sont conditionnés à une humidité relative de 55% et une température de 23°C dans une chambre à température contrôlée jusqu'à la stabilisation de leur masse. L'échantillon est ensuite placé dans un bocal dont l'humidité relative est fixée et le bocal est maintenu dans une chambre à $23 \pm 0,5^\circ\text{C}$ pendant l'essai.

L'échantillon est soumis à une variation d'humidité relative en le déplaçant vers un bocal ayant une humidité relative différente. Le chlorure de sodium est utilisé pour créer la condition d'humidité élevée : $75,3 \pm 0,1\% \text{ HR}$ à 23°C (ASTM 104, 1985). Une solution d'acide sulfurique de densité égale à 1,42 est utilisée pour créer la faible humidité relative: 33% HR à 23°C [WIL-21] [SOL-51]. La fluctuation réelle de l'humidité dans le bocal a été vérifiée grâce à un hygromètre (Thermo-/Hygro-/Sono-/Lux-mètre Voltcraft DT 8820).

L'écart-type relevé sur la mesure de l'humidité relative est de $\pm 1,2\% \text{ HR}$ pour les conditions d'humidité hautes et basses. L'air à l'intérieur du bocal n'étant pas en mouvement, une couche limite de convection naturelle existe entre la surface verticale de l'échantillon et l'air.

La masse de l'échantillon est mesurée, sans enlever celui-ci du bocal, par pesée gravimétrique périodique en utilisant une balance électronique de précision $\pm 0,1$ mg. L'accumulation d'humidité dans les composites d'anas de lin sera utilisée pour calculer la capacité tampon à la vapeur d'eau.

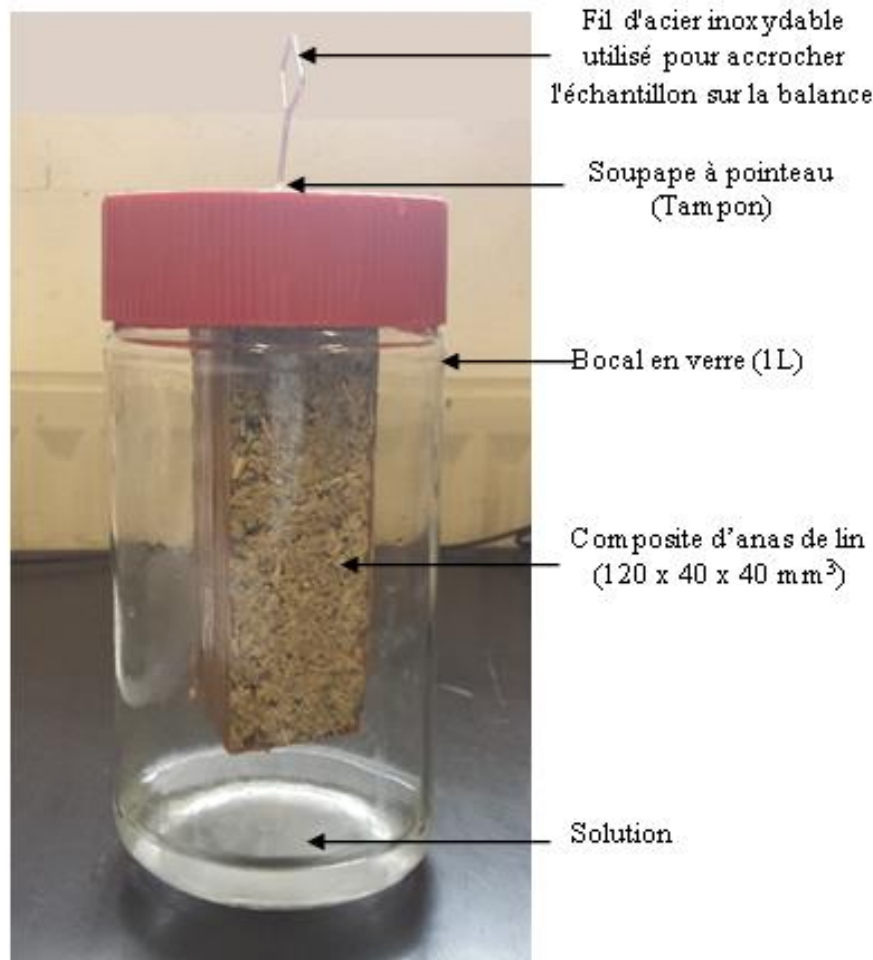


Figure III. 5 : Dispositif expérimental utilisé pour déterminer la capacité tampon à la vapeur d'eau des composites d'anas de lin

III.3. RÉSULTATS ET ANALYSES

III.3.1. LA SORPTION D'HUMIDITÉ

III.3.1.1. LES MODES DE FIXATION D'HUMIDITÉ DANS UN MATÉRIAU POREUX

La pression de vapeur d'eau dans l'atmosphère est quantifiée par le pourcentage d'humidité relative (% HR). La teneur en humidité à laquelle un matériau solide produit une pression de vapeur d'eau égale à celle de l'environnement l'entourant est définie comme la teneur en eau d'équilibre. Le gain de masse pour un matériau à une température et humidité relative spécifiées est exprimé en pourcentage de sa masse sèche initiale.

L'existence d'humidité en contact avec la surface d'un échantillon conduit à une prise de masse d'eau connue sous le nom de phénomène d'adsorption physique. Cette adsorption permet de fixer les molécules d'eau à la surface des pores d'une façon réversible. De même, une diminution d'humidité de l'air environnant cause une perte de masse et ce phénomène correspond à la désorption. Les isothermes sont très précieuses pour la formulation et le développement de produits. Une isotherme d'adsorption peut être divisée en trois zones avec trois étapes distinctes par rapport aux fonctions du stockage de l'eau : une première zone est dite d'adsorption monomoléculaire ; une deuxième d'adsorption polymoléculaire et la dernière celle de la condensation capillaire. La Figure III. 6 montre les différentes étapes de sorption, chacune correspondant à un mode de fixation de l'eau.

À une humidité relative comprise entre 0 et 15% selon Hill et al. [HIL-09] et entre 5 et 35% selon Collet et al. [COL-11], les molécules d'eau sont adsorbées en une monocouche (solution solide) à l'intérieur des surfaces de la paroi cellulaire. Dans cette étape, les molécules de vapeur d'eau sont adsorbées et recouvrent progressivement une couche à la surface des pores où elles sont maintenues sous l'effet des forces de Van der Waals. Si l'humidité relative de l'air ambiant augmente entre 35 et 70%, des multi-couches moléculaires d'eau sont formées sur les parois cellulaires des micro-capillaires et une deuxième couche est adsorbée par celle de la première zone.

Cette deuxième couche joue le rôle de surface absorbante pour la troisième couche. Tandis que la condensation capillaire commence dans la troisième étape avec un intervalle d'humidité relative plus élevé, les multicouches se rejoignent et forment un pont liquide séparé de la phase gazeuse par un ménisque. L'eau est retenue à la surface des pores par les forces capillaires et entraîne ainsi le remplissage des pores les plus fins dans un premier temps puis des pores les plus importants par condensation capillaire [SLA-09].

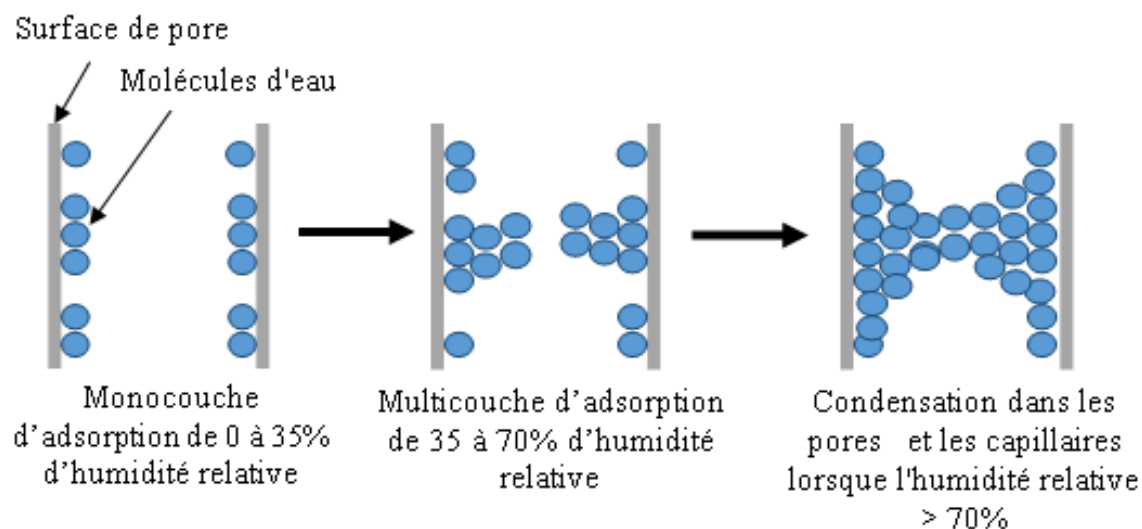


Figure III. 6 : La physisorption

Dans la première zone d'humidité relative, la phase gazeuse est continue et le transfert de l'eau liquide peut être négligé. Dans la seconde zone, le transfert d'humidité se fait simultanément par le transfert d'eau liquide et de la vapeur. Dans la troisième zone, le transfert d'humidité se fait par les forces capillaires. La zone située entre 0 et 95-98% d'humidité relative est définie comme région hygroscopique.

III.3.1.2. LES ISOTHERMES DE SORPTION

Les isothermes d'adsorption sont classées par l'Union Internationale de Chimie Pure et Appliquée (IUPAC) en six catégories distinctes [IUPAC-85] évoquées au Chapitre 1. La Figure III. 7 représente et permet de comparer les cinétiques d'adsorption obtenues pour les échantillons de composites d'anas bruts et traités. Les composites d'anas bruts et traités par la chaux adsorbent beaucoup plus rapidement que les autres et cette tendance est d'autant plus marquée que l'humidité relative est élevée. Les isothermes de sorption de la Figure III.8 sont déduites à partir des valeurs de teneur en eau pour chaque humidité relative à l'équilibre de la Figure III.7.

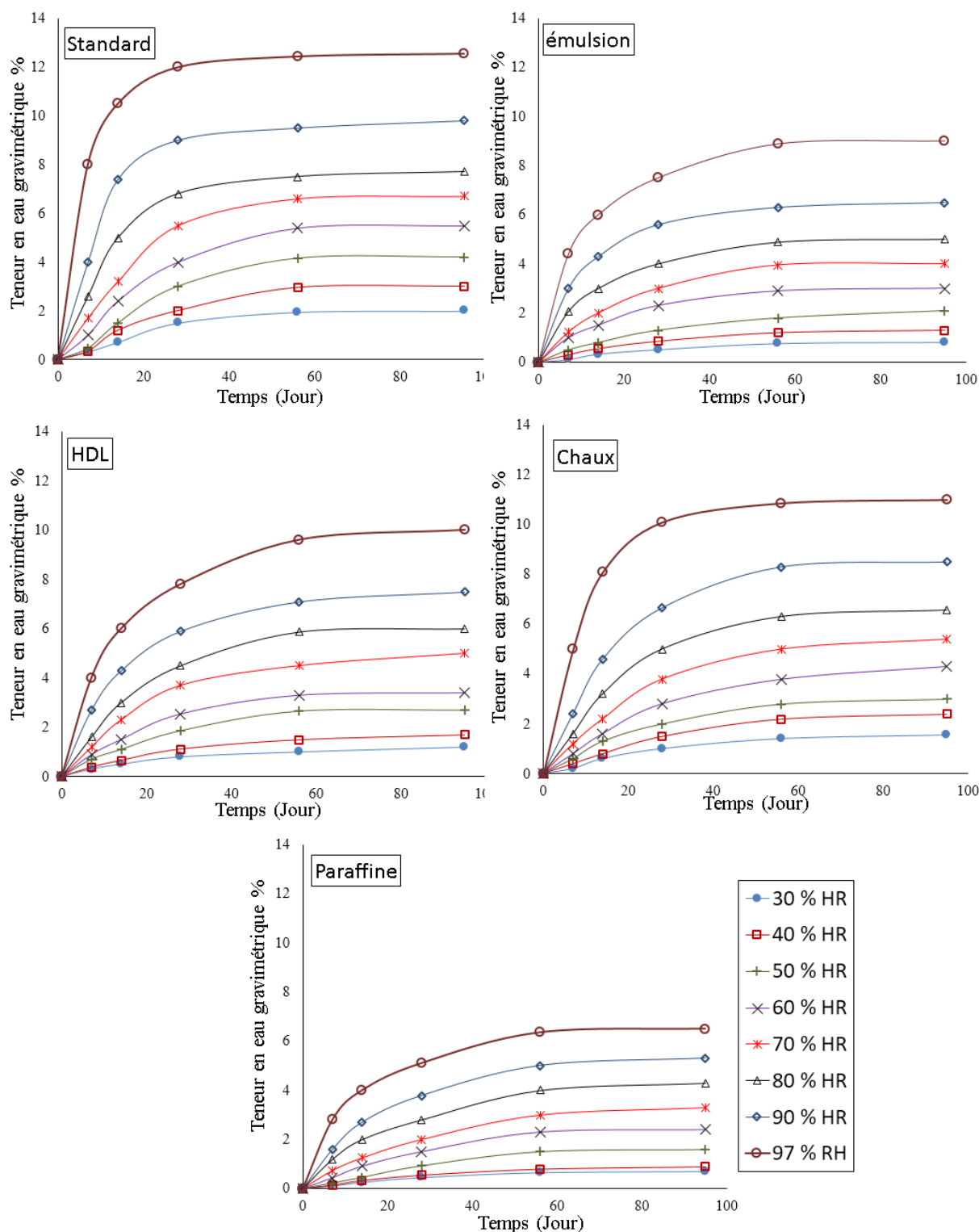


Figure III.7 : Cinétique d'adsorption pour les composites d'anas de lin bruts (standard) et traités

La Figure III.8 montre les courbes d'adsorption et de désorption tracées à partir des résultats obtenus sur les échantillons de composites d'anas bruts et traités.

La courbe de sorption obtenue expérimentalement s'exprime également sous une forme analytique proposée par Guggenheim, Anderson et de Boer (GAB) [TIM-03] donnée par l'Équation 2. Les résultats obtenus ont été ajustés par le modèle et sont présentés sur la Figure III.8.

$$u = \frac{w_m C_g K \varphi}{(1 - K\varphi)(1 - K\varphi + C_g K\varphi)} \quad \text{Eq.2}$$

Où u est la teneur en eau (kg/kg), φ est l'humidité relative (-), w_m , C_g et K sont des paramètres d'ajustement calculés par la méthode des moindres carrés, caractérisant les propriétés de sorption des matériaux.

Le paramètre w_m dépend de la température et il représente la teneur en humidité correspondant à la formation de la monocouche. C_g représente la constante d'énergie liée à la différence d'enthalpie libre des molécules d'eau à l'état liquide et dans la monocouche. Le paramètre K est une constante caractérisant l'état des molécules adsorbées au-delà de la première couche [BLA-04].

Blahovec [BLA-04] a montré que les paramètres K et C_g doivent suivre les conditions suivantes : $0 < K \leq 1$, tandis que $C_g > 0$. Pour $C_g \geq 2$, l'équation de GAB donne une courbe de forme sigmoïde avec un point d'inflexion, de type II selon la classification de l'IUPAC [IUPAC-85] (Figure I. 9). Pour $0 < C_g < 2$, l'isotherme est du type III (sans point d'inflexion). L'équation de GAB a été choisie car elle couvre une large gamme d'humidité relative ($0,05 < \varphi < 0,8-0,9$) [COL-11] par rapport à celle de l'équation de Brunauer, Emmett and Teller (BET) ($0,05 < \varphi < 0,3-0,4$).

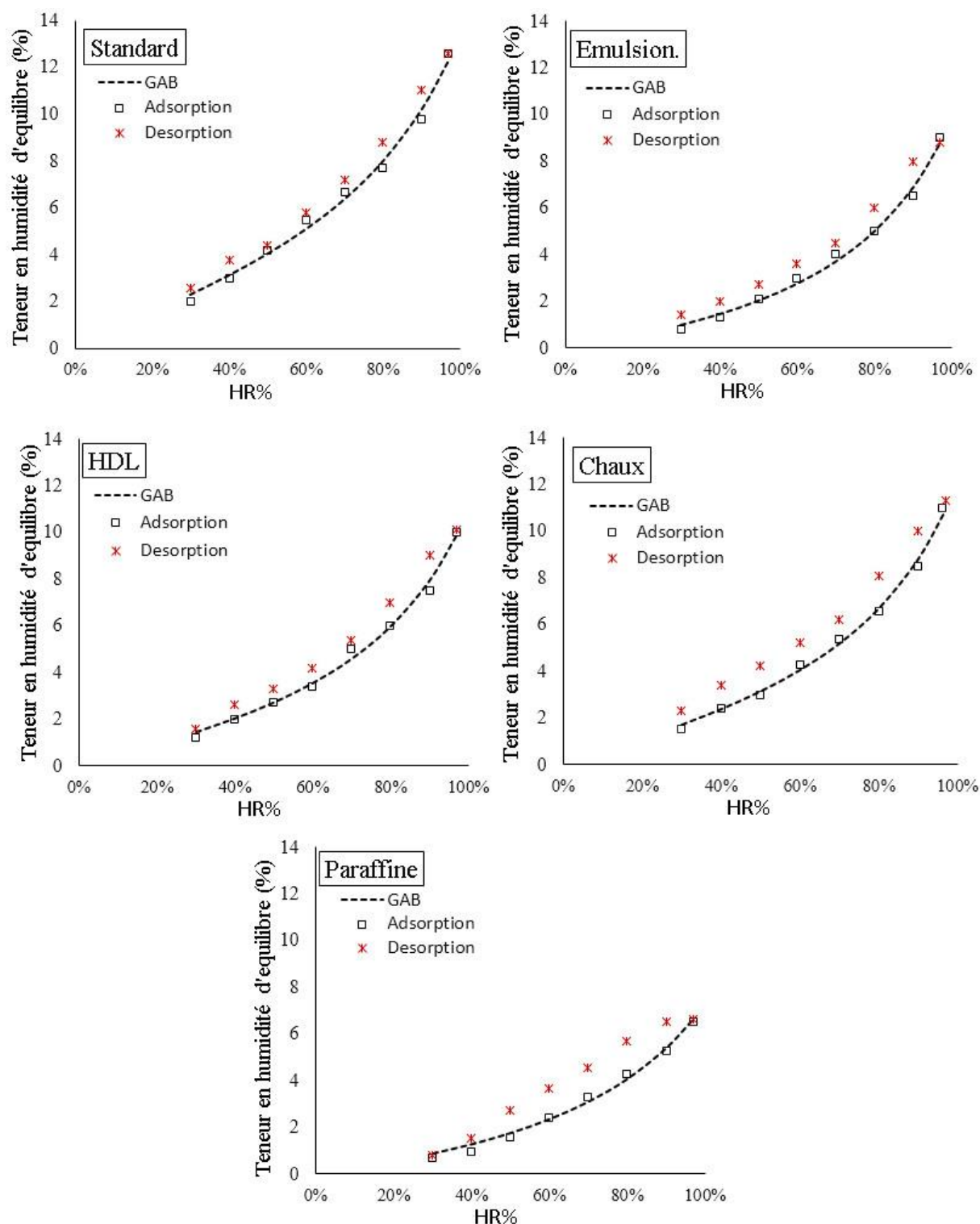


Figure III. 8: Isothermes de sorption des composites d'anas bruts (standard) et traités

Les résultats obtenus par le modèle de GAB montrent une bonne concordance entre les valeurs expérimentales et calculées. Les valeurs des paramètres d'ajustement des isothermes de sorption tracés sur la Figure III. 8 sont présentées dans le Tableau III. 2

Tableau III. 2 : Paramètres d'ajustement de modèle de GAB pour les isothermes de sorption des différents composites étudiés

Composite	Modèle GAB			
	R^2	w_m	C_g	K
Standard	0,981	4,48	2,53	0,71
Émulsion	0,987	3,42	1,01	0,74
Huile de lin	0,979	3,40	1,68	0,74
Chaux	0,989	3,58	2,1	0,74
Paraffine	0,934	3,30	1,02	0,68

Figure III. 8 présente les isothermes de sorption des cinq composites d'anas étudiés. Ces courbes peuvent être classées en types II ou III selon la classification de l'IUPAC [IUPAC-85]. Les résultats confirment ceux obtenus par Collet [COL-13] lors de l'étude de trois échantillons de bétons de chanvre en sorption isotherme.

Ainsi, à partir des valeurs obtenues pour la constante C_g de GAB, on peut conclure que les isothermes obtenues pour les composites d'anas bruts (standard) et traités par la chaux présentent une courbe de type II ($C_g \geq 2$). Les isothermes obtenues pour les composites d'anas traités par l'émulsion, l'huile de lin et la paraffine présentent une allure de type III ($C_g < 2$) d'après la classification de Brunauer [BRU-43] et de l'IUPAC [IUPAC-85]. Le type III est caractérisé en ce que l'interaction adsorbat-adsorbant est faible par rapport aux interactions adsorbat-adsorbat. Par conséquent, les matériaux classés sous ce type ont une moindre capacité à absorber l'humidité.

La diminution des valeurs de la constante w_m pour les composites d'anas traités peut être due à une réduction du nombre total de sites actifs pouvant se lier à l'eau et représente le résultat des changements physiques et / ou chimiques au sein du matériau [IGL-76].

Le type II est typique pour les matériaux celluloseux [CEL-14] [NIL-05] [PAR-86] [ALI-09]. La relation entre l'humidité relative et la teneur en eau est une fonction non-linéaire. Pour les humidités relatives faibles et moyennes, la teneur en eau augmente légèrement.

À titre de comparaison, à 55% d'humidité relative, la teneur en eau est de 4,85% pour le composite d'anas bruts et 2,65, 3,25, 3,85 et 2,0% pour les bétons d'anas traités par l'émulsion,

l'huile de lin, la chaux et la paraffine, respectivement. Pour les humidités relatives élevées, nous constatons une forte augmentation de la teneur en eau jusqu'à 9,8% pour le composite d'anas bruts contre respectivement 6,50, 7,50, 8,0 et 5,30% pour les autres bétons traités.

Les isothermes de sorption d'humidité fournissent des informations précieuses pour tous les comportements dépendant d'une spécification de teneur en humidité au lieu d'une spécification d'activité de l'eau. L'isotherme de sorption illustre clairement les problèmes potentiels qui peuvent survenir lorsqu'un matériau est humidifié à une teneur déterminée puis séché jusqu'à sa teneur en humidité de départ. La teneur en humidité associée à une activité de l'eau sur la courbe de séchage ne sera pas nécessairement associée à la même activité de l'eau sur la courbe d'humidification à cause de l'existence possible d'une hystérésis.

La valeur de l'hystérésis à une humidité relative donnée représente la différence entre la teneur en eau de la courbe d'adsorption et celle de la courbe de désorption. Les éco-composites d'anas de lin traités présentent un phénomène d'hystérésis plus important comparé au composite d'anas bruts. Avec le composite d'anas bruts, nous constatons un écart relativement faible de 0,25% à 55% d'humidité relative comparé à 0,75, 0,74, 0,5 et 1,2% pour les bétons d'anas traités par l'émulsion, l'huile de lin, la chaux et la paraffine respectivement à la même valeur d'humidité relative. D'après les travaux d'Umurigirwa et al. [UMU-14], l'hystérésis obtenue avec le béton de chanvre traité est plus marquée que celle obtenue avec le béton de chanvre brut. Ce phénomène est lié à l'effet de la « bouteille d'encre » [DAI-86] se produisant dans les pores, ainsi qu'à la différence de mouillabilité des pores en adsorption et désorption évoqué par Leon et al. [LEO-98].

Les composites d'anas traités semblent fixer un peu moins d'humidité que le composite d'anas bruts. En effet, les traitements d'enrobage des anas améliorent les propriétés de sorption du composite. Alix et al. [ALI-09] ont montré qu'un traitement avec un agent de couplage silane améliore les propriétés de sorption de fibres de lin. Un traitement des anas de lin peut changer leur morphologie [KHA-14] et modifier la porosité des composites obtenus [ALM-15]. Ceci peut influencer le phénomène d'hystérésis. L'adsorption de vapeur d'eau par un matériau serait associée au gonflement de la structure poreuse non-rigide ou à l'adsorption irréversible de molécules de vapeur d'eau dans les pores de largeur sensiblement égale à celle de la molécule d'eau [IUPAC-85]. En outre, les courbes de sorption obtenues montrent une hystérésis qui se prolonge à des valeurs d'humidité relative plus basses.

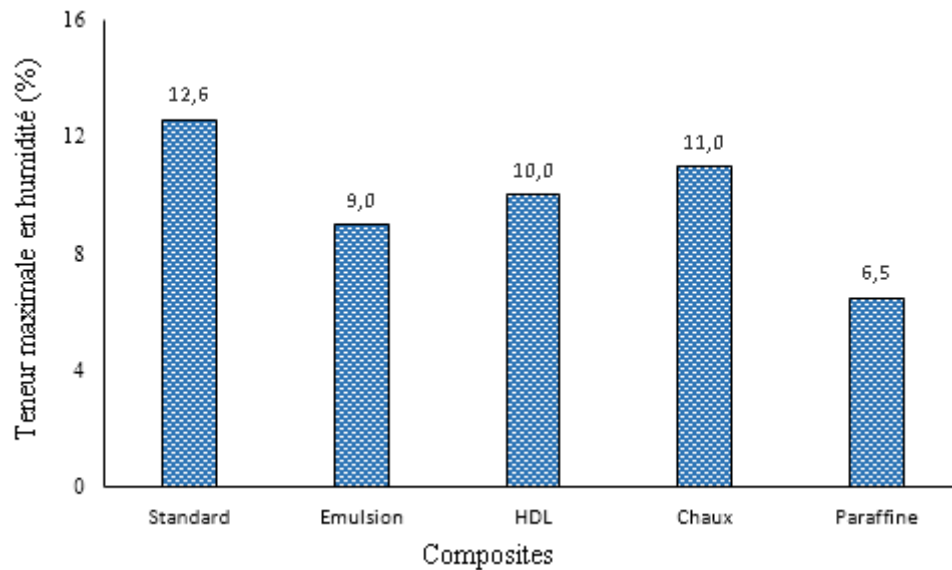


Figure III. 9 : Teneur maximale en humidité d'équilibre des composites d'anas de lin à 97% HR

La Figure III. 9 présente les teneurs maximales en humidité d'équilibre à 97% HR pour nos matériaux d'isolation. Les résultats obtenus montrent que les différents types de traitement réduisent la capacité de stockage de vapeur d'eau des matériaux. Par exemple pour le composite standard, elle est égale à 12,6% contre 6,5 à 11% pour les composites après traitements. Ainsi le traitement d'anas de lin permet d'augmenter la durée de vie du produit. En effet une accumulation d'humidité se produit dans l'enveloppe des bâtiments lorsque le taux d'humidité d'entrée dans l'ensemble est supérieur à la vitesse d'élimination de l'humidité. Si l'accumulation d'humidité est supérieure à la capacité du stockage de l'humidité des matériaux, cela peut conduire à une dégradation significative des performances ou réduire la durée de vie à long terme du matériau. De plus, cette capacité de stockage de l'humidité est importante car l'existence d'eau dans l'isolant augmente sa conductivité thermique [TRA-10]. Nous pouvons donc dire que le traitement conduit à minimiser l'effet de l'humidité sur la conductivité thermique du composite. Il convient de noter que la capacité de stockage de l'humidité d'un matériau dépend également du temps, de la température et des propriétés de celui-ci [SLA-09].

III.3.2. LA PERMÉABILITÉ À LA VAPEUR D'EAU

La perméabilité à la vapeur d'eau est une propriété importante qui caractérise la capacité d'un matériau à transporter la vapeur d'eau sous un gradient de pression de vapeur une fois que l'équilibre est atteint.

La perméabilité à la vapeur d'eau δ ($\text{kg.m}^{-1}.\text{s}^{-1}.\text{Pa}^{-1}$) peut être déterminée selon l'Équation 3, en supposant que le processus de diffusion de vapeur d'eau est décrit par la loi de Fick.

$$\delta = g_v \frac{d}{\Delta P_v} \quad \text{Eq. 3}$$

Où g_v représente la densité du flux de vapeur (ou débit de transmission) ($\text{kg.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$) obtenue par l'Équation 4.

$$g_v = \frac{G}{A} \quad \text{Eq. 4}$$

En régime permanent, le flux de vapeur d'eau G (kg.s^{-1}) à travers l'éprouvette via une surface A (m^2) est représenté par la pente de la droite de régression entre la variation de masse de l'assemblage d'essai et le temps, la phase initiale non linéaire étant exclue. La surface A de l'éprouvette exposée, équivaut à la moyenne arithmétique des aires libres inférieure et supérieure [NF EN 01]. Le flux de vapeur G traversant verticalement notre échantillon a été déterminé au cours du temps par pesée de l'ensemble coupelle-échantillon selon l'Équation 5.

$$G = \frac{\Delta m}{\Delta t} \quad \text{Eq. 5}$$

Où Δm (kg) représente la variation de masse entre deux pesées séparées d'un écart de temps Δt (s). La perméance à la vapeur d'eau ω ($\text{kg.m}^{-2}.\text{s}^{-1}.\text{Pa}^{-1}$) permet d'évaluer le niveau de perméabilité à la vapeur d'eau d'un matériau homogène pour une épaisseur donnée. Elle caractérise la quantité de vapeur d'eau traversant un mètre carré de matériau en une seconde pour une différence de pression d'un Pascal entre les deux faces et est calculée par l'équation 6 [ABR-09]. La différence de pression de vapeur d'eau entre les deux faces de l'éprouvette ΔP_v (Pa) est calculée en fonction de la température θ ($^{\circ}\text{C}$) et de l'humidité relative (HR) suivant l'équation 7 [SLA-09].

$$\omega = \frac{G}{A \cdot \Delta P_v} \quad \text{Eq. 6}$$

$$\Delta P_V = \frac{\Delta \varphi}{100} * 610,5 * e^{\frac{17,269 * \theta}{237,3 + \theta}} \quad \text{Eq. 7}$$

Une correction de la résistance des couches d'air dans la coupelle d'essai, grâce à l'équation 8 nous permet d'obtenir la valeur de la perméance corrigée ω_c ($\text{kg.m}^{-2}.\text{s}^{-1}.\text{Pa}^{-1}$).

$$\omega_c = \frac{1}{R_c} \quad \text{Eq. 8}$$

Où R_c est calculé par l'équation 9 [UMU-14-2].

$$R_c = \frac{1}{\omega} - \frac{d_a}{\delta_a} \quad \text{Eq. 9}$$

Avec d_a (m) l'épaisseur de la couche d'air et δ_a la perméabilité à la vapeur d'eau de l'air égale à $1,9 \times 10^{-10} \text{ kg.m}^{-1}.\text{s}^{-1}.\text{Pa}^{-1}$ [COU-15], [RAH-15].

La perméabilité à la vapeur d'eau δ ($\text{kg.m}^{-1}.\text{s}^{-1}.\text{Pa}^{-1}$) est calculée par l'équation 10 :

$$\delta = \omega_c * d \quad \text{Eq. 10}$$

Où d est l'épaisseur de l'éprouvette (m).

La perméabilité à la vapeur d'eau (δ) représente la quantité d'humidité traversant un mètre d'épaisseur de matériau par seconde pour une différence de pression d'un Pascal entre les deux faces. À noter que plus la valeur de la perméabilité est forte, plus le matériau laisse transiter la vapeur d'eau. La perméabilité à la vapeur peut être remplacée par le facteur de résistance à la vapeur (μ) : ce dernier facteur μ (-) est donné par l'équation 11, tandis que l'épaisseur d'air équivalente pour la diffusion de la vapeur d'eau est donnée par l'équation 12 selon la norme NF EN ISO 12572 [NF EN 01].

$$\mu = \frac{\delta_a}{\delta} \quad \text{Eq. 11}$$

$$S_d = \mu * d \quad \text{Eq.12}$$

Où S_d est l'épaisseur d'air équivalente pour la diffusion de la vapeur d'eau (m).

L'ensemble coupelle-échantillon est pesé périodiquement et la variation de masse est tracée en fonction du temps. La densité du flux de vapeur d'eau (g_v) est considérée comme la pente de la courbe après avoir atteint l'état d'équilibre (dans la région linéaire) divisée par la surface de l'ouverture de l'échantillon. La perméabilité à la vapeur d'eau est ensuite calculée à partir de la perméance qui était calculée en utilisant la pente de la cinétique de la masse pendant l'état d'équilibre. Pour tous les essais, l'état d'équilibre est atteint après 17 à 30 jours.

La Figure III. 10 et la Figure III. 11 montrent les variations de la masse en fonction du temps par les méthodes de la coupelle sèche et de la coupelle humide, respectivement, pour les cinq composites d'anas brut et traités. Malheureusement, aucune référence bibliographique disponible ne mentionne, ni discute les valeurs des flux de vapeur (G) ou la densité de flux de vapeur (g_v). La plupart porte leur attention sur la valeur de la perméabilité qui est considérée comme une propriété des plus importantes dans le cas des matériaux isolants. On note que quels que soient le composite testé et l'essai conduit, la variation de la masse avec le temps est lente. Tous les échantillons présentent un même comportement vis-à-vis de la vapeur d'eau, cependant le flux de vapeur d'eau G à travers les échantillons dans le cas de la coupelle humide est légèrement supérieur à celui obtenu avec la coupelle sèche comme montré dans le Tableau III. 3.

