

REPUBLIQUE ALGERIENNE DEMOCRATIQUE ET POPULAIRE  
Ministère de l'Enseignement Supérieur et de la Recherche Scientifique



**Université Djillali Liabes, Sidi Bel Abbès**  
**Faculté de Technologie**  
**Département de Génie Civil**



## **Mémoire**

*Pour l'obtention du diplôme de Magister en Génie Civil*

*Option : Géotechnique et ouvrages*

*en terres*

### **Thème :**

# **ETUDE DES EFFET DES CENDRES VOLANTES SUR LA REACTION ALCALI –SILICATE DU BETON**

Présenté par :

***Damani Bakhti***

Devant le jury composé de :

<b><i>M.M. RABEH</i></b>	Professeur	Président	U.D.L. Sidi Bel Abbès
<b><i>M. A. ASROUN</i></b>	Professeur	Encadreur	U.D.L. Sidi Bel Abbès
<b><i>M.H. TROUZIN</i></b>	Professeur	Examineur	U.D.L. Sidi Bel Abbès
<b><i>M. GHEMBAZA</i></b>	Professeur	Examineur	U.D.L. Sidi Bel Abbès

*Décembre 2014*

# **Remerciements**

*Je tiens tout d'abord à remercier monsieur Aissa Asroun professeur à l'université Djillali Liabès , mon directeur de thèse qui m'a donné l'occasion de travailler sur un sujet des plus intéressants. Je le remercie pour sa disponibilité, ses suggestions, ses conseils et pour nos nombreuses discussions qui ont permis de mener à bien nos recherches.*

*Je tiens à adresser mes plus sincères remerciements à monsieur M.RABEH professeur à l'université Djillali Liabès, qui m'a fait l'honneur de présider le jury de soutenance de cette thèse.*

*Mes remerciements vont également à messieurs: H.TROUZIN professeur à l'université Djillali Liabès, GHEMBAZA professeur à l'université de Djillali Liabès, qui ont accepté d'être examinateurs de ce travail.*

*Je remercie également ma famille qui m'a soutenu tout au long de mes études. Je remercie aussi mes amis et mes collègues qui ont contribué à créer une atmosphère conviviale et détendue.*

*Enfin je remercie tous ceux qui de près ou de loin m'ont permis de mener ce travail à son terme.*

## ***Dédicace:***

*À mes grands-parents, à mes parents, à ma famille et à mes amis,  
des mots ne seront guère suffisants pour vous remercier...*

## Résumé

Ce mémoire présente, l'essai de l'indentation instrumentée d'un Alcalis Activé des cendres volantes (AAFA). Le produit de réaction principal de la cendre volante est un gel d'aluminosilicate amorphe (désigné comme gel N-A-S-H) donc nous avons choisi ce dernier pour notre étude. La courbe charge-déplacement mesurée expérimentalement est comparée avec celle obtenue à partir de la simulation par éléments finis du processus de l'indentation à l'aide du logiciel ABAQUS.

**Mots clés :** *les propriétés nano-mécaniques, nano-indentation, simulation numérique ABAQUS, gel N-A-S-H, AAFA.*

## Abstract

This paper presents the test of the instrumented indentation of Alkali Activated fly ash (AAFA). the main reaction product of fly ash is an amorphous aluminosilicate gel (referred to as NASH gel) so we chose it for our study. The load-displacement curve measured experimentally is compared with that obtained from finite element simulation of the indentation process using the ABAQUS software.

**Keywords :** *nano-mechanical properties, nanoindentation, digital ABAQUS simulation, NASH gel, AAFA.*

## ملخص

تقدم هذه الأطروحة لاختبار المسافة البادئة المجهزة من القلوي الرماد المتطاير المنشط (AAFA). المنتج الرئيسي رد فعل من الرماد المتطاير هو هلام ألومينوسيليكات غير متبلور (تسمى ناش هلام) لذلك اخترنا ذلك لدراستنا. تتم مقارنة منحنى الحمل النزوح قياسها تجريبيا مع أن الحصول عليها من محاكاة العناصر المحدودة من عملية المسافة البادئة باستخدام برنامج ABAQUS.

**كلمات البحث:** *خصائص النانو الميكانيكية، نانو المسافة البادئة، ABAQUS المحاكاة العددية، NASH هلام AAFA.*

# ***Table des matières***

Remerciements .....	I
Dedicace: .....	II
Resume .....	III
Table des matieres .....	IV
Liste des tableaux .....	VI
Liste des figures.....	VII
Notations et symboles.....	IX
Introduction Generale .....	1

## ***Chapitre I***

### ***Généralités sur La réaction alcali-silice***

I.1. Introduction .....	3
I.2. Generalites Sur La Reaction Alcali-Silice .....	4
I.3. Mecanismes Reactionnels Et De Gonflement .....	4
I.3.1. Le modèle de Powers et Steinoor .....	4
I.3.2. Mécanisme topo-chimique de Dent-Glasser et Kataoka .....	5
I.3.2.1. Attaque chimique des granulats .....	5
I.3.2.2. Mécanisme de gonflement .....	6
I.3.2.3. Point de vue de Chatterji sur le rôle du calcium .....	6
I.3.2.4. Complexité de la question du gonflement .....	7
I.3.3. Mécanisme trans-solution de Dron et Brivot.....	7
I.3.4. Modèle des Mines de Douai .....	8
I.3.4.1. Réaction chimique .....	8
I.3.4.2. Mécanisme de gonflement .....	9
I.3.5. Effets de taille .....	10
I.4. Caracteristiques Mecaniques De La Reaction Alcali-Silice .....	10
I.4.1. Propriétés des gels .....	11
I.4.1.1. Structure des gels .....	11
I.4.1.2. Propriétés mécaniques .....	12
I.4.2. Effet de l'alcali-réaction sur les propriétés mécaniques des bétons .....	13
I.4.3. Anisotropie de l'alcali-réaction .....	13
I.5. Conclusion .....	14

## ***Chapitre II***

### ***La technique nano-indentation***

II.1. Introduction.....	15
II.2. De L'essai D'indentation A La Nano-Indentation Instrumentee.....	16
II.3. La Technique De Nano-Indentation.....	16
II.4. Historique De La Technique Nano-Indentation.....	18
II.5. Dispositif Experimentale .....	19

II.6. Les Types D'indenteur Utilisees.....	24
II.7. L'indenteur De Berkovich Et Defaut De Pointe .....	26
II.8. La Grille (Matrice) D'indentation.....	31

## ***Chapitre III***

### ***Caractérisation des alcalis Activé cendres volantes par Nano-indentation***

III.1 Introduction .....	34
III.2 Experimental:.....	34
III.2.1 Matériaux: .....	34
III.2.2 Méthodes:.....	35
III.3 Resultats Et Discussion .....	36
III.3.1 Esem.....	36
III.3.2 Nano indentation:.....	37

## ***Chapitre IV***

### ***Le modèle d'éléments finis***

IV.1. Introduction .....	40
IV.2. Analyse D'une Courbe Charge-Deplacement .....	41
IV.2.1. Modèle d'Oliver et Pharr .....	41
IV.2.2. Limitations de la méthode d'Oliver et Pharr et prise en compte de corrections .....	46
IV.3. La Methode De Simulation Numerique .....	48
IV.3.1. Quelques hypothèses simplificatrices dans la simulation.....	49
IV.3.2. Le choix d'un code de calcul .....	50
IV.3.3. Construction du maillage .....	50

## ***Chapitre V***

### ***Résultats et interprétations***

V.1. Introduction .....	52
V.2. Presentation Des Resultats Experimenteaux .....	52
V.3. Presentation De Simulation Numerique .....	54
V.4. Discussion.....	56
Conclusion Generale.....	58
Références Bibliographiques.....	59

# ***Liste des Tableaux***

## **Chapitre II**

### **La technique nano-indentation**

**Tableau II-1:** La surface de contact pour différentes géométries d'indenteurs .....**26**

## **Chapitre III**

### **Caractérisation des alcalis activé cendres volantes par Nanoindentation**

**Tableau III-1:** Composition chimique moyenne de la cendre volante brute (composants principaux).....**35**

**Tableau III-2:** Les propriétés élastiques des phases de matériels individuels d'échantillons de therm durcissables.....**39**

**Tableau III-3:** Les propriétés élastiques des phases de matériels individuels d'échantillons de ambient durci.....**39**

## **Chapitre V**

### **Résultats et interprétations**

**Tableau V-1:** Module d'indentation et la dureté de phase de la N-A-S-H.....**53**

# **Liste des Figures**

## **Chapitre II**

### **Nano-indentation, historique et méthode de mesure et d'analyse**

<b>Figure II.1</b> Principe de l'essai de nano-indentation .....	<b>17</b>
<b>Figure II.2:</b> Image d'empreinte d'un indenteur dans la pâte de ciment.....	<b>17</b>
<b>Figure II.3:</b> Courbe typique de chargement-déchargement .....	<b>17</b>
<b>Figure II.4:</b> Diagramme de charge typique contre la pénétration de nano-indentation.....	<b>18</b>
<b>Figure II.5 :</b> Appareil d'indentation CSM .....	<b>20</b>
<b>Figure II.6:</b> Schéma descriptif du CSM .....	<b>20</b>
<b>Figure II.7:</b> Montage expérimental des essais effectués sur CSM.....	<b>21</b>
<b>Figure II.8:</b> L'image d'un échantillon de pâte de ciment indenté.....	<b>22</b>
<b>Figure II.9</b> Une représentation schématique d'un dispositif de nano-indentation.....	<b>23</b>
<b>Figure II.10</b> Courbe de chargement-déchargement.....	<b>23</b>
<b>Figure II.11</b> Les différentes géométries de la pointe d'indenteur couramment utilisées en nano-indentation.....	<b>25</b>
<b>Figure II.12</b> (a) Schéma de l'indenteur Berkovich angles et Caractéristiques et (b) exemple d'empreinte pyramidale triangulaire.....	<b>27</b>
<b>Figure II.13</b> Représentation schématique du défaut de pointe.....	<b>29</b>
<b>Figure II.14</b> Tracé du défaut de pointe, exprimé par la raideur de contact en fonction de $h_R'$ .....	<b>30</b>
<b>Figure II.15</b> Courbe résultat de nano-indentation.....	<b>31</b>
<b>Figure II.16</b> Schéma d'indentation sur la grille échantillon de pâte de ciment.....	<b>31</b>
<b>Figure II.17</b> les trois techniques déjà cité pour obtenir les propriétés mécaniques.....	<b>33</b>
<b>Figure II.18</b> Un histogramme typique des propriétés mécaniques.....	<b>33</b>

## **Chapitre III**

### **Caractérisation des alcalis activé cendres volantes par Nanoindentation**

<b>Figure III.1:</b> typique ESEM (électrons rétrodiffusés) image de l'AAFA thermodurcissables.....	<b>36</b>
<b>Figure III.2 :</b> types de diagrammes de profondeur de charge de pénétration de phases distingués dans AAFA .....	<b>37</b>
<b>Figure III.3:</b> Déconvolution en quatre phases pour les échantillons Thermodurcissables.....	<b>38</b>
<b>Figure III.4 :</b> Déconvolution en quatre phases pour les échantillons de ambiants durci .....	<b>39</b>



## Chapitre IV

### Le modèle d'éléments finis

<b>Figure IV.1</b> Principe de la simulation.....	<b>40</b>
<b>Figure IV.2</b> Description de la géométrie du contact utilisée dans l'analyse O&P.....	<b>42</b>
<b>Figure IV.3</b> Courbe force-pénétration et grandeurs utilisées dans l'analyse mécanique O&P.....	<b>44</b>
<b>Figure IV.4</b> Schéma de l'analyse O&P pour le calcul de E et H.....	<b>46</b>
<b>Figure IV.5</b> Représentation schématique de l'erreur sur le rayon de contact induite par la présence de pile-up.....	<b>47</b>
<b>Figure IV.6</b> Représentation schématique des concepts utilisés pour introduire la notion de forme effective de l'indenteur.....	<b>47</b>
<b>Figure IV.7</b> une structure typique du maillage.....	<b>51</b>

## Chapitre V

### Résultats et interprétations

<b>Figure V.1 :</b> La courbe expérimentale de chargement-déchargement de Nano-indentation pour la phase <b>NASH</b> .....	<b>53</b>
<b>Figure V.2 :</b> Représentation de l'échantillon et l'indenteur .....	<b>55</b>
<b>FigureV. 3 :</b> modélisation numérique de chargement de <b>NASH</b> montre la distribution de contraintes de Von mises.....	<b>55</b>
<b>Figure V.4</b> modélisation numérique de déchargement de <b>NASH</b> montre la distribution de contraintes de Von mises.....	<b>56</b>

# *Notations et Symboles*

## **la terminologie d'aluminosilicate et Réaction alcali-silice**

ASR	Réaction alcali-silice
AC	Les ajouts cimentaires
$\text{CH} = \text{Ca}(\text{OH})_2$	l'hydroxyde de calcium, Portlandite
$\text{SiO}_2$	La silice
$\text{Al}_2\text{O}_3$	l'alumine
$\text{Fe}_2\text{O}_3$	l'oxyde ferrique
$\text{CaOH}_2$	l'hydroxyde de calcium
$\text{C}_3\text{A}, 3\text{CS}, \text{H}_{32}$	l'ettringite
$\text{C}_3\text{A}, \text{CS}, \text{H}_{12}$	monosulfoaluminate
$\text{SiO}_4\text{H}_2^{-2}$	les ions silicates
CaO	la chaux
$\text{Ca}^{2+}$	les ions calcium
$\text{OH}^-$	des ions hydroxyles
$\text{SO}_4^{2-}$	des ions sulfates
$\text{C}_3\text{S}$	silicate tricalcique
$\text{C}_2\text{S}$	silicate dicalcique
$\text{C}_4\text{AH}_{13}$	Aluminates Calcium hydrates
$\text{CSH}_2$	Gypse
C / S	le rapport de calcium et de silicium
C-S-H	le calcium-silice-hydrate
N-A-S-H	gel d'aluminosilicate amorphe
AAFA	alcalis activé cendres volantes
RFA	La cendre volante brut
ESEM	méthode électrons rétrodiffusés

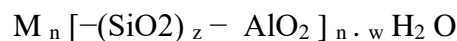
## Propriétés des matériaux et nano-indentation

H	la dureté
E	Le module de Young
$E_r$	Le module de Young réduit
P	La charge
h	la profondeur de l'empreinte (d'indentation)
S	la raideur du contact
$\nu$	Le coefficient de poisson
$\alpha$	l'angle effectif de cône
$\theta$	demi-angle au sommet
$h_0$	défaut de pointe
$h_J$	longueur de coupure
$h_R$	l'enfoncement plastique sous charge
$\delta$	l'enfoncement
D	une échelle de longueur
HR	l'humidité Relative
$h_{max}$	la hauteur maximum
$A_{ind}$	l'aire de contact de l'indenteur

## *Introduction Générale*

L'Alcalis Activé des cendres volantes (AAFA) est un nouveau matériau prometteur formant liant minéral stable. AAFA offre un potentiel élevé en remplacement partiel du béton ordinaire en raison de l'amélioration de la durabilité, de résistance au feu, faible teneur en calcium, faible retrait de séchage, aucune réaction alcali-silice, de bonnes performances au gel / dégel plus faible au fluage induit par une charge mécanique. L'utilisation potentielle des cendres volantes, en tant que sous-produit de centrales électriques au charbon, attire l'attention de plusieurs chercheurs.