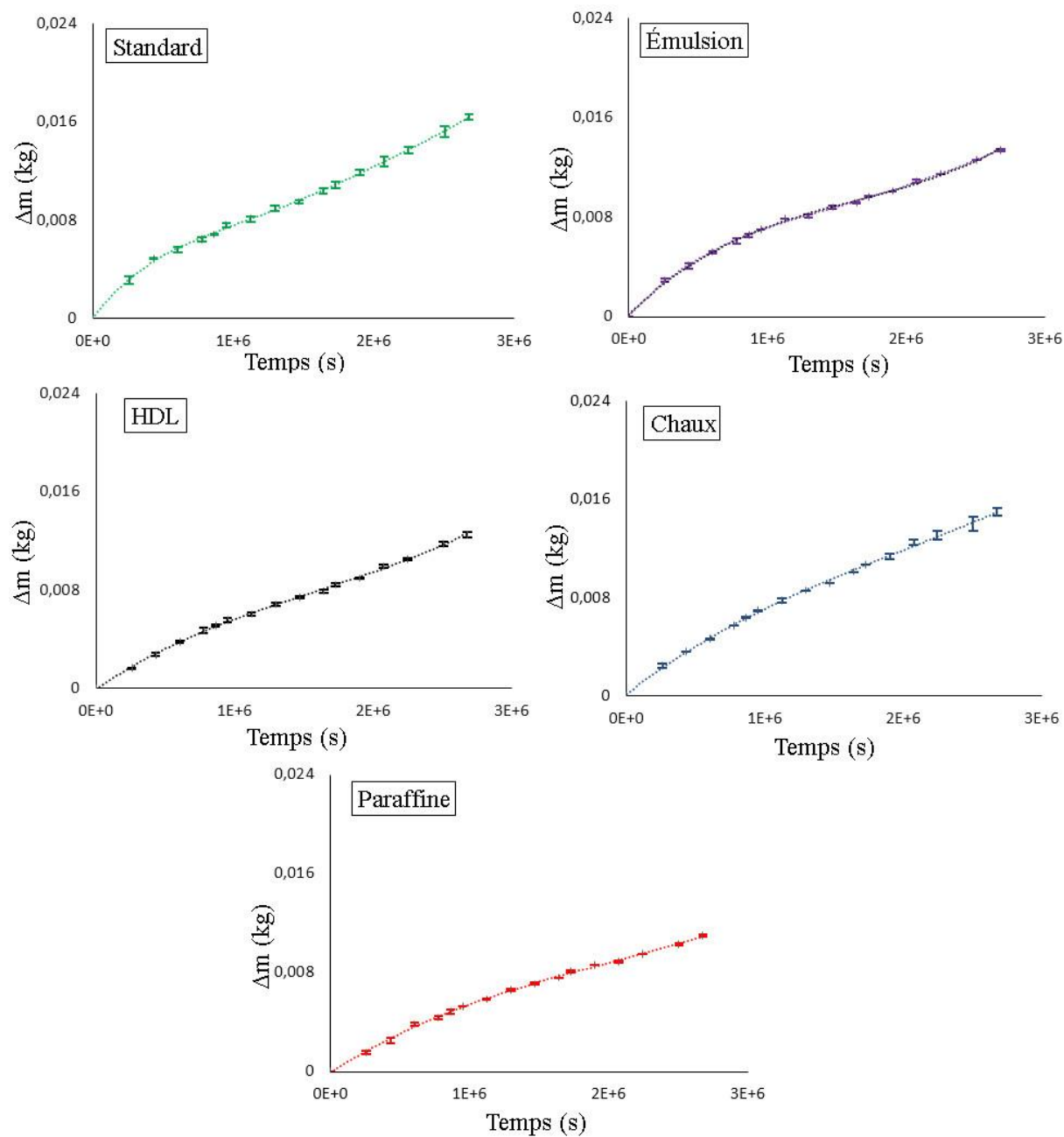


Figure III. 10 : Cinétique de la variation de masse en fonction du temps en coupelle sèche pour les composites d'anas bruts et traités

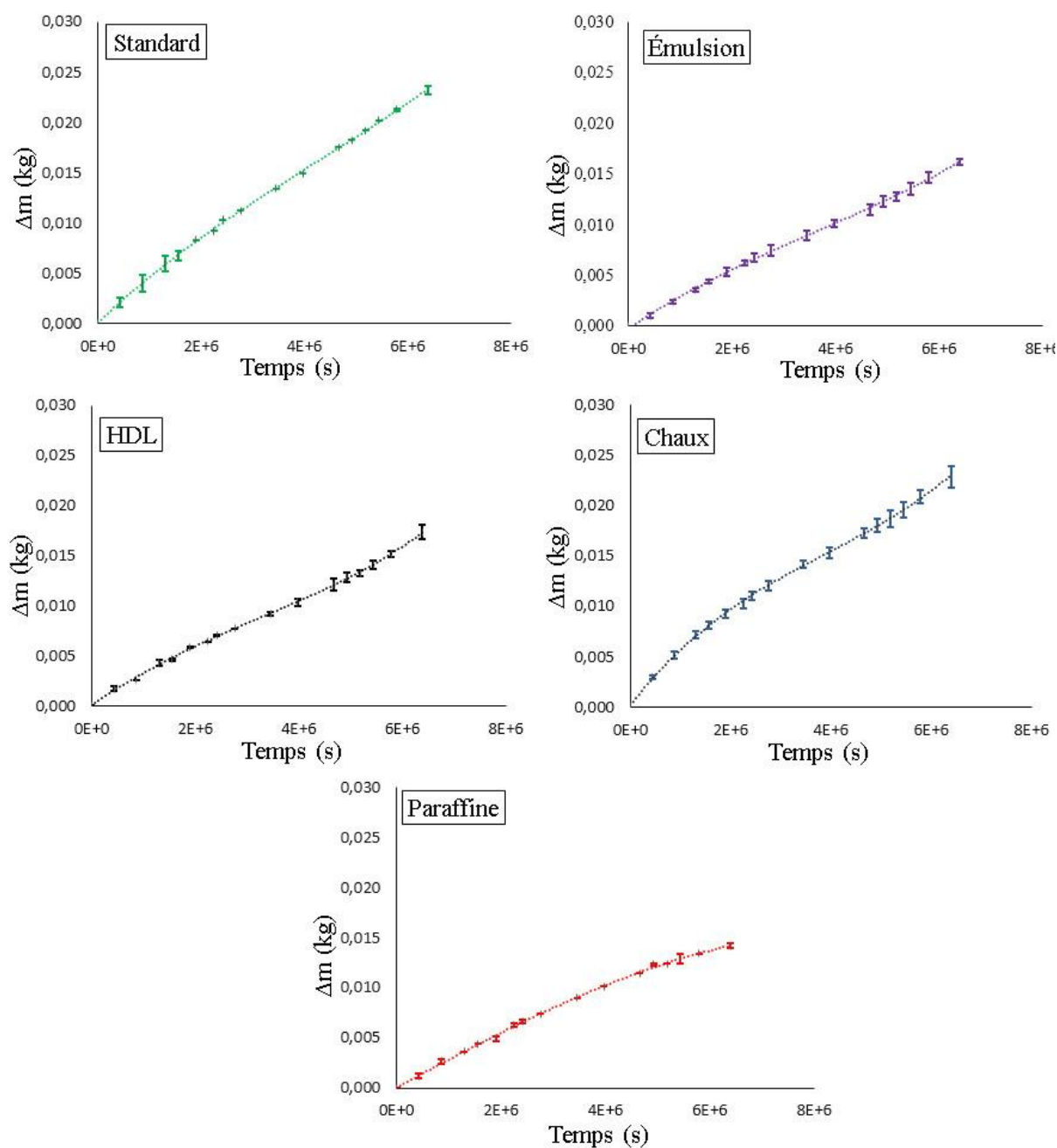


Figure III. 11: Cinétique de la variation de masse en fonction du temps en coupelle humide pour les composites d'anas bruts et traités

III.3.2.1. METHODE DE LA COUPELLE SECHE

Les valeurs des perméabilités obtenues par la méthode de la coupelle sèche sont considérées comme un indicateur de la performance du matériau en humidité faible quand le transfert d'humidité est contrôlé par la diffusion de vapeur [NF EN 01]. Le Tableau III. 3 montre les résultats obtenus pour les valeurs des flux de vapeur (G), la perméabilité à la vapeur d'eau δ , le facteur de résistance à la vapeur d'eau μ et l'épaisseur d'air équivalente S_d , pour chaque type composite. Les valeurs des flux de vapeur (G) obtenus pour les différents composites montrent clairement l'effet du traitement sur le comportement hygrique de composites d'anas de lin : le traitement des anas de lin diminue les valeurs de G .

Tableau III. 3 : Résultats obtenus par la méthode de la coupelle sèche (0-85% HR)

Composites	G (kg.s^{-1}) ($\times 10^9$)	δ ($\text{kg.m}^{-1}.\text{s}^{-1}.\text{Pa}^{-1}$) ($\times 10^{11}$)	μ (-)	S_d (m)
Standard	$5,1 \pm 0,27$	$1,70 \pm 0,09$	$11,3 \pm 0,6$	$0,51 \pm 0,03$
Emulsion	$3,8 \pm 0,12$	$1,20 \pm 0,04$	$15,7 \pm 0,5$	$0,71 \pm 0,02$
Huile de lin	$4,3 \pm 0,64$	$1,40 \pm 0,02$	$14,1 \pm 0,2$	$0,63 \pm 0,01$
Chaux	$4,6 \pm 0,58$	$1,50 \pm 0,02$	$13,2 \pm 1,7$	$0,59 \pm 0,08$
Paraffine	$3,1 \pm 0,07$	$1,00 \pm 0,03$	$22,5 \pm 0,4$	$0,88 \pm 0,02$

Dans le cas de la coupelle sèche, donc pour les faibles humidités relatives, les composites d'anas traités présentent tous une perméabilité à la vapeur d'eau inférieure à celle du composite standard. La diminution la plus marquée est obtenue avec le composite d'anas traités par la paraffine. Les traitements appliqués montrent donc leur capacité à réduire les perméabilités du béton d'anas de lin et, ainsi, à améliorer leurs propriétés d'isolation.

Ces valeurs de perméabilité sont relativement faibles par rapport aux résultats trouvés dans la littérature pour d'autres types des composites avec granulats lignocellulosiques. Le béton d'anas-chaux étudié par Rahim et al. [RAH-15] présente une perméabilité à la vapeur d'eau δ égale à $2,34 \times 10^{-11} \text{ kg.m}^{-1}.\text{s}^{-1}.\text{Pa}^{-1}$, soit légèrement supérieure à celle trouvée dans ce travail pour le béton d'anas de lin-ciment.

Il en est de même pour le béton de chanvre-chaux étudié par Collet et al. [COL-13] qui a une perméabilité à la vapeur d'eau δ égale à $3,2 \times 10^{-11} \text{ kg.m}^{-1}.\text{s}^{-1}.\text{Pa}^{-1}$. Cet écart peut être lié à la grande différence entre les propriétés du ciment et de la chaux, mais aussi aux proportions utilisées entre le liant, les granulats et l'eau. Rahim et al. [RAH-15] ont utilisé les rapports

volumiques 68% d'anas, 10% de chaux et 22% d'eau contre 73% d'anas, 18,2% de ciment et 9,1% d'eau dans notre étude.

Dans le cas de bétons associant des pailles de chanvre et une matrice à base d'amidon, les perméabilités sont également plus élevées. Ainsi le béton de chanvre-amidon qui est élaboré par Umurigirwa et al. [UMU-14] présente une perméabilité à la vapeur d'eau δ égale à $4,74 \times 10^{-11} \text{ kg.m}^{-1}.\text{s}^{-1}.\text{Pa}^{-1}$ si des chènevottes brutes sont utilisées et $5,76 \times 10^{-11} \text{ kg.m}^{-1}.\text{s}^{-1}.\text{Pa}^{-1}$ avec des chènevottes traitées par la soude et ensuite avec du silane, un agent de couplage. Ceux obtenus par Walker et Pavía [WAL-14] présentent une perméabilité δ variant entre $3,99 \times 10^{-11}$ et $4,21 \times 10^{-11} \text{ kg.m}^{-1}.\text{s}^{-1}.\text{Pa}^{-1}$. La faible masse volumique du béton de chanvre (415 kg.m^{-3}) par rapport aux bétons de lin étudiés permet d'expliquer la différence de perméabilité car la valeur de la perméabilité est affectée par la masse volumique du matériau [UMU-14].

Dans cette étude nous avons trouvé que l'épaisseur de la lame d'air équivalente (S_d) et le facteur de résistance à la vapeur d'eau (μ) sont plus élevés dans le composite standard par rapport aux composites d'anas traités. Cependant le composite standard et d'anas traités par la chaux ne présentent pas des valeurs significativement différentes. Plus les valeurs de S_d et μ sont élevées, plus le matériau s'oppose à la migration de la vapeur d'eau. En conséquence nous pouvons dire que les différents traitements des anas de lin (hormis celui à la chaux) réduisent la migration de la vapeur d'eau à travers les composites en humidité faible.

III.3.2.2. METHODE DE LA COUPELLE HUMIDE

Les valeurs des perméabilités obtenues par la méthode de la coupelle humide sont considérées comme un indicateur de la performance hygrique d'un matériau en condition très humide. Le tableau III. 4 montre les valeurs obtenues pour les valeurs des flux de vapeur (G), la perméabilité à la vapeur d'eau δ , le facteur de résistance à la vapeur d'eau μ et l'épaisseur d'air équivalente S_d , pour chaque type de composites élaborés.

D'après le Tableau III.4, les valeurs des flux de vapeur (G) ont été affectées par les traitements car les composites d'anas traités ont des valeurs inférieures comparées à celles du composite d'anas standard. Dans les conditions humides, le composite d'anas bruts présente une perméabilité à la vapeur d'eau égale à $2,14 \times 10^{-11} \text{ kg.m}^{-1}.\text{s}^{-1}.\text{Pa}^{-1}$. Tandis que pour les composites d'anas traités, cette perméabilité se situe entre $1,11 \times 10^{-11}$ et $1,86 \times 10^{-11} \text{ kg.m}^{-1}.\text{sec}^{-1}.\text{Pa}^{-1}$. Le traitement des anas entraîne donc une diminution de la perméabilité des composites. C'est à nouveau le composite élaboré avec les anas enrobés à la paraffine qui présente la plus faible perméabilité. Les résultats obtenus montrent que la perméabilité à la vapeur d'eau de nos

bétons d'anas de lin est inférieure à celle d'autres matériaux de construction poreux étudiés [COL-13] [RAH-15] [UMU-14].

Le facteur de résistance à la vapeur d'eau (μ) du composite standard est faible, et égal à $9,1 \pm 0,3$, par rapport aux valeurs obtenues pour les composites d'anas traités qui se situent en $10,5 \pm 0,8$ et $17,7 \pm 0,3$. Avec la coupelle humide, les valeurs de μ sont supérieures aux valeurs obtenues par la coupelle sèche. Par conséquent le matériau devient plus perméable à la vapeur d'eau avec l'augmentation de l'humidité. Cerezo [CER-05] et Umurigirwa et al. [UMU-14] ont montré que la perméabilité à la vapeur d'eau du béton de chanvre-chaux augmente avec l'humidité relative. Autrement dit la perméabilité à la vapeur d'eau dépend de l'humidité relative. Cependant selon Derome et al. [DER-08], elle dépend aussi de la teneur en humidité du matériau. Phillip et de Vries [PHI-57] ont évoqué l'augmentation du transport de la vapeur dans des condition isothermes provoquant l'apparition accrue des îlots d'eau avec l'augmentation de l'humidité relative (Figure III. 12-b).

Tableau III. 4: Résultats obtenus par la méthode de la coupelle humide (50-94% HR)

Composites	G (kg.s^{-1}) ($\times 10^9$)	δ ($\text{kg.m}^{-1}.\text{s}^{-1}.\text{Pa}^{-1}$) ($\times 10^{11}$)	μ (-)	S_d (m)
Standard	$3,4 \pm 0,11$	$2,14 \pm 0,07$	$9,1 \pm 0,3$	$0,41 \pm 0,01$
Émulsion	$2,5 \pm 0,09$	$1,53 \pm 0,06$	$12,7 \pm 0,5$	$0,57 \pm 0,02$
Huile de lin	$2,7 \pm 0,12$	$1,70 \pm 0,08$	$11,5 \pm 0,5$	$0,51 \pm 0,02$
Chaux	$2,9 \pm 0,2$	$1,86 \pm 0,01$	$10,5 \pm 0,8$	$0,47 \pm 0,03$
Paraffine	$1,8 \pm 0,09$	$1,11 \pm 0,06$	$17,7 \pm 0,9$	$0,79 \pm 0,04$

Ces îlots d'eau sont censés agir comme un court-circuit à la diffusion de vapeur d'eau. Krus [KRU-96] attribue le transport plus élevé de la vapeur, suite à l'augmentation de l'humidité relative, à la surface de diffusion comme le montre la Figure III. 12-a. Derome et al. [DER-08], eux, combinent les théories comme indiqué par la Figure III. 12- c. L'augmentation de la valeur de la perméabilité (δ) et la baisse de la valeur de la résistance (μ) en condition humide sont dues au fait que le transfert d'humidité dans ces conditions est contrôlé par une condensation capillaire des molécules de vapeur d'eau à travers le réseau poreux du matériau [UMU-14]. Cependant les perméabilités de nos composites sont proches de $1,97.10^{-11} \text{ kg.m}^{-1}.\text{s}^{-1}.\text{Pa}^{-1}$, valeur obtenue à 50% HR pour un panneau de fibres de bois et un béton cellulaire aéré [JAN-08].

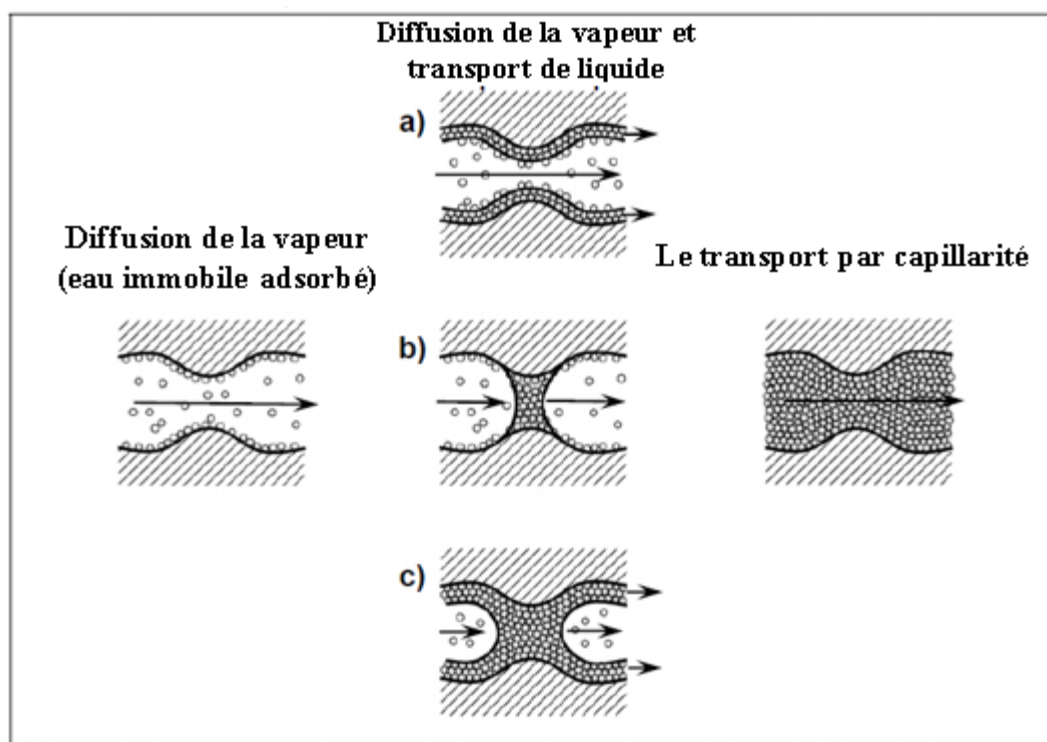


Figure III. 12: Différents mécanismes de transport de vapeur et de liquide [SLA-09]

Collet et al. [COL-13] ont étudié la perméabilité à la vapeur d'eau d'un béton de chanvre-chaux dans des conditions isothermes (23°C) pour plusieurs couples d'humidité relative (0/50, 0/23, 43/58 et 58/81) et ont trouvé une valeur supérieure ($2,5 \times 10^{-11} \text{ kg.m}^{-1}.\text{s}^{-1}.\text{Pa}^{-1}$) comparativement à nos résultats.

Il est possible d'observer que l'épaisseur équivalente d'air (S_d) du composite standard est inférieure à celle des composites d'anas traités. Nous en déduisons que les composites d'anas de lin traités réduisent la migration de la vapeur d'eau, particulièrement pour les fortes humidités relatives.

Il convient de mentionner que les meilleurs matériaux d'isolation devraient avoir une très faible perméabilité à la vapeur d'eau (un matériau non perméable présentant une perméabilité voisine de $\delta=0$ est favorable). Ainsi, l'adsorption d'eau devient négligeable, la condensation et la corrosion sont réduites au minimum dans le cas des isolants contenant des armatures métalliques [FIS-16].

IV.3.2.3. EVOLUTION DU TRANSPORT DE LA VAPEUR D'EAU EN FONCTION DE
L'HUMIDITÉ RELATIVE

A- LE FACTEUR DE RESISTANCE A LA VAPEUR D'EAU

Le facteur de résistance à la diffusion de vapeur d'eau (μ) est une grandeur sans dimension. Il représente la capacité d'un matériau à résister à la diffusion de vapeur d'eau. Pour exprimer cette capacité, il existe plusieurs méthodes. La plus utilisée en Europe, et la plus simple, est basée sur la perméabilité à la vapeur d'eau de l'air δ_a et du matériau δ , selon l'Équation 13.

$$\mu = \frac{\delta_a}{\delta} \quad \text{Eq. 13}$$

Le facteur de résistance à la vapeur d'eau peut également être exprimé sous une forme analytique suivant l'Équation 14 [JAN-09].

$$\mu = \frac{1}{a + b e^{c \cdot \varphi}} \quad \text{Eq. 14}$$

Les constantes a, b et c sont les paramètres d'ajustement du modèle calculés par la méthode des moindres carrés.

Une troisième mesure de la perméabilité à la vapeur d'eau a été déterminée à 23°C, entre 0 et 50% HR, afin de pouvoir calculer les paramètres a, b et c. L'ajustement du modèle est présenté sur la Figure III. 13 avec les valeurs expérimentales du facteur de résistance à la vapeur d'eau (μ) en fonction de l'humidité relative (HR%).

Les paramètres d'ajustement analytiques a, b et c, calculés par la méthode des moindres carrés, sont donnés dans le Tableau III. 5 pour les cinq composites d'anas de lin.

Les valeurs du facteur de résistance à la vapeur d'eau issues du modèle de Janssen et Roels [JAN-09] sont proches de celles obtenus expérimentalement pour les composites d'anas de lin bruts et traités. En effet, par exemple, pour les composites standards, la valeur de μ obtenue analytiquement et correspondant à la coupelle sèche (0/85%), soit pour une humidité relative de 42,5%, vaut 11,36, contre $11,30 \pm 0,6$ pour la valeur expérimentale. Quant à l'humidité relative élevée de 72% obtenue en utilisant la coupelle humide (50/94%), la valeur de μ obtenue expérimentalement est $9,1 \pm 0,3$ contre 9,09 obtenue analytiquement en utilisant l'équation de Janssen et Roels [JAN-09].

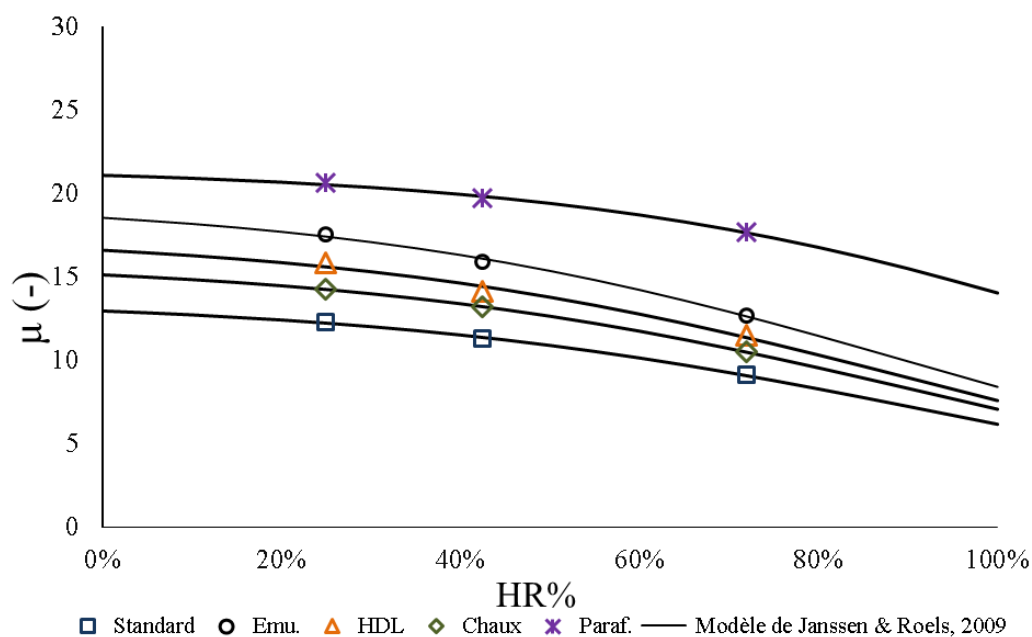


Figure III. 13: Facteur de résistance à la vapeur d'eau des composites d'anas de lin en fonction de l'humidité relative

La Figure III. 13 montre que le traitement des anas a entraîné une augmentation du facteur de résistance à la vapeur d'eau des composites. Par exemple le composite d'anas bruts présente une résistance à la vapeur d'eau égale à 11,3 comparée à celle obtenue pour les composites d'anas traités qui se situe entre 13,2 et 19,7 pour une HR de 43%. Cette augmentation de la résistance à la vapeur d'eau après traitement des anas est probablement due à un changement de morphologie des granulats lignocellulosiques après traitement [KHA-08] ou à une diminution de la porosité des composites résultants [ALM-15]. La Figure III. 13 montre également que les valeurs du facteur de résistance à la vapeur d'eau diminuent avec l'augmentation d'humidité relative. Ce phénomène est probablement lié au transport d'eau par capillarité car l'augmentation d'humidité relative conduit à la condensation d'eau dans les pores du matériau comme cela a été déjà expliqué dans la Figure III. 12.

Les valeurs de μ de nos composites, pour les trois niveaux d'humidité relative étudiés, sont proches de celles d'un béton élaboré avec du laitier de haut fourneau et des pierres à chaux ou d'un panneau de fibres de moyenne densité : 10-20. Par contre elles sont plus faibles comparées à celle d'un panneau ciment-particules de bois qui est égale à 50 [ISO/FDIS].

Tableau III. 5. Paramètres d'ajustement pour le facteur de résistance à la vapeur d'eau des composites d'anas de lin selon le modèle de Janssen et Roels

[JAN-09]

Composites	R ²	a	b	c
Standard	0,999	0,0730	0,0030	3,0900
Émulsion	0,996	0,0416	0,0096	1,8708
Huile de lin	0,997	0,0489	0,0088	2,0458
Chaux	0,996	0,0504	0,0122	1,7751
Paraffine	0,998	0,0416	0,0046	1,6471

B- LA PERMEABILITE A LA VAPEUR D'EAU

La perméabilité à la vapeur d'eau en fonction de l'humidité relative est déterminée en utilisant l'Équation 15. Cette équation est obtenue en combinant les Équations 13 et 14.

$$\delta = a + be^{c*\varphi\%} \quad \text{Eq. 15}$$

Les données expérimentales de la perméabilité à la vapeur d'eau en fonction de l'humidité relative doivent donc suivre une loi exponentielle selon l'Équation 15. La Figure III. 14 montre la variation de la perméabilité en fonction de l'humidité relative ambiante expérimentale et calculée en utilisant l'Équation 15 pour les cinq bétons d'anas. Les paramètres d'ajustement à la loi exponentielle, a, b et c sont calculés pour les différents composites par la méthode des moindres carrés et donnés dans le Tableau III. 6. Les résultats expérimentaux montrent que les perméabilités augmentent avec l'humidité relative. Le composite d'anas bruts présente une valeur de perméabilité toujours supérieure à celle des composites d'anas traités. Le composite d'anas traités par la paraffine montre une très légère augmentation de la perméabilité à la vapeur d'eau avec l'augmentation de l'humidité relative comparée à tous les autres composites. Pour 42,5% HR, ce type de composite possède une perméabilité δ égale à $1 \times 10^{-11} \text{ kg.m}^{-1}.\text{s}^{-1}.\text{Pa}^{-1}$ comparée à $1,7 \times 10^{-11}$; $1,5 \times 10^{-11}$; $1,4 \times 10^{-11}$ et $1,2 \times 10^{-11} \text{ kg.m}^{-1}.\text{s}^{-1}.\text{Pa}^{-1}$ pour les composites d'anas bruts et traités par le chaux, l'huile de lin et l'émulsion respectivement. La différence de comportement hygrique de nos composites avant et après traitement a déjà été expliquée.

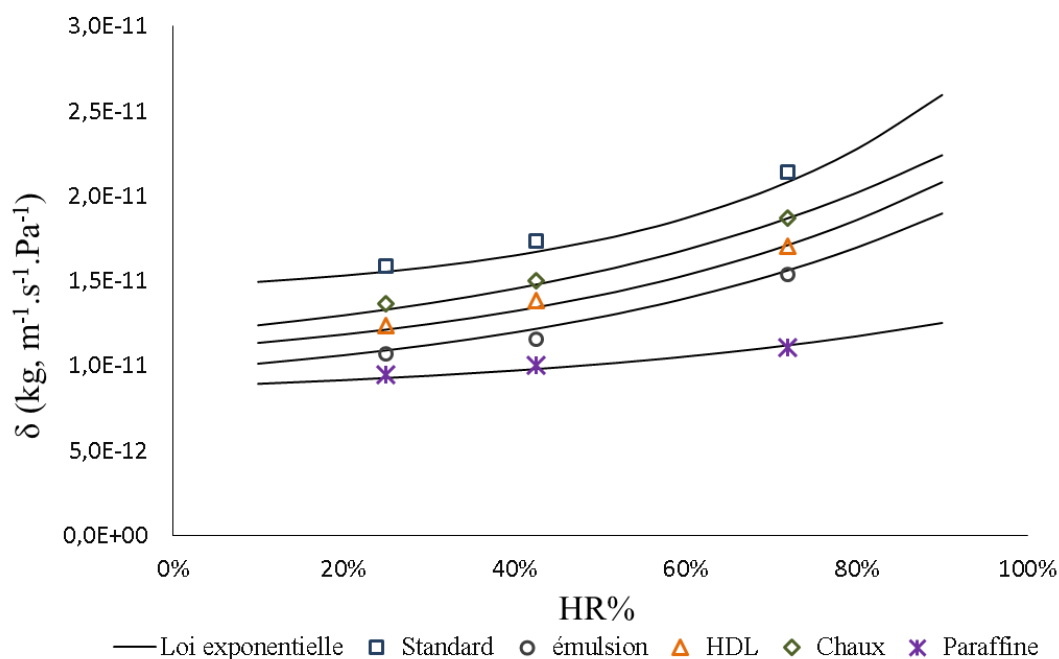


Figure III. 14 : Évolution de la perméabilité à la vapeur d'eau en fonction de l'humidité relative pour les composites d'anas bruts et traités (données expérimentales et théoriques)

La Figure III. 14 montre qu'une humidité relative élevée entraîne l'augmentation de la perméabilité à la vapeur d'eau du matériau. Cette relation peut être expliquée par un transport d'humidité macroscopique induit par la condensation capillaire [UMU-14] pour les matériaux présentant une hystérésis [ABR-09].

Tableau III. 6: Paramètres d'ajustement pour la perméabilité à la vapeur d'eau des composites d'anas de lin selon une loi exponentielle

Composites	R ²	a	b	c
Standard	0,979	1,39x10 ⁻¹¹	7,52x10 ⁻¹³	3,08
Émulsion	0,992	7,89x10 ⁻¹²	1,83x10 ⁻¹²	1,40
Huile de lin	0,985	9,29x10 ⁻¹²	1,66x10 ⁻¹²	2,15
Chaux	0,991	9,58x10 ⁻¹²	2,32x10 ⁻¹²	1,90
Paraffine	0,998	7,89x10 ⁻¹²	8,69x10 ⁻¹³	1,86

IV.3.2.4. LA DIFFUSIVITÉ ET L'EFFUSIVITÉ HYDRIQUES

La diffusivité hydrique permet d'évaluer la nature et l'intensité des transferts d'humidité dans une phase liquide et/ou gazeuse à l'échelle macroscopique du matériau.

De manière analogue à la diffusivité thermique, la diffusivité hydrique représente la vitesse de pénétration et de diffusion de la vapeur dans un matériau lorsqu'il est soumis à une variation de flux de vapeur extérieur. La diffusivité hydrique D_m ($m^2.s^{-1}$) est calculée à partir de l'équation 16 [COL-13] qui prend en compte la perméabilité à la vapeur d'eau (δ) et l'isotherme de sorption.

$$D_m = \frac{\delta P_s}{\rho \frac{\partial u}{\partial \varphi}} \quad \text{Eq. 16}$$

Où ρ ($kg.m^{-3}$) est la masse volumique apparente du matériau sec, $\partial u / \partial \varphi$ ($kg.kg^{-1}$) représente la capacité hydrique obtenue par la dérivée de la courbe de sorption, donnée par la tangente de l'isotherme de sorption du matériau et P_s est la pression saturante à la température du matériau.

$$u = \frac{w_m C_g K \varphi}{(1 - K \varphi)(1 - K \varphi + C_g K \varphi)} \quad \text{Eq. 17}$$

Le modèle de GAB (Équation 17) peut être réarrangé en une équation polynomiale pour faciliter sa dérivation [AKO-13] :

$$\frac{\varphi}{u} = \frac{K}{w_m(1/C_g - 1)} \varphi^2 + \frac{C_g - 2}{w_m C_g} \varphi + \frac{1}{w_m C_g K} \quad \text{Eq. 18}$$

Si l'on pose :

$$\alpha = \frac{K}{w_m(1/C_g - 1)} \quad \text{Eq.19}$$

$$\beta = \frac{C_g - 2}{w_m C_g} \quad \text{Eq.20}$$

$$\gamma = \frac{1}{w_m C_g K} \quad \text{Eq. 21}$$

Alors l'équation 18 s'écrit :

$$u = \frac{\varphi}{\alpha \varphi^2 + \beta \varphi + \gamma} \quad \text{Eq. 22}$$

L'équation 22 décrit les courbes de sorption des composites d'anas. La pente des tangentes ($\partial u / \partial HR$) aux courbes isothermes de sorption peut être calculée en prenant la dérivée de l'équation 22 :

$$\frac{\partial u}{\partial \varphi} = \frac{\gamma - \alpha \varphi^2}{(\alpha \varphi^2 + \beta \varphi + \gamma)^2} \quad \text{Eq. 23}$$

Remplaçant l'équation 23 dans l'équation 16, on obtient l'équation 24 qui représente la diffusivité hydrique D_m ($m^2.s^{-1}$) :

$$D_m = \frac{\delta P_s (\alpha \varphi^2 + \beta \varphi + \gamma)^2}{\rho (\gamma - \alpha \varphi^2)} \quad \text{Eq. 24}$$

Dans la partie de la sorption isotherme nous avons montré expérimentalement la relation proportionnelle entre l'humidité relative et la teneur d'eau dans les matériaux poreux. Cette relation a été confirmée par Rode et Grau [ROD-08].

L'évolution de la diffusivité hydrique en fonction de la teneur en eau peut être expliquée par la théorie de De Vries [DEV-58].

La Figure III. 15 (A) donne l'évolution de la diffusivité hydrique en fonction de l'humidité relative selon l'équation 24. Nous avons tracé également les valeurs de diffusivité en fonction des teneurs en eau dans la Figure III. 15 (B). Nous remarquons que la forme de ces courbes est en accord avec la théorie De Vries [DEV-58].

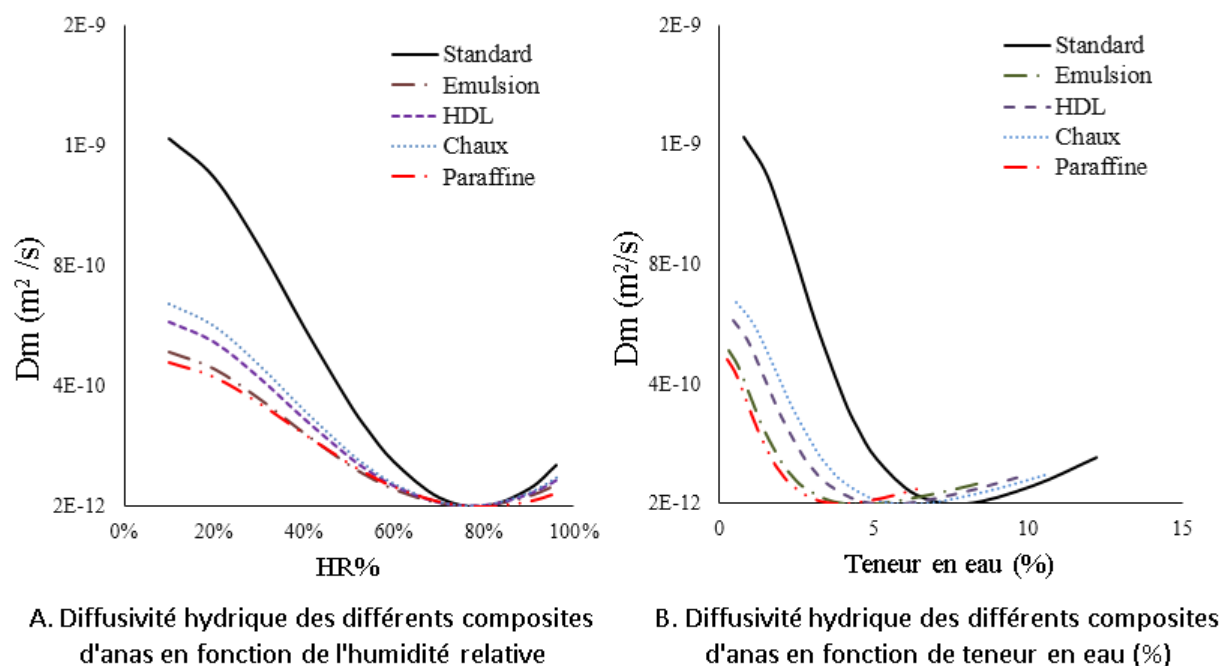


Figure III. 15 : Diffusivité hydrique des différents composites d'anas en fonction de l'humidité relative (A) et de la teneur en eau (B)

De Vries [DEV-58] a montré que l'évolution de la diffusivité hydrique en fonction de la teneur en eau dans la Figure III. 15(B) évolue suivant trois phénomènes:

- Pour une faible teneur en eau, le transfert d'humidité est dû essentiellement au transport de la vapeur (diffusion et effusion). La phase condensée existe sous la forme d'un film adsorbé ou dans des petits îlots d'eau.
- Lorsque la teneur en eau augmente, le nombre et la taille des petits îlots d'eau augmentent, la surface pour le flux de vapeur diminue et le transfert d'humidité se produit par des mécanismes de condensation et d'évaporation au niveau des interfaces de vapeur-liquide.
- Puis, pour une teneur en eau élevée, le transfert de liquide est prédominant.