Chimiquement, le produit de réaction principal de la cendre volante est un gel d'aluminosilicate amorphe (désigné comme gel N-A-S-H) et / ou la formation d'un gel C-S-H en présence de calcium et un activateur de faible alcalinité. La composition chimique du gel N-A-S-H est similaire à l'état cristallin des matériaux zéolitiques naturelles, mais la microstructure est de nature amorphe. Le gel est constitué d'N-A-S-H structure tridimensionnelle, construit à partir de tétraèdres SiO<sub>4</sub> et AlO<sub>4</sub> reliés par des atomes de O partagés et formant des chaînes polymères [0, 0]



où M représente le sodium, le potassium ou le calcium fourni avec l'activateur alcalin et de cendres volantes, n est le degré de polymérisation, z quantifie la quantité de SiO<sub>2</sub> unités monomères dans le gel, typiquement dans l'intervalle de 1 à 3 et w est la quantité d'liaison de l'eau.

Dans ce travail, nous nous sommes intéressés à l'essai d'indentation qui, de par son instrumentation récente, permet de remonter au module d'élasticité et à la dureté du matériau. Cette technique présente l'énorme avantage d'être applicable aux différentes échelles de mesure, allant de l'échelle nano-métrique à l'échelle macro-métrique. Quel que soit l'échelle de l'expérience, l'analyse des résultats obtenus semble bien maîtrisée.

Aujourd'hui, l'indentation instrumentée est devenue une technique capitale dans la caractérisation mécanique des matériaux. Cette méthodologie a été développée par Oliver et Pharr dans les années 90. Dans son principe général, cette technique permet d'enregistrer le déplacement de l'indenteur pendant tout le cycle de chargement et de déchargement. L'analyse de la courbe au déchargement conduit à une valeur de la profondeur de contact.

L'objectif de notre travail se focalise d'une part à déterminer les propriétés mécaniques de gel N-A-S-H à travers une simulation numérique et d'autre part, comparer les résultats obtenus avec l'expérimentale de l'essai de nano-indentation.

Ce travail est divisé en cinq chapitres :

Le premier chapitre est une mise au point des connaissances actuelles sur la phénomène de ASR et le cendre volante dans le béton.

Le deuxième chapitre, est consacré à la présentation de la technique nano-indentation, ainsi que les formes principales des différents indenteurs qui existe en nano-indentation.

Dans le troisième chapitre, nous avons présenté l'interaction entre la AAFA et la technique de nano-indentation toujours en s'intéressant aux propriétés mécaniques.

La modélisation de gel N-A-S-H est présentée au chapitre quatre, ainsi que les différentes méthodes de calcul utilisées dans cette technique.

Le cinquième et dernier chapitre, est consacré aux résultats obtenus par la simulation et à leurs interprétations.

# *Chapitre I*

## *Généralités sur La réaction alcali-silice*

### **I.1. Introduction**

La réaction alcali-silice a été découverte dans les années 40 aux Etats-Unis par Stanton [1]. Elle est également présente dans de nombreux pays, dont la France depuis la fin des années 70. Les recommandations françaises pour limiter l'occurrence de la réaction alcali-silice dans les nouveaux ouvrages ont été établies par le LCPC entre 1991 et 1994 [2]. Cette réaction endogène du béton touche une part modeste des ouvrages en béton, mais peut avoir des conséquences importantes

Pour des ouvrages dont les propriétés mécaniques et les dimensions doivent impérativement être stables dans le temps (barrages, ponts). Les premiers modèles ont été proposés dans les années 50, et la compréhension des mécanismes réactionnels et d'endommagement a progressé avec la qualité des moyens expérimentaux d'observation des bétons affectés. La réaction alcali-silice est aussi appelée alcali réaction. C'est la principale réaction d'un groupe de réactions appelées réactions alcali-granulats ou RAG, qui contient également la réaction alcali-carbonate et la réaction alcali-silicates [3, 4]. On n'étudie ici que l'alcali-réaction, que l'on appellera parfois RAG par extension, et qui est en général appelée alkali-silica réaction (ASR) en anglais. Ce chapitre de bibliographie est avant tout inspiré d'introductions et bibliographies de thèses [5, 6, 7, 8, 9], d'ouvrages généraux sur les bétons qui sans être détaillés sur la réaction alcali-silice, donnent de nombreuses références [10, 11] et du cours de Alain Sellier et Geneviève Thévenin Foray du DEA Géo matériaux [12].

Les recherches sur la réaction alcali-silice ont permis d'accumuler une quantité considérable d'observations expérimentales, qui sont interprétées pour comprendre les mécanismes réactionnels en jeu et proposer des modèles. Cependant, certains points ne font pas consensus. De nombreux aspects de ce phénomène compliquent sa compréhension et sa modélisation, tels que la nature hétérogène du béton, l'immense variété de granulats utilisés et de leur minéralogie, et la multiplicité des réactions chimiques possibles dans un environnement complexe. Dans la première partie, nous présentons ce qui semble être admis par la plupart des chercheurs travaillant sur l'alcali-réaction. Nous ferons ensuite un tour d'horizon des mécanismes proposés historiquement pour l'alcali-réaction, et expliquerons le mécanisme que nous retenons comme fondement de notre réflexion. Nous exposerons ensuite les caractéristiques importantes de cette réaction du point de vue de la modélisation

mécanique, comme les propriétés des gels d'alcali-réaction, l'effet de la réaction sur les propriétés mécaniques des bétons attaqués, et enfin les caractéristiques anisotropes des dégradations dues à cette réaction.

## **I.2. Généralités sur la réaction alcali-silice**

Trois conditions sont nécessaires pour que la réaction alcali-silice se produise :

- Le béton contient des granulats réactifs ;
- Le taux d'humidité relative du béton est important, à partir 80-85 %, dû à la présence d'eau de gâchage ou à un apport d'eau externe pendant la durée de vie de l'ouvrage ;
- Le béton contient une quantité importante d'ions alcalins, dont l'origine est le ciment utilisé en général, parfois les granulats ou l'eau.

La réaction alcali-silice est visible extérieurement à cause d'un schéma de fissuration assez caractéristique en surface des éléments attaqués, pouvant s'accompagner de produits de réactions coulant hors des fissures. On observe également des gonflements macroscopiques sur les structures attaquées. Pour ce qui est des propriétés mécaniques, la résistance à la traction est diminuée tandis que la résistance à la compression est peu affectée. Les modules d'élasticité diminuent à l'échelle microscopique, un réseau de microfissures apparaît autour et dans les granulats réactifs. Des gels amorphes, fabriqués dans les granulats réactifs et dans leur voisinage, gonflent et sont responsables de l'apparition des fissures à l'échelle microscopique. On observe parfois une accumulation de certains produits à la surface des granulats réactifs couramment appelée « réaction Rim » et la décohésion des granulats de la pâte de ciment qui les entoure.

## **I.3. Mécanismes réactionnels et de gonflement**

On commence par un tour d'horizon des modèles qui ont posé les fondements de la compréhension des mécanismes réactionnels. Ensuite, on détaillera un modèle qui se situe dans la lignée des précédents et semble bien décrire les observations expérimentales, et on expliquera brièvement le phénomène d'effet de taille de granulat.

### **I.3.1. Le modèle de Powers et Steinour**

Dès 1955, Powers et Steinour proposent un mécanisme réactionnel assez élaboré, prenant en compte le rôle supposé des ions calcium, et résument l'état de la recherche sur la réaction alcali-silice [13, 14]. Ils font la remarque que: « The various papers pertaining to the cement-aggregate, or alkali-aggregate, reaction that have now been published represent an impressive body of research. In spite of this, the chemistry and physics of the phenomena have by no

means been fully worked out ». On peut dire qu'après presque soixante années de recherches sur le sujet, la situation semble assez similaire en ce qui concerne certains points de compréhension de la réaction qui ne sont pas tranchés.

Leur explication de la RAG est que les granulats réactifs sont attaqués par les ions hydroxydes alcalins (sodium et potassium) qui, tirant parti des défauts dans la structure du réseau de silice et d'oxygène qui forme les roches siliceuses, arrivent à pénétrer cette structure, ce qui conduit à son affaiblissement et à la dissolution d'une partie de la silice. Le précipité qui devrait se former, à l'équilibre, en présence de silice, d'ions alcalins et d'ions calcium, devrait être un précipité calco-silico-alcalin non gonflant. Cependant, les temps de transport des ions silice et la faible solubilité des ions calcium à pH élevé, entraînent la formation de complexes composés de silice et alcalins seulement, ce qui provoque un gonflement.

Le gonflement du gel est selon eux dû à l'absorption d'eau après la fabrication du gel, non au fait que le produit est de volume dépassant celui des réactifs consommés.

Wang et Gillott, qui ont proposé un mécanisme réactionnel prenant en compte le rôle du calcium [15], se situent dans la continuité des idées de Powers et Steinour [13, 14].

### **I.3.2. Mécanisme topo-chimique de Dent-Glasser et Kataoka**

#### **I.3.2.1. Attaque chimique des granulats**

Le mécanisme réactionnel de Dent-Glasser et Kataoka [16] est très souvent cité dans la littérature mais n'apporte pas d'avancées considérables par rapport à celui de Powers et Steinour. Il introduit tout de même l'idée que les ions hydroxydes attaquent les granulats avant les ions alcalins. Les ions hydroxydes brisent les ponts siloxanes, qui sont formés d'un atome d'oxygène faisant le lien entre deux atomes de silice, et sont très importants pour la structure de la roche. Les atomes d'hydrogène forment également des liaisons avec les atomes d'oxygène du réseau ne reliant pas deux atomes de silice, et sont donc en quelque sorte des faiblesses du réseau. La présence des atomes d'hydrogène dans le réseau crée une accumulation de charges négatives qui attire les ions alcalins, chargés positivement. Ce modèle a cependant le défaut de ne pas mentionner les ions calcium, dont l'influence sur l'expansion est attestée expérimentalement.

Dent-Glasser et Kataoka ont ensuite proposé un mécanisme réactionnel plus complet [17] où les ions calcium provenant de la portlandite de la pâte de ciment sont considérés. Ils remarquent que des gels de silice plongés dans diverses solutions contenant des alcalins et de



la portlandite sont parfois recouverts d'une couche d'un précipité ressemblant à des C-S-H. En l'absence d'agitation, il se forme parfois des excroissances de gel à travers la couche de C-S-H.

Ce modèle a ensuite été repris par Poole [18], qui y ajoute des explications sur le rôle du calcium. Les ions calcium sont supposés pénétrer dans le granulat attaqué après les ions alcalins et les remplacer dans la place qu'ils ont prise dans le réseau attaqué, où ils équilibrent localement la charge. La portlandite de la pâte de ciment est la source d'ions calcium, mais également d'ions hydroxydes.

### **I.3.2.2. Mécanisme de gonflement**

Dans les modèles que l'on vient de présenter, le gonflement du gel est dû à l'absorption d'eau provenant de la solution interstitielle du béton par le gel. Les différences de concentration de certains ions entre l'intérieur du gel et la solution interstitielle engendrent une pression d'imbibition responsable de la migration d'eau vers l'intérieur du gel. Le fait que l'eau se déplace pour équilibrer la présence d'ions dans le gel qui se situe dans les granulats plutôt que l'inverse est expliqué par la formation d'une membrane semi-perméable à la surface du granulat qui freinerait la diffusion des ions, et par les propriétés rhéologiques du gel et son insolubilité dans l'eau, qui l'empêchent de sortir du granulat.

La membrane-semi perméable est détruite en cas de fissuration du granulat sous pression du gel qui gonfle à l'intérieur, et permet alors l'écoulement du gel vers l'extérieur du granulat où se trouvent des zones de porosité plus importantes (auréole de transition, ou Interface Transition Zone décrite par exemple par Ollivier [63]) et de l'espace créé par l'avancée de fissures.

### **I.3.2.3. Point de vue de Chatterji sur le rôle du calcium**

Chatterji a développé une argumentation qui lui permet de ne pas supposer que les complexes silico-alcalins sont expansifs tandis que les complexes calco-silico-alcalins ne le sont pas. Dans deux articles [19, 20] il expose un mécanisme réactionnel prenant en compte le rôle de la portlandite dans le gonflement. D'après lui, la silice est dissoute et migre dans la solution interstitielle (comme sera proposé plus tard par Dron dans son mécanisme trans-solution). Lorsque la silice dissoute et le calcium entrent en contact au voisinage de la surface du grain, un précipité est produit (du type des C-S-H), qui a également la propriété de ralentir la diffusion des ions contenant la silice. La dissolution de silice au niveau des granulats n'est par contre pas arrêtée car la diffusion des ions responsables de la dissolution n'est pas autant

gênée par la barrière de précipité ressemblant à des C-S-H. Le gonflement serait pour lui dû à l'accumulation de silice dans le granulat.

Chatterji met l'accent sur deux rôles opposés des ions hydroxydes. D'un côté, ils favorisent la dissolution de la silice des granulats. De l'autre, leur présence en quantité diminue notablement la solubilité de la portlandite puisqu'ils sont un des produits de cette dissolution. Ainsi, augmenter la quantité d'ions hydroxydes en solution diminue celle des ions calcium. Si la quantité des ions calcium est trop faible, il n'y a pas formation de barrière de C-S-H, donc les ions silice peuvent sortir des granulats beaucoup plus librement et le granulat de gonfle pas par leur accumulation.

#### **I.3.2.4. Complexité de la question du gonflement**

Struble, sous la direction de Diamond, a mené des expériences sur des gels de silice, pour tenter de comprendre leur comportement sous pression [80], dans l'idée que le gonflement de l'alcali-réaction est dû au gonflement de gels silico-alcalins.

Les gels de silice sont plongés dans des solutions semblables à la solution interstitielle du béton, et soumis à des efforts qui restreignent leur gonflement. Les déformations sont mesurées. Le comportement des gels est difficile à interpréter, puisque les pressions nécessaires pour maintenir une expansion nulle ne varient pas de manière monotone avec les gonflements observés à pression nulle. Il semble que sous pression, la structure moléculaire du gel évolue, par des réarrangements des chaînes polymères qui constituent le gel.

#### **I.3.3. Mécanisme trans-solution de Dron et Brivot**

Ce modèle, développé dans les articles de Dron et Brivot [21, 22], se base sur le même mécanisme chimique que celui de Dent-Glasser et Kataoka pour ce qui est du passage en solution de la silice. En revanche, il suppose que la silice diffuse en s'éloignant des granulats réactifs, dans la solution interstitielle. L'équilibre électrique est assuré par les ions alcalins qui se trouvent en solution.

Les différents ions (silice, alcalins, calcium), se combinent donc dans la solution interstitielle de manière relativement homogène spatialement, et forment un précipité de type C-S-H qui contient des alcalins.

Ces précipités, que l'on peut alors noter (C-K-S-H, C-N-S-H), sont d'après les auteurs d'une densité inférieure à l'ensemble des réactifs consommés. Cette explication du gonflement est donc fondamentalement différente de celles présentées précédemment puisque

les autres modèles expliquaient le gonflement par l'absorption d'eau, non par un changement de volume lors de la réaction chimique elle-même.