Dans la Figure III. 15 (A et B), la première vague observée correspond à la diffusivité hydrique sous transfert de vapeur. Pour les plus basses teneurs en eau, la diffusivité d'humidité du composite d'anas bruts est la plus élevée ($1,2 \times 10^{-9} m^2.s^{-1}$). Les composites d'anas traités par l'émulsion, l'huile de lin, la chaux et la paraffine montrent une variation similaire de la diffusivité hydrique mais avec des valeurs plus faibles.

Dans cette première partie, pour une humidité relative égale à 10%, la diffusivité hydrique

vaut $5,1 \times 10^{-10}$, $6,1 \times 10^{-10}$, $6,7 \times 10^{-10}$ et $4,8 \times 10^{-10} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$, respectivement. Dans ce cas, le transfert d'humidité se produit par une diffusion et une effusion de la phase vapeur. La diffusivité d'humidité de tous les composites d'anas atteint une valeur minimale pour une humidité relative de 80%. Du fait de la condensation capillaire, le transfert d'humidité se produit par des mécanismes de condensation et d'évaporation au niveau des interfaces de vapeur-liquide. Enfin au-delà de $HR=80\%$, la diffusivité d'humidité augmente pour les cinq types de composites car le transfert de liquide est prédominant lorsque l'humidité relative est élevée. Enfin, pour les composites d'anas traités, les courbes de sorption étant très proches les unes des autres, la différence de diffusivité hydrique est principalement due à la différence de perméabilité à l'humidité pour une HR élevée [COL-13]. Un même comportement a été observé pour des bio composites par Tran Le [TRA-10], Umurigirwa et al. [UMU-14] et Collet, et al. [COL-13].

L'effusivité hydrique représente la capacité à adsorber et désorber l'humidité à la surface d'un matériau. La capacité d'effusion de l'humidité est calculée à partir des essais de sorption grâce à l'équation 25 [ROD-07]. L'évolution de l'effusivité hydrique en fonction de l'humidité relative est donnée dans la Figure III. 16 pour les cinq composites d'anas de lin.

$$E_m = \sqrt{\frac{\delta \rho \frac{\partial u}{\partial \phi}}{P_s}} \quad \text{Eq. 25}$$

Où E_m ($\text{kg} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{Pa}^{-1} \cdot \text{s}^{-1/2}$) représente l'effusivité hydrique du matériau. Nous avons calculé l'effusivité hydrique des composites d'anas en fonction de l'humidité relative en supposant que leur perméabilité à la vapeur est constante.

La Figure III. 16 montre que l'effusivité hydrique des composites d'anas bruts est supérieure à celle des composites d'anas traités. Ce résultat est dû au fait que les anas bruts adsorbent facilement les molécules d'eau grâce à leurs porosité et composition chimique. La relation non linéaire entre l'effusivité hydrique et l'humidité relative a également été observée par Rode et al. [ROD-07].

L'effusivité hydrique augmente peu pour de faibles humidités relatives (jusqu'à 40%) quel que soit le composite considéré. À titre d'exemple l'effusivité hydrique du composite standard est égale à $5,8 \times 10^{-7}$; $6,3 \times 10^{-7}$ et $6,7 \times 10^{-7} \text{ kg/m}^2 \cdot \text{Pa} \cdot \text{s}^{1/2}$ pour des humidités relatives de 20, 54 et 70% respectivement, alors que pour les composite d'anas traités par la paraffine elle

vaut $4,5 \times 10^{-7}$; $4,8 \times 10^{-7}$ et $4,9 \times 10^{-7} \text{ kg/m}^2 \cdot \text{Pa} \cdot \text{s}^{1/2}$. Donc nous pouvons dire que les composites d'anas traités ont des valeurs d'effusivité hydrique moins élevées comparés à celles du composite d'anas bruts. Ceci est lié à l'efficacité du transfert d'humidité. Autrement dit la capacité à adsorber et désorber à la surface des composites d'anas traités est plus importante que celle du composite standard.

L'effusivité hydrique est liée à la perméabilité de la vapeur d'eau, à la dérivée de l'isotherme de sorption et à la masse volumique de matériau (équation 25). Par conséquent, il est difficile de donner une explication certaine à propos de la raison de l'amélioration des effusivités en dépit de l'augmentation des masses volumiques apparentes des composites en cas d'utilisation d'anas traités.

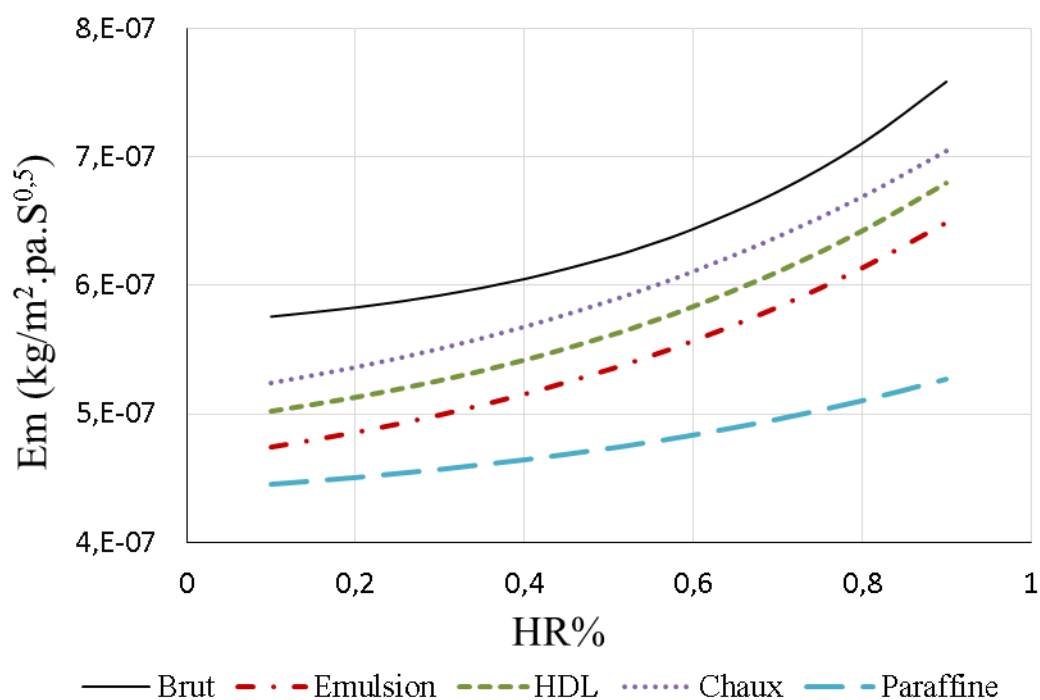


Figure III. 16 : Effusivité hydrique en fonction de l'humidité relative pour les différents composites

IV.3.3. LA CAPACITÉ TAMPON HYDRIQUE

La capacité tampon hydrique (MBV) est un facteur important qui permet d'évaluer le confort dans un bâtiment [ROE-05]. Pour améliorer le confort, il est préférable d'utiliser des matériaux poreux dans l'enveloppe parce qu'ils permettent de réduire la consommation d'énergie en contribuant à la stabilisation du niveau d'humidité relative de l'air ambiant. La perfor-

mance de la capacité hydrique d'un local et la capacité de régulation hydrique d'un matériau dépendent des surfaces effectives exposées, du taux de ventilation, des sources d'humidité internes et des conditions climatiques extérieures [TRA-10-2].

La mesure des isothermes de sorption et de la perméabilité à la vapeur d'eau est longue et fastidieuse. Aussi la mise en place d'un essai dynamique supplémentaire permettant d'évaluer la mémoire de la capacité tampon d'humidité des matériaux, est nécessaire. En effet la connaissance de la capacité tampon hydrique des matériaux permettrait d'envisager des économies d'énergie tout en maintenant la qualité de l'air et le confort hygrothermique.

Le projet NORDTEST [ROD-05] a proposé un protocole simple afin d'évaluer la valeur du tampon hydrique (MBV) pour les matériaux qui sont exposés à des ambiances intérieures (les parois, les meubles etc.) dans des conditions diurnes.

On distingue ici deux notions différentes : la valeur idéale de la capacité tampon hydrique qui néglige la résistance de la lame d'air à la surface du matériau ($MBV_{idéal}$) et la valeur réelle qui prend en compte cette dernière ($MBV_{réelle}$).

La $MBV_{idéal}$ est la valeur limite de la $MBV_{réelle}$ lorsque le coefficient de convection massique est infini. Par conséquent, la $MBV_{idéal}$ devient une propriété intrinsèque du matériau [ROD-05] et elle peut être utilisée pour classer les matériaux selon leur capacité tampon hydrique. Afin d'évaluer la capacité tampon hydrique réelle ($MBV_{réelle}$) exprimée en ($g/m^2.\%HR$), nous avons utilisé l'équation 26 [ROD-05] :

$$MBV_{réelle} = \frac{\Delta m}{A(HR_{haute} - HR_{basse})} \quad Eq. 26$$

Où, Δm (g) représente la variation de la masse du matériau au cours de la phase d'adsorption/désorption, A (m^2) représente la surface de l'échantillon qui est en contact avec l'air, HR_{haute} et HR_{basse} représentent respectivement l'humidité relative élevée (75% HR) et l'humidité relative faible (33% HR).

Cette valeur réelle est à comparer à une valeur idéale ($MBV_{idéal}$).

Dans ce travail, $HR_{haute}=75\%$ et $HR_{basse}=33\%$ donc la variation d'humidité relative quotidienne ΔHR est constante et égale à 42%. La $MBV_{réelle}$ peut donc être déterminée en divisant la variation de masse par la valeur de ΔHR . L'équation 27 a été utilisée pour calculer la $MBV_{idéal}$ [ROD-05].

$$MBV_{idéal} \approx 0.00568 E_m P_s \sqrt{t_p} \quad Eq. 27$$

Où E_m ($\text{kg.m}^{-2}.\text{Pa}^{-1}.\text{s}^{-1/2}$) est l'effusivité hydrique du matériau, P_s (Pa) la pression de saturation et t_p représente la période du temps de la variation relative d'humidité par étapes (24 h = 86400 s).

Sur la base des résultats expérimentaux, les valeurs MBV ont été calculées comme suit :

- MBV_{ads} : capacité tampon hydrique calculée sur la base du gain de masse pendant l'adsorption,
- MBV_{des} : capacité tampon hydrique calculée sur la base de la perte de masse lors de la désorption,
- MBV : moyenne des capacités tampons hydriques obtenues en adsorption et en désorption.

La Figure III. 17 montre la variation de la masse en fonction du temps pour les composites d'anas traités et bruts. Un cycle dure 24h et se compose d'une phase d'adsorption de 8h à 75% HR et d'une phase de désorption de 16h à 33% HR pour des échantillons de 4 ± 0.2 cm d'épaisseur. La variation de la masse entre l'adsorption et la désorption évolue en fonction du nombre de cycles ce qui conduit à une allure descendante à la courbe. La différence de masse durant les cycles est due aux conditions initiales qui ont été utilisées pour préparer les échantillons avant de lancer les essais. Ce comportement est cohérent avec celui observé par Collet et al. [COL-13] pour un béton de chanvre projeté. Les MBV_{ads} et MBV_{des} , calculées à partir des données de la Figure III. 17, sont représentées en Figure III. 18 en fonction du nombre de cycles. Les valeurs de MBV se stabilisent à partir de quatre cycles. La $MBV_{réelle}$ est calculée en faisant la moyenne des trois dernières mesures pour lesquelles la variation est inférieure à 5% (du cycle 4 au cycle 6).

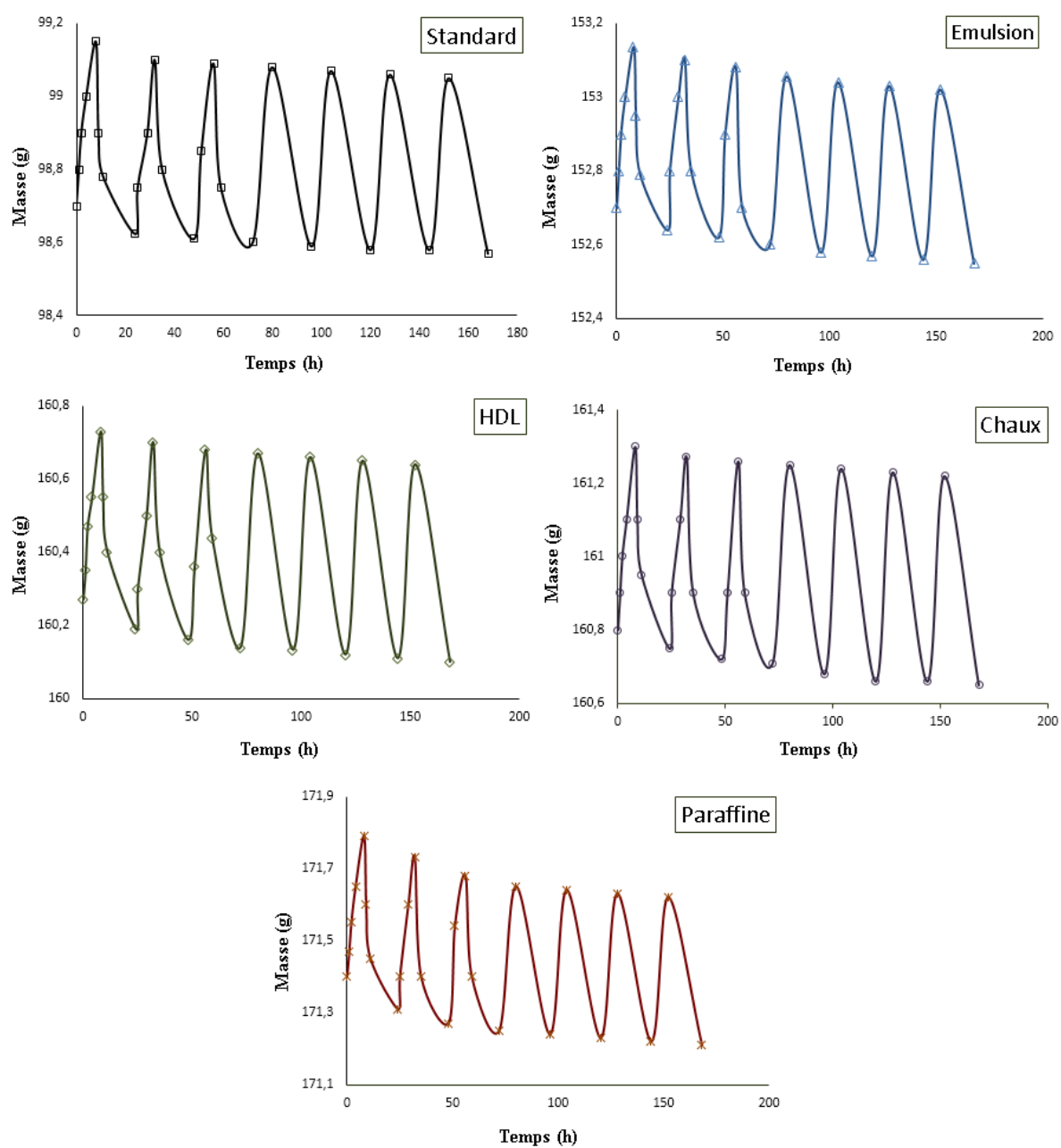


Figure III. 17 : Cinétiques de sorption des différents composites des anas de lin

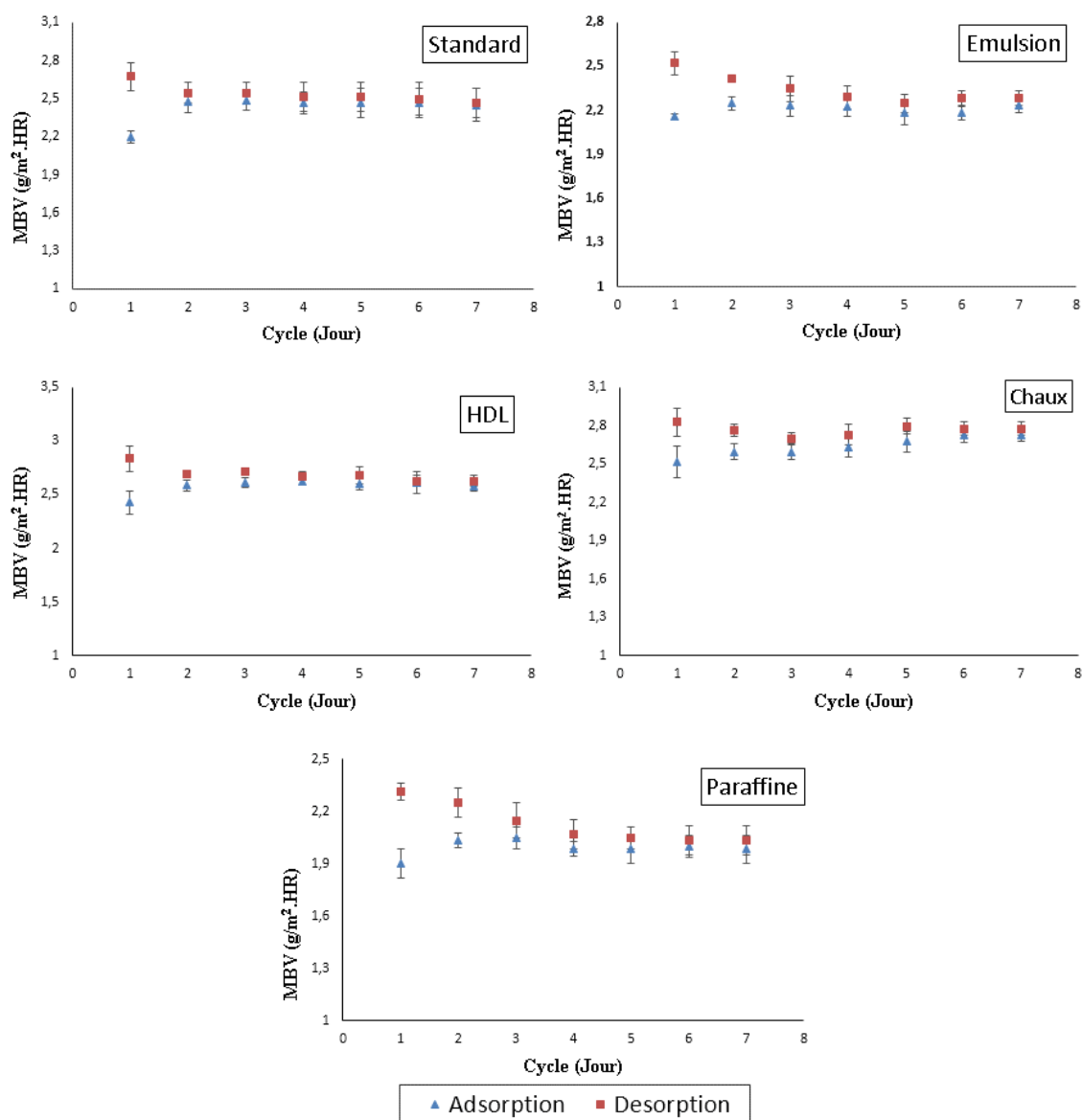


Figure III. 18 : MBV en adsorption et désorption des composites d'anas de lin bruts et traités en fonction du nombre de cycles

La Figure III. 19 donne les différentes MBV moyennes de chaque échantillon de composites d'anas. Ces résultats montrent que le traitement des anas modifie peu la capacité du matériau à fixer ou rejeter l'humidité relative. Les MBV des composites d'anas traités par l'émulsion et la paraffine sont inférieures à celles du standard et proches des valeurs données par Collet et al. [COL-13] pour les bétons de chaux-chanvre. Les MBV des composites d'anas bruts et traités par l'huile de lin et la chaux ne sont pas significativement différentes et proches des valeurs données par Umurisirwa et al. [UMU-14] pour un agro-composite à base de chènevottes et d'amidon de blé. Les MBV obtenues dans cette étude pour les composites d'anas sont

proches de la MBV obtenue par Rahim et al. [RAH-15] pour un béton lin-chaux ($2,75 \text{ g}/(\text{m}^2 \cdot \% \text{ HR})$). Lors de la comparaison des résultats, l'épaisseur des échantillons n'a pas été prise en compte, mais car il ne s'agit pas un facteur limitant selon McGregor et al. [MCG-14]. Enfin, selon la classification du projet NORDTEST, les matériaux élaborés apparaissent comme d'excellents régulateurs d'humidité car ils présentent une MBV supérieure à $2 \text{ g}/(\text{m}^2 \cdot \% \text{ HR})$. D'après les résultats affichés dans la Figure III. 19, les composites d'anas de lin bruts présentent un coefficient tampon hydrique idéal égal à $2,95 \text{ g}/(\text{m}^2 \cdot \% \text{ HR})$ contre $2,6$; $3,1$; $3,3$ et $2,3 \text{ g}/(\text{m}^2 \cdot \% \text{ HR})$ pour les composites d'anas traités par l'émulsion, l'huile de lin, la chaux et la paraffine respectivement. Ces valeurs sont supérieures aux valeurs réelles égales à 18% pour le composite standard et comprises entre 14 et 20% pour les composites d'anas traités.

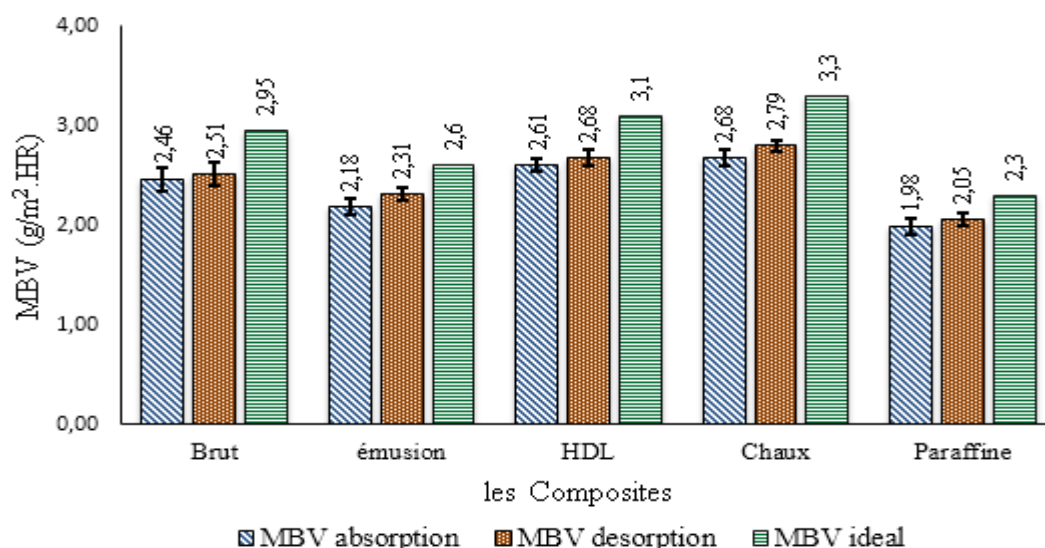


Figure III. 19: Comparaison entre les résultats expérimentaux et analytiques des MBV pour les composites d'anas de lin bruts et traités

Arfvidsson [ARF-99] définit la profondeur de pénétration ($d_{p,1\%}$) de la vapeur d'eau dans un matériau poreux comme étant la profondeur à laquelle l'amplitude de la variation de la teneur en humidité représente seulement 1% de la variation de la surface du matériau. Pour la variation sinusoïdale de la teneur en humidité sur la surface du matériau, la profondeur de pénétration est donnée par l'équation 28 [ROD-05]:

$$d_{p,1\%} = 4,61 \sqrt{\frac{D_m t_p}{\pi}} = 2,6 \sqrt{D_m t_p} \quad \text{Eq. 28}$$

Avec $d_{p,1\%}$ la profondeur de pénétration (cm), D_m la diffusivité hydrique du matériau ($\text{m}^2.\text{s}^{-1}$), et t_p la période du temps (s). Cependant, la valeur de l'humidité tampon expérimentale est égale à la valeur de l'humidité tampon idéale dans le cas où le matériau est homogène et son épaisseur est égale ou supérieure à la profondeur de pénétration du matériau [ROD-05].

Dans le protocole NORDTEST, l'humidité relative à la limite du matériau suit une onde carrée et non sinusoïdale. Ainsi, cette méthode de calcul de la profondeur de pénétration ne donne qu'une approximation. La profondeur de pénétration de l'humidité calculée à partir de l'équation 28 est plus élevée pour le composite standard (2,17 cm) que pour les autres composites (1,59 à 1,69 cm). Même si cette valeur est une approximation, il nous permet d'estimer l'épaisseur nécessaire pour bénéficier de l'effet du tampon hydrique. Les épaisseurs calculées étant inférieures à l'épaisseur des échantillons, ceci est en accord avec les résultats présentés dans la Figure III. 19 et nous permet de valider une fois de plus les résultats présentés ici. La profondeur de pénétration théorique est basée sur les données de l'état d'équilibre et la perméabilité à la vapeur d'eau. Il est démontré que l'utilisation des données de l'état d'équilibre pour caractériser le comportement dynamique entrave la fiabilité du calcul. En outre, une seule valeur est prise en compte pour la perméabilité à la vapeur. Donc, la profondeur de pénétration calculée est une approximation et la variation de MBV avec l'épaisseur de l'échantillon doit être due au fait que la profondeur de pénétration réelle est supérieure à celle calculée. Par ailleurs, les MBV mesurées sont nettement inférieures aux MBV_{idéale} présentées dans la Figure III. 19. Le Tableau III. 7 montre les propriétés hydriques des composites d'anas ainsi que les valeurs de la profondeur de pénétration pour une valeur d'humidité relative de 54% (moyenne entre 33 et 75%).

Tableau III. 7: Propriétés de transport et de rétention de l'humidité des composites d'anas

Propriétés	Standard	Émulsion	Huile de lin	Chaux	Paraffine
δ ($\text{kg}.\text{m}^{-1}.\text{s}^{-1}.\text{Pa}^{-1}$) ($\times 10^{11}$)	1,80	1,18	1,47	1,62	1,03
E_m ($\text{kg}.\text{m}^{-2}.\text{Pa}^{-1}.\text{s}^{-1/2}$) ($\times 10^7$)	6,30	5,54	6,59	7,07	4,93
$d_{p,1\%}$ (cm)	2,17	1,63	1,69	1,63	1,59

III.4. CONCLUSION

La détermination du comportement hygrique des nouvelles générations de composites ligno-cellulosiques (composites d'anas de lin bruts et traités) est d'une grande importance pour évaluer leur efficacité et aptitude à être utilisés comme isolants en présence de vapeur d'eau. Les résultats obtenus nous permettent de faire plusieurs constatations :

1- Les courbes d'isothermes de sorption montrent que le traitement des anas de lin accentue les phénomènes d'hystérésis et diminue la capacité de sorption d'humidité du matériau. Comparés aux composites standards, la teneur en humidité des composites d'anas traités est inférieure. Nos résultats montrent que les composites d'anas présentent une grande capacité de sorption d'humidité. Les résultats ont montré que les courbes de sorption des cinq matériaux présentent une allure de type II et III en raison de leur microstructure similaire et que le modèle de GAB en donne une bonne approximation.

2- La perméabilité à la vapeur d'eau des composites d'anas de lin (traités ou non) a été mesurée selon les tests de la coupelle sèche et humide. Une analyse comparative des composites d'anas de lin bruts et traités montre que les premiers présentent une perméabilité à la vapeur d'eau plus élevée. Les matériaux sont caractérisés par une faible capacité de diffusion et d'effusion à la vapeur d'eau. Cependant le composite standard est un peu plus perméable à la vapeur d'eau que les composites d'anas traités. La vapeur d'eau se déplace de la zone à forte concentration vers la zone à faible concentration à travers le matériau. Ceci est dû probablement aux nouvelles liaisons qui se créent après le traitement des anas de lin et qui permettent aux molécules d'eau de se fixer plus facilement à leur surface.

3- L'essai de capacité tampon hydrique a démontré que les valeurs de MBV mesurées pour les composites d'anas de lin sont comprises entre 2 et 2,5 g/(m².%HR) pour une épaisseur de 4 cm. Les composites élaborés présentent une excellente performance et peuvent être utilisés pour réguler l'humidité relative intérieure selon la classification proposée par le projet NORDTEST. Il a été démontré aussi que le traitement des anas de lin a une influence sur le comportement hygrique de composites d'anas. Le modèle analytique a prouvé un très bon accord avec les résultats expérimentaux.

Ces résultats montrent également que le matériau contenant des anas de lin présente une excellente capacité régulatrice de l'humidité relative de l'air ambiant. En effet, le composite étant hydrophile, il est capable d'adsorber de l'eau issue de l'atmosphère ambiante.

4- La présente étude fournit un ensemble de données expérimentales qui peut être utilisé dans les modèles via un logiciel hygrothermique pour explorer l'adéquation de ces matériaux pour

différents types d'isolants et conditions climatiques.

Une prise de conscience accrue de l'environnement incite à utiliser des matériaux de construction écologiques et durables en termes de réduction de l'énergie et des matières premières. Par conséquent, les matériaux d'origine biologique ou comportant des ressources biologiques sont de plus en plus recommandés.

La modélisation numérique réalisée a montré l'importance de la prise en compte du phénomène d'hystérésis. La réalisation d'essais sur une plage d'humidité et de température plus large pourrait permettre de mieux connaître leur effet sur le comportement du matériau.

CHAPITRE IV :
COMPORTEMENT DES COMPOSITES D'ANAS DE LIN À
LA LIXIVIATION

IV.1 INTRODUCTION

La lixiviation au sens littéral consiste en l'extraction d'un ou plusieurs éléments sous l'action d'un solvant. La lixiviation est toute opération consistant à soumettre une matrice (solide, pâteuse, pulvérulente, etc.) à l'action d'un solvant, en général de l'eau. Le lixiviat représente l'effluent aqueux rejeté dans le milieu naturel par une décharge. La solution obtenue après lixiviation d'un déchet ou d'un matériau au laboratoire est appelée un « éluat ». L'objectif général des essais de lixiviation est de quantifier la mobilité des espèces chimiques (polluantes ou non) présentes dans des matrices solides (déchets ou matériaux à base de déchets par exemple) dans un lixiviant donné.

La lixiviation est l'une des techniques efficaces permettant d'identifier les déchets rejetés dans l'environnement. Le phénomène de lixiviation dans le milieu naturel est un processus complexe englobant des mécanismes réactionnels biologiques et géochimiques auxquels se trouvent associés des aspects spécifiques liés à la santé des populations humaines et animales (dissolution puis transfert de polluants vers le monde vivant en relation avec les notions de toxicité et d'écotoxicité).

Le but de ce chapitre est d'évaluer l'effet de l'incorporation d'anas de lin, bruts ou traités, dans une matrice cimentaire sur les composés relargués par les composites élaborés après démolition ou déconstruction. Il sera alors possible de connaître l'effet des éco-composites sur l'environnement. Par ailleurs, afin d'anticiper la fin de vie, il est également important d'identifier le devenir du matériau. Le plus souvent les déchets de construction sont mis en décharge où ils se trouvent en contact avec le sol et soumis aux conditions climatiques.

L'impact de l'environnement sur ces éco-matériaux est étudié par exposition des échantillons à différentes conditions environnementales. En effet, les échantillons peuvent être soumis à des variations de leur environnement pouvant être agressives vis à vis de leur structure chimique et morphologique. Il est donc important de connaître et de comprendre l'évolution des propriétés de ces éco-matériaux dans de telles conditions. Trois variables sont utilisées dans cette étude pour évaluer le comportement en lixiviation des composites : le pH, le temps et la taille d'échantillon.

L'environnement va donc agir sur le matériau et inversement.

IV.2 METHODES EXPERIMENTALES

IV.2.1 TEST DE DEPENDANCE AU PH

L'objectif de ce test est de voir en condition réelle l'effet des pluies acides sur nos composites et plus particulièrement d'identifier les constituants relargués en milieu acide.

L'eau de pluie se trouve normalement à un pH de 5,6. Lorsque son pH descend en dessous de 5,6, elle est considérée comme acide [MEN-04] [EPA-16]. Le pH des pluies acides est différent selon la zone géographique et est étroitement lié aux activités industrielles. Les pluies acides dans une zone industrielle ont un pH pouvant atteindre environ 2,6 [EPA-16].

Al-Mohamadawi et al. [ALM-16-2] ont montré que l'exposition des échantillons à différentes conditions vise à reproduire les environnements rencontrés en service ou en fin de vie. Cela a permis d'évaluer la durabilité dans des conditions extérieures et voir l'impact de ces éco-matériaux sur l'environnement.

Dans cette étude les échantillons de composites sont soumis à une série de tests de lixiviation, accélérée par l'effet d'agitation à 200 tr/min, en utilisant l'acide nitrique comme agent de lixiviation simulant une pluie acide. Afin de couvrir une gamme de pH de pluies acides, trois concentrations d'éluant sont préparées à pH 2,0 ; 4,2 et 5,6 [CHE-13] [FAN-10] [DU-14].

Pour déterminer l'influence du pH sur le comportement à la lixiviation de nos composites et connaître leur capacité de neutralisation acide, nous avons utilisé la norme NF EN 14429 [NF EN 15] avec quelques modifications portant sur la taille de l'échantillon et les valeurs de pH utilisées. Nous avons broyé les échantillons afin d'avoir 95% des morceaux ayant une taille inférieure à 10 mm contre 1 mm dans la norme. Nous avons élevé le seuil de dimension du broyage pour éviter de trop casser les granulats lignocellulosiques.

Ces tests présentent deux principaux objectifs :

Déterminer la capacité de neutralisation acide du composite en évaluant le pH du milieu qui le contient en fonction de la quantité d'acide ajoutée (exprimée en meq d'H⁺/g de matière sèche).

Obtenir des courbes de disponibilité des cations et des anions (polluants) relargués en fonction du pH ou de la quantité d'acide ajoutée, et, ainsi des informations sur la résistance du matériau face à une agression extérieure acide.

Dans une étape préliminaire, nous avons réalisé la titration acide de nos matériaux afin de déterminer les équivalents d'acide nécessaires pour atteindre les différentes valeurs de pH recherchées. Le dispositif expérimental pour la titration est présenté en Figure IV. 1. La courbe de titrage représente le nombre de milliéquivalents de protons H⁺ par gramme de ma-

tière sèche du matériau. Il est ainsi possible par lecture graphique de déterminer le nombre d'équivalents d'acide qu'il est nécessaire d'ajouter pour un gramme de matériau sec afin d'obtenir une valeur de pH donnée [NF EN 15]. Le test de capacité de neutralisation acide a été réalisé sur les composites d'anas bruts et traités à un ratio L/S de 10.

L'interprétation de ces résultats se fait à l'aide de courbes représentant le pH à l'équilibre (obtenu au bout de 48 h) en fonction des quantités d'acide nitrique ajoutées durant les essais. L'évolution du pH en fonction de la quantité d'acide ajoutée permet d'accéder à la capacité de neutralisation acide du matériau et donc à sa capacité à résister aux agressions chimiques acides. Les quantités d'acide ajoutées sont exprimées en milliéquivalents H^+/g de matière sèche (meq H^+/g de MS).

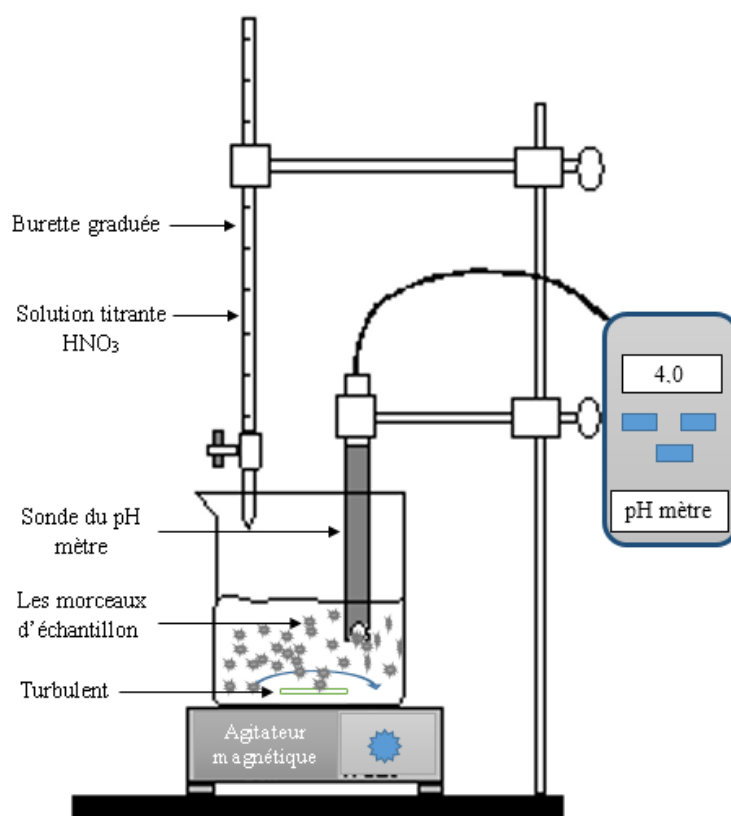


Figure IV. 1. Dispositif expérimental pour la titration.

Après avoir placé une quantité de 75 g de notre composite dans un b cher contenant un volume de 750 ml d'eau d min ralis e, la quantit  n cessaire d'acide, d termin e   partir de l' tape pr liminaire de titration, a  t  ajout e pour obtenir la valeur de pH recherch e. L'ajout de l'acide doit  tre r alis  sous agitation continue   200 tr/min, en trois  tapes successives (1/3 de la quantit  de solution acide   chaque fois). Le premier tiers (en volume) de lixiviant est

ajouté à $t=0$, le deuxième tiers à $t+30$ min et le troisième tiers à $t+2$ h pour atteindre le pH visé. Nous avons effectué une agitation continue pendant 48h car, selon la norme, il s'agit du temps nécessaire pour atteindre la condition d'équilibre pour la majorité des constituants issus des déchets. Le pH est mesuré à $t+48$ h. À l'issue de l'essai, les éluats sont séparés de la phase solide, constituée par les morceaux de matériaux, par filtration à travers un filtre de 45 μm , pour ensuite les analyser par chromatographie ionique.

IV.2.2. TEST DE PERCOLATION

Cet essai est conçu pour fournir la répartition liquide-solide des constituants (toxiques ou polluants) d'un matériau solide poreux monolithique ou massif en fonction du rapport liquide-solide L/S (volume d'élution/masse du matériau) dans des conditions précises de percolation.

Le matériau solide, placé dans un récipient ouvert, est traversé par le percolant à faible débit. La solution est introduite par un mode de pompage à flux ascendant ou descendant.

Selon le sens d'introduction du lixiviant, on distingue plusieurs modes de percolation :

- le mode axial (avec percolation ascendante ou descendante) ;
- le mode radial (convergent ou divergent) ;

Un essai de percolation, utilisé pour l'étude d'altérabilité des roches, a été adapté pour pouvoir étudier le relargage de matériaux à matrice cimentaire (NF CEN/TS 14405 de juillet 2005) [NFC-05]. Nous avons choisi le mode axial avec percolation descendante pour simuler la pluie. Les concentrations d'éluât et les libérations massives cumulatives de constituants de préoccupation potentielle sont représentées en fonction cumulative de L/S. Ce test a été utilisé par plusieurs auteurs [TRI-10] [VAN-01] [BEN-05]. Les interrelations entre l'essai de l'influence au pH et le test de percolation sont très utiles afin de connaître le comportement à la lixiviation sous une large gamme de conditions d'exposition.

Le système, conçu pour alimenter le percolant à faible débit, est présenté sur la Figure IV. 2. Ce dispositif expérimental est composé d'un réservoir en plastique fournissant l'eau nécessaire à la percolation des échantillons grâce à la pression hydrostatique. Cette dernière est utilisée étant donnée la perméabilité élevée du matériau liée à sa structure poreuse. De plus elle permet de réduire le risque d'endommager la cellule et par suite l'échantillon. Le débit de l'eau (percolant) injectée est contrôlé par des valves.

Une cellule en thermoplastique est moulée autour de l'éprouvette afin d'assurer l'absence d'espace entre cette dernière et la cellule, et éviter ainsi l'utilisation de résine pouvant contaminer l'éluât. Le passage du percolant à travers l'éprouvette, et non pas par sa surface externe, est vérifié visuellement. L'éluât est collecté dans un flacon positionné sous la cellule.

Le fluide percolant est de l'eau déminéralisée (pH=7,6). La hauteur du réservoir d'eau et l'ouverture des valves sont choisies pour obtenir un rapport L/S de 10 L/kg avec un faible débit (4,16 mL/h) en 10 jours [TRI-10]. Les éprouvettes testées sont de la forme parallélépipède (40x40x160 mm³) et âgées de 5 à 7 mois. L'essai est fait à température ambiante.

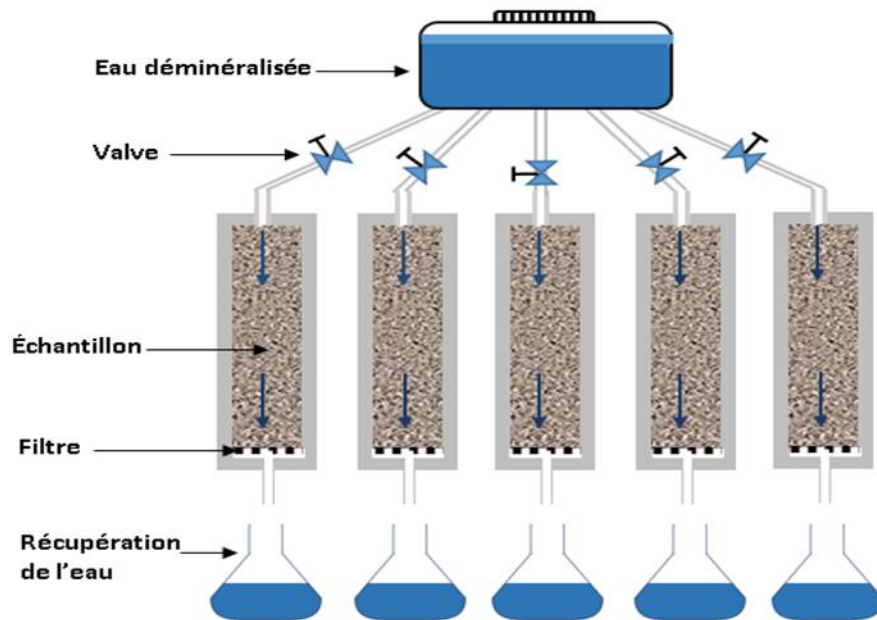


Figure IV. 2. Schéma du système de percolation en mode axial descendant

Il est nécessaire de saturer les éprouvettes avant de réaliser le test afin d'établir les ponts de percolation entre les deux faces supérieure et inférieure de celle-ci. Ceci permet d'éviter de faire traverser le percolant exclusivement par certains chemins préférentiels, d'homogénéiser l'écoulement et de remplir l'ensemble de la structure poreuse du matériau avec du percolant. L'éluât est recueilli au bout de 60, 120, 180 et 240 h dans des flacons et analysé par chromatographie ionique. Cette technique va nous permettre de déterminer les teneurs en ions calcium et sodium percolés. Les résultats sont présentés en mg/L ou µg/L puis sont tracés en fonction du temps.

Le suivi cinétique permet d'estimer l'âge de la matière. En effet, si des composants importants comme le calcium et/ou le sodium issus du matériau continuent à percoler en fonction du temps, il est donc possible d'évaluer sa fin de vie [CAR-96] [CAR-97] [YAN-12] [ADI-13].

IV.2.3. TEST DE LIXIVIATION

L'essai de lixiviation est réalisé sur des matériaux granulaires selon la norme NF EN 12457, (1-4), Décembre 2002 [NF EN 02]. Il s'agit d'un essai statique de conformité. L'hypothèse faite suppose que l'équilibre ou le quasi-équilibre est atteint entre les phases liquide et solide pendant la durée de l'essai.

L'essai est réalisé selon la norme mentionnée précédemment avec un rapport liquide/solide de 10 L/kg. En effet une quantité de 75 g de chaque éco-matériau est broyé à une granulométrie inférieure à 10 mm, puis mise en contact avec 750 mL d'eau déminéralisée de pH 7,6 dans un flacon en verre de 1 litre, fermé et maintenu sous agitation continue pendant 24h à température ambiante (Figure IV. 3).

La phase liquide est filtrée sur une membrane de 45 μm . Le résidu solide est éliminé et le lixiviat récupéré est analysé par chromatographie ionique. Les concentrations des constituants sont exprimées en "mg/L". Le rapport entre la quantité de constituant lixivié et la masse totale de l'échantillon, exprimé en "mg/kg" de matière sèche est utilisé pour exprimer les résultats finaux. Le pH, la turbidité et la conductivité ont été mesurés directement à la fin de l'essai afin d'éviter la neutralisation de la solution en raison de l'exposition au dioxyde de carbone, en particulier lorsque les matières alcalines sont testées.

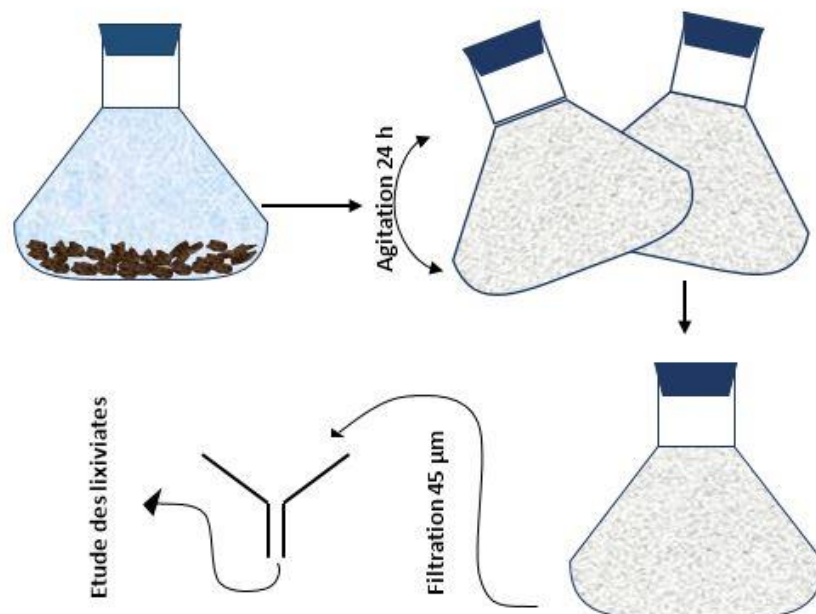


Figure IV. 3. Étapes de réalisation du test de lixiviation

IV.3. CARACTERISATION ANALYTIQUE

IV.3.1. MESURE DE LA TURBIDITE, DE LA CONDUCTIVITE ELECTRIQUE ET DU pH

La turbidité est un indice de la présence de particules en suspension dans l'eau. Elle est déterminée à l'aide d'une néphélémétrie. Cet appareil mesure la lumière dispersée par les particules en suspension avec un angle de 90° par rapport au faisceau de lumière incident. Le domaine d'application se situe entre 0,1 et 1 000 unités de turbidité néphélémétrie (UTN) mais peut être prolongé jusqu'à 7 500 UTN en modifiant l'étalonnage. L'appareil utilisé dans cette étude était un turbidimètre de la marque HACH, modèle 2100. Le volume d'éluat testé est d'environ 30 mL. Les cuvettes doivent être propres et exemptes de dépôt, tache, buée ou marques susceptibles d'affecter le faisceau lumineux. Après usage, les cuvettes sont rincées à plusieurs reprises avec de l'eau chaude et déminéralisée. Elles sont ensuite placées dans un support de façon à permettre à l'eau de s'écouler et au tube de sécher. Les résultats, exprimés en UTN (unité de turbidité néphélémétrie), sont affichés directement par l'appareil.

Pour mesurer la conductivité électrique des solutions, nous avons utilisé un conductimètre portable (HANNA-Instrument, modèle EC215). La conductivité électrique d'une solution est la mesure de sa capacité à transporter le courant électrique. Elle est généralement exprimée en le Siemens (S) par mètre ($S=\Omega^{-1}$). La conductivité permet de déterminer l'ensemble des cations et anions présents dans une solution en détectant la quantité des ions liés contenue dans cette solution. La conductivité électrique caractérise l'aptitude d'une solution à laisser les charges électriques se déplacer librement et donc permettre le passage d'un courant électrique. Le transport de l'électricité est effectué par la migration des ions positifs et négatifs à travers le liquide.

Enfin, un pH-mètre de précision $\pm 0,05$ unités à 25°C et une balance à $\pm 0,01$ g ont été utilisés.

IV.3.2. CHROMATOGRAPHIE IONIQUE

Les éluats provenant des tests de dépendance au pH, de percolation et de lixiviation ont été analysés par chromatographie ionique en utilisant l'appareil Ion Chromatographe (Metrohm 883 Basic IC plus Annexe II) pour déterminer les quantités de cations ou d'anions présentes. La chromatographie ionique (CI) est une technique qui ressemble à la chromatographie liquide (HPLC). La phase mobile est constituée par un milieu aqueux ionique et la phase stationnaire par un solide qui joue le rôle d'échangeur d'ions. On utilise comme détecteur un

conductimètre avec cellule à circulation, ce qui constitue une méthode de détection sensible et très générale pour toutes les espèces ionisées.

La séparation des ions ou composés polaires présents dans l'échantillon et entraînés par la phase mobile, résulte de leurs interactions avec les sites ioniques de la phase stationnaire.

Les colonnes de chromatographie à disposition nous ont permis de déterminer les concentrations des ions suivants : Ca^{2+} , Na^+ , Mg^{2+} , Cu^{2+} , Fe^{2+} , Al^{3+} , Cl^- , F^- et Br^- .

IV.3.3. DOSAGE DES SUCRES TOTAUX

Les phases liquides résultant des essais de lixiviation ont fait l'objet d'un dosage spectrophotométrique des sucres totaux. La méthode phénol-acide sulfurique développée par Dubois et al. [DUB-56] et modifiée par Saha et Brewer [SAH-94] a été utilisée comme test colorimétrique pour déterminer la teneur en sucres totaux. Elle est positive pour tous les glucides et consiste à faire interagir le phénol en milieu acide sulfurique concentré avec certains glucides (oses et osides). La dégradation des glucides est une décomposition endothermique, donc la réaction exothermique entre H_2SO_4 et l'eau fournit l'apport thermique indispensable à cette dégradation. Ainsi une molécule dérivée du furfural qui vient de la cyclisation et la déshydratation d'un glucide réagit avec le phénol donnant une solution de couleur orangée. L'intensité de cette couleur est directement liée à la concentration en sucres et détectée par absorption de la lumière visible [DUB-56]. Un spectrophotomètre Spectronic Série 67 (670 006/VERSION B/01-08 Annexe III), fourni par Fisher Scientific, à double cuve en quartz et équipé d'une lampe tungstène a été utilisé pour mesurer les absorbances. Cette méthode est très fréquemment utilisée pour le dosage des sucres totaux [KHA-08] [ATB-13] sachant que la teneur des solutions testées ne doit pas dépasser la concentration de 10 mg/L. La composition précise des monomères de sucres extraits n'étant souvent pas connue, le glucose est utilisé pour tracer la courbe d'étalonnage. Les résultats obtenus sont exprimés en grammes de glucose par gramme d'anas de lin inclus dans le composite.

Le protocole consiste à mélanger 2 mL de solution de relargage avec 1 mL de solution à 0,5% de phénol, puis 5 mL d'acide sulfurique concentré (98% de pureté) a été ajouté à l'aide d'une seringue Micropipette numérique (100-1000 μL). Le mélange est ensuite agité et laissé au repos pendant 30 min à température ambiante. Le spectrophotomètre est utilisé pour mesurer l'absorbance à 490 nm. Nous avons utilisé l'eau déminéralisée pour tous nos essais de lixiviation sauf dans les tests de dépendance au pH. Cinq composites cimentaire lignocellulosiques différents sont utilisés pour réaliser ces tests (les composites cimentaire des anas de lin bruts, traités par émulsion, huile de lin, chaux and paraffine). Différentes prises d'essai sont mises

en contact avec la lixiviant (eau) avec un ratio constant L/S de 10 ml/g du matériau sec dans tous les tests de lixiviation à température ambiante.

IV.4. RESULTATS ET ANALYSES

Les résultats de diffusion sont exprimés sous forme de concentration (mg/L ou µg/L). Cette présentation des résultats facilite l'interprétation des aspects spécifiques car ce type de présentation permet notamment d'évaluer si une espèce contrôle la solubilité [VAN-04].

Le relargage est principalement contrôlé par la solubilité ou la disponibilité, processus chimiques de base. La distinction entre les deux phénomènes est cruciale pour l'interprétation des données. L'identification des mécanismes qui contrôlent le relargage permet de prédire notamment celui-ci à différentes échelles de temps. Ainsi, la représentation en mg/L permet la comparaison des résultats pour des groupes de constituants présentant un comportement de libération similaire [VAN-04] et également la comparaison de la solubilité des contaminants reflétant la spéciation des éléments et les conditions imposées par le fluide percolant [VAN-96].

Dans cette étude nous avons analysé des éléments anioniques et cationiques, solubles et majoritaires, se trouvant généralement dans les matrices cimentaires. Ces éléments sont les ions calcium Ca^{2+} , sodium Na^+ , des cations métalliques (Fe^{2+} , Zn^{2+} et Al^{3+}) et des halogénures (F^- , Cl^- et Br^-).

Dans le processus de dégradation du béton, un certain nombre de composants se dissolvent. Les composants principaux sont le calcium, le potassium et l'aluminium, etc. Parmi ceux-ci, le Ca^{2+} est le composant prédominant car il est responsable des propriétés mécaniques du béton et constitue un bon indicateur de l'état de dégradation du béton [ADI-13]. Les ions calcium sont une des principales substances dissoutes lors de la lixiviation des composites cimentaires car le ciment Portland comprend 63,8% de CaO. La lixiviation du calcium du matériau cimentaire dépend de deux processus couplés avec des cinétiques différentes : la diffusion des ions dans la solution présente dans les pores et la dissolution des différents hydrates [YAN-12]. La lixiviation du calcium des matériaux à base de ciment est une préoccupation majeure des spécialistes du domaine car elle permet d'évaluer la dégradation du matériau. Pour cela plusieurs chercheurs ont choisi de suivre l'ion calcium durant l'essai de lixiviation [CAR-96] [CAR-97] [GON-96] [HUY-12]. Nous avons choisi l'aluminium, le fer et le sodium, comme composants secondaires pour identifier l'effet du drainage du calcium sur les autres composants du béton. Ces éléments présents sous forme d'oxydes existent en petite proportion dans

la composition principale du ciment Portland : 5,3% de Al_2O_3 , 2,7% de Fe_2O_3 , 2,4% de MgO et 0,1% de Na_2O).

L'aluminium, le fer et le magnésium représentent une proportion importante dans la composition principale du ciment Portland par rapport au sodium qui existe sous un faible pourcentage dans ce dernier ciment (0,1% comme Na_2O).

Le ciment Portland contient des oligo-éléments (éléments traces) et des métaux lourds potentiellement dangereux originaires des matières premières et des combustibles (fuels) utilisés pour la production du ciment. Ces oligo-éléments sont liés avec les composants à base de ciment dans une certaine mesure au cours de son hydratation. Une faible quantité reste dissoute dans la solution interstitielle.

Les ions chlorures, fluorures et bromures ont été choisis à cause du grand danger qu'ils peuvent présenter pour la santé. Par exemple, l'ion fluor (F^-) représente le premier élément du groupe des halogènes. À forte dose, les composés fluorés sont toxiques et peuvent provoquer la mort.

IV.4.1. TESTS DE DEPENDANCE AU pH

IV.4.1.1. CAPACITÉ DE NEUTRALISATION ACIDE

Glass et Buenfeld [GLA-99] ont développé une méthode permettant l'identification et la quantification de l'état des phases cimentaires dans un solide. Elle se base sur la stabilité des phases cimentaires hydratées en fonction du pH. La Figure IV. 4 montre que les principaux hydrates du ciment ne sont stables que pour des pH supérieurs à 9.

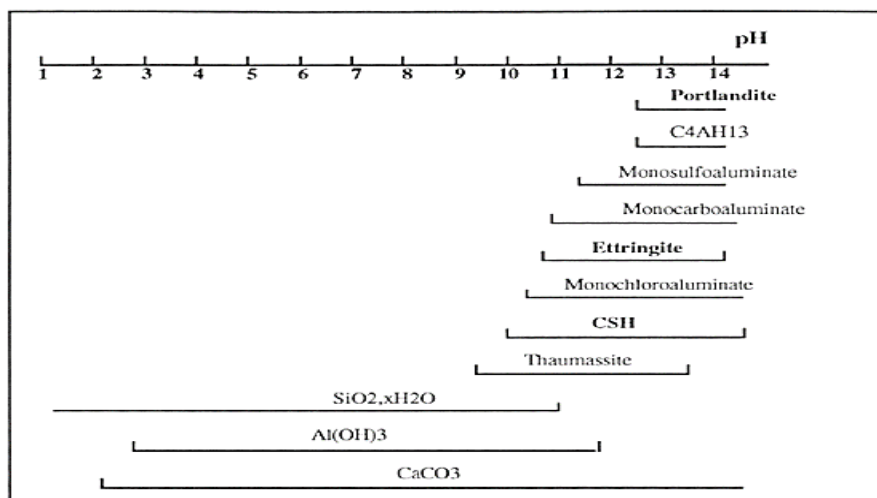


Figure IV. 4. Stabilité de quelques hydrates en fonction du pH (source Fried [FRI-06] d'après Benzaazoua, 1996)

Les paliers que montre la Figure IV. 5, correspondent à la disparition progressive des hydrates l'un à la suite de l'autre lorsque le pH diminue. Il est donc possible d'identifier les hydrates présents dans le solide et de déduire la proportion de chaque phase cimentaire en le calculant à partir de la quantité d'acide ajoutée. Cette méthode a permis de comparer les résistances à l'ajout d'acide de différents liants hydrauliques [GLA-00]. Il a été mis en évidence la plus faible résistance à l'attaque acide des liants à base de laitier et des cendres volantes.

Dans le procédé de Glass et Buenfeld [GLA-99], le béton de ciment Portland réduit en poudre est mélangé avec de l'acide nitrique à différentes concentrations. Le pH est mesuré en fonction de la quantité d'acide ajoutée. L'ajout d'acide va entraîner une baisse du pH de la solution jusqu'à atteindre le pH de stabilité de l'hydrate le moins stable (Portlandite). L'ajout ultérieur d'acide entraîne alors une dissolution de ce minéral afin de maintenir l'équilibre entre la phase aqueuse et la matrice. Cet équilibre de dissolution se traduit par une stagnation du pH ($\approx 12,4$ pour la Portlandite) malgré l'ajout d'acide (Figure IV. 5). Une fois la phase totalement solubilisée, l'ajout d'acide se traduit à nouveau par une baisse du pH (saut de pH) jusqu'au pH de stabilité de l'hydrate suivant [PEY-08].

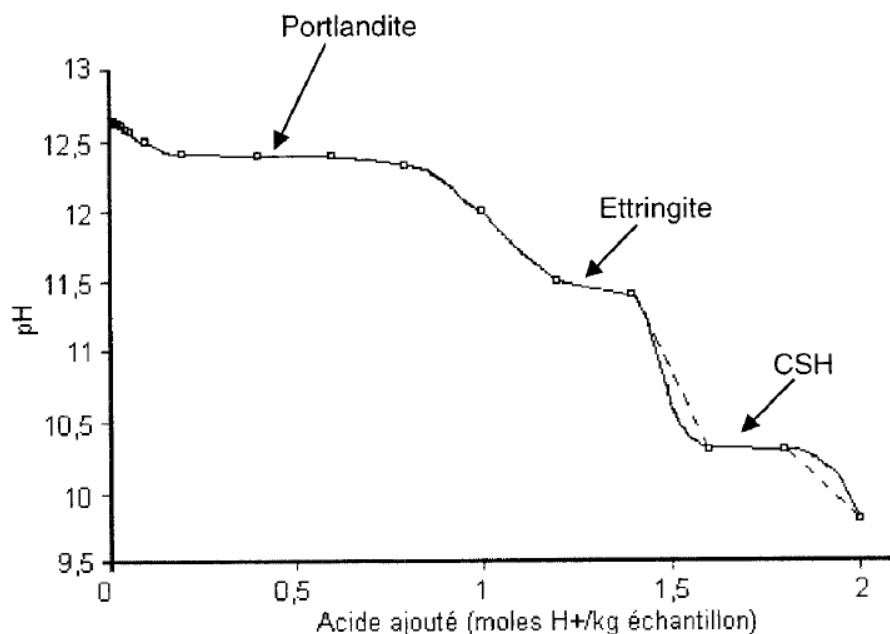


Figure IV. 5. pH en fonction de la quantité d'acide ajoutée à des échantillons de ciment Portland hydraté [GLA-99]

La Figure IV. 6 présente les résultats obtenus pour les cinq composites d'anas de lin (bruts et

traités). Elle permet de distinguer la capacité de neutralisation acide pour chaque type de composites.

Au fur et à mesure que l'acide est versé, le pH baisse : faiblement au début, puis une chute est constatée. L'étude générale de la courbe de neutralisation acide est tout d'abord présentée et suivie d'une étude comparative entre le composite d'anas bruts et les composites d'anas traités.

Les capacités tampons d'acide pour un matériau se déterminent par la présence de plateaux sur la courbe de neutralisation acide (Figure IV. 6). L'allure de la courbe de neutralisation des composites contenant des anas bruts et traités met en évidence un pouvoir tampon de la matrice cimentaire, tout d'abord, pour des pH fortement alcalins (10-12), ensuite pour des pH acides ($2,5 \leq \text{pH} \leq 4,5$) et enfin très acides ($1,5 \leq \text{pH} \leq 1,8$) comme montré sur le Tableau IV. 1. Ces zones de bonnes stabilités physico-chimiques sont liées à la présence de certaines phases minérales comme présentée dans la Figure IV. 4. Cette dernière montre que la portlandite est le minéral le plus instable lorsque le milieu s'acidifie : il se dissoudra en premier.

La Figure IV. 6 montre également que tous nos composites ont un pH naturel compris entre 10,0 et 12,5. Le pH naturel d'un matériau solide représente l'environnement chimique imposé par ce matériau lui-même en cas du contact avec l'eau.

L'évolution du pH est contrôlée par un premier système tampon (comme montré sur la Figure IV. 5) instauré par la dissolution de la portlandite $\text{Ca}(\text{OH})_2$ [GLA-99] et de C_4AH_{13} ($4\text{CaO} \cdot \text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 13\text{H}_2\text{O}$) selon la Figure IV. 4.

La dissolution de la portlandite $\text{Ca}(\text{OH})_2$ se traduit par un relargage de calcium (Ca) qui sera quantifié par les tests de lixiviation faits (IV.4.3.1.1.). Un second et troisième système tampon est remarqué dans la gamme de pH comprise entre (2,4-4,5) et (1,5 et 1,8) respectivement. Il peut être induit par la décalcification des C-S-H (silicates de calcium hydratés) et de l'ettringite ($\text{Ca}_6\text{Al}_2(\text{SO}_4)_3(\text{OH})_{12} \cdot 26\text{H}_2\text{O}$) selon la Figure IV. 4 et Cazalet [CAZ-12].

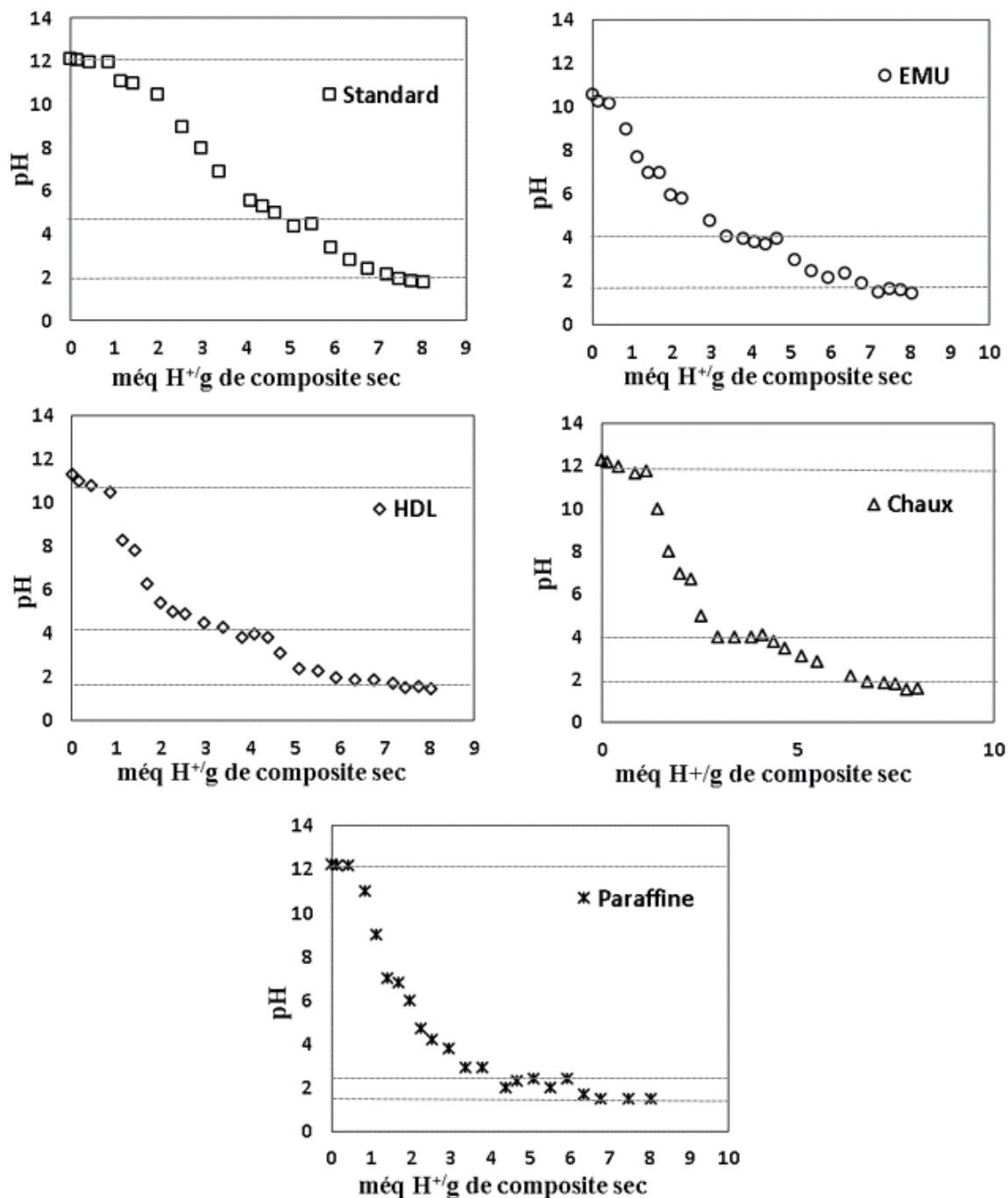


Figure IV. 6. Évolution du pH en fonction de la quantité d'acide ajoutée (courbe de capacité de neutralisation acide)

Dans un contexte de valorisation d'une matrice cimentaire, les conditions environnementales pourraient avoir une grande influence sur le pH et donc sur le potentiel de mobilisation des polluants. Cependant, Glass et al. [CLA-00] ont mentionné que l'identification des phases minérales est, néanmoins, difficile du fait de l'influence du contexte chimique (éléments dissous dans la solution aqueuse, phases minérales susceptibles de précipiter...) sur leur stabilité.

Les résultats de l'analyse de neutralisation d'acide des différents composites sont résumés dans le Tableau IV. 1 en terme du pH de chaque plateau et de la quantité d'acide nécessaire associée. Comme expliqué précédemment, cette dernière est liée à la quantité de la phase d'hydratation associée au plateau du pH donné. À partir de Figure IV. 6 et Tableau IV. 1, il apparaît que les courbes de titration sont très similaires pour les différents composites d'anas de lin. Ceci est particulièrement vrai pour les valeurs du pH variant de 9 jusqu'à 13, qui est la plage dans laquelle les produits d'hydratation exercent leur pouvoir tampon.

Le pH du premier plateau correspondant à la mise en contact du composite avec l'eau déminéralisé, varie selon le type de composite. Ceci peut être lié à des différences de résistance chimique des matrices aux attaques acides. Le traitement des anas de lin par la chaux a donc conduit à une élévation du pH « naturel », mais également a permis d'augmenter la résistance de la matrice aux attaques acides.

De plus, la capacité tampon des matrices cimentaires pourraient être expliquée par la stabilité des hydrates formés dans le béton, et particulièrement, celle de la portlandite et du silicate de calcium hydraté C-S-H (les phases majoritaires), leurs valeurs de pH de stabilité respectives étant voisines de 12,4 et 10. Lorsque la matrice cimentaire est mise au contact direct avec une solution acide, le retour à l'équilibre thermodynamique entre la solution des pores et la matrice cimentaire demande une dissolution partielle des hydrates pour conserver la valeur élevée du pH. Il a été constaté que ce phénomène est encore plus important pour le cas du béton, les mélanges d'hydratés tamponnent de façon plus efficace la solution, donnant un effet “super” tampon [PEY-08].

Tableau IV. 1. pH des plateaux et quantité d'acide ajoutée correspondante

Composite	pH			Acide ajouté (méq H ⁺ /g composite sec)		
	plateau 1	plateau 2	plateau 3	plateau 1	plateau 2	plateau 3
Standard	12,0	4,5	1,8	0,84	5,49	7,8
Émulsion	10,2	3,8	1,6	0,42	4,64	8,0
HDL	10,8	3,8	1,6	0,85	4,36	7,6
Chaux	11,7	4,0	1,7	1,10	3,56	8,1
Paraffine	12,0	2,4	1,5	0,42	5,91	8,0

IV.4.1.2. INFLUENCE DU PH SUR LA MOBILISATION DES IONS CALCIUM ET SODIUM

Comme le montre la Figure IV. 7, la solubilité des ions calcium et sodium augmente mais faiblement avec l'augmentation de l'acidité dans le lixiviant.