### **I.3.4. Modèle des Mines de Douai**

Il nous semble que la plupart des auteurs sont d'accord sur la présentation du mécanisme réactionnel que nous faisons dans cette section.

#### **I.3.4.1. Réaction chimique**

Nous présentons ici le mécanisme réactionnel décrit par Bulteel et ses collègues [23, 24, 25]. Il nous semble qu'il synthétise les modèles antérieurs et que la plupart des chercheurs proposent actuellement des modèles dans cet esprit. Pour décrire l'environnement d'un atome de silice, ces auteurs utilisent la notation  $Q_n$  où  $n$  représente le nombre d'atomes d'oxygène liés à l'atome de silice considéré qui forment un pont siloxane, c'est-à-dire sont reliés à deux atomes de silice.

- Étape 1 : Formation de tétraèdres  $Q_3$  à partir des  $Q_4$  présents au départ dans la structure du réseau de silice et d'oxygène, par l'attaque de ponts siloxanes. Le granulat est initialement composé en majorité de  $Q_4$ . La présence de  $Q_3$  avant le début de l'attaque est un signe de faiblesse du réseau de silice, puisque ces défauts facilitent la pénétration des ions provenant de la solution interstitielle dans le granulat. Cette étape de la réaction augmente leur proportion.
- Étape 2 : Les sites  $Q_3$ , également appelés silanol, sont attaqués par les ions hydroxydes. Pour qu'un atome de silice soit complètement libéré du réseau, il faut briser les trois ponts siloxanes restants. Néanmoins, les configurations  $Q_2$  et  $Q_1$  sont assez peu observées, ce qui laisse penser qu'une fois qu'il ne reste plus que deux liens avec le reste du réseau, on descend vite à zéro. On peut résumer en disant que l'étape 2 produit des  $Q_0$  à partir de  $Q_3$ . La forme sous laquelle on retrouve les  $Q_0$  en solution dépend du pH de cette solution, plusieurs formes plus ou moins ionisées existent.

Lors de ce processus de dissolution, les charges négatives portées par les atomes de silice sont en général équilibrées par des ions alcalins ou calcium. Une fois les deux étapes de dissolution effectuées, les ions silicates précipitent par combinaisons avec les cations présents dans la solution interstitielle pour former des complexes du type C-S-H, C-K-S-H et C-N-S-H.

### I.3.4.2. Mécanisme de gonflement

Les explications sur leurs mécanismes de gonflement se trouvent dans l'article de Garcia-Diaz [25]. Dans cet article les auteurs présentent une méthode expérimentale de mesure des variations de volume d'un mortier, de la porosité du mortier et des granulats de silex, et de l'avancement de la réaction.

Leur protocole expérimental leur permet de mesurer les quantités de tétraèdres Q4 et Q3 restants dans le granulat, et les tétraèdres Q0 formés. Ils ont aussi la possibilité de mesurer indépendamment le changement du volume poreux des granulats et trouvent une relation linéaire entre ce volume poreux et la variation de volume macroscopique du mortier.

Les courbes d'expansion, en cohérence avec le mécanisme réactionnel proposé, peuvent être divisées en quatre étapes :

- I. Dissolution-précipitation. Les tétraèdres Q0 sont produits à partir de Q4 et Q3, puis forment des complexes C-S-H et C-(K,N)-S-H. C'est une phase chimique durant laquelle on n'observe pas de gonflement, puisque ces dissolutions et précipitations se produisent à volume constant. La fraction de tétraèdres Q3 est à peu près constante.
- II. La précipitation des tétraèdres Q0 ralentit tandis que le passage  $Q4 \rightarrow Q3$  continue de se faire. Cette transformation est expansive et provoque un gonflement du granulat. Le granulat et la pâte de ciment environnante sont alors susceptibles de se fissurer à cause de ces gonflements. Une relation linéaire est observée entre le gonflement des grains et celui des éléments de mortier.
- III. La précipitation de Q0 redémarre, entraînant un remplissage des fissures créées à l'étape précédente.
- IV. Le gonflement cesse, et le volume poreux diminue par remplissage des fissures par des produits de précipitation.

Dans ce mécanisme réactionnel, la transition de la phase I à la phase II, c'est-à-dire le ralentissement de la précipitation de Q0 est dû au fait que les produits contenant les Q0 (C-(K,N)-S-H) jouent un rôle de barrière de diffusion. Les auteurs supposent que cette barrière de diffusion correspond à l'anneau de réaction (réaction Rim) parfois observé autour des granulats réactifs en cours d'attaque. Cette barrière limite la diffusion des ions silicates, tandis que les anions parviennent à passer dans l'autre sens. L'existence d'un anneau de réaction est mentionnée dès l'article de Powers et Steinour [67] et fait l'objet d'études spécifiques [26, 27]. Il semble que son rôle dans le gonflement soit important [25], et qu'il est composé de

complexes C-(K,N)-S-H ou C-S-H, partiellement ordonnés, contrairement aux gels silico-alcalins qui ne contiennent pas de calcium et sont complètement amorphes.

### **1.3.5. Effets de taille**

Il a été observé que les gonflements diffèrent lorsque l'on change la taille des granulats du béton. Cette dépendance n'est pas forcément monotone, il y a des situations où une taille de grain particulière entraîne un gonflement plus important que les autres tailles. C'est ce qui est appelé l'effet pessimum en taille de granulat. Cet effet était déjà mentionné par Stanton dans son article de 1940 [1]. Diamond a étudié cet effet sur des granulats d'opale qui réagissent très rapidement en 1974 [28]. Dans le cas de l'opale, même les fractions les plus petites entraînent un gonflement important. Avec des granulats calcaires siliceux, Multon montre que l'effet de taille est lié à la concentration en alcalins [29] et qu'il dépend aussi de la durée de l'expérience.

Cet effet, si l'on écarte la possibilité que les granulats de tailles différentes soient en fait de minéralogies différentes, peut être attribué à plusieurs raisons. Tout d'abord, les petits granulats ont une surface spécifique, c'est-à-dire rapporté à leur volume, plus grande. Cela rend accessible une proportion plus importante du granulat aux espèces chimiques de la solution interstitielle qui diffusent dans le granulat, en un temps donné, et donc potentiellement accélère la dissolution des granulats. Un effet de surface spécifique contradictoire avec le précédent est dû à la présence de l'auréole de transition autour de chaque granulat (interface transition zone ou ITZ en anglais), qui est d'épaisseur à peu près constante, et de porosité supérieure au reste de la pâte de ciment. Cette zone sert de vase d'expansion aux gels produits près de la surface des grains, et est de volume supérieur, relativement à celui du granulat, si le granulat est petit. Enfin, il existe un troisième effet plus subtil lié à la fissuration de la pâte de ciment qui favorise la rupture autour des grands grains en raison de la nature volumique du stockage d'énergie élastique, en comparaison de la nature surfacique des énergies dissipées lors de la fissuration.

## **I.4. Caractéristiques mécaniques de la réaction alcali-silice**

La réaction alcali-silice peut être tout à fait inoffensive pour les ouvrages attaqués si elle n'est pas accompagnée de conséquences mécaniques. Nous allons dans cette partie décrire les propriétés des gels d'alcali-réaction, puis rappeler les modifications des propriétés mécaniques des bétons qui peuvent se produire, en nous intéressant à leur aspect anisotrope.

### **I.4.1. Propriétés des gels**

Les gels sont assez mal connus, mais il est nécessaire d'avoir une idée de leurs propriétés pour savoir s'ils sont susceptibles de monter en pression ou s'ils sont libres de migrer dans le béton. Nous décrivons d'abord leur structure, puis leurs propriétés mécaniques.

#### **I.4.1.1. Structure des gels**

Un certain nombre d'articles tirent parti de méthodes expérimentales avancées pour caractériser les gels d'alcali-réaction [30, 31, 32, 33]. Kurtis [30] montre qu'en présence de calcium et d'alcalins, les produits formés sont structurés et ne gonflent pas. En absence de calcium, en revanche, les polymères formés sont moins denses et moins structurés.

Hou [32] effectue une comparaison entre différents granulats. Il nomme A-S-H les complexes silico-alcalins ne contenant pas de calcium, qui semblent avoir une structure par couches. Il observe un anneau de C-S-H à la surface du granulat, et des C-S-H dans les fissures du granulat. La production initiale de C-S-H est selon lui ralentie par la diminution de la concentration de calcium dans la solution interstitielle, mais les C-S-H continuent d'incorporer des atomes de silice, augmentant leur degré de polymérisation. Lorsque la quantité de silice dans le complexe a atteint un niveau donné qui correspond à un rapport Q1/Q2 maximal, la production de A-S-H démarre. La barrière ionique autour du granulat est nécessaire pour avoir une concentration suffisante pour entraîner la précipitation de A-S-H, et cette barrière est considérée comme étant formée des C-S-H. Cette explication est d'une certaine façon contradictoire avec l'idée, tirée des articles des Mines de Douai, que le passage des tétraèdres Q3 à Q0 se fait rapidement, de sorte que l'on observe peu de tétraèdres Q2 et Q1, comme nous l'avons dit au § 1.3.4.1 [23, 24, 25]. Néanmoins, la variété des granulats et des gels peut expliquer cette différence.

Hou compare dans un autre article [33] des gels d'alcali-réaction synthétiques et naturels grâce à de la diffraction aux rayons X et de l'IRM. Il remarque une composition et une structure proches. Dans ses mesures, en revanche, des quantités de tétraèdres Q1 et Q2 significatives sont détectées. Le degré de polymérisation des gels de RAG varie de manière systématique avec le rapport ions alcalins/silicates. Les tétraèdres Q3 sont majoritaires dans ces gels, qui sont placés dans des conditions proches de celles observées sur les bétons des ouvrages atteints.

Verstraete [31] souligne que si la solution ne contient que des alcalins, les granulats réactifs sont rapidement dissouts, mais qu'aucun produit n'est formé à l'intérieur des grains,

tandis qu'en présence de calcium, la quantité de produits amorphes dans le grain augmente. Dans d'autres régions, la matière a une structure plus organisée.

#### **I.4.1.2. Propriétés mécaniques**

Il est assez difficile de trouver dans la littérature des informations concernant les propriétés mécaniques des gels. Cette difficulté provient de la grande diversité de produits qui peuvent se former dans des solutions contenant de la silice, du calcium et des alcalins en proportions variées. Une étude assez systématique des produits de réaction dans ce type de mélange a été effectuée par Michaud dans sa thèse de doctorat [34]. La complexité des produits est décrite, mais malgré quelques expériences mécaniques très astucieuses pour produire de la fissuration par réaction chimique entre du gel de silice, du calcium et des alcalins, il n'est pas possible de trancher sur l'origine exacte des pressions qui provoquent les fissures. La thèse de Gaboriaud [35, 36] se place dans la continuité de celle de Michaud, étudiant des solutions silico-alcalines et des solutions calco-silico-alcalines. Il remarque que la concentration en calcium a un impact considérable sur les propriétés du gel obtenu, ce qui est vérifié par des essais rhéologiques qui renseignent principalement sur les constantes de temps de gélification mais donnent peu d'informations sur les propriétés élastiques d'un gel mature. Il est de plus connu depuis Wang et Gillot [15] que les gels ont tendance à incorporer du calcium au fur et à mesure qu'ils vieillissent, ce qui diminue leur mobilité.

Ben Haha considère que la viscosité des gels évolue de la manière suivante : à leur création, ils contiennent peu d'eau, et sont alors très visqueux. Au fur et à mesure qu'ils absorbent de l'eau, ils gonflent et deviennent plus fluides, jusqu'à ce que l'augmentation de la teneur en calcium fasse à nouveau augmenter leur viscosité [37].

En 2005, Phair publie des résultats originaux de modules d'incompressibilité de gels d'alcali-réaction [38], de l'ordre de 10 GPa. Néanmoins, son dispositif expérimental, dans lequel la mesure de module se fonde sur la vitesse d'ondes, semble mesurer le module non drainé du gel (si on le considère comme un matériau poreux), alors que les échelles de temps relativement lentes dans l'alcali-réaction autorisent probablement des échanges continus d'eau entre le gel et la solution interstitielle. D'après Durand, la teneur en eau des gels peut varier de 200 % à 400 % de la masse des gels [39]. Cette information est tout de même intéressante car si les phases de fissuration sont rapides devant le temps de migration de l'eau dans le gel, le module mobilisé est le module non drainé.

Katayama décrit la composition de gels observés dans les trois types de RAG [40], explique que les gels formés aux alentours de 90 % d'humidité relative ont un potentiel

d'expansion par absorption d'eau maximal et peuvent développer des pressions allant jusqu'à 10 MPa. Il donne des ordres de grandeurs des viscosités nécessaires au développement de pression, mais pas d'informations sur la rigidité.

Leeman a mesuré, pour divers mélanges scellés de micro-silice, de portlandite et d'alcalins, les pressions développées par la formation des gels (alors que l'apport d'eau externe est bloqué par les conditions scellées de l'expérience), à volume constant [41]. Les pressions atteintes sont inférieures au MPa, ce qui renforce l'idée que les fortes pressions sont atteintes par absorption d'eau, et dépendent fortement des proportions des différents produits, qui jouent non seulement sur l'amplitude des pressions mais aussi sur leur signe.

Globalement les propriétés des gels sont donc très mal connues. Il semble donc que dans le cadre d'un modèle qui utilise certaines de leurs propriétés comme paramètres d'entrée, il faut les déterminer par optimisation. Les gels se situent au départ d'un processus de dégradation qui passe par la microfissuration des grains, des interfaces et de la pâte de ciment. Nous étudions maintenant les conséquences macroscopiques de cette microfissuration.

#### **I.4.2. Effet de l'alcali-réaction sur les propriétés mécaniques des bétons**

Les propriétés mécaniques des mortiers ou des bétons soumis à l'alcali-réaction sont affectées en raison de la dégradation de granulats et de la microfissuration des granulats et de la pâte de ciment. La résistance à la compression n'est pas diminuée de manière systématique et significative, ce qui en fait un mauvais indicateur de l'état d'endommagement d'un élément de béton attaqué, comme remarqué par Swami [42]. La résistance à la traction diminue en revanche systématiquement : la résistance en flexion peut être réduite de 75 %. De même les modules d'Young en traction diminuent, parfois avant qu'une expansion significative soit observée [42], ce que fait également remarquer Hobbs [43]. Le type de granulat joue sur le mécanisme d'endommagement, donc les pertes de propriétés mécaniques ne peuvent pas être reliées au gonflement avec une règle qui convienne pour tous les granulats. Lorsque la réaction intervient sur un béton chargé, ces manifestations diffèrent selon les directions observées, ce que l'on appelle l'anisotropie de l'alcali-réaction.

#### **I.4.3. Anisotropie de l'alcali-réaction**

La question de l'anisotropie a été soulevée par l'orientation visible de la fissuration sur des structures soumises à des chargements mécaniques (tels que leur poids propre ou l'effet des armatures), par exemple dans l'ouvrage de Hobbs [39] et les thèses de Larive et Multon [6, 7]. Ces fissures sont en général alignées avec les directions de compressions principales du béton.



Elles renseignent de manière indirecte sur l'orientation de la fissuration microscopique. Il semble que le mécanisme soit le suivant : le chargement oriente la microfissuration, ce qui entraîne un gonflement anisotrope au cœur du béton qui est humide et subit l'alcali-réaction. En surface où le béton est sec, la réaction se produit moins et les gonflements sont moins importants, ce qui est à l'origine d'une fissuration macroscopique à la surface des ouvrages, alignées selon les directions principales de compression de la structure.

Cette anisotropie a été largement étudiée en laboratoire par Larive [6]. Les directions de coulage du béton semblent importer beaucoup puisqu'en influençant l'orientation des granulats ainsi que la distribution de l'eau autour de ces granulats, elles influencent également la fissuration susceptible d'apparaître en cas d'alcali-réaction, même en l'absence de chargement extérieur.

Comme souligné par Hobbs [43], l'application de contraintes influe sur l'expansion, de même que le fait d'empêcher les déformations, comme on peut le voir dans les travaux de Kawamura, Berra et Binal [44, 45, 46], dans lesquels ils utilisent un dispositif expérimental développé par Ferraris [47]. L'effet d'un chargement extérieur était à l'origine compris comme une redistribution des gonflements dans les directions les moins comprimées, ce que l'on retrouve dans les modèles de Larive et Multon [6, 7]. On remarque cependant également une diminution des gonflements volumiques aux très fortes compressions qui contredit cette explication [48].

On considère en tout cas que ce comportement anisotrope est une caractéristique essentielle de la dégradation lors de l'alcali-réaction. La bonne reproduction de ce point par les modèles mécaniques est donc indispensable.

## **1.5. Conclusion**

On a présenté dans ce chapitre une étude bibliographique de la réaction alcali-silice. Nous avons tenté de balayer rapidement les mécanismes proposés historiquement pour décrire cette réaction chimique.

## ***Chapitre II***

### ***La technique nano-indentation***

#### **II.1. Introduction**

De nombreux chercheurs et scientifiques ont portés une attention particulière à l'analyse des matériaux complexes d'ingénierie. Des progrès significatifs ont été accomplis au cours des dernières années dans ce domaine. Les tendances actuelles en matière de génie civil exigent beaucoup d'études d'ingénierie afin d'obtenir un matériau cimentaire économiques ayant des performances mécaniques (E, H) excellentes et avec un minimum d'émission du CO<sub>2</sub>.

Afin de remplir ces objectifs, il est nécessaire de développer des matériaux cimentaires ayant une rigidité optimisée, avec structure dense et une perméabilité équilibrée, ainsi que d'autres propriétés mécaniques importantes. Actuellement, les recherches scientifiques ont pour but de comprendre la microstructure des matériaux cimentaires et leur comportement à l'échelle nanométrique ce qui conduit à la fabrication de nouveaux nano-composites contribuant ainsi à l'amélioration des propriétés mécaniques (E, H) de ces matériaux cimentaires.

Dans ce sens, de nombreux outils expérimentaux ont été développés et qui peuvent être classés en trois groupes. Le premier groupe comprend les techniques de mesure microstructure du matériau et de la composition tels que : la Microscopie Electronique (EM), la Microscopie à Force Atomique (AFM), la spectroscopie à Infrarouge du Transformé de Fourier (FTIR), la Résonance Magnétique Nucléaire (RMN), Diffraction des Rayons X (XRD) et d'autres. Le deuxième groupe comprend des analyses thermiques comme l'Analyse Thermique Différentielle (DTA) ou la calorimétrie. Le troisième groupe comprend des analyses micromécaniques telle que la technique de nano-indentation qui est un outil micromécanique très efficace pour atteindre les propriétés mécaniques (E, H) des matériaux à l'échelle nanométrique [49].

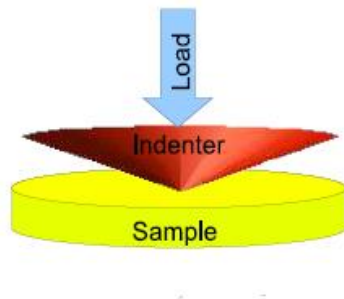
## **II.2. De L'essai D'indentation A La Nano-Indentation Instrumentée**

Les essais d'indentation classiques sont parfaitement adaptés à une mesure macroscopique de la dureté. Ils consistent à mesurer optiquement l'empreinte rémanente laissée par l'indenteur. Cependant, une empreinte de quelques microns de largeur est plus difficile à mesurer de façon optique. De plus, il devient nécessaire de mesurer la dureté non pas post test, mais directement lors de l'essai lui-même, afin de déterminer les propriétés du matériau sous charge [50]. En effet, si on indente un caoutchouc qui est supposé très mou, l'empreinte après test disparaît. Par définition, la dureté du caoutchouc serait donc infinie, ce qui n'a pas de sens physique. C'est pour ces deux raisons que de nouvelles machines ont été créées il y a 40 ans. Avec ces appareils, la force verticale appliquée sur l'indenteur et son déplacement sont mesurés en continu lors de l'essai. Le déplacement est ensuite utilisé pour calculer la surface de l'empreinte sous charge. Cette technique est nommée indentation instrumentée. Les résolutions des capteurs de force et de déplacement étant de l'ordre du micromètre, du nanomètre, voire du picomètre, il est donc possible de mesurer la dureté du matériau testé à ces échelles. On parlera alors de micro-indentation instrumentée ou de nano-indentation. Dans la suite de ce chapitre, on va détailler le cas de la nano-indentation. Cette technique s'est développée dans les années 70- 80[51].

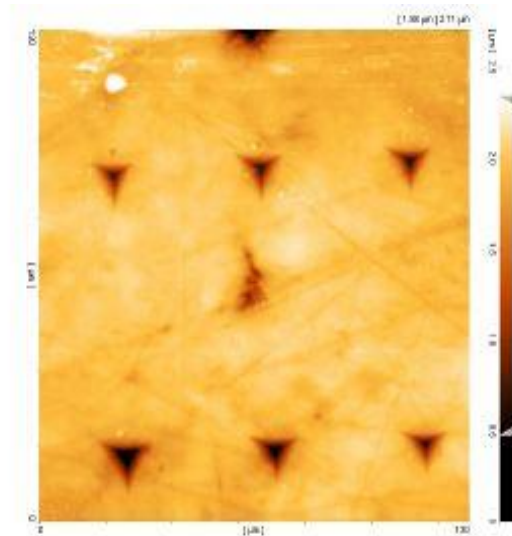
## **II.3. La Technique De Nano-Indentation**

La Nano-indentation est une technique expérimentale puissante qui est en cours d'élaboration et de développement depuis plus d'une décennie [49] avec la fabrication de dispositifs précis permettant la caractérisation à des échelles infiniment petites (de nanomètre). Aujourd'hui, cette technique est assez largement utilisée pour évaluer des propriétés mécaniques des matériaux ( $E$ ,  $H$ ) à des volumes très petites de l'ordre de quelque micromètre.

Le principe de l'essai nano-indentation (figure II.1) est d'enfoncé sous l'action d'une charge donnée un pénétrateur, appelé souvent indenteur, dans la surface du matériau considéré produisant une empreinte (figure II.2). Elle permet de mesurer les propriétés mécaniques ( $E$ ,  $H$ ) du matériau indenté à des échelles de longueur de quelques microns ainsi que sa déformations élastiques, visqueuses ou plastiques obtenues à partir des courbes expérimentales de charge-profondeur d'indentation ( $P$ - $h$ ) obtenues. La charge ( $P$ ) appliquée dans cet essai est de l'ordre de quelques milli ou micro-newton et la profondeur ( $h$ ) obtenue est de l'ordre de centaines nanomètres [49].

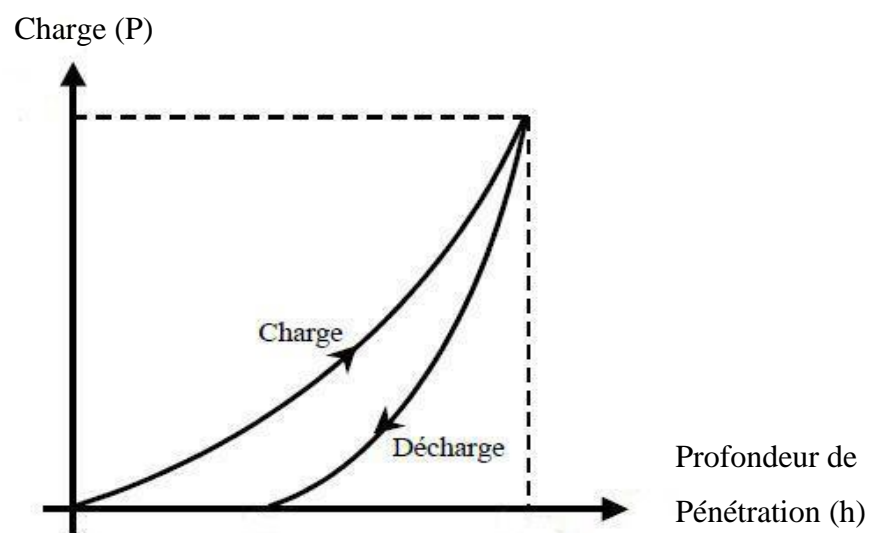


**Figure II.1** Principe de l'essai de nano-indentation [49].



**Figure II.2** Image d'empreinte d'un indenteur dans la pâte de ciment [49].

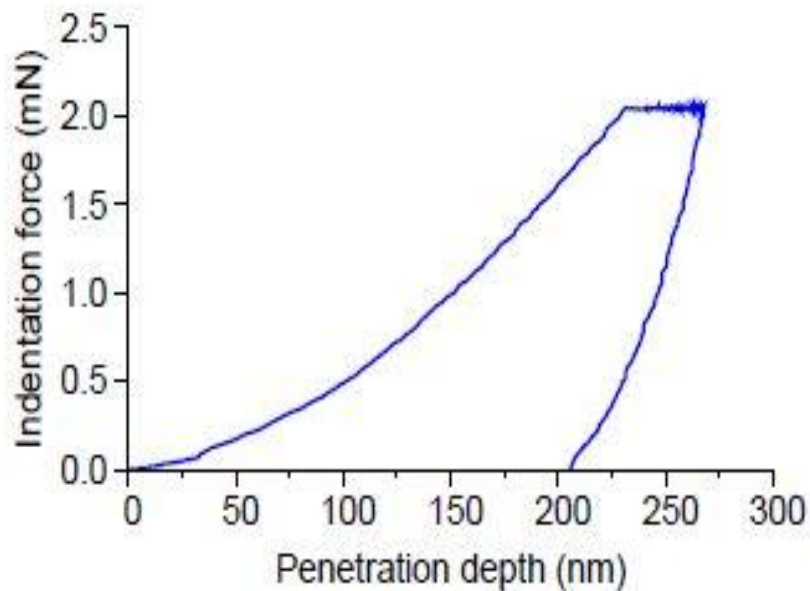
Durant l'essai d'indentation, un système d'acquisition enregistre la force appliquée en fonction de la profondeur de pénétration de l'indenteur. Ces deux paramètres sont continuellement mesurés lors du processus du chargement. Une courbe typique d'indentation est donnée dans la figure II.3.



**Figure II.3** Courbe typique de chargement-déchargement [52].

Cette courbe de chargement peut se présentée sous plusieurs formes qui dépendent du comportement du matériau indenté. Les matériaux élasto-plastiques présentent deux branches

de chargement / déchargement suffisantes pour décrire leur comportement en fonction du temps. Certains matériaux présentent également un écoulement visqueux lors du processus de chargement avec un palier supplémentaire de fluage comme l'indique la figure II.4 [49].



**Figure II.4** Diagramme de charge typique contre la pénétration de nano-indentation [49].

## II.4. Historique de la technique nano-indentation

L'application des méthodes de l'indentation pour évaluer les propriétés mécaniques des matériaux (E, H) remonte au début du 20<sup>e</sup> siècle. J.A. Brinell, ingénieur suédois, eut l'idée pour la première fois d'utiliser cet essai pour un contrôle qualité des aciers sur une échelle de production [32]. Il plaça une bille entre deux échantillons en acier et pressa le tout dans un étai. L'acier le plus dur était celui pour lequel l'empreinte rémanente était la plus petite. Cet essai constitua une des premières mesures de la dureté statique [52].

Ce premier travail de l'ingénieur suédois a été présenté dans un congrès international en 1900 à Paris. La proposition de Brinell furent rapidement appréciées par les contemporains : Meyer (1908), O'Neill (1944) et Tabor (1951) qui ont suggérées les relations empiriques pour obtenir à partir des résultats de l'indentation des propriétés mécaniques (E, H) [53]. L'essai de l'indentation fournit une courbe P- h, et l'extraction des propriétés mécaniques des matériaux (E, H) nécessite une analyse inverse de ces données.

Le fondement théorique de l'indentation élastique est fixé par le problème de Boussinesq et le problème de contact de Hertz [53]: le problème de contraintes produites dans un demi-espace élastique par une distribution de forces normales ou tangentielles a été d'abord envisagé par Boussinesq. Le problème de contact normal entre deux solides (de révolution) élastiques isotropes fut étudié par Hertz en 1882 en observant l'évolution des franges d'interférences optiques (de Newton) de deux lentilles transparentes pressées l'une contre l'autre [52]. Par la suite, Sneddon (1964) a estimé les relations générales entre la charge ( $P$ ), le déplacement et la zone de contact pour tout indenteur (pénétrateur) décrit comme un solide de révolution [53].

L'intégration des phénomènes de la plasticité dans l'analyse de l'indentation est un problème beaucoup plus complexe. La nature non linéaire des relations constitutives ainsi que l'augmentation du nombre de propriétés matérielles nécessaires pour décrire le comportement de la matière compliquent le calcul de solutions analytiques. En conséquence, une grande partie de nos connaissances sur l'importance de la plasticité dans les problèmes de contact du pénétrateur a été tirée de l'expérimentation, et plus récemment par des simulations par éléments finis. Plusieurs chercheurs ont proposé des procédures semi-analytiques qui utilisent la charge ( $P$ ) expérimentale et la réponse ( $h$ ) pour calculer les propriétés élastiques telles que le module élastique ( $E$ ), pseudo-propriétés caractérisant la résistance à la déformation, la dureté ( $H$ ), et les propriétés plastiques telles que la limite d'élasticité et d'érouissage ( $n$ ). Les données expérimentales ont montré que l'analyse des données par l'intermédiaire de l'indentation des solutions élastiques fournit des estimations raisonnables du module d'élasticité et la dureté du matériau indenté, à condition que la surface de contact soit mesurée ou calculée avec précision [53].

### II.5. Dispositif expérimentale

Pour une étude détaillée, un type spécial de nano-indenteur de Hysitron, appelé Triboindenter est utilisé.

Un triboindenteur est un appareil de l'indentation instrumentée du type CSM. C'est un instrument très précis, utilisé pour la détermination des propriétés mécaniques ( $E$ ,  $H$ ) des matériaux cimentaires. Des propriétés comme la dureté ( $H$ ) et le module élastique ( $E$ ) peuvent être déterminées pour la plus part de ces matériaux. Les appareils de l'indentation CSM sont les seuls instruments commercialisés qui emploient une technique de mise en référence extérieure. En mettant en référence la mesure de profondeur à partir de la surface de l'échantillon [54].