La présence du calcium dans certains produits d'hydratation du ciment, notamment les silicates de calcium hydratés (C-S-H) et la portlandite ($\text{Ca}(\text{OH})_2$) explique la présence des ions calcium dans les lixiviats sur l'ensemble de nos composites. Les composites élaborés avec les anas traités à l'huile de lin, l'émulsion et la paraffine ont relargué moins d'ions calcium que le composite standard. La concentration en ions calcium dans la phase liquide a été divisée par un facteur allant de 20 à 50, le composite contenant les anas enrobés par l'émulsion étant celui ayant le moins relargué de calcium. Ces résultats sont sans doute liés aux modifications de la matrice cimentaire mises en évidence par microscopie électronique à balayage (cf Chapitre II). Le gel de C-S-H observé serait moins sensible à une dissolution acide. À l'inverse le composite contenant les anas traités par la chaux a relargué une quantité d'ions calcium environ quatre fois plus importante que le standard, ceci étant lié à l'apport de chaux par l'enrobage.

La Figure IV. 7, montre que le relargage des ions sodium est affecté par le changement de pH de manière sensiblement égale comparé à la solubilisation des ions calcium dans les mêmes conditions. Cependant selon le traitement d'enrobage des anas, les composites relarguent ces ions différemment. Les composites élaborés avec les anas traités à l'huile de lin, l'émulsion et la chaux ont relargué moins d'ions sodium que le composite standard. La concentration en ions sodium dans la phase liquide a été divisée par un facteur allant de 0,75 à 3,20, le composite contenant les anas enrobés par l'émulsion étant à nouveau celui ayant le moins relargué. Les essais montrent que la mobilisation des ions sodium dans le cas du composite contenant les anas enrobés par la paraffine est accrue comparée à celle du standard.

Les concentrations en ions sodium des lixiviats sont très faibles car il n'y a que 0,1% de Na_2O dans la composition du ciment Portland constituant la matrice.

L'analyse de la Figure IV. 7 a mis en évidence que les traitements des anas à l'huile de lin et à l'émulsion réduisent fortement la solubilisation des ions calcium et sodium en milieu acide et par conséquent les risques de pollution par ces ions.

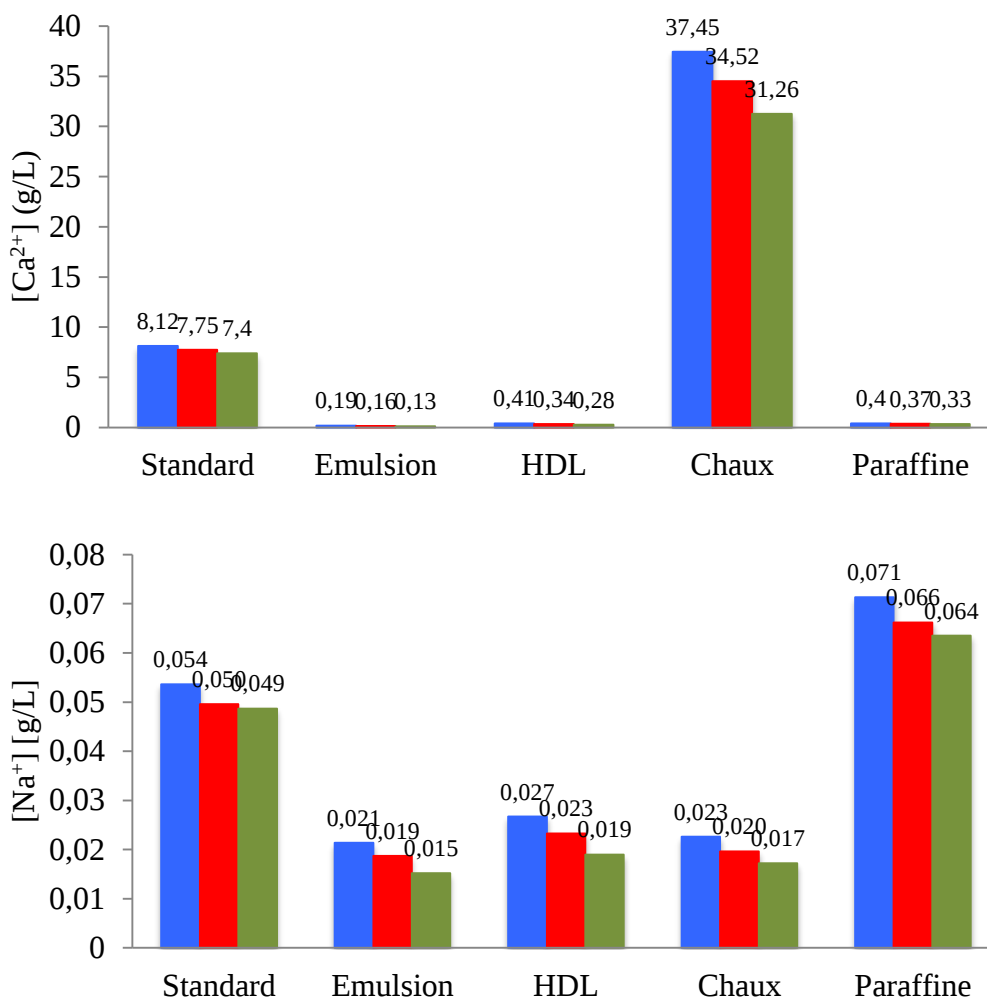


Figure IV. 7. Mobilisation des ions calcium (haut) et des ions sodium (bas) en fonction du pH pour les composites d'anas bruts et traités. (bleu : pH=2, rouge : pH=4,2, vert : pH=5,6)

IV.4.2. TEST DE PERCOLATION

Les échantillons d'éluât ont été analysés pour déterminer les anions et les cations majeurs dans le béton. Les résultats obtenus ont été tracés en fonction du temps comme indiqué sur les Figures IV. 9, 10, 11 et 12. Le potentiel de solubilité a été identifié pour les différents ions Ca^{2+} , Na^+ , F^- et Cl^- dans les lixiviats correspondant aux divers composites cimentaires.

IV.4.2.1 SUIVI DU PH DES PERCOLATS

La Figure IV. 8 montre une légère augmentation du pH des percolats issus des composites d'anas bruts et traités par la chaux et la paraffine. Pour ces derniers, les valeurs de pH restent toujours très basiques. Dans le cas des composites d'anas traités par l'huile de lin et

l'émulsion, les valeurs de pH sont proches de 7. Cela est probablement dû à la teneur en acide de l'huile de lin [POP-12]

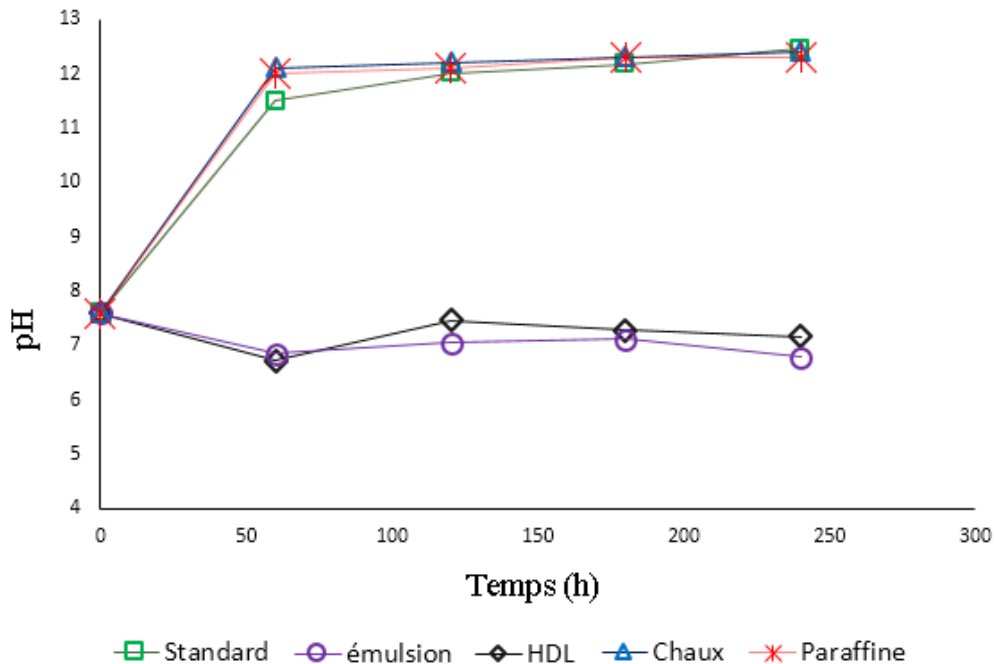


Figure IV. 8. Evolution du pH des percolats en fonction du temps

IV.4.2.2. DISPONIBILITE DES IONS EN FONCTION DU TEMPS

IV.4.2.2.1. Mobilité des ions calcium

En ce qui concerne les ions calcium qui se trouvent dans le percolat, nous avons remarqué que leur concentration dans l'ensemble des percolats issus des composites, exceptés ceux contenant des anas traités par la chaux, semble diminuer avec le temps de façon non linéaire (Figure IV. 9). Pour le composite d'anas traités par la chaux, la dissolution des ions calcium diminue quasiment linéairement avec le temps. De plus, les courbes de l'ensemble des composites montrent que le début du relargage est diffusif mais d'autres phénomènes de transfert de masse semblent intervenir ultérieurement (à partir du changement de la pente).

Bien que la diffusion ne soit pas un mécanisme de transport de l'eau primaire, il est néanmoins un excellent indicateur montrant la façon dont les espèces chimiques peuvent se déplacer à travers des structures en béton. En effet, le lixiviant peut pénétrer dans le béton par diffusion, qui est le mouvement de la solution à partir d'une zone de forte concentration de soluté à une région plus faible [HYC-11].

Le pourcentage de calcium lixivié, qui représente la masse de calcium après les deux premiers

jours par rapport à la masse de calcium cumulée après 10 jours de test est de 53, 56, 53,36 et 26% pour les composites d'anas bruts et traités par l'émulsion, l'huile de lin, la chaux et la paraffine respectivement.

La dissolution de l'hydroxyde de calcium dans la matrice cimentaire représente un paramètre essentiel, qui régit à la fois la diminution de la résistance mécanique et l'augmentation de la porosité des matériaux [CAR-96]. Le renouvellement du lixiviant qui a été réalisé dans ce test, semble jouer un rôle important. En effet ce renouvellement en fonction du temps permet de contrôler les concentrations des ions percolés dans le relargage [TRI-10]. Alonso et al. [ALO-06] ont montré que la détermination de la quantité d'ions calcium lessivée représente un bon indicateur pour suivre la progression de la détérioration du béton. Cependant le comportement à la lixiviation des composites d'anas de lin est contrôlé par la solubilité des hydrates présents. En effet, dans un premier temps, les phases les plus solubles (portlandite) se dissolvent, puis viennent les C-S-H et l'ettringite ($\text{Ca}_6\text{Al}_2(\text{SO}_4)_3(\text{OH})_{12} \cdot 26\text{H}_2\text{O}$).

Cette dissolution permet de réguler les propriétés physico-chimiques (pH, composition des lixiviats) des composites et influence directement la solubilisation des polluants (Arsenic, Béryllium, Cadmium, Chrome, Mercure, Nickel, Plomb, Antimoine, Sélénium et Vanadium...) [HIL-99] [MOU-00].

Concernant le calcium total, la teneur massique initiale en Ca dans le ciment était selon le fournisseur environ égale à 63,8% de CaO (Tableau II. 1), i.e. approximativement 44,8 ; 51,8 ; 52,1 ; 51,2 et 51,6 g de Ca dans les éprouvettes $4 \times 4 \times 16 \text{ cm}^3$ des composites d'anas bruts et traités par l'émulsion, l'huile de lin, la chaux et la paraffine respectivement. Cette différence de concentration en Ca est due à la différence de masse volumique des composites. La quantité totale de calcium relarguée observée, par chaque échantillon, est égale à 13,6 ; 1,8 ; 4,8 ; 23,6 et 1,2 g de Ca. Ceci représente une valeur relativement faible par rapport à la concentration initiale en Ca dans les composites sauf pour les relargages des composites d'anas traités par la chaux. Dans ce cas, la cause de la forte concentration en calcium est due à la chaux utilisée dans le traitement des anas pour la fabrication du composite.

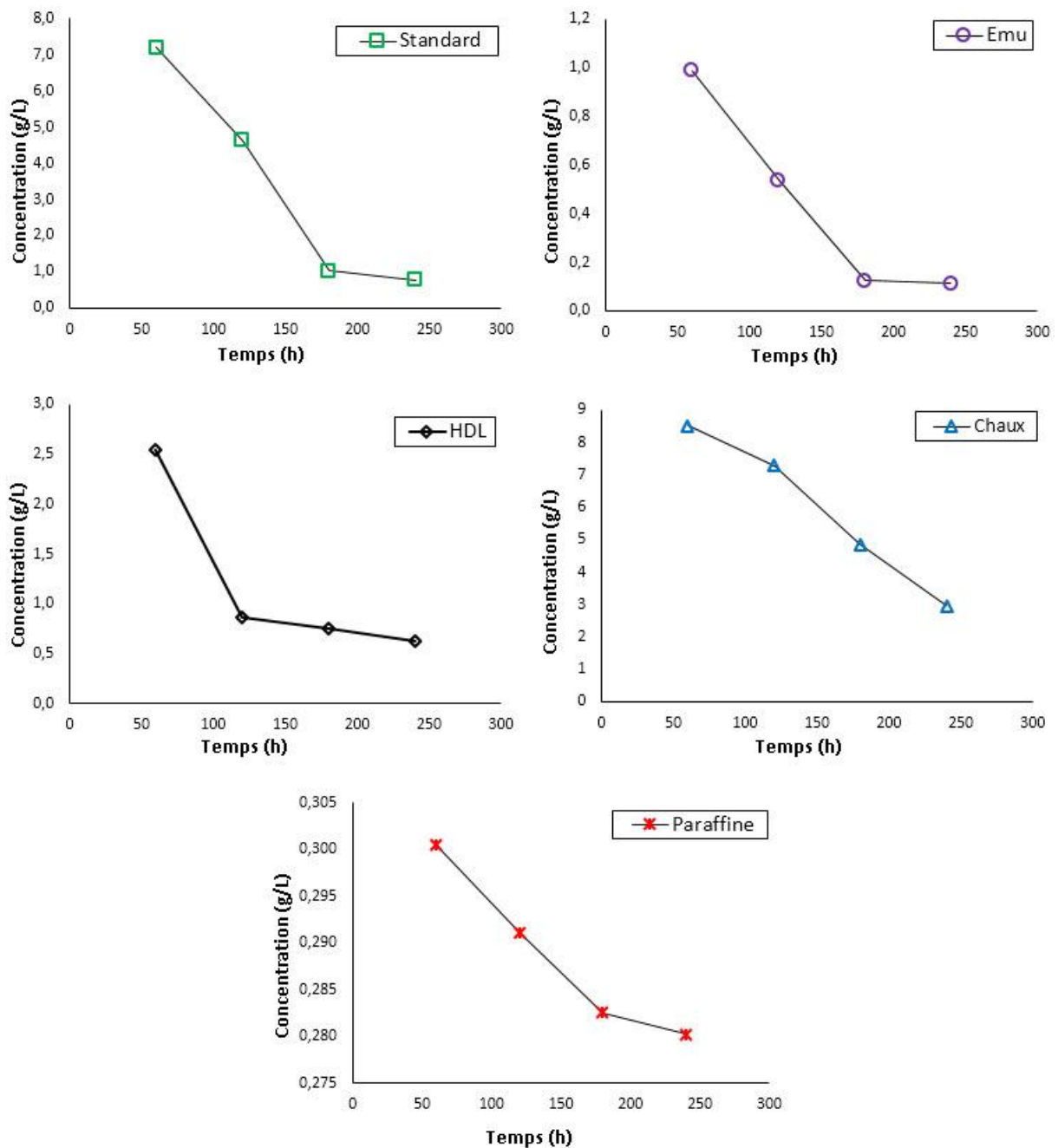


Figure IV. 9. Courbes de relargage des ions Ca^{2+} des différents composites lors du test de percolation

IV.4.2.2.2 Mobilité des ions sodium

Les résultats obtenus durant les essais de percolation montre que la quantité totale d'ions sodium percolée est de 0,1; 0,16; 0,19; 0,14 et 0,12g, respectivement, pour une éprouvette de composite d'anas bruts, traités par l'émulsion, l'huile de lin, la chaux et la paraffine (Figure IV. 10). La teneur massique initiale en Na dans le ciment était d'environ 0,1% de Na_2O

(Tableau II. 1), i.e. approximativement 0,073 ; 0,084 ; 0,085 ; 0,083 et 0,084 g de Na dans les éprouvettes 4x4x16 cm³ des composites d'anas bruts et traités par l'émulsion, l'huile de lin, la chaux et la paraffine respectivement. Il est observé que la quantité d'ions sodium percolée est supérieure à la valeur initiale évaluée dans les composites. Hewlett, dans ses travaux [HEW-88], signale que la proportion du Na₂O dans le ciment Portland peut atteindre 0,78%. Le lot de ciment Portland utilisé contenait peut être une teneur en oxyde de sodium légèrement supérieure à celle indiquée sur la fiche de composition.

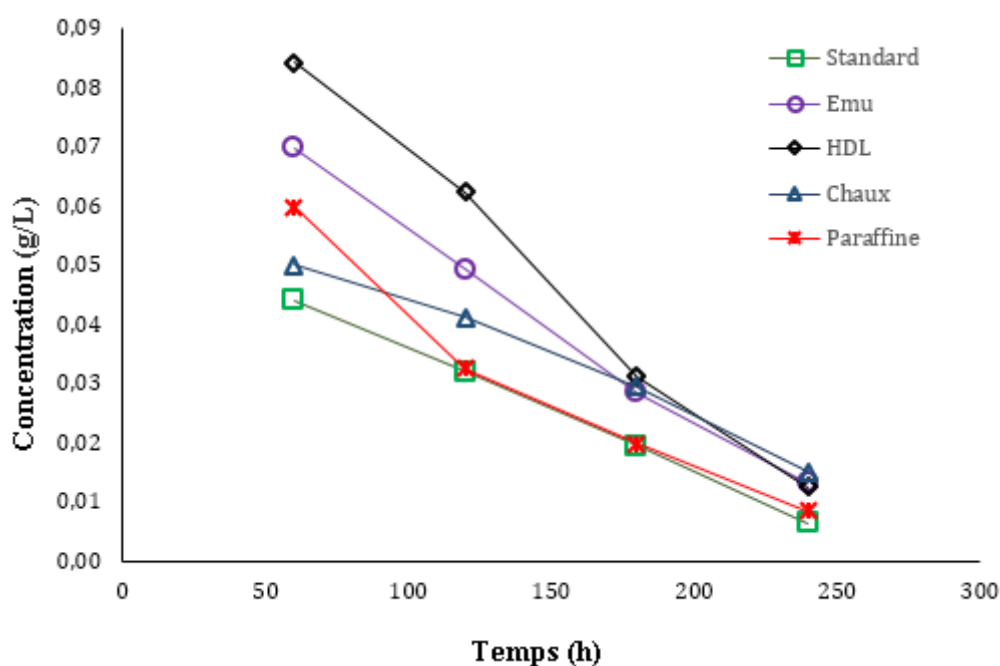


Figure IV. 10. Courbe de relargage des ions Na⁺ des différents composites lors du test de percolation

Durant la percolation, en présence de l'eau déminéralisée, les ions sodium sont mis solution. La concentration des ions sodium dans l'éluât représente leur capacité de solubilisation et de mobilisation. De plus, pour le sodium, nous avons remarqué un comportement presque identique à celui du calcium. En dépit de l'écoulement d'eau qui est constant, la concentration en ions sodium dans le percolat diminue avec le temps. Le rapport de la valeur lixiviée du sodium après les deux premiers jours par la valeur lessivée totale après 10 jours était de 43, 43, 44, 36 et 49% pour les composites d'anas bruts et traités par l'émulsion, l'huile de lin, la chaux et la paraffine respectivement. La Figure IV. 10 montre que le taux de drainage des ions sodium a diminué avec le temps dans l'ensemble de nos composites avec une légère différence de la quantité lessivée en fonction du type de traitement.

IV.4.2.2.3. Mobilité des halogénures (le fluor et le chlore)

Les résultats obtenus par analyse chromatographique ionique montrent que les eaux de relargages obtenues à partir de nos différents composites bruts et traités, ne contiennent que très peu d'ions F^- comme cela est représenté sur la Figure IV. 11. La concentration de ces ions fluorures diminue avec le temps.

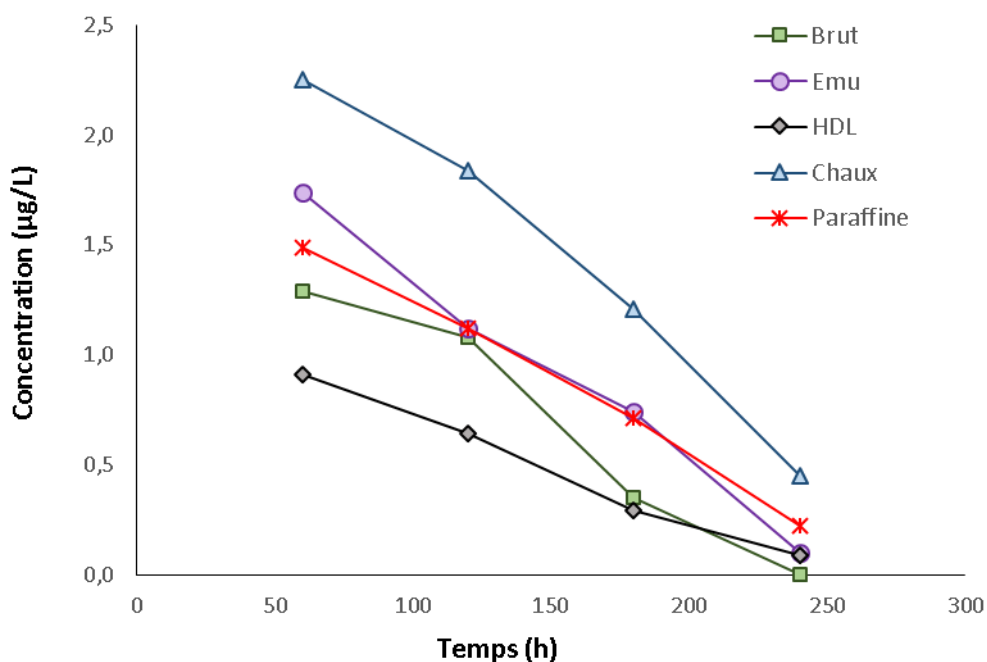


Figure IV. 11. Courbes de relargage des ions F^- des différents composites lors du test de percolation

En ce qui concerne, les concentrations en ions chlorures (Cl^-) issus des percolats, nous avons remarqué (Figure IV. 12) qu'il y avait très peu de différence entre les composites d'anas bruts ou traités par la chaux et la paraffine. Pour les composites traités par l'huile de lin et l'émulsion, le relargage des ions Cl^- est beaucoup plus important. Cette différence peut s'expliquer par le pH de l'eau qui se situe entre 6 et 8 et qui est affecté par la nature acide de l'huile de lin mise en jeu dans les enrobages des anas.

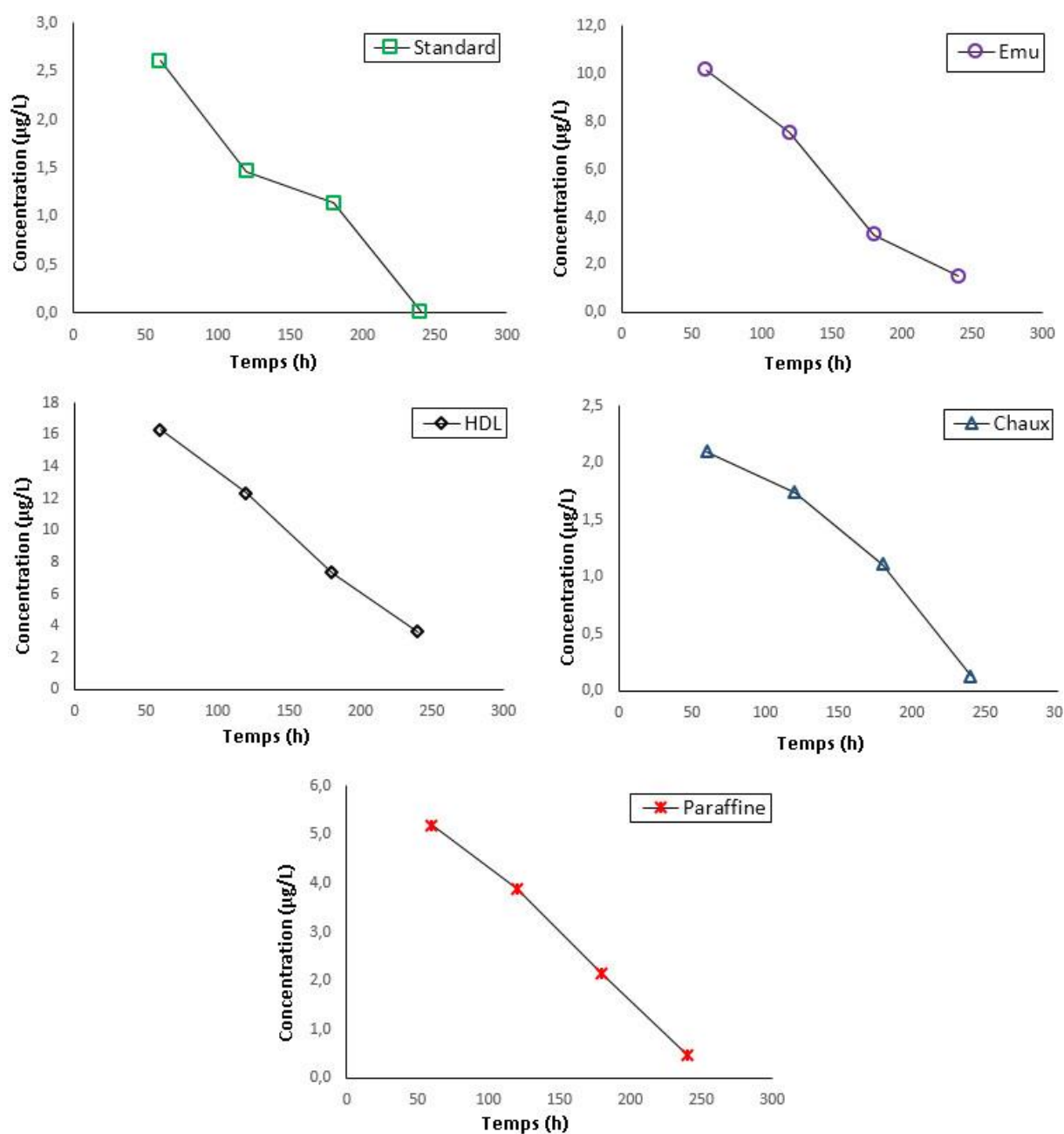


Figure IV. 12. Courbes de relargage des ions Cl^- des différents composites lors du test de percolation

En conséquence, nous pouvons dire que :

- les ions chlorures et fluorures présentent de faibles concentrations de l'ordre de 8500 et 40 $\mu\text{g.l}^{-1}$ respectivement dans les eaux de relargages issues de nos composites (inférieure à la limite autorisée par les normes [COU-02] qui est égale à 460 mg.l^{-1} pour les chlorures et à 2,5 mg.l^{-1} pour les fluorures). De plus, on constate que leurs concentrations diminuent avec le temps. 41-50% des ions chlorures et 39-47 % des ions fluo-

tures ont été percolés après les deux premiers jours pour les composites d'anas de lin bruts et traités.

- en dépit de l'écoulement constant d'eau, le comportement du chlore et du fluor est identique.

Nous pouvons expliquer la libération des différents ions par :

- l'appauvrissement des espèces solubles. En effet, la pente des courbes présentées sur les figures IV. 9, IV.10, IV.11 et IV.12. montre qu'une espèce très mobile peut être lessivée complètement, par exemple, F^- et Cl^- à pH neutre comme montré sur les figures IV.11 et IV.12.
- un relargage retardé qui peut survenir quand une phase contrôlant la solubilité limite la libération d'un constituant donné dans la phase initiale de la lixiviation.

L'essai de dépendance au pH a montré l'effet critique du pH du lixiviant sur les mobilisations des principaux éléments des composites cimentaires : l'acidité peut favoriser la dissolution de certains éléments plus que d'autres.

IV.4.3. TEST DE LIXIVIATION

IV.4.3.1 DISPONIBILITE DES PRINCIPAUX IONS DANS LES COMPOSITES CIMENTAIRES

IV.4.3.1.1. La lixiviation des ions calcium, sodium et magnésium

La Figure IV. 13 montre que le lixiviat qui contient le plus d'ions Ca^{2+} est celui issu du composite formulé avec les anas enrobés à la chaux. À l'inverse la concentration en Ca^{2+} est minimale dans le lixiviat obtenu à partir du composite utilisant les anas traités à la paraffine. Cela peut être expliqué par la bonne adhérence entre la matrice et la surface des granulats lignocellulosiques [NOZ-12] [NOZ-12-2]. Cette bonne adhérence entre la matrice cimentaire et la surface des anas traités par la paraffine est visible sur la Figure II.28.

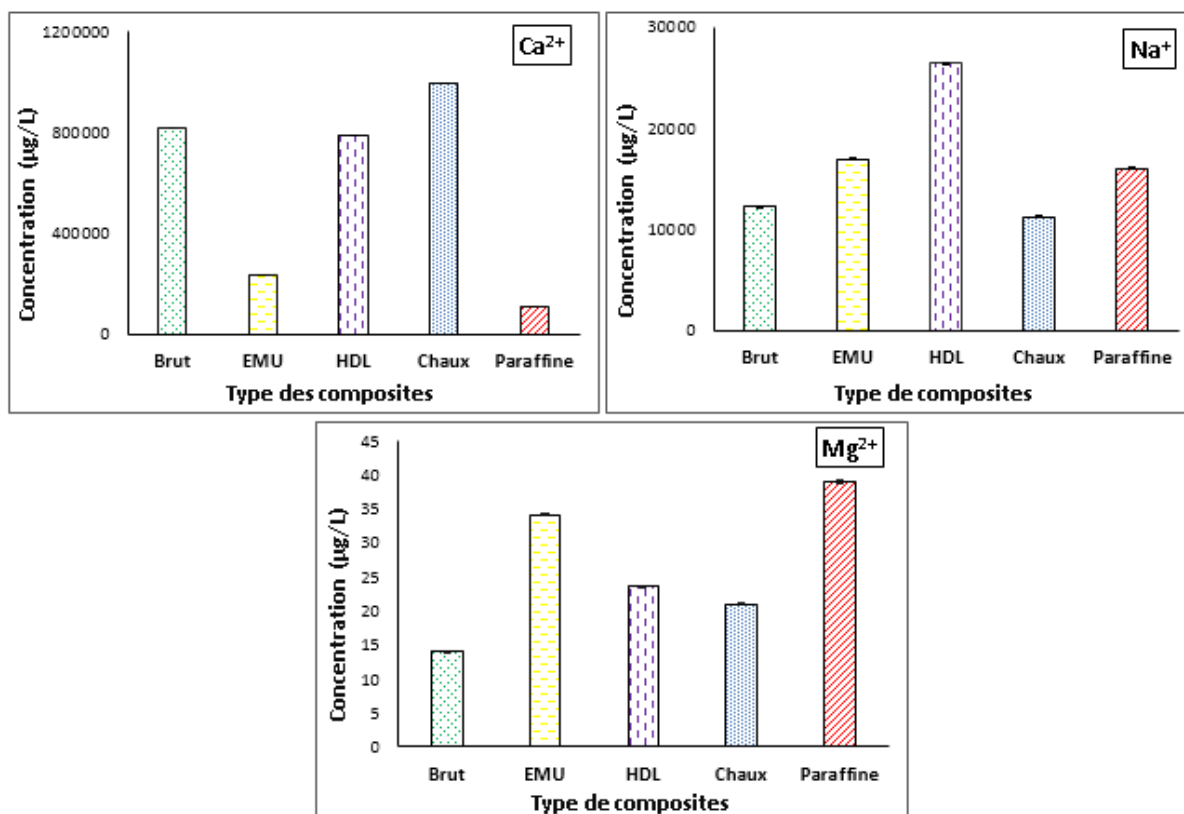


Figure IV. 13. Concentrations en ions Ca^{2+} , Na^{+} et Mg^{2+} dans le lixiviat en fonction du type de composites

La Figure IV. 13 montre également que les concentrations des ions Na^{+} dans les lixiviats issus des composites élaborés avec des anas enrobés par l'huile de lin et l'émulsion sont élevées par rapport à celles des lixiviats obtenus à partir des autres composites. Cela peut s'expliquer par l'acidité de l'huile de lin qui fait diminuer le pH de l'eau de drainage avec le temps [NEW-17] et ainsi augmenter l'action agressive de cette dernière pendant le processus d'agitation.

Le Tableau IV. 2 montre que les eaux de drainage des composites formulés avec des anas de lin traités par l'huile de lin et l'émulsion ont la plus faible valeur de pH mais les plus fortes valeurs de conductivité et de turbidité. La présence possible de traces d'huile de lin non-oxydée pourrait donner lieu à la formation d'une émulsion huile-eau durant la lixiviation, entraînant une augmentation de la turbidité [FLE-95].

Quel que soit le traitement appliqué aux anas de lin avant l'élaboration des composites, les lixiviats présentent une conductivité supérieure à celle obtenue avec le composite standard. Les eaux de drainage résultant de la lixiviation des composites à base d'anas traités à l'huile de lin et à l'émulsion ont les conductivités les plus élevées.

Il semble y avoir une relation inversement proportionnelle entre le comportement des ions

calcium et des ions sodium vis-à-vis du lixiviant comme représenté sur la Figure IV. 13.

Les concentrations en ions magnésium (Mg^{2+}) dans les lixiviats issus des composites élaborés avec des anas enrobés par la paraffine sont élevées par rapport à celles des lixiviats obtenus à partir des autres composites bruts et traités. Cette augmentation est due probablement à l'utilisation d'une grille de fer enrobé de magnésium durant le procédé de traitement par la paraffine.

Tableau IV. 2. Caractéristiques physico-chimiques des lixiviats

Type de composite	pH	Conductivité ($\mu S/cm$)	Turbidité (NTU)
Standard	12,18	5,40	10,1
Ému	10,31	4080	42,0
HDL	11,71	4010	243,0
Chaux	12,40	7,80	1,20
Paraffine	12,25	6,03	4,10
*pour l'eau déminéralisée pH=7,6, σ =14,33 $\mu S/cm$			

IV.4.3.1.2 La lixiviation des halogénures

Dans une solution ionique, les particules de soluté ne sont pas distribuées de manière aléatoire. Les ions positifs tendent à s'associer ou à se rapprocher des ions négatifs [WHI-13]. L'extraction de certains cations entraîne la libération d'anions comme F^- , Cl^- et Br^- dans le lixiviat [ANH-10]. Dans tous les cas, les ions fluorures, chlorures et bromures ne sont pas des composants essentiels du ciment. Ils peuvent être présents dans le ciment comme impuretés ou ajouts pour améliorer ses propriétés [TRA-10-1].

Nous remarquons que la concentration en ions chlorures (Cl^-) dans l'eau de drainage issue des composites à base d'anas enrobés par l'huile de lin et l'émulsion est plus élevée que dans le cas des autres composites (Figure IV. 14). De plus, l'acidité de l'huile de lin fait diminuer le pH de l'eau de drainage avec le temps, ce qui permet d'augmenter l'action agressive de cette solution pendant l'essai de lixiviation, favorisant ainsi la migration des ions chlorures. L'existence des cations bromures dans les lixiviants des composites d'anas traités par l'huile de lin et l'émulsion est due probablement au fait que l'acide oléique de l'huile de lin contient un très faible pourcentage de brome [NEW-17]. En ce qui concerne les traces d'ions fluorures observées dans les éluats des composites, excepté celui avec les anas traités par la paraffine, elles proviennent probablement de l'eau du réseau d'alimentation de la ville d'Amiens. Cette eau a été utilisée pour la fabrication des composites cimentaires. Selon la norme de qualité des

eaux, la valeur limite du fluor à ne pas dépasser est de 1,5 mg/L [ARS-14]. Aucune relation entre les ions fluorures et la paraffine n'a été trouvée permettant d'expliquer l'absence d'ions F^- dans l'éluat provenant du composite d'anas traités par la paraffine.