Cet appareil de l'indentation permet d'effectuer des indentations à multi cycles progressifs et constants. Il est constitué essentiellement de trois parties (figure II.5) qui sont détaillées sur la figure II.6 [54].



Figure II.5 Appareil d'indentation CSM [54].

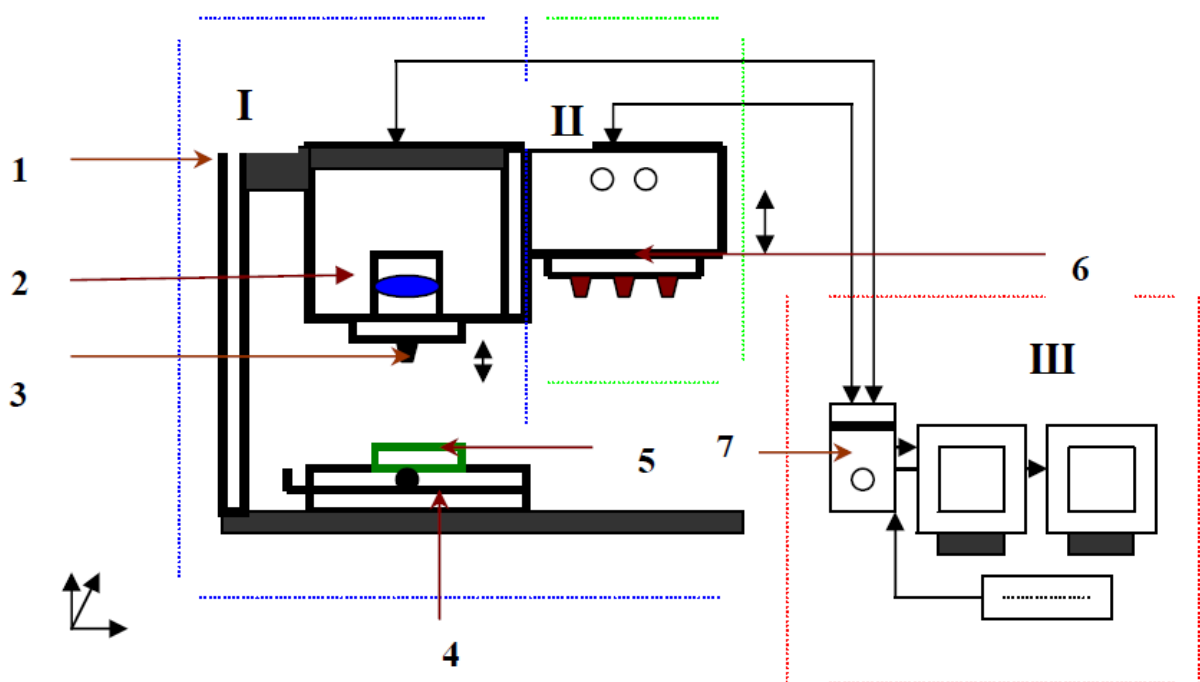
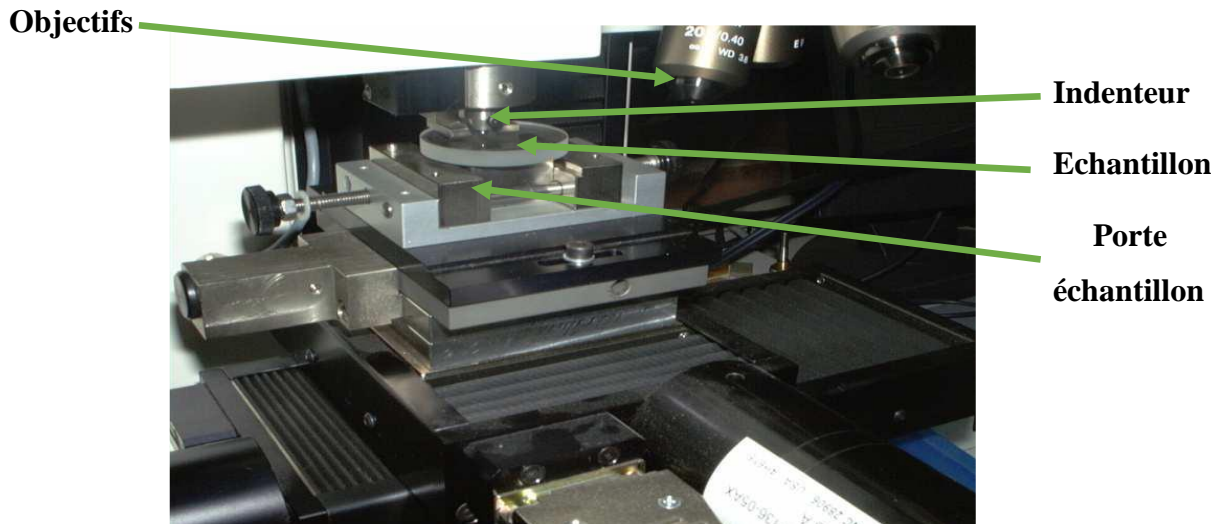


Figure II.6 Schéma descriptif du CSM [54].

- **Partie I (partie indentation):** C'est le dispositif de l'indentation. Elle est constituée d'une table porte - échantillon (4), un porte - indenteur (3), relié à un système d'amplification et de transformation du signal (1). Il est muni d'un capteur acoustique (2).

La figure II.7 représente un agrandissement de la partie Indenteur-Echantillon.



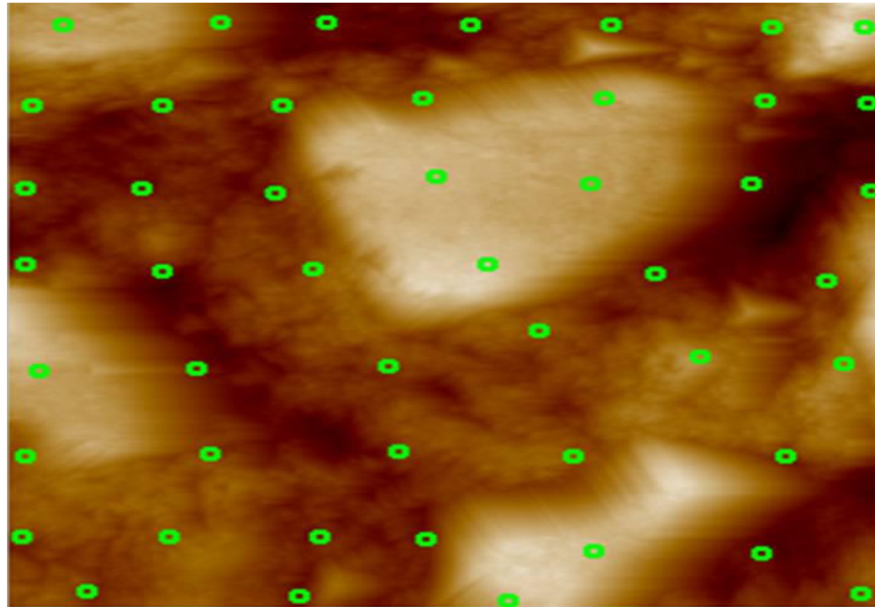
**Figure II.7** Montage expérimental des essais effectués sur CSM [54].

- **Partie II (partie optique):** Elle comprend le dispositif qui permet l'agrandissement et la visualisation de l'empreinte (6) grâce à plusieurs objectifs avec différents grossissements et un écran.
- **Partie III (partie informatique):** Elle est constituée de deux écrans, d'un clavier, d'une souris ainsi que d'une unité centrale (7). L'ordinateur est muni de plusieurs logiciels permettant de programmer la matrice de mesures (paramètres d'entrée) et de traiter les résultats obtenus lors des essais d'indentation (figure II.6).

L'avantage d'utiliser un Triboindenteur est qu'il combine les principes de nano-indentation avec la microscopie à force atomique. Ainsi La fonction d'imagerie du Triboindenteur offre la possibilité d'identifier les différentes phases et de positionner la sonde de l'indenteur dans les dix nanomètres (en fonction de la spécification de l'appareil) de l'emplacement de test désiré. Le post-test d'imagerie permet également de vérifier que le test a été effectué à l'endroit désiré, ce qui maximise la fiabilité des données. Comme le montre la figure II.8, l'image d'une



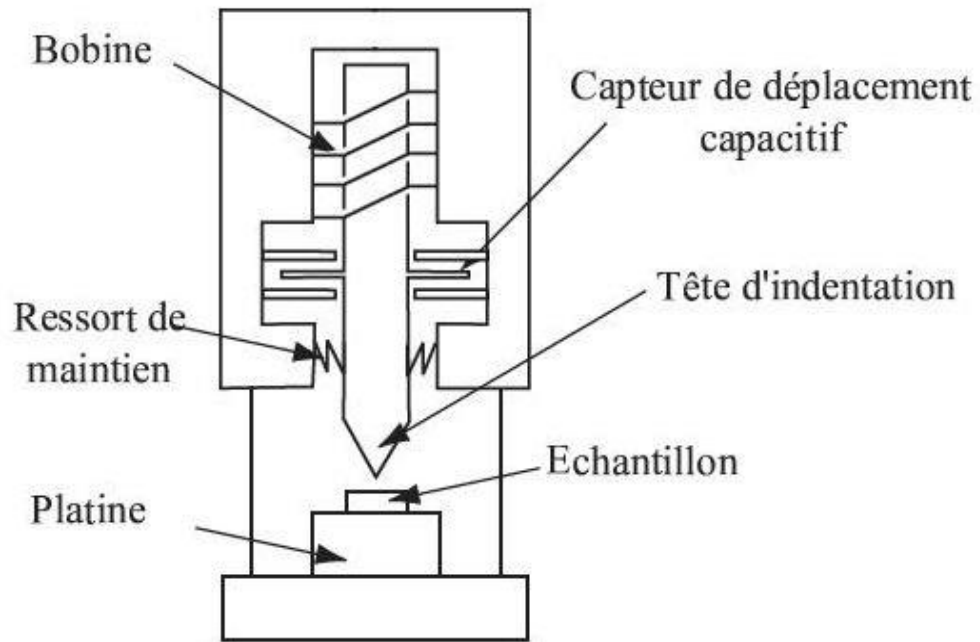
zone représentative d'un échantillon de pâte de ciment a été prise d'abord avec un indenteur de type Berkovich. Ensuite, près de 36 sites ont été sélectionnés pour l'indentation, à la fois sur la particule vive et sur la zone qui l'entoure. En utilisant le même embout, une image a été capturée après indentation pour s'assurer que les tirets ont été faits à l'endroit voulu [55].



**Figure II.8** L'image d'un échantillon de pâte de ciment indenteur [55].

De manière générale, Un Triboindenteur permet une approche plus directe ce qui permet d'identifier les différentes phases de la pâte de ciment. Par exemple grâce à l'imagerie on peut déterminer les propriétés mécaniques locales (E, H) de la même phase ce qui réduit l'ambiguïté [55].

La figure II.9 montre une représentation schématique d'un dispositif de nano-indentation. Son principe assez simple, la force P est appliquée par induction ce qui permet de suivre sa valeur par le biais du courant circulant dans la bobine. Un capteur capacitif permet d'accéder à la mesure du déplacement absolu de la tête de l'indenteur. On obtient ainsi des données brutes de force et de déplacement. Pour obtenir la pénétration à partir des données de déplacement, il faut pouvoir déterminer la position initiale de la surface de l'échantillon, de façon à pouvoir obtenir une courbe d'indentation exploitable. Pour ce faire, on fixe un seuil en raideur de contact qui, lorsqu'il est dépassé, indique que l'indenteur a atteint la surface de l'échantillon [56].



Fi

Figure II.9 Une représentation schématique d'un dispositif de nano-indentation [56].

On obtient ainsi une courbe du type de celle présentée en figure II.10 donnant l'évolution de la force appliquée en fonction de la pénétration de la pointe (indenteur) d'indentation dans la surface de l'échantillon. A la décharge, la force s'annule pour une valeur de pénétration  $h_f$  comprise entre 0 et  $h$  : c'est la profondeur de l'indentation laissée dans l'échantillon. Pour avoir accès à la raideur du contact ( $S$ ), deux méthodes distinctes sont utilisées : la méthode de mesure de la raideur à la décharge (méthode d'Oliver et Pharr) ou la méthode de mesure continue de la raideur de contact (méthode CSM).

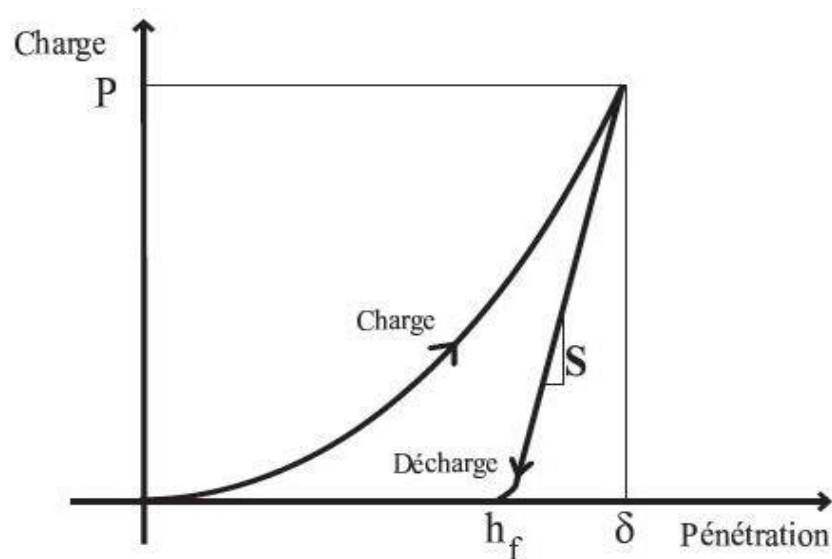


Figure II.10 Courbe de chargement-déchargement [56].

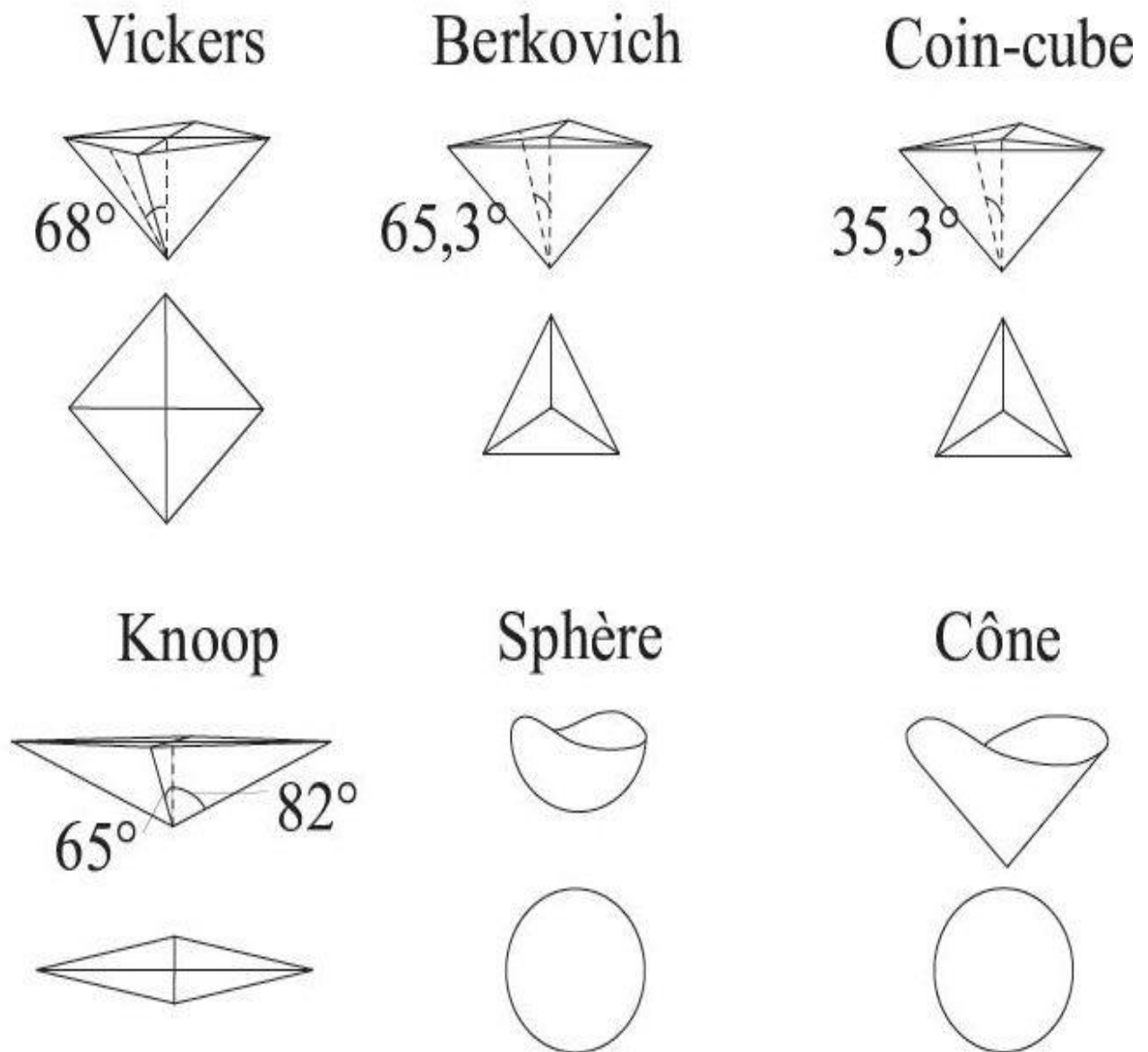
## **II.6. Les types d'indenteur utilisées**

L'indentation est réalisée avec un indenteur dont la forme géométrique est la plus simple possible pour faciliter l'analyse de la surface de contact résiduelle. De plus l'indenteur doit être très peu déformable, surtout vis-à-vis du matériau à indenter, lorsqu'il est soumis à la charge d'indentation. Les indenteurs sont de géométrie différente telle que les indenteurs coniques, pyramidales et sphériques...Etc., plusieurs considérations pratiques sont derrière ces choix. Par exemple, l'indenteur pyramidal Berkovich est mieux approprié que celui du Vickers ou Knoop puisque la forme pyramidale à trois faces est plus facile à usiner et rectifier que celle à quatre faces.

En dehors de ces considérations pratiques, certaines formes de l'indenteur possèdent la propriété souhaitable d'autosimilarité dans les essais de l'indentation. L'indenteur servant à la caractérisation mécanique est fixé sur une colonne. Ce dernier est, dans la majorité des cas, en diamant à cause de ces bonnes propriétés mécaniques, mais d'autres matériaux tels que le saphir peuvent être utilisés.

Les méthodes étudiées dépendent des différents indenteurs utilisés (figure II.11) et correspondent respectivement aux cas suivants :

- Indenteur de forme cylindrique (méthode de Sneddon revu par H .C Fisher- Gripps).
- Indenteur de forme conique (approximation du cas cylindrique).
- Indenteur de forme sphérique.
- Indenteur de forme pyramidale (Berkovich, Vickers et Knoop).



**Figure II.11** Les différentes géométries de la pointe d'indenteur couramment utilisées en nano-indentation [56].

Des travaux expérimentaux de la dureté, réalisée par Tabor et N.A. Stillew, sur des métaux avec des indenteurs de formes sphérique et conique ont montré que les empreintes résiduelles conservent les formes géométriques d'indenteur .A partir de ces observations, ils ont montré que la courbe de déchargement et le retour de déplacement élastique peuvent être reliés de façon précise au module d'élasticité et à l'empreinte résiduelle pour les 2 types d'indenteurs sphérique et conique. Ces derniers ont montré également que le comportement de l'une des géométries déjà cité donne une meilleure description de déchargement d'une indentation

élastique faite avec un indenteur pyramidal de type Berkovich et c'est le plus utilisé dans les essais de nano-indentation.

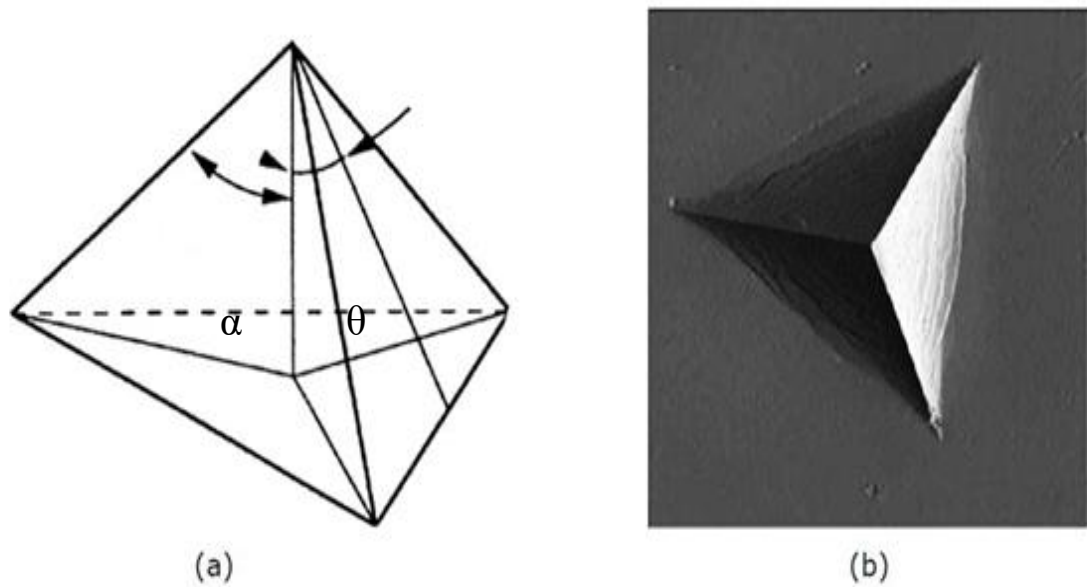
Les surfaces de contact pour différentes géométries d'indenteurs sont indiquées dans le tableau II.1

Type d'indenteur	La surface projetée	Demi-angle ( $\theta$ )	Angle de cône effectif	Facteur d'interception $\varepsilon$	Facteur de correction de géométrie $\beta$
Sphère	$\pi 2 R h_p$	N/A	N/A	0.75	1
Berkovich	$3\sqrt{3} h_p^2 \tan^2 \theta$	65.3°	70.2996	0.75	1.034
Vickers	$4h_p^2 \tan^2 \theta$	68°	70.32°	0.75	1.012
Knoop	$2h_p^2 \tan \theta_1 \tan \theta_2$	$\theta_1 = 86.25^\circ$	77.64°	0.75	1.012
		$\theta_2 = 65^\circ$		0.75	1.012
Coin-cube	$3\sqrt{3} h_p^2 \tan^2 \theta$	35.26°	42.28°	0.75	1.034
cone	$\pi h_p^2 \tan^2 \alpha$	$\alpha$	$\alpha$	0.72	1

**Tableau II.1** La surface de contact pour différentes géométries d'indenteurs [57].

## II.7. L'indenteur de berkovich et défaut de pointe

L'aire de contact entre l'indenteur et le matériau est la grandeur clé de l'analyse mécanique de l'essai d'indentation que ce soit pour la mesure de la dureté (H) ou du module de Young (E). L'indenteur le plus utilisé en nano-indentation est l'indenteur pyramidal en diamant à base triangulaire de type Berkovich. Alors que celui de Vickers est utilisé dans la micro-indentation instrumentée [54]. L'indenteur Berkovich est caractérisée par un demi-angle au sommet ( $\theta = 65,3^\circ$ ) et un angle effectif de cône ( $\alpha = 70,3^\circ$ ). Sa forme générale et un exemple d'empreinte laissée par un indenteur Berkovich sont montrés sur la figure II.12 [58].



**Figure II.12** (a) Schéma de l'indenteur Berkovich angles et Caractéristiques et (b) exemple d'empreinte pyramidale triangulaire [58].

L'avantage de cet indenteur à trois faces est qu'il peut être taillé avec beaucoup plus de précision qu'un indenteur Vickers. Comme dans le cas de l'indentation conventionnelle, on peut utiliser une aire projetée qui s'observe à la surface de l'échantillon ou l'aire de contact réel qui prend en compte la surface des faces inclinées de l'empreinte. Dans les deux cas, il faut une mesure précise de cette grandeur car son effet sur la précision du nombre de dureté sera d'autant plus important que la surface étudiée sera petite, ce qui est le cas en nano-indentation.

La surface théorique pour un indenteur Berkovich est de [58]:

$$\left\{ \begin{array}{l} A = 24,5 h^2 \text{ Pour la surface projetée} \\ \text{Et} \\ A = 26,43 h^2 \text{ Pour la surface de contact réelle} \end{array} \right. \quad \text{Ou } h \text{ est la profondeur de l'empreinte}$$

Ces expressions supposent un indenteur pyramidal à base triangulaire parfaite. En pratique, ceci n'est jamais observé car il est impossible de faire une pointe parfaite ayant un point pour extrémité. Le sommet de la pyramide est donc toujours plus ou moins arrondi. Il peut même s'émousser au cours d'une utilisation prolongée. Ainsi, il est conseillé de déterminer la surface en tenant compte de ce défaut de pointe. On distingue trois méthodes [58]:

- La première consiste à déterminer directement cet air à l'aide d'un microscope à force atomique (AFM).
- La seconde utilise de façon indirecte la pénétration dans un matériau de module de Young connu. L'écart entre les valeurs expérimentale et théorique est utilisé pour ajuster l'expression de la surface.
- La troisième méthode, encore indirecte, consiste à déterminer l'écart entre la dureté, calculée à partir de la force mesurée en fonction de la profondeur de la pénétration et la dureté indépendante de la profondeur de pénétration obtenue lorsque la pénétration est suffisamment élevée.

L'enfoncement de l'indenteur dans la matière est schématisé sur la figure II.13. Les caractéristiques de l'indenteur et de l'enfoncement plastique généré par l'indenteur sont représentés sur cette figure [59].

- $h_0$  : est le défaut de pointe d'indenteur. Il correspond à la différence entre la longueur théorique de l'indenteur Berkovich et la longueur réelle provoquée par l'arrondi de la pointe.
- $h_f$ : est la longueur de coupure, c'est-à-dire la hauteur à partir de laquelle la forme de l'indenteur ne suit plus la forme théorique tétraédrique. Concernant l'empreinte dans la matière.
- $h_{R'}$  : représente la hauteur de l'enfoncement plastique mesuré sous charge.
- $h_b$ : la hauteur du bourrelet plastique formé au bord de l'empreinte.

L'enfoncement total  $\delta$  est donc défini par :  $\delta = h_b + h_{R'} + h_0$ . Le défaut de pointe peut être mis en évidence et mesuré en traçant la courbe  $S = f(h_{R'})$ , où  $S$  est la raideur de contact (figure II.14). Comme  $S$  est proportionnel à  $E \cdot h_{R'}$ , avec  $E$  module d'Young, en traçant la courbe  $S = f(h_{R'})$ , on obtient une droite qui passe par l'origine si la pointe est parfaite. Si

cette droite ne passe pas par l'origine, il est possible de déterminer et mesurer sur la courbe  $S = f(h_{R'})$  les hauteurs  $h_0$  et  $h_J$  [59].

$h_0$  : défaut de pointe

$h_J$ : longueur de coupure

$h_{R'}$ : enfoncement plastique

sous charge

$\delta$  : enfoncement

$$Total = h_b + h_{R'} + h_0 = \alpha (h_{R'} + h_0)$$

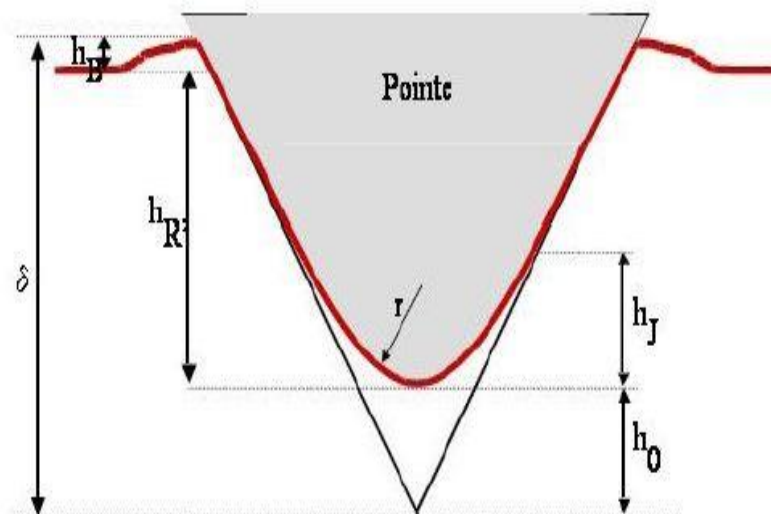
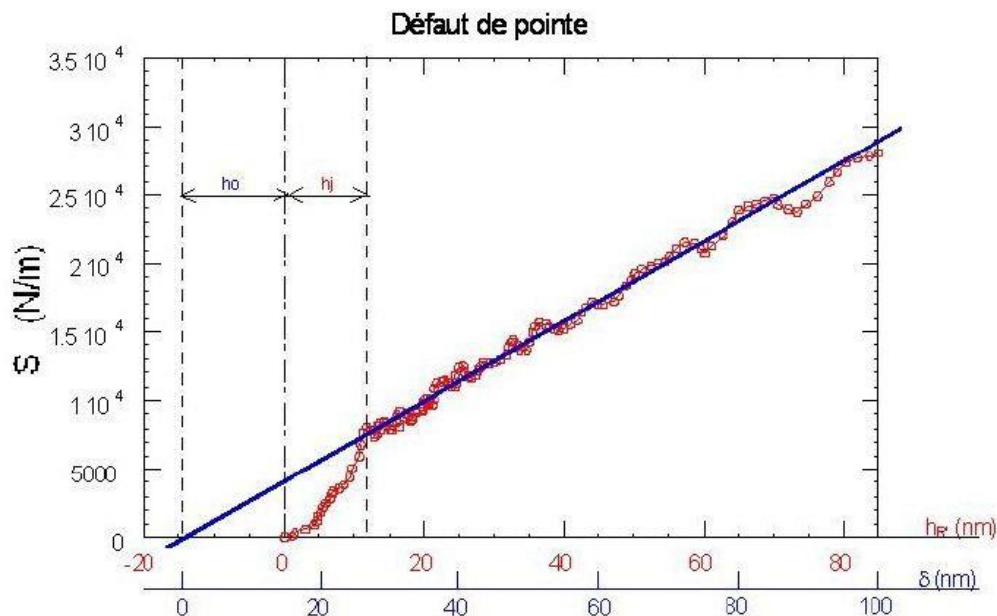


Figure II.13 Représentation schématique du défaut de pointe [59].