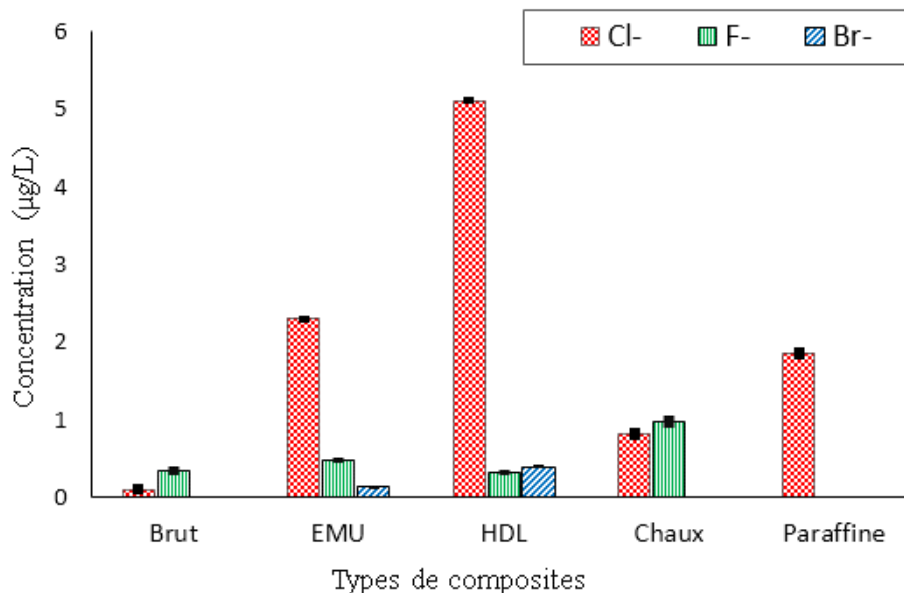


Figure IV. 14. Concentrations en ions halogénures dans le lixiviat en fonction du type de composites

IV.4.3.1.3 La lixiviation des cations métalliques

En ce qui concerne les ions ferreux (Fe^{2+}), nous avons constaté que la valeur du pH est inversement proportionnelle à la quantité lixiviée (Figure IV. 15). En effet, pour les différents pH trouvés 12,18; 10,31; 11,71; 12,40 et 12,25, la quantité lixiviée représente 3,5; 5,0; 5,7; 3,8 et 2,7 µg/L pour les composites standard, avec anas traités par l'émulsion, l'huile de lin, la chaux et la paraffine respectivement.

La lixiviation des ions ferreux est minimale dans le cas des composites à base d'anas de lin traités par la paraffine. Par contre elle est maximale pour ceux à base d'anas enrobés à l'huile de lin. Selon le fournisseur, le ciment contient environ 2,7% d'oxyde de fer Fe_2O_3 . Le pourcentage d'ions Fe^{2+} perdu dans le lixiviat vaut donc $2,48 \times 10^{-4}\%$ pour le composite standard, $4,64 \times 10^{-4}$, $5,48 \times 10^{-4}$, $3,86 \times 10^{-4}$ et $2,56 \times 10^{-4} \%$ pour les composites élaborés avec les anas traités par l'émulsion, l'huile de lin, la chaux et la paraffine respectivement. Les ions Al^{3+} libérés viennent de l'oxyde d'aluminium Al_2O_3 qui est un des composants de base de ciment (environ 5,3%). C'est la raison pour laquelle leur concentration est élevée dans les lixiviats issus des différents composites. Elle peut même atteindre 20 fois la concentration des ions ferreux.

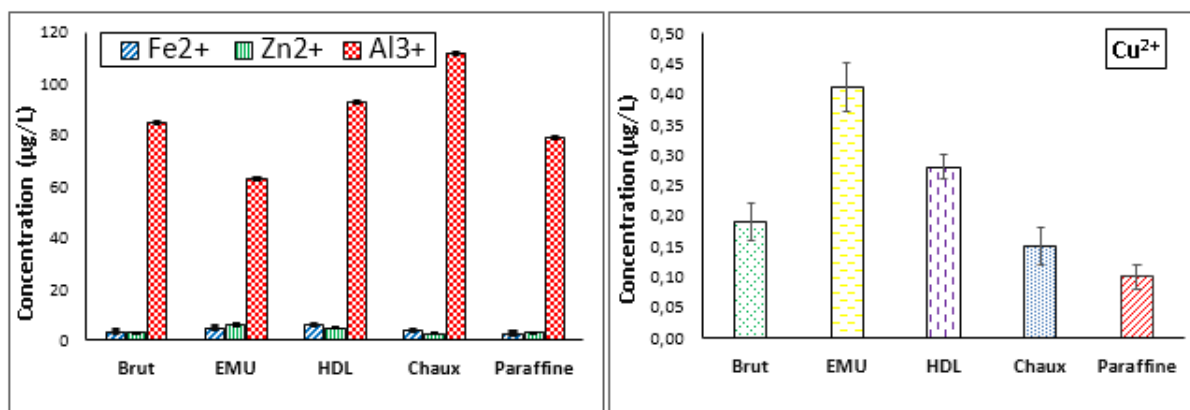


Figure IV. 15. Concentrations en cations métalliques dans le lixiviat en fonction du type de composites

Le cuivre est un oligo-élément du ciment Portland qui apparaît pendant le processus de production de ciment. Sa teneur peut atteindre jusqu'à 120,3mg/kg du ciment [MUL-12]. Les traitements des anas de lin par la chaux et la paraffine réduisent la quantité de cuivre lixiviée de 0,19 $\mu\text{g.L}^{-1}$ pour le composite standard à 0,15 et 0,1 $\mu\text{g.L}^{-1}$ pour les composites d'anas traités par la chaux et la paraffine respectivement (Figure IV. 15). La faible valeur des ions cuivre lixivés des composites d'anas traités par la chaux et la paraffine peut être due aux améliorations des propriétés des composites résultants. En ce qui concerne la présence de cuivre en concentration élevée dans les éluats des composites d'anas traités par l'émulsion et l'huile de lin comparé aux autres composites, l'existence de traces de cuivre dans la composition chimique des huiles végétales peut l'expliquer. Ces oligo-minéraux viennent du procédé de production des huiles végétales [MAR-06].

Les essais montrent aussi que les ions métalliques (Fe^{2+} , Zn^{2+} , Cu^{2+} et Al^{3+}) présents dans les composites sont très peu libérés au cours de la lixiviation [ALM-15]. Dans le cas des bétons classiques, la lixiviation par les eaux de pluie ne provoque pas d'incidence sur l'environnement [BIL-12]. Cependant une bonne compréhension des diverses relations entre les ions et les caractéristiques du milieu (particulièrement le pH) est indispensable pour optimiser un composite et augmenter sa durabilité. Il convient de noter que le comportement des ions Ca^{2+} , Al^{3+} , Fe^{2+} , Na^{+} et Cl^{-} à la lixiviation était similaire à celui observé pour les bétons [LUP-14].

Nous avons réalisé une comparaison avec les valeurs de concentrations limites de l'eau destinée à la consommation humaine [COU-80]. Les résultats ont montrés qu'au début du processus de lixiviation, les concentrations en ions calcium sont plus élevées que les valeurs limites dans les normes, la valeur limite maximale proposée étant de 100 mg.L^{-1} de Ca^{2+} . Pour les ions ferreux et magnésium, leurs concentrations sont inférieures à la concentration limites qui

sont de 200 et 50 mg.L⁻¹ respectivement. En ce qui concerne la concentration en ions sodium, cette dernière est proche de la valeur prévue par la norme qui est de 175 mg.L⁻¹. Enfin selon les critères et les procédures d'admission des déchets dans les décharges [COU-02], les concentrations des ions Cl⁻, F⁻, Zn²⁺, Cu²⁺ sont inférieures aux valeurs limites proposées qui sont de 460; 2,5; 15 et 30 mg.L⁻¹ respectivement. Il convient de mentionner que l'eau de décharge ne devrait pas être agressive ($6,5 \leq \text{pH} \leq 8,5$) [COU-80] mais malheureusement, les éluats issus des essais ne sont pas dans cette limite comme montré dans le Tableau IV. 2.

Donc, dans tous les cas, le béton de ciment Portland n'a libéré aucune concentration détectable de métaux toxiques énoncés dans la directive du Conseil 80/778 / CEE [COU-80] selon l'étude de Hillier et al. [HIL-99] et ceci est également vrai pour nos composites car les concentrations des éléments lixiviés ne dépassent pas les valeurs limites pour l'environnement ou pour la santé de l'homme.

IV.4.3.2. DECOMPOSITION DES GRANULATS LIGNOCELLULOSIQUES DANS LES COMPOSITES

Les composites d'anas de lin bruts et traités présentent une structure caverneuse (Chapitre 2, Figure II. 22) qui joue un rôle important dans les comportements hydriques de ce type du béton (comme l'absorption d'eau et la capillarité), lorsque les vides sont localisés entre les gros granulats, par suppression des granulats fins.

La structure caverneuse permet la pénétration d'une certaine quantité d'eau au sein des matériaux cimentaires. Par conséquent il est possible que les anas puissent, par la suite, absorber une certaine partie de cette eau. Ceci pourrait conduire à la dégradation des anas de lin à cause de forte alcalinité de l'eau. Ce phénomène serait le plus probable avec le composite standard pour lequel les anas ne sont pas enrobés.

La porosité et la compacité sont les différentes variables qui régissent le lien entre le granulat et la pâte du ciment [COU-84]. Le traitement des anas conduit d'une part à diminuer le caractère caverneux des composites comme cela est présenté dans les Figures II.22, micrographes B, C, D et E du Chapitre 2 et d'autre part à réduire la porosité accessible à l'eau (Tableau II. 9) [ALM-15]. Cette diminution rend les gels cimentaires plus compacts dans les composites avec anas traités par rapport au standard, tout en respectant le caractère caverneux des composites.

L'amélioration des performances des composites est en effet fortement influencée par la diminution de l'absorption d'eau des anas après leur traitement évitant ainsi la décomposition des granulats lignocellulosiques.

Comme nous l'avons mentionné dans le premier chapitre (Chapitre I, paragraphe I.3.2), les granulats végétaux contiennent trois composants principaux en quantités variées : la lignine, l'hémicellulose et la cellulose, qui contribuent tous à leur structure.

Comme il a été expliqué précédemment (Chapitre IV, paragraphe IV.2), notre étude est principalement focalisée sur les composites soumis à différents scénarios de lixiviation, impliquant des changements de pH, de durée et de surface de contact entre le liquide et le solide. L'eau résultant des lixiviations précédentes a été l'objet d'un dosage spectrophotométrique pour déterminer la quantité de sucres totale afin d'évaluer une possible décomposition des granulats lignocellulosiques présents dans les matériaux. La Figure IV. 16 représente les résidus saccharidiques drainés avec l'eau de lixiviation de chaque composite pour les différents traitements appliqués aux anas en fonction du pH du lixiviant. La teneur en résidus saccharidiques est calculée par rapport à la masse totale de glucose détectée pour la masse d'anas inclus dans le composite ; elle est exprimée en gramme de glucose par gramme d'anas de lin inclus.

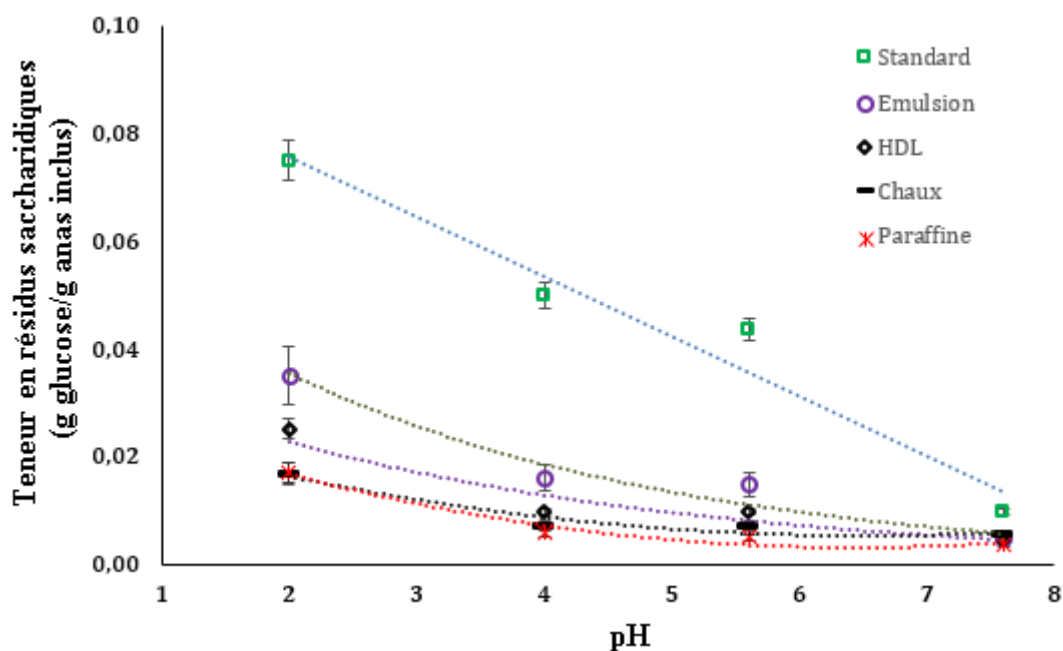
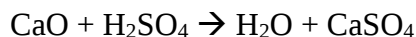


Figure IV. 16. Effet du pH du lixiviant sur la décomposition des granulats lignocellulosiques inclus dans les composites selon le traitement appliqué

La Figure IV. 16 montre d'une part, l'effet du pH du lixiviant et d'autre part l'effet du traitement des anas de lin utilisés dans les composites sur la décomposition des granulats lignocellulosiques. Le lixiviat issu du composite d'anas bruts montre qu'une grande quantité de sucres est libérée en comparaison avec les autres composites. La présence de l'enrobage empêche le

lixiviant d'atteindre les granulats et permet ainsi de réduire le relargage et/ou la dissolution des substances saccharidiques.

La quantité de sucres dans les lixiviats issus des composite d'anas traités est différente selon le matériau d'enrobage. La quantité de sucres relarguée par le composite d'anas traités par l'émulsion est plus élevée que celle issue du composite avec anas traités par l'huile de lin. Ceci est probablement liée à une bonne couverture fournie par l'huile de lin comparée à l'émulsion (Chapitre 2, Figure II.17, micrographes A et B) donc l'huile de lin est capable de mieux protéger les granulats de l'action du lixiviat. L'enrobage avec la paraffine ou la chaux limite davantage la libération des substances saccharidiques que les autres types d'enrobage dans cette étude, puisque nous obtenons une quantité de sucres plus faible que celle obtenue avec l'huile de lin ou l'émulsion. Bien que l'enrobage avec la paraffine semble plus hydrofuge que celui à la chaux, la quantité de sucres extraits n'est pas significativement différente en fonction du pH. En conséquence nous pouvons avancer que l'interaction de la couche de chaux autour du granulat avec l'acide sulfurique présent dans le lixiviant pourrait permettre la formation de coquilles protectives de sulfate de calcium (ou plâtre), empêchant ainsi le lixiviant de se propager dans les anas. L'équation de la réaction entre la chaux et l'acide sulfurique s'écrit:



D'après le Tableau IV.2, nous avons remarqué que la turbidité des lixiviats issus des composites traités par l'huile de lin et l'émulsion est élevée. Nous avons expliqué cela par des traces d'huile de lin non-oxydée dissoutes lors de la lixiviation, formant une émulsion huile-eau et entraînant une augmentation de la turbidité [FLE-95]. Cette turbidité peut conduire d'une part à une augmentation de la capacité d'absorption de la solution testée dans le spectrophotomètre et, d'autre part, à une erreur sur l'estimation de la teneur en sucre dans la solution.

La présence d'un enrobage autour des granulats limite mais n'empêche pas l'extraction de sucres. La teneur en résidus saccharidiques doit représenter l'attaque du lixiviant acide sur le matériau lignocellulosique.

À partir de la Figure IV. 16 nous pouvons donc conclure que tous nos composites d'anas traités présentent presque le même comportement dans le cas de l'augmentation de l'acidité de lixiviant. Cela tend à montrer qu'un lixiviant acide est capable d'attaquer la matrice cimentaire, de pénétrer dans les pores de la couche d'enrobage et alors d'attaquer les granulats végétaux conduisant ainsi à une augmentation de l'extraction de composés saccharidiques. Pour le composite d'anas traités à la chaux, la quantité de sucres extraits est plus élevée comparée aux autres traitements. Cela est probablement dû au fait que la chaux est capable de réagir

avec l'acide, laissant ensuite les anas sans protection et donc sujets à l'attaque acide.

IV.5. CONCLUSION

Une méthodologie d'évaluation du comportement face à la lixiviation, basée sur des tests de laboratoire, a été appliquée sur les composites cimentaires d'anas de lin élaborés. Le but est d'évaluer la libération de polluants lors de leur fin de vie. En dépit de l'utilisation à l'intérieur de ces produits (i.e. isolants), le respect de l'environnement et l'évaluation des risques lors de la mise en décharge de ces matériaux destinés à l'isolation intérieure des bâtiments n'ont pas été étudiés jusqu'à présent. L'objectif de ces essais est de fournir un outil qui permette de déterminer le comportement de nos composites sous des conditions de lixiviation. Durant les différents essais, la composition des lixiviats issus des différentes éprouvettes a été déterminée.

Grâce à des tests de dépendance au pH, nous avons pu caractériser deux paramètres du comportement pour nos composites : la capacité de neutralisation acide et la disponibilité des polluants en fonction du pH. Nous avons constaté que les composites d'anas de lin ont une capacité tampon et la mobilisation de ces éléments dépend fondamentalement de leurs teneurs initiales dans le matériau et la concentration de ces ions et elle est inversement proportionnelle à la valeur du pH. Nous avons noté également que les traitements par l'émulsion, l'huile de lin et la paraffine ont une grande influence sur la mobilité des ions calcium.

Des essais de percolation ont été mis en place afin de connaître la disponibilité des polluants en fonction du temps. La concentration des ions percolés diminue en fonction du temps quel que soit le type de traitement. L'analyse des éluats issus des essais a montré que les concentrations lessivées des différents ions (Ca^{2+} , Na^+ , Fe^{2+} , Cl^- , F^- , Br^- , Mg^{2+} , Zn^{2+} , Cu^{2+}) ne dépassent pas les valeurs limites permises par le conseil du 19 décembre 2002 [COU-02], sauf dans le cas du composite d'anas traités par la chaux. Dans tous les cas il convient de prendre en compte la dilution due au mélange avec les eaux souterraines et les eaux de surface.

De plus, des composés organiques tels des résidus saccharidiques totaux dissous sont libérés à cause de la dégradation partielle des granulats lignocellulosiques. Le traitement des anas de lin fait augmenter la résistance des composites vis à vis d'une solution acide car le traitement des anas a permis d'avoir une réduction d'au moins 50% de la quantité de sucres totaux lixiviés.

Enfin, les trois types de tests réalisés (lixiviation, percolation et dépendance du pH) permet-

tent d'obtenir des données sur l'évaluation environnementale de l'impact des déchets des produits de construction. Les données recueillies peuvent être utilisées avec des outils appropriés pour évaluer les risques environnementaux et sanitaires, ou intégrées à la méthodologie d'évaluation du cycle de vie pour déterminer les impacts environnementaux de nos composites lignocellulosiques.

CONCLUSION GENERALE ET PERSPECTIVES

L'objectif de ce travail était de valoriser un co-produit agricole, les anas de lin, pour fabriquer des composites cimentaires lignocellulosiques légers et d'étudier l'impact de l'environnement sur ces éco-matériaux et vice versa. Ce travail a permis de faire le point sur les différents traitements d'hydrophobisation applicables à la matière lignocellulosique et de dégager des pistes de traitement applicables aux anas de lin.

Après une étude bibliographique qui nous a fourni des informations aussi importantes qu'indispensables sur les bétons légers lignocellulosiques et les anas de lin, nous avons jugé nécessaire de proposer un traitement utilisant de la cire de paraffine en plus de trois autres types de traitement précédemment élaborés au sein de l'équipe IMaP [KHA-08]. Ce travail a montré l'efficacité des traitements des anas de lin par l'huile de lin, une émulsion d'huile de lin, un lait de chaux et la cire de paraffine sur la réduction de leur capacité d'absorption d'eau. Il faut cependant noter une augmentation de masse volumique réelle des anas traités liée à la présence de la couche enrobante.

L'étude thermo-physico-mécanique conduite apporte des résultats déterminants sur le comportement des composites élaborés. L'utilisation de différentes techniques d'analyse a permis d'affiner l'étude sur la base d'observations complémentaires. Les résultats obtenus sont en raisonnable accord avec les précédents travaux trouvés dans la littérature. En effet nos résultats montrent que l'incorporation d'anas traités au sein de la matrice cimentaire conduit à une amélioration des propriétés mécaniques, une réduction des variations dimensionnelles et de la capacité d'absorption de l'eau par capillarité et imbibition. L'enrobage des anas entraînant une augmentation de leur masse volumique réelle, les composites résultants présentent une conductivité thermique et une masse volumique apparente supérieures à celles du composite formulé avec des anas bruts.

Quels que soient les traitements appliqués aux anas, excepté dans le cas du traitement par l'émulsion d'huile de lin, les composites obtenus appartiennent à la classe III de la classification de la RILEM: une masse volumique apparente inférieure à 2000 kg.m^{-3} , une résistance à la compression supérieure à 0,5 MPa et une conductivité thermique inférieure à 0,3 W/mK. Nos composites peuvent être qualifiés de bétons légers d'isolation.

Connaître le comportement des composites lignocellulosiques vis-à-vis de l'humidité, donc leurs propriétés hygriques, est d'une grande importance pour évaluer l'efficacité d'un matériau isolant vis-à-vis de la vapeur d'eau. Les résultats obtenus grâce aux essais hygriques conduits montrent que : (i) le traitement des anas de lin améliore les phénomènes d'hystérésis et diminue la capacité d'adsorption d'humidité des composites ; (ii) une analyse comparative montre que le composite d'anas bruts présente une perméabilité à la vapeur d'eau élevée pour les humidités relatives faibles et élevées, contrairement aux composites d'anas traités. Quel que soit le traitement, les composites d'anas de lin présentent une faible capacité de diffusion et d'effusion de la vapeur d'eau. Cependant le composite d'anas bruts est un peu plus perméable à la vapeur d'eau que les composites d'anas traités ; (iii) les composites d'anas de lin traités et non traités présentent une excellente capacité tampon à la vapeur d'eau (MBV) et peuvent être utilisés pour réguler l'humidité relative intérieure selon la classification proposée par le projet NORDTEST. Nous avons remarqué que la MBV des composites est fortement influencée par leur perméabilité à la vapeur d'eau.

D'autre part, la modélisation numérique des résultats obtenus montre l'importance de la prise en compte du phénomène d'hystérésis et la nécessité de réaliser des essais sur des plages d'humidité et de température plus larges afin de mieux évaluer le comportement des composites vis à vis de la vapeur d'eau. Le modèle analytique utilisé s'ajuste très bien aux résultats expérimentaux et l'influence du traitement des anas de lin sur le comportement hygrique de composites élaborés est démontrée.

La présente étude fournit un ensemble de données expérimentales qui peut être utilisé dans des modèles via un logiciel hygrothermique afin d'explorer l'adéquation de nos matériaux en tant qu'isolants sous différentes conditions climatiques.

Une prise de conscience accrue de l'environnement incite à utiliser des matériaux de construction écologiques et «durables» en termes de réduction de la consommation d'énergie et de matières premières. Par conséquent, les matériaux d'origine biologique sont de plus en plus recommandés. Toutefois il convient de s'assurer qu'ils n'impactent pas négativement l'environnement en service ou fin de vie en libérant des substances polluantes. C'est la raison pour laquelle une méthodologie d'évaluation du comportement en lixiviation, basée sur des tests de laboratoire, est mise en place sur nos composites cimentaires lignocellulosiques. Leur respect de l'environnement ou les risques encourus par l'intermédiaire de phénomènes de lixiviation n'a pas été étudié

jusqu'à présent pour de tels composites. L'objectif de ces essais est de fournir un outil qui permettrait de connaître le comportement de nos composites sous conditions environnementales.

Le traitement des anas de lin augmente leur résistance dans le composite face à une solution acide car l'éluat provenant du composite d'anas bruts contient une grande quantité de sucres libérés comparé à ceux issus des composites d'anas traités. Cela est dû à la présence de l'enrobage qui, empêchant la solution d'atteindre les granulats, réduit l'émission de sucres. Les méthodes proposées permettent d'obtenir des données pour l'évaluation environnementale des produits de construction. Elles peuvent être utilisées avec des outils appropriés pour l'évaluation des risques environnementaux et de santé, ou intégrées à la méthode d'évaluation du cycle de vie pour déterminer les impacts environnementaux des composites.

Comme tout travail doctoral, celui-ci laisse entrevoir des perspectives. En effet nos composites contiennent une fraction non négligeable de matière organique biodégradable qui peut permettre un développement biologique (notamment via des bactéries, des champignons et des insectes). L'impact des micro-organismes à long terme doit donc être étudié. Pour estimer l'importance du potentiel biologique du matériau, une étude de leur biodégradabilité doit être réalisée en mettant en place, par exemple, des tests de respirométrie aérobie et anaérobie. Enfin dans l'objectif d'une mise sur le marché des composites d'anas de lin, il est nécessaire de connaître leur comportement au feu. Il convient donc de déterminer la résistance au feu de ces matériaux et d'estimer la quantité globale de matière combustible en fonction de la température et de la durée d'exposition au feu.

RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES

RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES

[AAM-08]	Aamr-Daya E, Langlet T, Benazzouk A, Queneudec M. Feasibility study of lightweight cement composite containing flax by-product particles: Physico-mechanical properties. <i>Cement and Concrete Composites</i> . 2008;30:957-963.
[ABD-10]	Abdelalim A, Abdallah S, Easawi K, Negm S, Talaat H. Thermal properties of hydrated cement pastes studied by the photoacoustic technique. Thermal properties of hydrated cement pastes studied by the photo <i>Journal of Physics: Conference Series</i> 214. 012136. 2010
[ABR-09]	Abraham B, Salagnac JL, Fontan J, Quenard D, Gilliot S, Pompéo C. Transferts d'humidité à travers les parois, Évaluer les risques de condensation. CSTB le futur en construction. 2009.
[ADE-02]	ADEME. Evaluation de l'écocompatibilité de scénarios de stockage et de valorisation des déchets. Etude, Rapport, Réf. : 4445, Entreprises et Monde Agricole, Collectivités et Secteur Public, Recherche et Innovation. 2002 148.
[ADE-14]	ADEME & VOUS. Améliorer l'impact environnemental des produits. Chimie et matériaux biosourcés, Recherche N°09 – Décembre 2014.
[ADI-13]	Adinarayana K.N.V, Sasidhar P., Balasubramaniyan V. Modelling of calcium leaching and its influence on radionuclide migration across the concrete engineered barrier in a NSDF. <i>Journal of Environmental Radioactivity</i> . 2013; 124:93-100.
[AFNOR-01]	AFNOR, 2001. NF EN ISO 12572: 2001 : Performance hygrothermique des matériaux et produits pour le bâtiment. Détermination des propriétés de transmission de la vapeur d'eau, AFNOR
[AGG-97]	Aggarwal LK. Bagasse-reinforced cement composites. <i>Cement and Concrete Composites</i> . 1997;17:107-112.
[AKO-13]	Akoy E, Von Hörsten D, Ismail M. Moisture adsorption characteristics of solar-dried mango slices. <i>International Food Research Journal</i> . 2013;20(2):883-890.
[ALI-09]	Alix, S.; Philippe, E.; Bessadok, A.; Lebrun, L.; Morvan, C.; Marais, S. Effect of chemical treatment on water sorption and mechanical properties of flax fibers. <i>Bioresource Technology</i> . 2009;100:4742-4749.
[ALM-15]	Al-Mohamadawi A, Benhabib K, Goullieux A. Impact de l'environnement vis à vis d'éco-matériaux lignocellulosiques formulés à base d'anas de lin. Conférence Internationale Francophone NoMaD 5-6 novembre 2015, Mines Douai.
[ALM-16]	Al-Mohamadawi A, Benhabib K, Dheilly R, Goullieux A. Influence of lignocellulosic aggregate coating with paraffin wax on flax shive and cement-shive composite properties. <i>Construction and Building Materials</i> . 2016;102:94-104.
[ALM-16-2]	Al-Mohamadawi Ali, Benhabib Karim, Goullieux Adeline Estimation de l'effet de la pluie sur des éco-matériaux lignocellulosiques formulés à base d'anas de lin. 1 ^{er} Congrès International sur l'Environnement, la Biodiversité et le Développement Durable CIEBDD'2016 - U.S.T.O, 16-17 Novembre 2016
[ALO-06]	Alonso C, Castellote M, Llorente I, Andrad C. Ground water leaching resistance of high and ultra high performance concretes in relation to the testing convection regime. <i>Cement and Concrete Research</i> . 2006;36:1583-1594.

RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES

[APP-02]	Appa Rao G, Raghu Prasad BK. Influence of the roughness of aggregate surface on the interface bond strength. <i>Cement and Concrete Research</i> . 2002;32:253-257.
[ARF-99]	Arfvidsson J. Moisture penetration depth for periodically varying relative humidity at the boundary. <i>Acta Physica Aedificiorum</i> . 1999;2:75-80.
[ARS-14]	ARS-Agence Régionale de Santé de Picardie. La qualité de votre eau en 2014, Commune de Dreuil les Amiens
[ATB-13]	Atbalasmeh A, Berhe A, Ghezzehe A. A new method for rapid determination of carbohydrate and total carbon concentrations using UV spectrophotometry. <i>Carbohydrate Polymers</i> . 2013; 97:253-261.
[BAI-05]	Bai. Y, Darcy F, Basheer PAM. Strength and drying shrinkage properties of concrete containing furnace bottom ash as fine aggregate. <i>Construction and Building Materials</i> . 2005; 19:691-697.
[BEC-09]	Becchio C, Corgnati S, Kindinis A, Pagliolico S. Improving environmental sustainability of concrete products: Investigation on MWC thermal and mechanical properties. <i>Energy and Buildings</i> . 2009;41(11):1127-34.
[BED-07]	Bederina M, Marmoret L, Mezreb K, Khenfer MM, Bali A, Quéneudec M. Effect of the addition of wood shavings on thermal conductivity of sand concretes:experimental study and modelling. <i>Construction and Building Materials</i> . 2007;21:662–668.
[BED-09]	Bederina M, Laidoudi B, Goullieux A, Khenfer M, Bali A A, Quéneudec M. Effect of the treatment of wood shavings on the physico-mechanical characteristics of wood sand concretes. <i>Construction and Building Materials</i> . 2009;23(3):1311–1315.
[BEL-14]	Belhadj B, Bederina M, Montrelay N, Houessou J, Quéneudec M. Effect of substitution of wood shavings by barley straws on the physico-mechanical properties of lightweight sand concrete. <i>Construction and Building Materials</i> . 2014;66:247-258.
[BEN-05]	Benhabib K. Transport dans les sols de cokerie de HAP issus de particules de goudron de houille : Thèse de doctorat, Nancy 2005
[BER-88]	Berner U. Modelling the uncongruent dissolution of hydrated cement minerals. <i>Radiochemical Acta</i> . 1988;44-45(2):387–393.
[BIL-03]	Bilba K, Arsene MA, Ouensanga A. Sugar cane bagasse fibre reinforced cement composites. Part I. Influence of the botanical components of bagasse on the setting of bagasse/cement composite. <i>Cement and Concrete Composites</i> . 2003;25: 91-96.
[BIL-12]	Bilal E, Bounakhla M. Lixiviation du béton et son incidence sur l'environnement. Conférence sur les Techniques Analytiques Nucléaires et Conventionnelles et leurs Applications (TANCA 2012, 12 Oct(2012). 2012 82-84.
[BLA-04]	Blahovec J. Sorption isotherms in materials of biological origin. Mathematical and physical approach. <i>Journal of Food Engineering</i> . 2004;65:489-495.
[BOS-04]	Bos H. The Potential of flax fibres as reinforcement for composite materials. Eindhoven, The Netherlands:TU Eindhoven. 2004.
[BRU-38]	Brunauer S, Emmett PH, Teller E. Adsorption of Gases in Multimolecular layers. <i>Journal of the American Chemical Society</i> . 1938; 60(2) :309-319.

RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES

[BRU-43]	Brunauer S. The absorption of the gases and vapors. I. Physical adsorption. Princeton: Princeton University Press. 1943 150.
[CAR-96]	Carde C, François R, Torrenti JM. Leaching of both calcium hydroxyde and C-S-H from cement paste: modeling the mechanical behaviour. Cement and Concrete Research. 1996;28(6):1257-1268.
[CAR-97]	Carde C, François R. Effect of the leaching of calcium hydroxide from cement paste on mechanical and physical properties. Cement and Concrete Composites. 1997;27(4) :539-550..
[CAZ-12]	Cazalet ML. Caractérisation physico-chimique d'un sédiment marin traité aux liants hydrauliques – Évaluation de la mobilité potentielle des polluants inorganiques. Thèse de doctorat de l'Institut National des Sciences Appliquées de Lyon. 2012.
[CEL-14]	Celino A, Freour S, Jacquemin F, Cassari P. The hygroscopic behavior of plant fibers: a review. Frontiers in Chemistry. 2014;1(43):1-12.
[CER-05]	Cerezo V. Propriétés mécanique, thermique et acoustique d'un matériau à base de particules végétales: Approche expérimentale et modélisation théorique. Thèse de doctorat, MEGA-ENTPE. INSA, Lyon, 2005.
[CER-09]	Cerolini S, D'Orazio M, Di Perna C, Stazi A. Moisture buffering capacity of highly absorbing materials. Energy and Buildings. 2009;41: 164-168.
[CHE-13]	Chen MC, Wang K, Xie L. Deterioration mechanism of cementitious materials under acid rain attack. Engineering Failure Analysis. 2013;27:272-285.
[FEN-13]	Feng C, Janssen H, Wu C, Feng Y, Meng Q. Validating various measures to accelerate the static gravimetric sorption isotherm determination. Building and Environment. 2013;69: 64-71.
[COA-06]	Coatanlem PA, Jauberthie RB, Rendell F. Lightweight wood chipping concrete durability. Construction and Building Materials. 2006;20(9):776-781.
[COL-11]	Collet F, Achchaq F, Djellab K, Marmoret B. Water vapor properties of two hemp wools manufactured with different treatments. Construction and Building Materials. 2011;25(2):1079-1085.
[COL-12]	Collet F, Fretot S. Experimental investigation of moisture buffering capacity of sprayed hemp concrete. Construction and Building Materials. 2012;36:58-65.
[COL-13]	Collet F, Chamoin J, Pretot S, Lanos C. Comparison of the hygric behaviour of three hemp concretes. Energy and Buildings. 2013;62: 294-303.
[COM-15]	Commissariat général au développement durable. Performance thermique des logements neufs : les surcoûts de construction compensés par les économies d'énergie, n°217. Le point sur. Décembre 2015.
[CON-15]	Convention cadre sur les changements climatiques. Conférence des Parties, Vingt et unième session, Paris, 30 novembre-11 décembre 2015.
[COS-05]	Cosgrove DJ. Growth of the plant cell wall. Nature Reviews Molecular Cell Biology. 2005;6:850-861.
[COU-02]	Council Decision Of 19 December. Establishing criteria and procedures for the acceptance of waste at landfills pursuant to Article 16 of and Annex II to Directive 1999/31/E., Official Journal of the European Communities. 2002-2003 27-49.

RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES

[COU-15]	Couasnet Y. Perméabilité à la vapeur d'eau des matériaux. [Internet]. 2015. Disponible depuis: HYPERLINK "http://sacura.chez.com/materiaux/classement_p/permeabilite.htm".
[COU-80]	Council Directive. Relating to the quality of water intended for human consumption (80/778/EEC). Official journal law OJL 229, 30.8. 1980 11.
[COU-84]	Coutts RSP, Kightly P. Bonding in wood fiber-cement composites. Journal of Materials Science. 1984;19:3355-3359.
[CRA-76]	Crawford DL, Crawford RL. Microbial degradation of lignocellulose: the lignin component. Applied and Environmental Microbiology. 1976;31:714--717.
[CRE-07]	Crest M. Etude multi-échelle de percolations instationnaires à travers un résidu minéral réactif et modélisations hydrodynamiques associées-Applicabilité de la norme NF EN 12920. Thèse de doctorat en Sciences de l'Environnement Industriel et Urbain, Lyon. 2007.
[DAI-86]	Daian JF. Processus de condensation et de transfert d'eau dans un matériau méso et macroporeux. Etude expérimentale du mortier de ciment. Thèse de doctorat, Université de Grenoble: USTMG/INPG. 1986.
[DER-08]	Derome D, Derluyn D, Zillig W, Carmeliet J. Model for hysteretic moisture behaviour of wood. In C.Rode (Ed), Proceedings of the 8th Symposium on Building Physics in the Nordic Countries. Lyngby: Technical University of Denmark.. 2008;2:959-965.
[DEV-58]	De Vries DA. Simultaneous transfer of heat and moisture in porous media. Eos, Transactions, American Geophysical Union. 1958;39:909-916..
[DIJ-04]	Dijkstra JJ, Meeussen JCL, Comans RNJ. Leaching of heavy metals from contaminated soils: an experimental and modeling study. Environmental Science and Technology. 2004;38:4390-4395.
[DUB-56]	Dubois M, Gilles KA, Hamilton JK, Rebers PA, Smith F. Colorimetric method for determination of sugars and related substances. Analytical Chemistry.1956;28:350-356.
[DUP-05]	Dupré B. Contribution à la valorisation des coproduits du lin : étude de l'impact du vécu et de la variabilité génétique sur les propriétés des composites élaborés. Thèse de Doctorat, Université de Picardie Jules Verne, France. 2005.
[DU-14]	Du YJ, Wei ML, Reddy KR, Liu ZP, Jin F. Effect of acid rain pH on leaching behavior of cement stabilized. Journal of Hazardous Materials. 2014;271:131-140.
[ELF-08]	Elfordy S, Lucas F, Tancrét F, Scudeller Y, Goudet L. Mechanical and thermal properties of lime and hemp concrete ("hempcrete") manufactured by a projection process. Construction and Building Materials. 2008;22:2116-2123.
[EN-95]	EN 196-1. Methods of testing cement. Part 1: Determination of strength AFNOR; ISSN 0335-3931. 1995.
[ENG-12]	Engelsen CJ, Wibetoe G, van der Sloot HA, Lund W, Petkovic G. Field site leaching from recycled concrete aggregates applied as sub-base material in road construction. Science of the Total Environment. 2012;86(97): 427–428.
[EPA-16]	EPA, United States Environmental Protection Agency. Acid Rain. [Internet].

RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES

	2016 [consulté le 06/05/2016]. Disponible depuis: HYPERLINK "https://www.epa.gov/acidrain"
[ERI-90]	Eriksson KE, Blanchette RA, Anderson P. Microbial and enzymatic degradation of wood and wood components. Springer-Verlag. 1990 407.
[ESP-06]	Espinosa R, Franke L. Influence of the age and drying process on pore structure and sorption isotherms of hardened cement paste. Cement and Concrete Composites. 2006;36:1969-84.
[EUR-11]	European Council: Construction Products Regulation (CPR) no.305/2011 laying down harmonised conditions for the marketing of construction products and repealing Council Directive 89/106/EEC. 2011.
[FAN-10]	Fan YF, Hu ZQ, Zhang YZ, Liu JL. Deterioration of compressive property of concrete under simulated acid rain environment. Construction and Building Materials. 2010;24:1975-1983.
[FAN-98]	Fang L, Clausen G, Fanger PO. Impact of temperature and humidity on the perception of indoor air quality. Indoor Air. 1998;8:80-90.
[FAO-15]	FAOSTAT. [Internet]. 2015 [consulté le 16/03/2015]. Disponible depuis: HYPERLINK http://faostat3.fao.org/browse/Q/QC/E .
[FIS-16]	Fisheries and Aquaculture Department. FAO Document Repository. [Internet]. 2016 Disponible depuis : HYPERLINK "http://www.fao.org/docrep/006/y5013e/y5013e08.htm"
[FLE-95]	Fletcher PDI, Morris JS. Turbidity of oil-in-water microemulsion droplets stabilised by nonionic surfactants. Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects. 1995;98(1-2):147–154.
[FRI-06]	Fried E. Étude du phénomène d'hydratation et du comportement à la lixiviation des remblais miniers en pâte cimentaire. Thèse de doctorat , Université de Montréal. 2016
[GAR-98]	Garcia-Jaldon C, Dupeyre D, Vignon M. Fibres from semkettled hemp bundles by steam explosion treatment. Biomass and Bioenergy. 1998;14:251-260.
[GIA-02]	Giampaolo C, Lo Mastro S, Poletti A, Pomi R, Sirini P. Acid neutralisation capacity and hydration behaviour of incineration bottom ash–Portland cement mixtures. Cement and Concrete Research. 2002;32:769–775.
[PIA-13]	Pia G, Sanna U. A geometrical fractal model for the porosity and thermal conductivity of insulating concrete. Construction and Building Materials. 2013; 44:551-556.
[GLA-00]	Glass GK , Reddy B , Buenfeld N.R.. Corrosion inhibition in concrete arising from its acid neutralisation capacity. Corrosion Science. 2000;42:1587-1598.
[GLA-08]	Glasser FP, Marchand J, Samson E. Durability of concrete—degradation phenomena involving detrimental chemical reactions. Cement and Concrete Composites. 2008;38:226-246.
[GLA-99]	Glass GK, Buenfeld NR. Differential acid neutralisation analysis. Cement and Concrete Research. 1999;29: 1681–1684.
[GON-09]	Gonzalez-Garcia S, Luo L, Moreira M, Feijoo G, Huppes G. Life cycle assessment of flax shives derived second generation ethanol fueled automobiles in Spain. Renewable and Sustainable Energy Reviews. 2009;13(8):1922-1933.

RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES

[GON-96]	Goni S, Hernadez MS, Guerrero A, Lorentzo MF. Effect of temperature on the leaching performance of a simulated cement-based immobilization system. Calcium and hydroxyl behaviour. Construction and Building Materials. 1996; 10(3):171-117.
[GUS-91]	Gustafsson S, Suleiman B, Saxena N, Haq I. The transient plane source technique: experimental design criteria. Journal of High Temperatures-High Pressures. 1991; 23:289–293.
[HAC-88]	Hachmi M, Campbell A, 1988. Wood cement chemical relationships, Proceedings of the International Conference on Filter and particle boards bonded with inorganic binders. University of Idaho, pp. 24-26.
[HAC-89]	Hachmi M, Moslemi AA. Correlation between wood-cement compatibility and wood extractives. Forest Products Journal. 1989;39(6):55–58.
[HAL-77]	Hall C. Water Movement in Porous Building Materials--I. Unsaturated Flow Theory and its Applications. Building and Environment. 1977;12:117-125.
[HAN-10]	Han Y. Mise au point d'un essai de caractérisation environnementale sur matériau monolithique par percolation ascendante. Thèse de doctorat, Engineering Sciences. Ecole Centrale de Lille. 2010.
[BOS-04]	Bos H. The Potential of Flax Fibres as Reinforcement for Composite Materials. Technische Universiteit Eindhoven. 2004.
[HAR-99]	Hartwell SW, Calovini F. Science Applications International Corporation. Overview of Current Approaches. Proceedings of the Environmental Protection Agency. Public meeting on waste leaching (Session III - Leaching Science). 1999.
[HEW-88]	Hewlett P. Lea's Chemistry of Cement and Concrete. Jordan Hill, Oxford, UK: Elsevier LTD; 1988.
[HIL-09]	Hill C, Norton A, Newman G. Water vapor sorption behavior of natural fibers. Journal of Applied Polymer Science 2009;112(3):1524–37.
[HIL-99]	Hillier SR, Sangha CM, Plunkett BA, Walden PJ. Long-term leaching of toxic trace metals from Portland cement concrete. Cement and Concrete Research. 1999;29: 515–521.
[HIM-94]	Himran S, Suwono A, Mansoori GA. Characterization of alkane and paraffin waxes for application as phase change energy storage medium. Energy Sources 1994 ; 16(1) :117-128.
[HUT-83]	Hutcheon NB, Handegord GO. Building Science for a Cold Climate, National Research Council of Canada. 1983.
[HYC-11]	Hycrete I. hycrete delivering concrete solution. [Internet]. 2011 [consulté le 01/03/2015]. Disponible depuis: HYPERLINK "http://www.hycrete.com/files/documentation/general/ConcreteDurabilityUnderstandingWaterTransportMechanismsinConcrete.pdf"
[IGL-76]	Iglesias HA, Chirife J. BET monolayer values in dehydrated foods components. Food Science and Technology. 1976;9(2):15-113.
[IOA-08]	Ioannou I, Hamilton A, Hall C. Capillary absorption of water and n-decane by autoclaved aerated concrete. Cement and Concrete Research. 2008; 38:766 – 771.
[ISO/FDIS]	ISO/FDIS 10456(E). Building materials and products - Hygrothermal properties -Tabulated design values and procedures for determining declared and

RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES

	design thermal values. 2007.
[ISO-02]	ISO 15148. Performance hygrothermique des matériaux et produits pour le bâtiment -- Détermination du coefficient d'absorption d'eau par immersion partielle. 2002
[IUPAC-85]	IUPAC. International Union of Pure and Applied Chemistry, Reporting Physisorption Data for Gas/Solid Systems with special reference to the determination of surface to the determination of surface area and porosity. Pure and Applied Chemistry. 1985;57(4):603-619.
[JAC-03]	Jacobs A, Palm M, Zacchi G, Dahlman O. Isolation and characterization of water-soluble hemicelluloses from flax shive. Carbohydr Res 2003;338(18):1869–76.
[JAC-10]	Jacques D, Wang L, Martens E, Mallants D. Modelling chemical degradation of concrete during leaching with rain and soil water types. Cement and Concrete Research. 2010;40:1306–1313.
[JAN-08]	Janssen H, Roels S. The dependable characterisation of the moisture buffer potent of interior elements. [Internet]. 2008 [consulté le 07/06/2016]. Disponible depuis : HYPERLINK " http://web.byv.kth.se/bphys/copenhagen/pdf/124-0.pdf "
[JAN-09]	Janssen H, Roels S. Qualitative and quantitative assessment of interior moisture buffering by enclosures. Energy and Buildings. 2009;41:382-394.
[JIM-03]	Jimenez L, Lopez F. Characterization of paper sheets from agricultural residues. Wood and Science technology. 1993;27:468-474.
[JIS-02]	JIS A 1470-1. Test Method of Adsorption/Desorption Efficiency for Building Materials to Regulate an Indoor Humidity – Part 1: Response Method of Humidity. Japanese Standards Association (JSA JIS). 2002 1-12.
[JON-15]	Jonathan P, Boutouil M, Khadraoui F. Etude des propriétés mécaniques d'un béton renforcé par des fibres de lin. Conférence Internationale Francophone NoMaD. 2015.
[KAM-03]	Kamali S. Comportement et simulation des matériaux cimentaires en environnement agressifs: lixiviation et température. Thèse de doctorat, ENS Cachan. 2003.
[KAR-04]	Karus M, Vogt D. European hemp industry: cultivation, processing and product lines. Euphytica. 2004;140(1):7-12.
[KAR-05]	Karade SR, Aggarwal LK. Cement-bonded lignocellulosic composites for building applications. Metals Materials and Processes. 2005;17(2):129-140.
[KAR-06]	Karade SR, Mark I, Kevin M. Influence of granule properties and concentration on cork-cement compatibility. Holz als Roh- und Werkstoff. 2006;64:281–286.
[KAR-10]	Karade SR. Cement-bonded composites from lignocellulosic wastes. Construction and Building Materials. 2010;24:1323-1330.
[KAR-11]	Karade SR. Developments in Cement-Bonded Composite Material Te. Proc. National Seminar on Modern Trends in Architectural and Civil Engineering. Practices, Roorkee, 23-24 Nov. 2011 57-64.
[KHA-07]	Khazma M, Goullieux A, Dheilly R, Quéneudec M. Lignocellulosic light weight concrete: comparison between different coating processes. In: Wang B, Song JH and Abe H, editors. Advances in Eco-materials. ISBN978-

RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES

	1602316-54-3. 2007 143-151.
[KHA-08]	Khazma M. Contribution à l'optimisation de composites cimentaires à base de coproduits du lin : procédés de traitement de la matière végétale et de la matrice ; impact de ces procédés sur les propriétés des composites élaborés. Thèse de doctorat de l'Université de Picardie Jules Verne. 2008. France.
[KHA-08-2]	Khazma M, El Hajj N, Dheilly RM, Goullieux A, Quéneudec M. Influence of sucrose addition on the performance of a lignocellulosic composite with a cementitious matrix, Composites: Part A. Composites: Part A. 2008;39:1901–1908.
[KHA-08-3]	Khazma M, Goullieux A, Dheilly RM, t'Kint M. The use of modified flax shives in cementitious composites and the repercussion of these modifications on their behaviour in the cement matrix. International Conference on Flax and Other Bast Plants. 2008;77:388-398.
[KHA-08-4]	Khazma M, Goullieux A, Dheilly RM, Quéneudec M. Microstructural study to evaluate treatment repercussion on aggregate/cement matrix interface in lightweight concrete. 30th International Conference on Cement Microscopy, Reno, Nevada, USA, ICMA. 2008.
[KHA-11]	Khazma M, Goullieux A, Dheilly RM, Laidoudi B, Quéneudec M. Impact of aggregate coating with a PEC elastomer on properties of lightweight flax shive concrete. Industrial Crops and Products. 2011;33:49–56.
[KHA-12]	Khazma M, Goullieux A, Dheilly RM, Quéneudec M. Coating of a lignocellulosic aggregate with pectin/polyethylenimine mixtures: Effects on flax shive and cement-shive composite properties. Cement and Concrete Composites. 2012;34:223-230.
[KHA-14]	Khazma M, Goullieux A, Dheilly RM, Rougier A, Quéneudec M. Optimization of flax shive-cementitious composites: Impact of different aggregate treatments using linseed oil. Industrial Crops and Products. 2014;61:442–452.
[KIN-99]	Kinniburgh DG, van Riemsdijk WH, Koopal LK, Borkovec M, Benedetti MF, Avena MJ. Ion binding to natural organic matter: competition, heterogeneity, stoichiometry and thermodynamic consistency. Colloids and Surfaces A. Physicochemical and Engineering Aspects. 1999;151:147-167.
[KOL-68]	Kollmann , Côté WAJ. Principles of Wood Science and Technology. Springer-Verlag, Berlin Heidelberg New York. 1968 502.
[KOR-06]	Korpa A, Trettin R. 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 Concret Reserches. 2006;36:634-49.
[KOR-15]	de Korff M, Boyeux B, Blaisse L, Otéro L, Arnaud L, Frey P. Matériaux de construction : retour aux (bio)ressources. Architectures CREE n°373. Novembre 2015 1-24.
[KRU-96]	Krus M. Moisture transport and storage coefficients of porous mineral building materials. Theoretical principles and new test methods. Thèse de doctorat, Stuttgart: Fraunhofer IRB Verlag. 1996.
[KUM-02]	Kumaran MK. A thermal and moisture transport property database for common building and insulating materials. Final Report from ASHRAE

RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES

	Research Project 1018-RP. 2002.
[KUM-94]	Kumaran MK . Temperature dependence of water vapour permeability of glass fiber insulation from heat flow meter measurements. In: First ISHMT-ASME heat and mass transfer conference. 1994 645-51.
[KUN-95]	Künzel HM. Simultaneous heat and moisture transport in building components. One- and two-dimensional calculation using simple parameters. Thèse de doctorat, Stuttgart: Fraunhofer Institute of Building Physics. 1995.
[LED-00]	Ledhem A, Dheilly RM, Queneudec M. Reuse of waste oils in the treatment of wood aggregates. Waste Management. 2000;20:321-326.
[LEL-15]	LE LIN. [Internet]. 2015 [consulté le 05/05/2015]. Disponible depuis: http://www7.inra.fr/lin/index.htm .
[LEN-01]	Le Ngoc Huyen T, Quéneudec T'Kint M, Remond C, Chabbert B, Dheilly RM. Saccharification of Miscanthus x giganteus, incorporation of lignocellulosic by-product in cementitious matrix. Comptes Rendus Biologies. 2001;334(11):837.e1–837.e11.
[LEO-98]	Leon Y Leon CA. New perspectives in mercury porosimetry. Advanced in Colloid and Interface Science. 1998;76-77:341-372.
[LIH-15]	Lihua Z, Jun D, Guoliang B, Fengjian Z. Study on thermal properties of recycled aggregate concrete and recycled concrete blocks. Construction and Building Materials. 2015; 94:620-628.
[LIP-05]	Lips SJJ, Elbersen HW. European Non-Food Agriculture Enfa, WP 26, Annual fibre crop system, department Fibre and Paper technology. [Internet]. 2005 [consulté le 09/11/2015]. Disponible depuis : HYPERLINK https://www.fnu.zmaw.de/fileadmin/fnu-files/projects/enfa/hamburg05/Lips_ENFA_2005_kick_off_May_2005.pdf .
[LUC-02]	Lucas F, Adelard L, Garde F, Boyer H. Study of moisture in buildings for hot humid climates. Energy and Buildings. 2002;34:345–355.
[LUP-14]	Lupsea M, Tiruta-Barna L, Schiopu N. Leaching of hazardous substances from a composite constructionproduct – An experimental and modelling approach for fibre-cement sheets. Journal of Hazardous Materials. 2014;264:236-245.
[MAK-12]	Makhloufi Z, Kadri EH, Bouhicha M, Benaissa A, Bennacer R. The strength of limestone mortars with quaternary binders: Leaching effect by demineralized water. Construction and Building Materials. 2012;36:171-181.
[MAR-06]	Mariela N. Matos Reyes, Reinaldo C. Campos. Determination of copper and nickel in vegetable oils by direct sampling graphite furnace atomic absorption spectrometry. Talanta. 2006;70(5):929-932.
[MAT-05]	Matice-INSA de Lyon. Comportement à la Lixiviation. [Internet]. 2005 [consulté le 15/09/2015]. Disponible depuis : HYPERLINK http://tice.insa-lyon.fr/lixiviation/index.php?active=2 .
[MBO-04]	Mboumba Mamboundou B. Analyse des facteurs de risques liés à l'incorporation des pulpes de betterave dans des matrices cimentaires. Thèse de Doctorat, Université de Picardie Jules verne, Amiens, France. 2004.
[MCG-14]	McGregor F, Heath A, Fodde E, Shea A. Conditions affecting the moisture buffering measurement performed on compressed earth blocks. Building and Environment. 2014;75:11-18.

RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES

[MEN-04]	Menz FC, Seip HM. Acid rain in Europe and the United States: an update. <i>Environmental Science and Policy</i> . 2004;7:253-265.
[MOH-05]	Mohr BJ, Nanko H, Kurtis KE. Durability of kraft pulp fiber-cement composites to wet/dry cycling. <i>Cement and Concrete Composites</i> . 2005;27:435-448.
[MOH-08]	Mohnen D. Pectin structure and biosynthesis. <i>Current Opinion in Plant Biology</i> . 2008;11:266-277.
[MON-07]	Monreal P. Etude de faisabilité de bétons lignocellulosiques à base de pulpe de betterave, traitements physico-chimique des granulats et évaluation de l'influence sur les performances mécaniques, hydriques et thermiques. Thèse de doctorat, Université de Picardie Jules Verne. 2007.
[MON-11]	Monreal P, Mboumba-Mamboundou LB, Dheilily RM, Quéneudec M. Effects of aggregate coating on the hygral properties of lignocellulosic composites. <i>Cement and Concrete Composites</i> . 2011;33(2):301-308.
[MOR-08]	Moreau C. Vieillissement naturel en milieu urbain de pierres calcaires hydrofugees : evaluation de la durabilite des traitements et de leur impact sur le nettoyage. Thèse de doctorat, Ecole Doctorale Sciences, Technologies, Sante, Université De Reims Champagne-Ardenne. 2008.
[MOU-00]	Moudilou E. cinetiques et mecanismes de relargage des metaux lourds presents en traces dans les matrices cimentaires. Thèse de doctorat, Université de d'Orleans. 2000.
[MOU-99]	Mouret M, Bascoul A, Escadeillas G. Microstrutural features of concrete in relation to initial temperature - SEM and ESEM characterization. <i>Cement and Concrete Research</i> . 1999; 29:369-375.
[MUL-12]	Mullauer W, Beddoe RE, Heinz D. Effect of carbonation, chloride and external sulphates on the leaching behaviour of major and trace elements from concrete. <i>Cement and Concrete Composites</i> . 2012;34 :618-626.
[MUN-15]	Muñoz E, García-Manrique JA. Water Absorption Behaviour and Its Effect on the Mechanical Properties of Flax Fibre Reinforced Bioepoxy Composites. <i>International Journal of Polymer Science</i> . 2015, Article ID 390275, 10 p, http://dx.doi.org/10.1155/2015/390275 .
[NEN-95]	NEN 7341. Leaching characteristics of solid (earthy and stoney) building and waste materials, leaching tests, determination of the availability of inorganic components for leaching. Delft, Netherlands. 1995.
[NEW-17]	Newton Friend J. The chemistry of linseed oil. London: Gurney and Jackson; 1917.
[NF EN 01]	NF EN ISO 12572. Performance hygrothermique des matériaux et produits pour le bâtiment - Détermination des propriétés de transmission de la vapeur d'eau. Octobre 2001.
[NF EN 04]	NF EN 771-3. Specification for masonry units - Part 3: Aggregate concrete masonry units (Dense and light-weight aggregates). AFNOR, France. 2004.
[NF EN 02]	NF EN 12457, (1-4). Caractérisation des déchets - Lixiviation - Essai de conformité pour lixiviation des déchets fragmentés et des boues. Décembre 2002.
[NF EN15]	NF EN 14429. Caractérisation des déchets - Essais de comportement à la lixiviation - Influence du pH sur la lixiviation avec ajout initial d'acide/base.

RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES

	2015.
[NF EN 06]	NF EN 480-5. Adjuvants pour béton, mortier et coulis - Méthodes d'essai - Partie 5 : détermination de l'absorption capillaire. Janvier 2006.
[NFC-05]	NF CEN/TS 14405. Caractérisation des déchets - Essai de comportement à la lixiviation - Essai de percolation à écoulement ascendant (dans des conditions spécifiées). Juillet 2005
[NF EN 08]	NF EN 1008. Eau de gâchage pour bétons - Spécifications d'échantillonnage, d'essais et d'évaluation de l'aptitude à l'emploi, y compris les eaux des processus de l'industrie du béton, telle que l'eau de gâchage pour béton. Juillet 2003.
[NFP-94]	NF P15-433. Méthodes d'essais des ciments - Détermination du retrait et du gonflement. Février 1994.
[NIL-05]	Nilsson D, Svennerstedt B, Wretfors C. Adsorption equilibrium moisture contents of flax straw, hemp stalks and reed canary grass. Biosystems Engineering. 2005;91(1):35-43.
[NOR-16]	Normand L. Caractérisation multicritères des pailles de lin. Amiens : Rapport de Stage, Laboratoire EPROAD ; 2016.
[NOZ-12]	Nozahic V, Amziane S. Influence of sunflower aggregates surface treatments on physical properties and adhesion with a mineral binder. Composites: Part A. 2012;43:1837–1849.
[NOZ-12-2]	Nozahic V. Vers une nouvelle démarche de conception des bétons de végétaux lignocellulosiques basée sur la compréhension et l'amélioration de l'interface liant/végétal. Thèse de doctorat, Université Blaise Pascal – Clermont II. 2012.
[OLO-09]	Olorunnisola AO. Effects of husk particle size and calcium chloride on strength and sorption properties of coconut husk–cement composites. Industrial Crops and Products. 2009;2-3:495–501.
[OLU-10]	Olubay K. Durability of Chemically Treated Flax Fibre in concrete pore water solution. Technical Report, Department of Civil and Geological Engineering, University of Saskatchewan. 2010.
[OSA-04]	Osanyintola OF, Simonson CJ. Moisture buffering capacity of hygroscopic building materials: experimental facilities and energy impact. Energy and Building. 2006;38(10):1270-1282.
[OSS-04]	Osset P, Grisel P. L'analyse du cycle de vie d'un produit ou d'un service - Applications et mise en pratique. Paris : Ed. AFNOR, ISBN 2124750917. 2004 358.
[PAR-77]	Parameswaran VR, Broker FW, Simatupang MH. Microtechnological studies on mineral bonded wood composites: Interactions between binders and wood. Holzforschung. 1977;31(6):173-178.
[PAR-86]	Park GS. Transport principles - solution, diffusion and permeation in polymer membranes. NATO ASI Series. 1986;181:57-107.
[PCA-92]	PCA Kiln Dust Task Force. An analysis of selected trace metals in cement and kiln dust, Portland Cement Association. SP 109T. 1992.
[PEY-08]	Peyronnard O. Apports méthodologiques pour la modélisation du comportement à la lixiviation de résidus minéraux. Applications aux solidifiés de boues d'hydroxydes métalliques. Thèse de doctorat, Institut National des Sciences Appliquées de Lyon. 2008.

RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES

[PHI-57]	Phillip JR, de Vries DA. Moisture Movement in Porous Media Under Temperature Gradients. Transactions of the American Geophysical Union. 1957;38:222-232.
[PIM-94]	Pimienta P, Chandellier J, Rubaud M, Dutruel F, Nicole H. Étude de faisabilité des procédés de construction à base de béton de bois. cahiers du CSTB (2703). 1994.
[POP-12]	Popa VM, Gruia A, Raba DN, Dumbrava D, Moldovan C, Bordean D, Maleescu C. Fatty acids composition and oil characteristics of linseed (<i>Linum Usitatissimum</i> L.) from Romania. Journal of Agroalimentary Processes and Technologies. 2012;18(2):136-140.
[POP-87]	Popovics S. Attempts to improve the bond between cement paste and aggregate. Materials and Structures. 1987;20:32-38.
[POY-09]	Poyet S. Experimental investigation of the effect of temperature on the first desorption isotherm of concrete. Cement and Concrete Composites 2009;39:1052-59.
[RAH-15]	Rahim M, Douzane O, Tran Le AD, Promis G, Laidoudi B, Crigny A, Dupre B, Langlet T. Characterization of flax lime and hemp lime concretes: Hygric properties and moisture buffer capacity. Energy and Buildings. 2015;88:91-99.
[RAM-92]	Ramachandran VS, Lowery MS. Conduction calorimetric investigation of the effect of retarders on the hydration of Portland cement. Thermochemica Acta. 1992;195:373-387.
[RILEM-75]	RILEM Recommendation (1975) n°10.2 et n°4.
[RILEM-78]	RILEM Committee. Functional Classification of Lightweight Concrete. Recommendation LC 2 11. 1978 281-283.
[ROC-87]	Rockland LB, Beuchat LR. Water activity : theory and applications to food. New-York: New York : M. Dekker; 1987.
[ROD-05]	Rode C, Peuhkuri R, Lone H, Gustavsen A, Ojanen T, Ahonen J, Sven K. Moisture Buffering of Building Materials. Nordic Innovation Centre Report: BYG-DTU R-126. ISSN. 2005 1601-2917.
[ROD-07]	Rode C, Peuhkuri R, Time B, Svennberg K, Ojanen T. Moisture buffer value of building materials. Journal of ASTM international. 2007;4(5):1-12.
[ROD-08]	Rode C, Grau. Moisture buffering and its consequence in whole building hygrothermal modeling. Journal of Building Physics. 2008;31(4):333-360.
[ROE-05]	Roels S, Janssen H. Is the moisture buffer value a reliable material property to characterise the hygric buffering capacities of building materials? Conference paper, Laboratory of Building Physics, K.U.Leuven, Belgium. 2005.
[ROE-10]	Roels S, Talukdar P, James C, Simonson CJ. Reliability of material data measurements for hygroscopic buffering. International Journal of Heat and Mass Transfer. 2010;53:5355–5363.
[ROW-88]	Rowell RM. Can the Cell Wall be Stabilized?, in, Stabilization of the Cell Wall. Suchsland, Otto, ed. Wood Science seminar 1. 1988 53-63.
[SAH-94]	Saha SK, Brewer GF. Determination of the concentrations of oligosaccharides complex types carbohydrates and glycoproteins using the phenol-sulfuric acid method. Carbohydrate Research. 1994;17(254):157-167.

RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES

[SAI-02]	Sain M, Fortier D. Flax shives refining, chemical modification and hydrophobisation for paper production. <i>Industrial Crops and Products</i> . 2002;15(1):1-13.
[SAI-92]	Saito H, Nakane S, Ikari S, Fujiwara A. Preliminary experimental study on the deterioration of cementitious materials by an acceleration method. <i>Nuclear Engineering and Design</i> 1992;138(2):151-155.
[SAK-93]	Sakai T, sakamoto T, Hallaert J, Vandamme EJ. Pectin, pectinase and protopectinase : production proprieties and applications. <i>Advance in Applied Microbiology</i> . 1993;30:231-294.
[SAN-00]	Sankari HS. Linseed (<i>Linum usitatissimum</i> L.) Cultivars and Breeding Lines as Stem Biomass Producers. <i>Journal of Agronomy and Crop Science</i> . 2000:235-231.
[SAR-71]	Sarkanen KV, Ludwing CH. Definition and nomenclature in lignins occurrence, formation and reaction. Edition Wiley Interscience. 1971 11-18.
[SAV-03]	Savastano H, Wardenb PG, Coutts RS. Potential of alternative fibre cements as building materials for developing areas. <i>Cement and Concrete Composite</i> . 2003;25:585-592.
[SCH-09]	Schiopu N, Tiruta-Barna L, Jayr E, Méhu J, Moszkowicz P. Modelling and simulation of concrete leaching under outdoor exposure conditions. <i>Science of the Total Environment</i> . 2009;407: 1613–1630.
[SCH-10]	Scheller H, Ulvskov P. Hemicelluloses. <i>Annu Rev Plant Biol</i> . 2010;61:263-289.
[SED-02]	Sedlbauer K. Prediction of mould growth by hygrothermal calculation. <i>Journal of Thermal Envelope and Building Science</i> . 2002;25:321-335.
[SHE-05]	Sehlstedt-Persson M. Properties of Solid Wood: Responses to Drying and Heat Treatment. Licentiate Thesis, Lulea University of Technology, Division of Wood Science and Technology. 2005.
[SIE-11]	Sierra-Beltran MG. Ductile Cement-Based Composites With Wood Fibres. Thèse de doctorat, Delft: TU-Delft. 2011.
[SIM-02]	Simonson CJ, Salonvaara M, Ojanen T. The effect of structures on indoor humidity possibility to improve comfort and perceived air quality. <i>Indoor Air</i> . 2002;12:243–251.
[SIM-04]	Simonson CJ, Salonvaara M, Ojanen T. Heat and mass transfer between indoor air and a permeable and hygroscopic building envelope: Part I -Field Measurements. <i>Journal of Thermal Envelope and Building Science</i> . 2004;28(1):63-101.
[SLA-09]	Slanina P. Moisture transport in compact flat roofs. PhD thesis, Czech Technical University in Prague. 2009.
[SOL-14]	Solpuker U, Sheets J, Kim Y, Schwartz FW. Leaching potential of pervious concrete and immobilization of Cu, Pb and Zn using pervious concrete. <i>Journal of Contaminant Hydrology</i> . 2014;161:35-48.
[SOL-51]	Solomon ME. The control of humidity with potassium hydroxyde, sulfuric acid, or other solutions. <i>Bulletin of Entomological Research</i> . 1951;42:543-554.
[SUK-06]	Sukhdeo R, Irle M, Maher K. Influence of granule properties and concentration on cork-cement compatibility. <i>Holz als Roh und Werkstoff</i> .

RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES

	2006;64:281-286.
[TAY-97]	Taylor HFW. Cement chemistry, Second edition, Thomas Telford edition published. 1997.
[TEO-07]	Teo DC, Mannan MA, Kurian VJ, Ganapathy C. Lightweight concrete made from oil palm shell (OPS): structural bond and durability properties. Building and Environment. 2007;42(7): 2614–2621.
[THF-14]	The Flax Council of Canada. The Flax Council of Canada-GROWING FLAX. [Internet]. 2014 [consulté le 25/05/2014]. Disponible depuis : http://www.flaxcouncil.ca/english/index.jsp?p=growing12&mp=growing .
[TIM-03]	Timmermann E. Multilayer sorption parameters: BET or GAB values? Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects. 2003;220:235–60.
[TOF-98]	Toftum J, Jorgensen AS, Fanger PO. Upper limits for indoor air humidity to avoid uncomfortably humid skin. Energy and Buildings. 1998;28:1-13.
[TOF-98-2]	Toftum J, Jorgensen AS, Fanger PO. Upper limits of air humidity for preventing warm respiratory discomfort. Energy and Buildings. 1998;28:15-23.
[TOL-00]	Tolêdo Filho RD, Scrivener K, England G. L. GGL, Ghavami K. Durability of alakali-sensitive sisal and coconut fibres in cement composites. Cement and Concrete Composites. 2000;22(2):127-143.
[TOR-08]	Torrenti JM, Nguyen VH, Colina H, Le Maou , Benboudjema , Deleruyelle F. Coupling between leaching and creep of concrete. Cement and Concrete Reseaches. 2008;38:816.
[TRA-10]	Tran Le AD. Etude des transferts hygrothermiques dans le béton de chanvre et leur application au bâtiment (sous titre: simulation numérique et approche expérimentale). Thèse de doctorat, Université de Reims - Champagne Ardenne, 2010. France.
[TRA-10-2]	Tran Le AD, Maalouf C, Mai TH, Wurtz E, Collet F. Transient hygrothermal behaviour of a hemp concrete building envelope. Energy and Buildings. 2010;42(10):1797–1806.
[TRI-10]	Tribout C. Valorisation de sédiments traités en techniques routières : contribution à la mise en place d'un protocole d'acceptabilité. Thèse de doctorat, Mécanique, Energétique, Génie Civil, Procédés, Université de Toulouse. 2010.
[TVE-66]	Tveit A. Measurements of moisture sorption and moisture permeability of porous materials. Oslo: Norwegian building research institute. 1966.
[ULM-03]	Ulm FJ, Lemarchand E, Heukamp FH. Elements of chemomechanics of calcium leaching of cement-based materials at different scales. Journal of Engineering Fracture Mechanics. 2003;70(7-8):871-889.
[UMU-14]	Umurigirwa BS, Maalouf C, Ali H, Ton Hoang M. Etude numérique et expérimentale du comportement hygrothermique d'un agro-composite à base de fibres de chanvre et d'amidon de blé. Conférence IBPSA France-Arras. 2014.
[UMU-14-2]	Umurigirwa BS. Élaboration et caractérisation d'un agromatériau chanvre-amidon pour le Bâtiment. Thèse de doctorat, Ecole doctorale Sciences, technologies, santé (Reims, Marne). 2014.

RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES

[VAN-01]	Van der Sloot HA. European Activities on Harmonisation of Leaching/Extraction Tests and Standardisation in Relation to the Use of Alternative Materials in Construction. CN-RX-01-045, 13 p, International Conference on Materials for Advanced Technologies, Singapore. 2001.
[VAN-02]	Van der Sloot HA. Characterization of the leaching behaviour of concrete mortars and of cement–stabilized wastes with different waste loading for long term environmental assessment. Waste Management. 2002;22:181-186.
[VAN-04]	Van der Sloot HA, Dijkstra JJ. Development of horizontally standardized leaching test for construction materials : a material based or release based approach? Identical leaching mechanisms for different materials. ECN-C--04-060. 2004.
[VAN-91]	Van Breugel K. Simulation of hydration and formation of structure in hardening cement- based materials. Delft, Thèse de doctorat. 1991.
[VAN-95]	Van der Sloot HA, Hoede D, de Groot GJ, van der Wegen GJL, Hoede D, Groot GJd, Quevauviller PH. Intercomparison of leaching tests for stabilized waste. Commission of the European Communities. EUR 16133 EN. 1995.
[VAN-96]	Van der Sloot H.A.. Developments in evaluating environmental impact from utilization of bulk inert wastes using laboratory leaching tests and field verification. Waste Management. 1996;16(1-3):65-81.
[VAN-97]	Van der Sloot HA, Heasman L, Quevauviller PH. Harmonization of leaching/extraction tests. Ph, editors. Studies in Environmental Science, Amsterdam: Elsevier Science. 1997;70:1-281.
[VRA-07]	Vrána T. Impact of moisture on long term performance of insulating products based on stone wool. KTH – The Royal Institute of Technology School of Architecture and the Built Environment Div. Of Building Technology, Licentiate Thesis, Stockholm. 2007.
[WAL-14]	Walker R, Pavía S. Moisture transfer and thermal properties of hemp–lime concretes. Construction and Building Materials. 2014;64:270-276.
[WAN-09]	Wang L, Martens E, Jacques D, De Cannière P, Berry J, Mallants D. Review of Sorption Values for the Cementitious Near Field of a Near Surface Radioactive Waste Disposal Facility. NIROND-TR 2008-23E. 2009.
[WHI-13]	Whitten K, Davis R, Peck A, Stanley G. Chemistry. 10th ed. Mry Finch; 2013.
[WIL-21]	Wilson RE. Humidity control by means of sulfuric acid solutions with critical compilation of vapor pressure data. Journal of Industrial and Engineering Chemistry. 1921;13(4) 326-331.
[WOL-99]	Wolfe RW, Gjinolli A. Durability and strength of cement bonded wood particle composites made from construction waste. Forest Products Journal. 1999;49(2):24-31.
[XIE-11]	Xie Y, Hill CAS, Jalaludin Z,. Curling SF, Anandjiwala RD, Norton AJ, Newman G. The dynamic water vapour sorption behaviour of natural fibres and kinetic analysis using the parallel exponential kinetics model. Journal of Materials Science. 2011;46:479–489.
[YAN-12]	Yang H, Jiang L, Zhang Y, Pu Q, Xu Y. Predicting the calcium leaching behavior of cement pastes in aggressive environments. Construction and Building Materials. 2012;29:88-96.

RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES

[YEW-14]	Yew MK, Mahmud H, Ang BC, Yew MC. Effects of heat treatment on oil palm shell coarse aggregates for high strength lightweight concrete. <i>Materials and Design</i> . 2014;54:702-707.
[YUL-12]	Yuliansyah AT, Tsuyoshi H. Efficacy of Hydrothermal Treatment for Production of Solid Fuel from Oil Palm Wastes. dans <i>Resource Management for Sustainable Agriculture</i> , Dr. Vikas Abrol (Ed.), InTech, DOI: 10.5772/50581. Disponible depuis : http://www.intechopen.com/books/resource-management-for-sustainable-agriculture/efficacy-of-hydrothermal-treatment-for-production-of-solid-fuel-from-oil-palm-wastes
[ZIM-85]	Zimbelmann R. A contribution to the problem of cement-aggregate bond. <i>Cement and Concrete Researches</i> 1985; 15(5):801-808.
[ZIM-87]	Zimbelmann R. A method for strengthening the bond between cement stone and aggregates. <i>Cement and Concrete Research</i> . 1987;17(4):651-660.

GLOSSAIRE

ABSORPTION : rétention d'un composé à l'intérieur d'un solide.

ADSORPTION : phénomène par lequel des solides ou des solutions retiennent à leur surface des molécules en phase gazeuse ou liquide.

AGROMATERIAU : matériau issu d'agro-ressources.

AGRORESSOURCE : matière première issue de l'agriculture.

ANAS : petits fragments de tige de lin obtenus comme coproduits du teillage.

BETON : matériau composite comportant une phase continue (la matrice), une phase discontinue (les granulats), voire des adjuvants.

BETON LIGNOCELLULOSIQUE : béton dont la phase discontinue est constituée de granulats composés de lignine, hémicellulose et cellulose (composants de la paroi des cellules végétales).

CELLULOSE : glucide de la famille des fibres alimentaires (non digestible par l'homme), présent dans la composition de la paroi des cellules végétales.

CHAUX : corps minéral obtenu par calcination du calcaire, sans ajout.

CONDUCTIVITE ELECTRIQUE : grandeur correspondant à l'aptitude d'un corps à laisser les charges électriques se déplacer librement, permettant le passage d'un courant électrique. La conductivité électrique s'exprime en μS .

CONDUCTIVITE THERMIQUE : grandeur correspondant à la quantité de chaleur transférée par unité de surface et par unité de temps, sous l'action d'une différence de température entre les deux extrémités d'un échantillon. La conductivité thermique s'exprime en W/mK .

EAU DEMINERALISEE : eau qui ne contient plus d'ions minéraux dissous.

ELLIX : logiciel d'analyse informatique d'images produit par la société GT VISION.

EMULSION : mélange de deux liquides, habituellement non miscibles, grâce à certaines actions (mélange, agitation, etc.). Ces liquides donnent un mélange macroscopiquement homogène, mais microscopiquement hétérogène.

ENROBAGE : procédé consistant à appliquer une couche de liquide ou de poudre sur la surface d'un corps afin que ce dernier dispose des propriétés de son enrobage.

ESSAI DE COMPRESSION : essai réalisé avec une presse par écrasement d'un cylindre d'échantillon placé à la verticale. On peut en déduire la valeur de la force nécessaire à la compression.

FILTRATION : procédé de séparation des constituants d'un mélange, contenant une phase liquide et une phase solide. La séparation se fait à travers un milieu poreux.

GRANULAT : constituant inerte d'un béton. Selon sa dimension, le granulats est qualifié de caillou, gravillon, ou sable.

GRANULOMETRIE : étude de la distribution statistique des tailles d'une population de particules.

GONFLEMENT : augmentation du volume d'un corps.

HEMICELLULOSE : glucide insoluble proche de la cellulose, qui entre dans la composition de la paroi des cellules végétales.

HUILE DE LIN : huile de couleur jaune, obtenue à partir des graines mûres de lin pressées.

LIGNINE : polymère qui fait partie, avec la cellulose et l'hémicellulose, des principaux constituants du bois.

LIN : plante du genre *Linaceae*, comptant plus de 200 espèces. Cette plante pourrait entrer dans la composition de bétons lignocellulosiques, pour remplacer le béton « classique » et adopter une attitude plus respectueuse de l'environnement.

LIXIVIATION : phénomène permettant de récupérer un ou plusieurs éléments en faisant passer lentement un lixiviant à travers un solide. Le lixiviat, liquide produit par l'opération de lixiviation, peut être traité pour en extraire des substances dissoutes.

MALAXAGE : phase au cours de laquelle sont mélangés les divers constituants de bétons.

MALAXEUR : machine servant à fabriquer du béton, comportant une cuve équipée de pales tournant sur un axe le plus souvent vertical.

MASSE VOLUMIQUE APPARENTE : masse d'un échantillon par unité de volume total (le volume des vides entre les particules est pris en compte).

MASSE VOLUMIQUE REELLE : masse d'un échantillon par unité de volume (seul le volume des particules est pris en compte, le volume des vides au sein des particules n'est pas pris en compte).

MORPHOLOGIE : étude de la forme externe et de la structure d'un être vivant.

PARAFFINE : distillat issu du raffinage du pétrole.

PECTINE : polysaccharide hydrophile présent dans la paroi des cellules végétales.

pH : échelle de mesure logarithmique de la concentration aqueuse en H_3O^+ et HO^- . Le pH est compris entre 1 (maximum d'acidité) et 14 (maximum d'alcalinité). A pH=7, la concentration en H_3O^+ et OH^- est égale (neutralité).

POLYSACCHARIDE : macromolécule glucidique formée par enchaînement d'un grand nombre de sucres élémentaires. La cellulose, l'hémicellulose et les pectines sont des polysaccharides constitutifs de la paroi des cellules végétales.

PRISE DU BETON : réaction physico-chimique du ciment en présence d'eau, permettant aux particules inertes de se souder les unes aux autres et de former une structure solide et cohérente, le béton.

TEILLAGE : opération mécanique qui permet de séparer les fibres de lin de la partie ligneuse de la tige.

TPS : *Transient Plane Source*, sonde utilisée pour la mesure des propriétés thermiques des matériaux.

TURBIDITE : teneur d'un fluide en matières qui le troublent. La turbidité s'exprime en NTU (*Nephelometric Turbidity Unit*, soit Unité de Turbidité Néphélométrique).

ANNEXES

ANNEXES

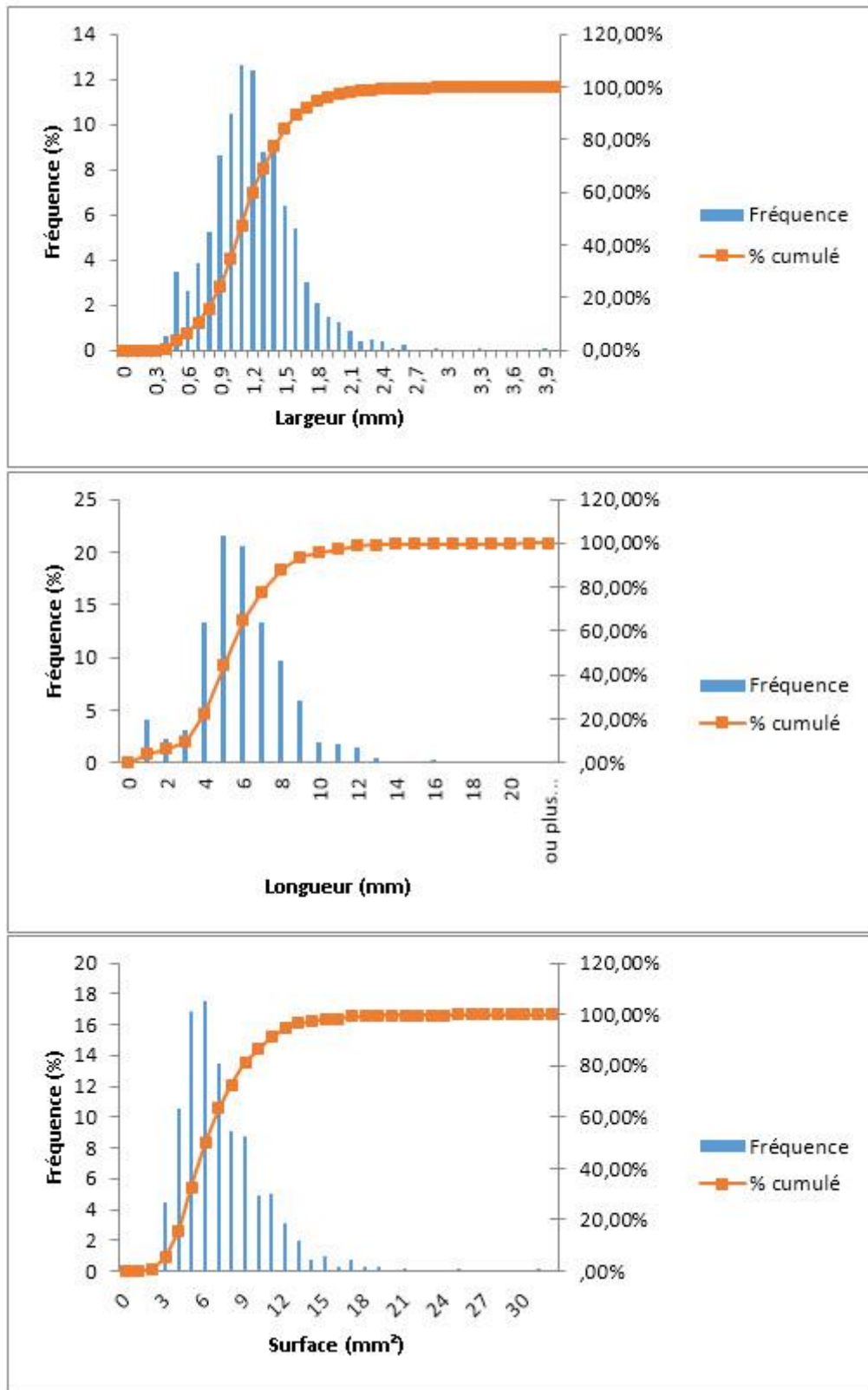
ANNEXE I: DISTRIBUTION MORPHOLOGIQUE DES ANAS TRAITÉS

ANNEXE II: CHROMATOGRAPHIE IONIQUE METROHM 883 BASIC IC PLUS

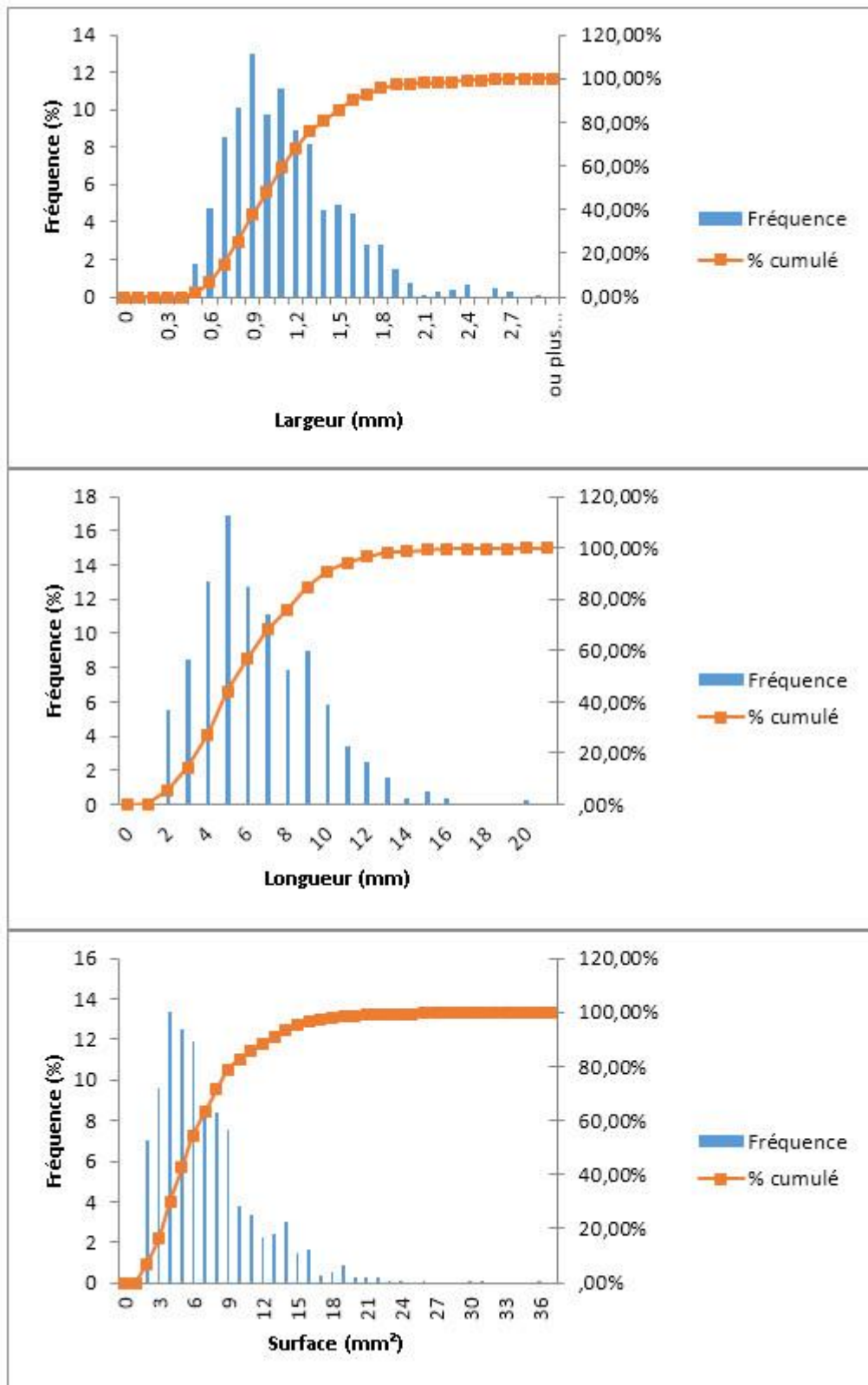
ANNEXE III: SPECTROPHOTOMÈTRE SÉRIE 67

ANNEXE I : DISTRIBUTION MORPHOLOGIQUE DES ANAS TRAITÉS

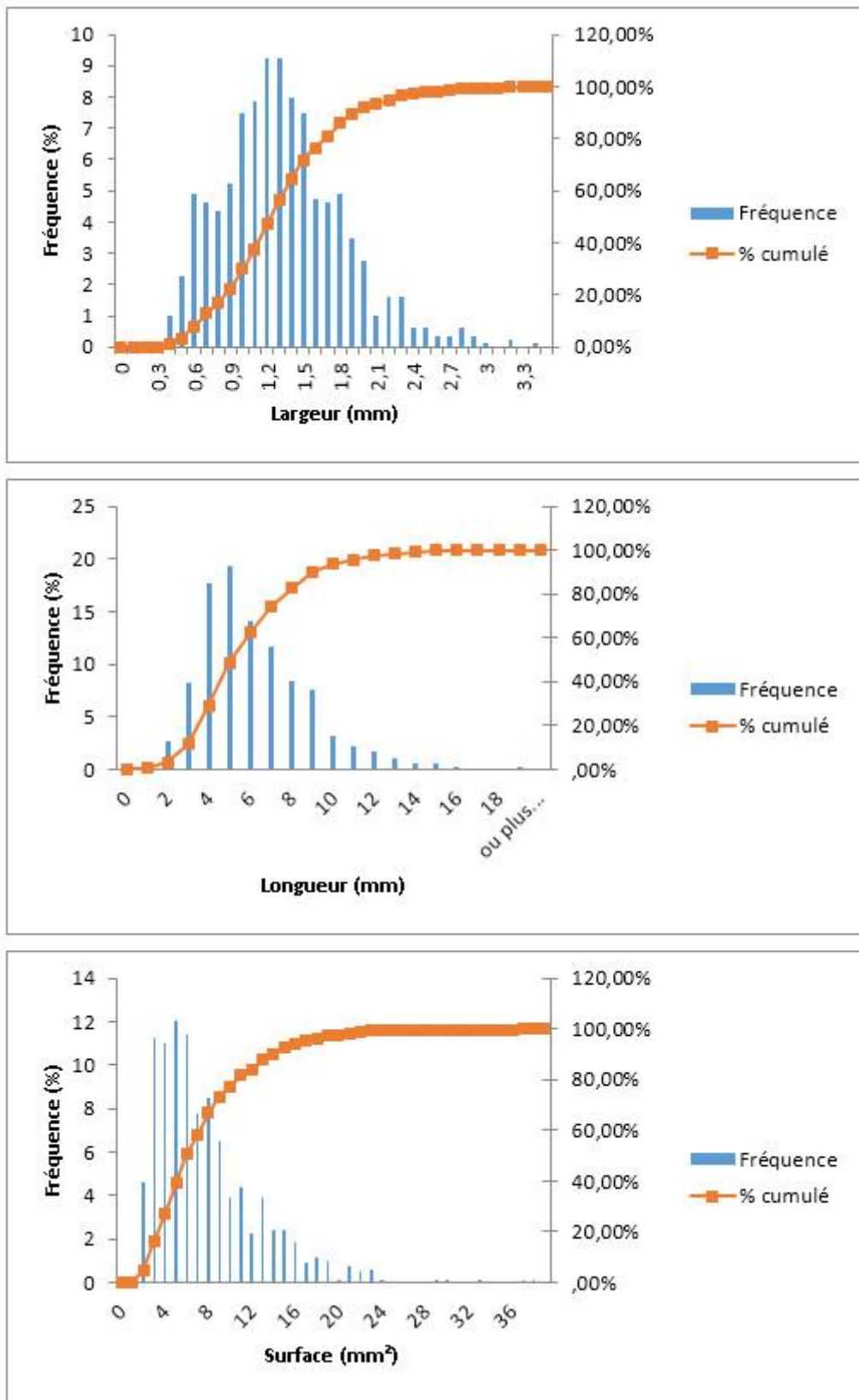
I.1. Distribution morphologique des anas traités à la chaux



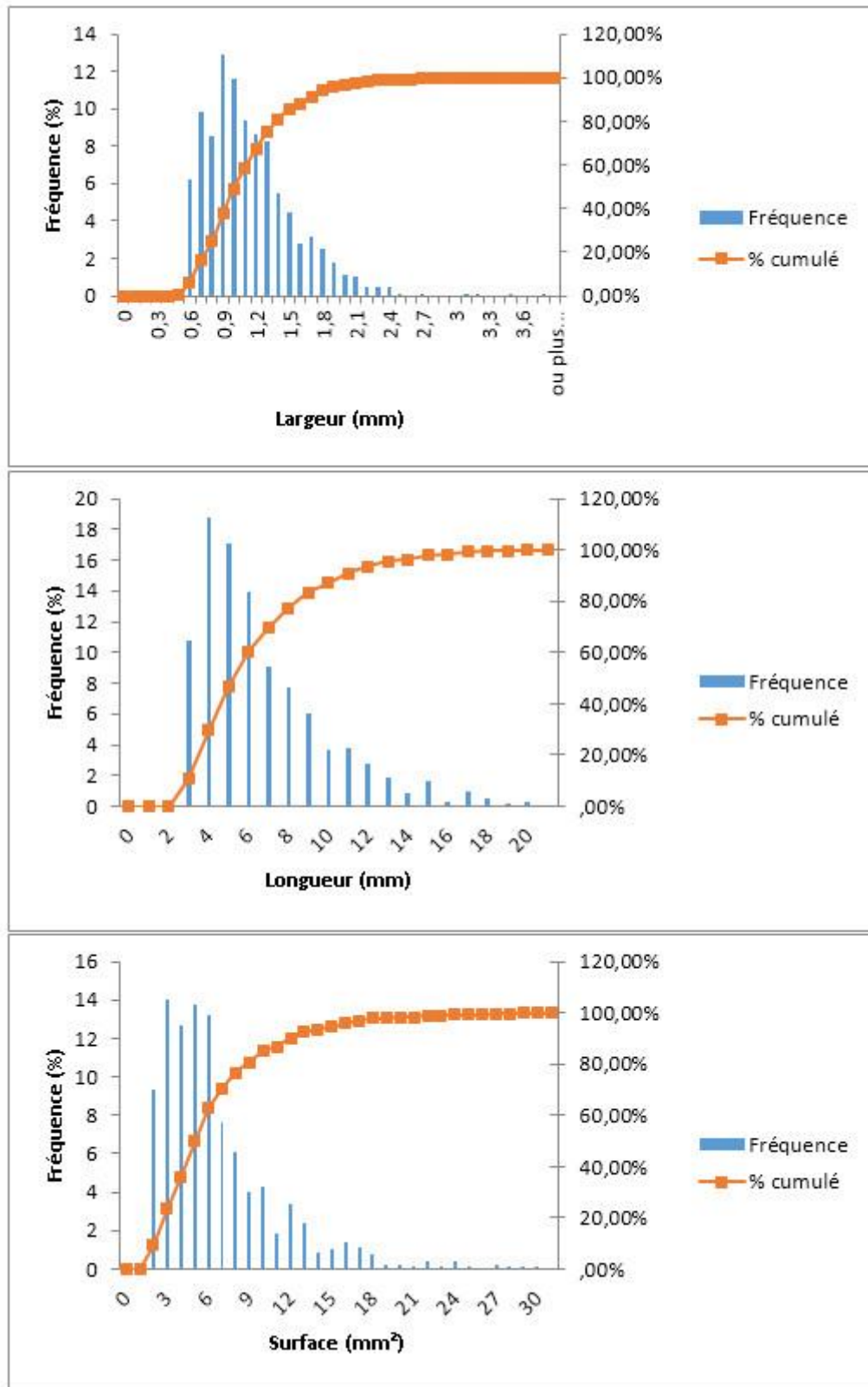
I. 2. Distribution morphologique des anas traités par l'émulsion



I. 3. Distribution morphologique des anas traités à l'huile de lin



I. 4. Distribution morphologique des anas traités à la paraffine



ANNEXE II. CHROMATOGRAPHIE IONIQUE**Metrohm 883 Basic IC Plus**

L'équipement utilisé est un appareil de chromatographie ionique destiné à l'analyse des ions en solutions tels que les nitrates, fluorures ...

L'instrument est automatisé par le logiciel Magic Net Basic connecté à un ordinateur. Le logiciel détecte l'équipement automatiquement, vérifie son bon fonctionnement et donne les résultats d'analyses (temps d'analyse, temps de rétention et concentration des ions).

La Chromatographie ionique (CI) est une technique qui s'apparente à la chromatographie liquide haute performance (HPLC). La phase mobile est constituée par un milieu aqueux ionique et la phase stationnaire par un solide qui joue le rôle d'échangeur d'ions. On utilise comme détecteur un conductimètre avec cellule à circulation, ce qui constitue une méthode de détection sensible et très générale pour toutes les espèces ionisées.

La séparation des ions ou composés polaires présents dans l'échantillon sont entraînés par la phase mobile, résulte de leurs interactions avec les sites ioniques de la phase stationnaire.

La détection des composés ioniques de l'échantillon est rendue difficile par suite de leur faible concentration au sein de la phase aqueuse chargée d'une grande quantité d'ions. La méthode utilisée consiste à abaisser au maximum la conductivité de l'effluent de la colonne de séparation avant son passage dans le détecteur en plaçant entre les deux un « suppresseur » qui a pour but d'éliminer les ions de l'éluant par réaction de type acido-basique.

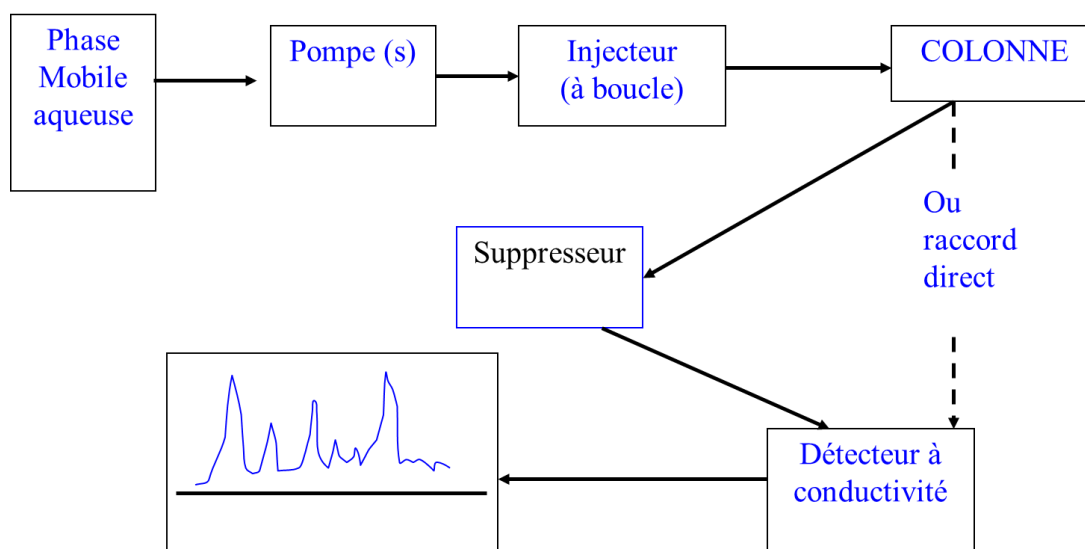


Figure : mode de fonctionnement d'une chromatographie ionique

La chromatographie ionique est devenue depuis quelques années une des méthodes analytiques de références en analyse des eaux. Comme tout système de chromatographie, cette dernière comprend les éléments suivants :

- un système d'injection, le plus souvent une vanne réodyne ;
- une pompe de circulation ;
- une colonne de séparation, spécifique des éléments à analyser ;
- un éluant qui assure le transport des espèces ;
- un système de détection.

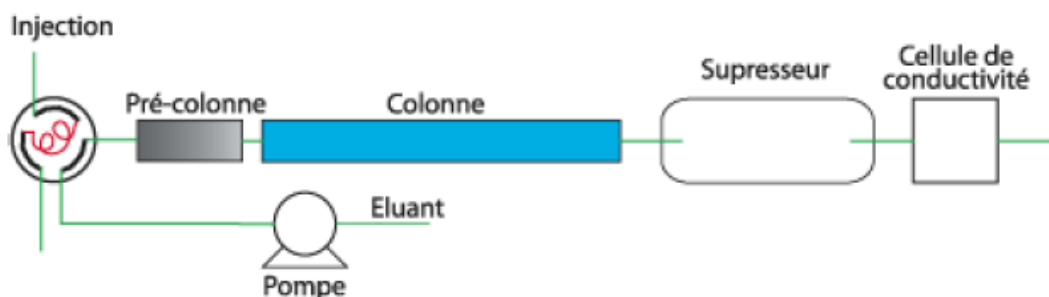
En chromatographie ionique la colonne de séparation est constituée par une résine échangeuse d'ions.

- résine échangeuse d'anions pour le dosage des anions en solution ;
- résine échangeuse de cations pour le dosage des cations en solution.

Classiquement la chromatographie ionique est utilisée pour le dosage des éléments suivants :

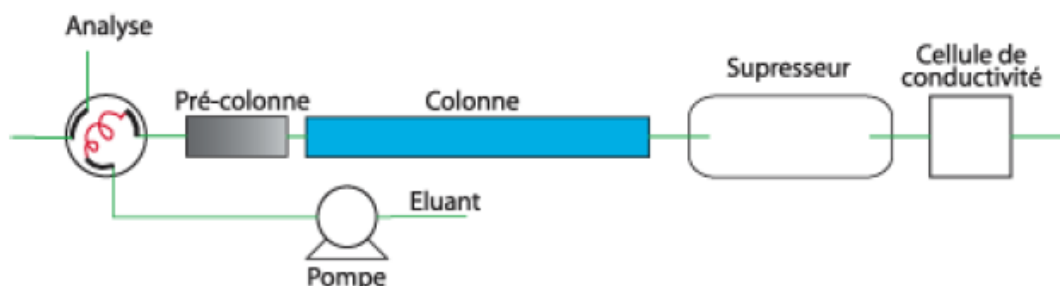
- **Cations:** Lithium, Sodium, Potassium, Magnesium, Calcium, Barium...
- **Anions :** Fluorures, Chlorures, Nitrites, Nitrates, Phosphates, Sulfates...

Le détecteur classique est une cellule de conductivité puisque chaque ion ci-dessus peut donner un signal de conductivité, selon sa concentration en solution et sa conductivité équivalente.

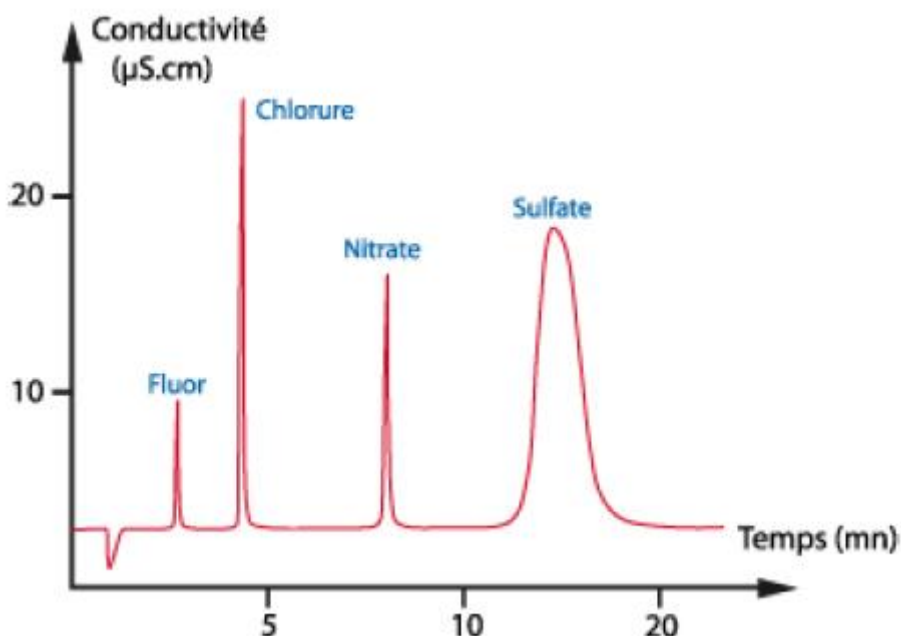


La séparation :

L'échantillon à analyser (volume de 25 à 100 μL) est injecté en tête de colonne. La migration des espèces se fait selon leur affinité (capacité de l'ion à être plus ou moins retenu) pour la résine. La migration est assurée par l'éluant (acide pour le dosage des cations, basique pour le dosage des anions) injecté par la pompe (à un débit variant de 1 à quelques ml/min).

**Le dosage :**

En sortie de colonne chaque élément ainsi séparé donne un signal de conductivité, détectable par le conductimètre. L'amplitude du signal dépend de la conductivité équivalente de l'ion, de sa charge et de sa concentration. Un étalonnage préalable avec des solutions de concentrations connues permet de déterminer les temps de rétention des différents éléments. Une courbe de calibration peut ainsi être établie. Il est ensuite aisé de déterminer les concentrations en solution dans un échantillon d'eau.

**Augmenter la sensibilité :**

Pour augmenter la sensibilité et abaisser le seuil de détection des éléments, on utilise un système de suppression. Son rôle est de supprimer la conductivité de l'éluant, afin que le pic de conductivité de l'élément à analyser soit le plus net possible.

Les supresseurs les plus efficaces sont les supresseurs à membrane semi-perméable :

Dans le cas de l'analyse des cations l'éluant acide est neutralisé par des ions OH^- qui suppriment son signal de conductivité ; dans le cas de l'analyse des anions l'éluant basique sont neutralisé par des ions H^+ qui suppriment son signal de conductivité.

Le supprimeur est intercalé entre la colonne de séparation et la cellule de mesure.

ANNEXE III. SPECTROPHOTOMÈTRE SÉRIE 67

La série 67 propose une gamme de fonctions uniques facilitant la gestion des méthodes et des données aux niveaux individuels et multi-utilisateur.

Ces appareils présentent une interface utilisateur spécialement conçue basée sur un écran LCD TFT couleurs de qualité supérieure à technologie d'écran tactile et support QWheel™ apportant une facilité d'utilisation pour toutes les opérations, du paramétrage aux mesures et à la manipulation des données.

Cinq modes de mesure principaux sont disponibles : Photométrie, Spectre, Cinétique, Quantification et Multi Longueurs d'onde.

La série 67 possède des options de mémoire double permettant d'enregistrer les réglages et les données dans une mémoire interne ou sur une carte mémoire SD/Multimédia amovible. En enregistrant tous les réglages sur la carte SD amovible, les méthodes et les résultats spécifiques à l'utilisateur peuvent être conservés par la personne, offrant une sécurité supplémentaire et permettant un transfert de données facile vers un PC pour stockage, manipulation ou visualisation autonome. La carte SD peut également être utilisée dans tout modèle similaire, apportant une flexibilité complète à l'utilisation de tout appareil disponible. Une simple procédure de sauvegarde permet un transfert facile de toutes les informations de la mémoire interne vers le support amovible, tout en permettant rapidement de cloner un groupe d'appareils par des réglages identiques.