**Figure II.14** Tracé du défaut de pointe, exprimé par la raideur de contact en fonction de  $h_{R'}$  [59].

La courbe obtenue lors d'un essai de nano-indentation se présente sous la forme de la figure II.15, où P est la charge normale appliquée. Pour un indenteur Berkovich l'aire d'indentation est donnée par la formule [59] :

$$A_{ind} = 24,56 \cdot [1,2 \cdot (h_{R'} + h_0)]^2 \text{ ou } A_{ind} = 35,36 \cdot (h_{R'} + h_0)^2 \quad (\text{II-1})$$

La nano-dureté, exprimée en mégapascals, est donnée par :

$$H = \frac{P}{A_{ind}} = \frac{P}{24,56 \times (1,2)^2 \times (h_{R'} + h_0)^2} \quad (\text{II-2})$$

Il est possible d'en déduire le module d'élasticité réduit (équivalent)  $E_r$  :

$$E_r = \frac{5}{2} \sqrt{\frac{\pi}{A_{ind}}} = \left( \frac{\sqrt{\pi}}{2 \cdot \sqrt{24,56} \cdot (1,2)} \right) \times \frac{S}{(h_{R'} + h_0)} \quad (\text{II-3})$$

Avec

$h_0$  : défaut de pointe

$h_{R'}$  : enfoncement plastique

$P$  : charge normale

$S$  : raideur du contact

$A_{ind}$  : aire d'indentation

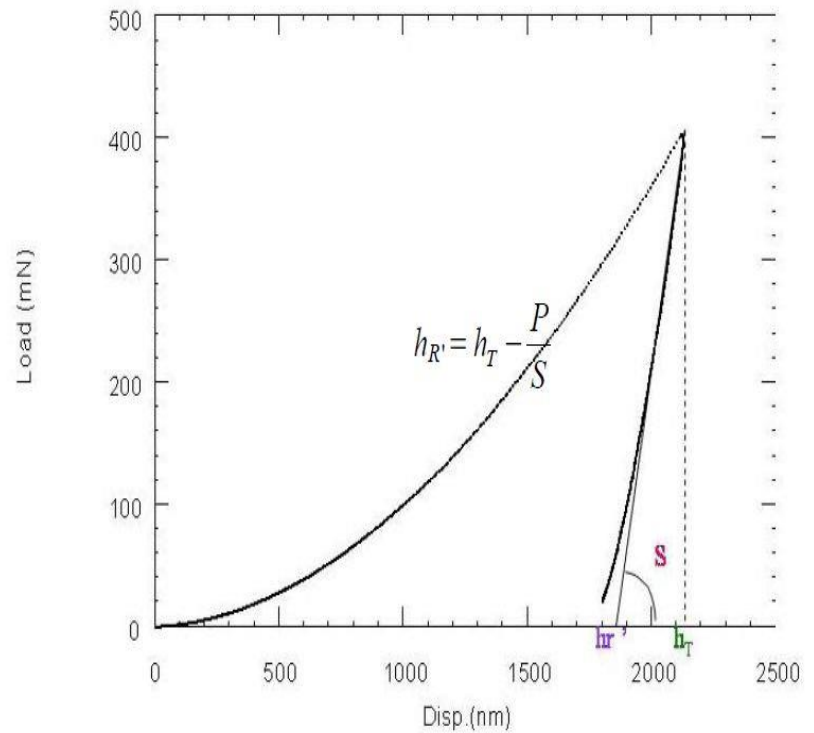


Figure II.15 Courbe résultat de nano-indentation [59].

## II.8. La grille (matrice) d'indentation

La technique de grille-indentation (matrice) figure II.16 peut non seulement être utilisée pour obtenir des propriétés clés mécaniques des matériaux hétérogènes (comme les CSH) à une échelle de longueur particulière [3], et elle peut aussi donner accès à des fractions volumiques des phases indépendantes.

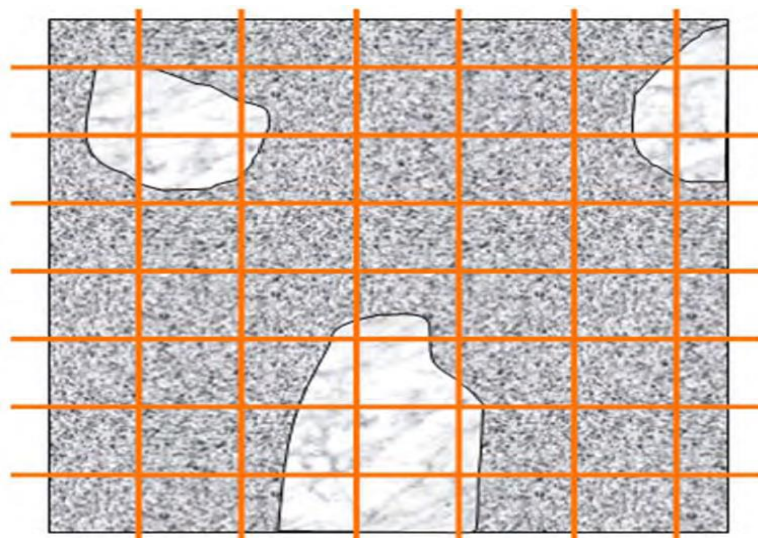


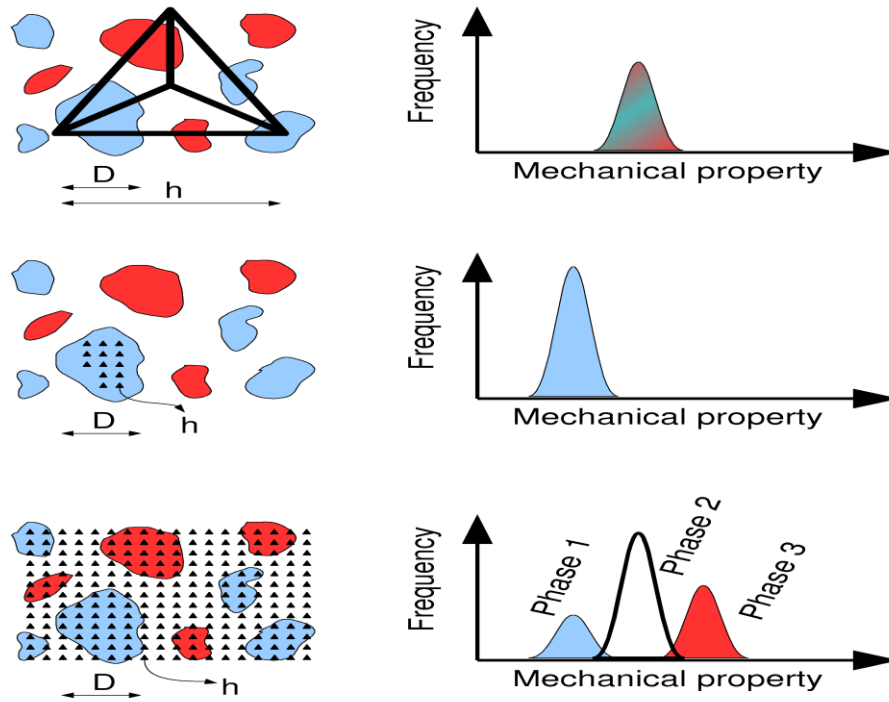
Figure II.16 Schéma d'indentation sur la grille échantillon de pâte de ciment [55].

Les matériaux composites de construction sont des matériaux multiphasiques dans lesquels les phases distinctes sont mélangées spatialement et chimiquement. En prenant en compte l'hétérogénéité microstructurale. On a essentiellement trois techniques pour obtenir les propriétés mécaniques d'un composite [49].

- si la profondeur d'indentation est plus grande que la dimension caractéristique d'une phase ( $h \gg D$ ), dans ce cas on peut obtenir les propriétés moyennes d'une phase composée. Mais cette stratégie ne donne pas accès ni aux propriétés des phases distinctes, ni à leurs fractions volumiques.
- Une autre possibilité consiste à effectuer l'indentation pointu à une phase spécifique du matériau, d'où la dimension du tiret est plus petite que celle de la phase considéré ( $h \ll D$ ). Dans ce cas on peut obtenir les propriétés intrinsèques d'une phase distincte (y compris la porosité intrinsèque de la phase). Cette stratégie peut être utilisée, à condition que la phase du matériau soit connue avant l'indentation par d'autres moyens (par exemple le microscope optique ESEM), ce qui n'est pas toujours le cas car des fois ce moyen nous permet d'accéder aux propriétés des phases distinctes mais pas à la fraction volumique de la phase par rapport aux autres phases.
- Une dernière stratégie peut être utilisé dans le cas des matériaux de construction, c'est la technique la plus puissante qui est basé sur la statistique (grille massive). L'indentation est réalisée sur une grande surface pour capter l'hétérogénéité des échantillons avec une dimension du tiret encore plus petite que la dimension caractéristique d'une phase individuelle ( $h \ll D$ ).

Toutes les approches sont représentées schématiquement sur la figure II.17 pour un support à trois phases.

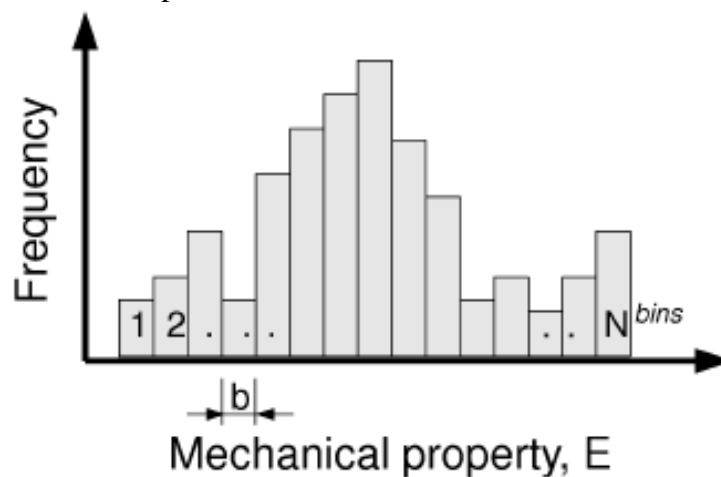
Ces grandes matrices d'indentations fournissent les résultats des propriétés mécaniques (E, H) qui sont déterminées par un grand nombre d'expériences d'indentation à une échelle spécifique ainsi que leur rapport de volume. Les propriétés peuvent être évaluées en termes d'histogrammes (figure II.18) pour lesquels les techniques de déconvolution ultérieures peuvent être utilisés et évalués les propriétés des phases individuels [20].



**Figure II.17** les trois techniques déjà citée pour obtenir les propriétés mécaniques [49].

Le béton durci contient toujours une part importante de l'eau liquide à partir de la condensation capillaire de vapeur d'eau dans les pores inter granulaires, il est donc d'un intérêt particulier pour effectuer une grille-indentations avec précision Humidité Relative (HR) de commande afin de quantifier l'influence de la fraction d'eau sur les propriétés mécaniques (E, H).

Telle était la motivation pour la conception d'un instrument de nano-indentation entièrement automatisé, capable de faire des centaines de milliers de creux tout en conservant l'humidité ambiante avec une précision  $\pm 0,1\%$  HR[3].



**Figure II.18** Un histogramme typique des propriétés mécaniques [49].

## **Chapitre III**

### ***Caractérisation des alcalis Activé cendres volantes par Nano-indentation :***

#### **III.1 Introduction**

Plusieurs techniques expérimentales peuvent être appliqués pour caractériser le comportement mécanique des composants individuels du composite AAFA. La nano-indentation joue un rôle important parmi les techniques expérimentales de travail à l'échelle de longueur inférieure au micron. La nano-indentation est basée sur la mesure directe du déplacement de charge (P-h) de relation à l'aide d'une très petite pointe (typiquement diamant) enfoncé dans le matériau.

Le développement standard de la relation de p-H mesurée est basée sur la solution analytique d'un problème de contact comportant un pénétrateur et un corps solide semi-infini et fournit la dureté et le module d'Young. La solution Oliver-Pharr [60] suppose surface parfaitement plane et matériau élasto-plastique isotrope. Les résultats d'une matière cémentations similaires peuvent être trouvés dans [61, 62].

Les objectifs visent à la caractérisation des propriétés intrinsèques de gel N-A-S-H dans la microstructure hétérogène de AAFA sur l'échelle de micromètres. Des échantillons durcis à la chaleur ambiante ont été préparés à partir de la même composition pour explorer les différences dans la procédure de durcissement.

#### **III.2 expérimentation :**

##### **III.2.1 Matériaux :**

La cendre volante brut (RFA) provient de Chvaletice, République tchèque, avec la surface spécifique Blaine 210 m<sup>2</sup>kg<sup>-1</sup>. La composition chimique moyenne de cet appel de demandes est donnée dans le Tab. 1 avec SiO<sub>2</sub>/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> rapport de masse de 1,58. RFA a été broyé dans un broyeur à billes à petite échelle dans la quantité de 8 kg pendant 45 minutes. L'activation de solution a été préparée par dissolution de NaOH dans de l'eau du robinet avec l'addition de verre soluble de sodium de l'eau dans les proportions indiquées dans [63]. Les moules cylindriques de 22 mm de diamètre et 40 mm de longueur ont été remplis, vibrés pendant 5 minutes et fermés. Durcissement a été effectué, soit à 80° C pendant 12 heures ou à des

conditions de température ambiante à 20 ° C pendant 170 jours. AAFA est resté fermé avant la coupe et de polissage pour nanoindentation.

**Tableau III-1:** Composition chimique moyenne de la cendre volante brute (composants principaux) [63]

Composant	SiO <sub>2</sub>	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	CaO	MgO	Na <sub>2</sub> O	K <sub>2</sub> O	TiO <sub>2</sub>	As <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	V <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	Cr <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	ZnO	C	Rest	Total
Poids (%)	51.9	32.8	6.3	2.7	1.1	0.33	2.12	1.89	0.03	0.067	0.29	0.024	0.2	0.5	100

### III.2.2 Méthode :

Avant la procédure de nano-indentation, des échantillons étaient polies sur une série de documents d'émeri, tissu de polissage et nettoyés dans un bain ultrasonique. Que, trois zones représentatives de chaque échantillon ont été sélectionnés. La nano-indentation a été réalisée comme une série de grilles d'environ 10 x 10 = 100 empreintes dans chaque zone. La distance entre les tirets individuelles varie de manière à couvrir l'hétérogénéité de l'échantillon et a été fixée dans l'intervalle comprise entre 10 et 50 µm. Nano dureté testeur CSM a été utilisé pour tous les tests. Tous ensemble, autour de 700-800 empreintes ont été réalisées pour chaque échantillon AAFA. Toutes les mesures de nano-indentation expérimentales ont été réalisées dans un régime de contrôle de charge. Trapézoïdale schéma de chargement a été prescrit pour tous les tests. Chargement linéaire 4 mN / s (pour une durée de 30 s) a été suivie par la période de détention (30 s) et le déchargement 4 mN / s (30 s). Charge maximale a été prescrit 2 mN pour tous les tirets. La charge appliquée conduit à un maximum de profondeurs de pénétration allant de 100 nm à 400 nm (moyenne 260 nm) en fonction de la dureté de la phase de matériau en retrait. La profondeur effective captée par la pointe du nano-indenteur peut être estimée comme étant de quatre fois la profondeur de pénétration. Il donne de la profondeur efficace autour de 1 µm pour ce cas particulier.

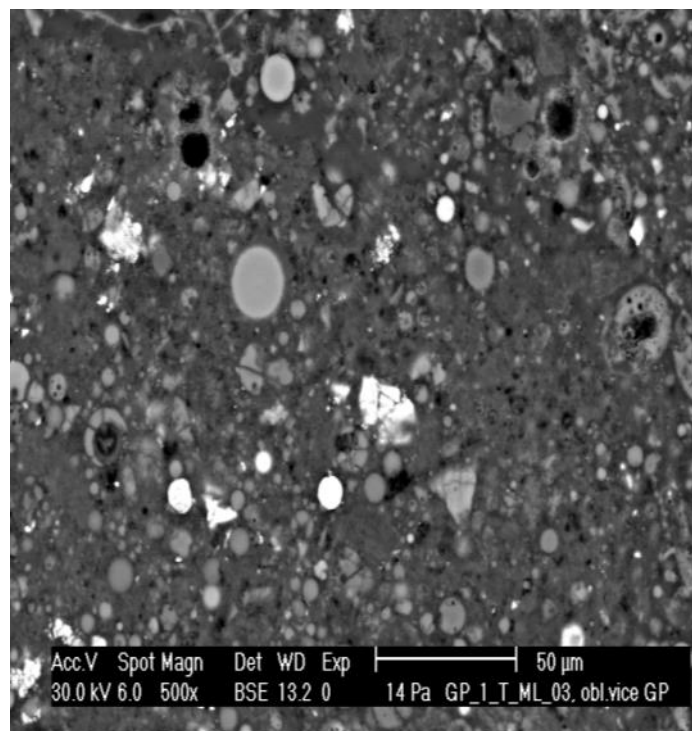
Le microscope électronique à balayage environnemental XL30 ESEM FEI PHILIPS a été employé à recueillir des images pré-et post-indentation.

### III.3 Résultats et discussions

#### III.3.1 ESEM

Thermodurci et ambiantes durci des échantillons polis ont été observées par ESEM en arrière électrons dispersés, Fig.III. 1. Les points lumineux de lumière sont les particules riches en fer (oxydes de Fe-Mn). Les sphères compactes gris clair sont des particules de verre riche en alumine-silice. Seulement une petite partie des particules poreuses de cendres volantes et des des laitiers restent intacts par le procédé de l'activation alcaline. Une grande partie de la matière grise foncée est N-A-S-H gel résultant de préférence de l'activation des laitiers et, dans une moindre mesure, de la silice amorphe à partir de particules de cendres volantes sphériques.

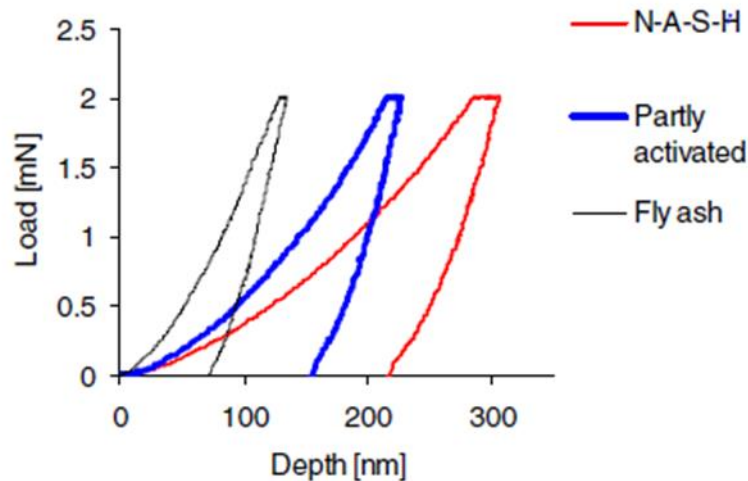
Le processus de broyage de RFA a un impact positif sur l'ouverture de la structure interne des particules de cendres très poreux. Les coques minces écrasées comme faucille des particules de cendres volantes non activés sont observables dans la figure. Le degré d'activation alcaline est estimé par analyse de l'image de l'ordre de 50%.



**Fig.III- 1** typique ESEM (*électrons rétrodiffusés*) image  
de l'AFAFA thermosettable[63]

### III.3.2 Nano indentation :

Pour tous les tirets, les modules élastiques ont été évaluées selon Oliver & Pharr [60] méthodologie à partir des courbes de P-h expérimentaux. Coefficient de Poisson a supposé 0,2 pour toutes les mesures. Des exemples de courbes de P-h appartenant à des phases de matériau individuelles sont montrées à la Fig.III- 2, dans lequel la phase N-A-S-H est la plus conforme alors que non activé cendres volantes particules présente la réponse la plus raide.



**Fig.III- 2** types de diagrammes de profondeur de charge de pénétration  
de phases distingués dans AAFA[63]

Observation ESEM préliminaire a conduit à la conclusion que l'AAFA hétérogénéité se manifeste non seulement sur un ordre du micromètre, mais aussi à l'échelle de centaines de  $\mu\text{m}$ , dépassant de loin la taille des particules de cendres volantes. Cette hypothèse a été confirmée expérimentalement par nano indentation. Plusieurs grilles uniformes de différents endroits AAFA donnent différents histogrammes des propriétés élastiques sur échantillons durcis de chaleur. De ces mesures contenant environ 100 tirets chacun peut en déduire que certaines zones sont riches en un gel NASH douce tandis que d'autres se tournent vers les modules plus élevés dans la zone inférieure cendres volantes activées. Par opposition, le durcissement ambiant semble produire homogène AAFA sur l'échelle de centaines de micromètres. Les résultats sont en moyenne à travers tous les réseaux de chaque échantillon AAFA.

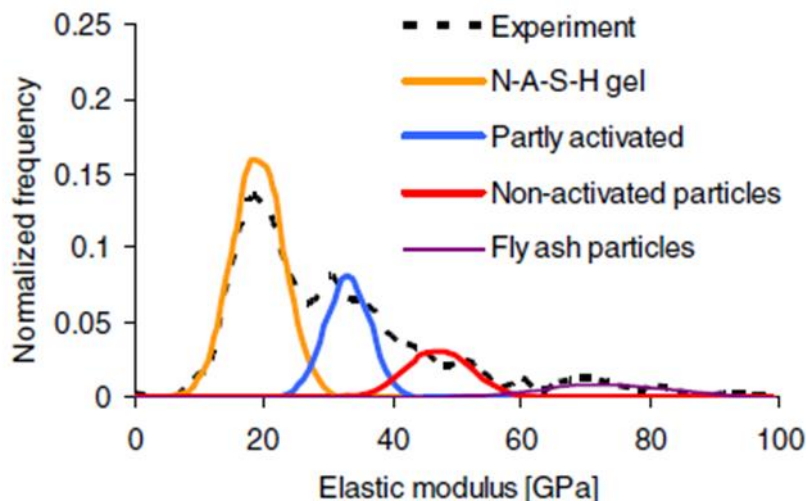
Les résultats globaux à partir des mesures (environ 700 tirets pour chaque échantillon) sont fusionnés et tracés sur les figures III-3 et 4. La comparaison mutuelle montre une fréquence plus élevée de faible module d'élasticité pour ambiante durci échantillon. L'explication réside



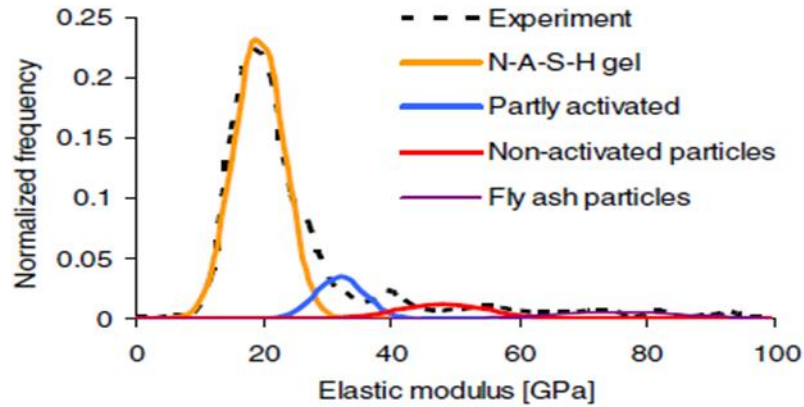
probablement dans différents cinétiques de la réaction entre la température ambiante et la de l'échantillon thermo durci. Précédente mesure de microcalorimétrie déterminé le rapport de la cinétique de la réaction entre échantillon thermo et ambiante durci 406 [63]. Ce qui favorise la formation de gel de N-A-S-H plus homogène en raison équilibrage des ions sur de grandes distances dans un échantillon ambiant durcie.

Afin d'identifier les propriétés des phases individuelles, déconvolution statistique a été appliqué sur les deux histogrammes de module d'élasticité. Gaussiennes distributions ont été assumées pour la déconvolution. Afin d'identifier plusieurs phases de matériau, nous avons proposé d'appliquer déconvolution des histogrammes en quatre phases, à savoir la phase NASH (bien activé), la phase partiellement activé (rigidité supérieure), les particules non activés (principalement laitier et haute rigidité) et les cendres volantes particules (la plus haute rigidité) constitué en majorité de SiO<sub>2</sub> amorphe.

Des échantillons de thermo durci présentent deux sommets importants pour les produits d'activation, Fig.III-3. Le premier sommet peut être attribuée à des gels de NASH tandis que la seconde partie d'un laitier activé. Sommet troisième et quatrième correspondent à des particules non activées ; laitier et les cendres volantes probablement. Par opposition, les échantillons ambiants durci dans la Fig. III. 4 presque manquent le second sommet qui indique une meilleure activation en ce qui concerne l'échantillon durci à la chaleur. De même, les troisième et quatrième sommet des particules non activées sont plus petits.



**Fig.III-3** Déconvolution en quatre phases pour les échantillons de thermodurcissables



**Fig.III-4** Déconvolution en quatre phases pour les échantillons ambiants durcis[63]

Les tableaux 2 et 3 résument les valeurs moyennes et les écarts-types pour les composants individuels. Les phases de gel NASH ont des propriétés presque identiques pour la chaleur et les échantillons ambiants durcis mais la fréquence de l'occurrence dans l'ensemble statistique est différente. Fréquence plus élevée a été obtenue pour les échantillons d'air ambiant durcis qui satisfont à nouveau l'hypothèse de la partie supérieure de la cendre volante ainsi activée. Les propriétés élastiques des phases secondaires sont similaires pour la chaleur et les échantillons ambiants durcis mais encore leurs fréquences sont différentes.

**Tableau III-2** Les propriétés élastiques des phases de matériels individuels d'échantillons de thermodurcissables[63]

	NASH	Partiellement activé	non activé	cendres volantes
Module d'élasticité [GPa]	17,65 ± 3,92	31,50 ± 3,37	45,54 ± 5,03	71,49 ± 9,53
Fréquence d'apparition [%]	55,3	24,0	13,5	7,2

**Tableau III-3** Les propriétés élastiques des phases de matériels individuels d'échantillons de ambiant durcis[63]

	NASH	Partiellement activé	non activé	cendres volantes
Module d'élasticité [GPa]	17.75±3.77	30.50±3.61	46.63±6.45	74 .01±10.05
Fréquence d'apparition [%]	77.9	10.8	6.8	4.5

## Chapitre IV

### Le modèle d'éléments finis

#### IV.1. Introduction

La durabilité et la sécurité des structures sont entièrement régies par des propriétés mécaniques du béton. Cela est particulièrement vrai à un âge précoce, lorsque la matrice de ciment n'est pas encore pleinement développée, il devient alors difficile de comprendre son comportement mécanique. Ce facteur ne peut être soigneusement examiné qu'avec l'utilisation d'un modèle numérique.

Une approche pour déterminer les propriétés mécaniques ( $E$ ,  $H$ ) d'une pâte de ciment est de la modéliser, en effectuant un calcul aux éléments finis (figure IV.1). La simulation numérique est un outil précieux qui permet non seulement un gain de temps conséquent mais aussi une meilleure compréhension des phénomènes mis en jeu. La prédiction du comportement physico-chimique et mécanique de la pâte de ciment, du béton et de la structure au cours du temps nécessite le développement et l'utilisation de modèles couplés. Les résultats de la modélisation sont étroitement liés à la qualité de la représentativité du matériau numérique lui-même et des phénomènes mis en jeu [64].

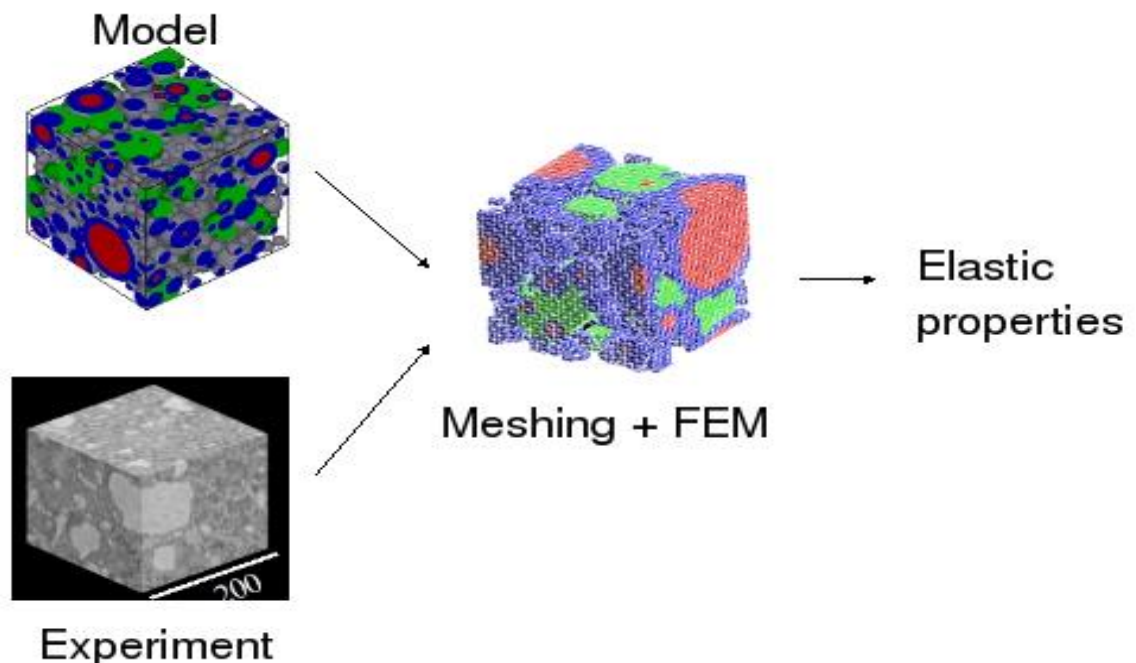


Figure IV.1 Principe de la simulation [64].

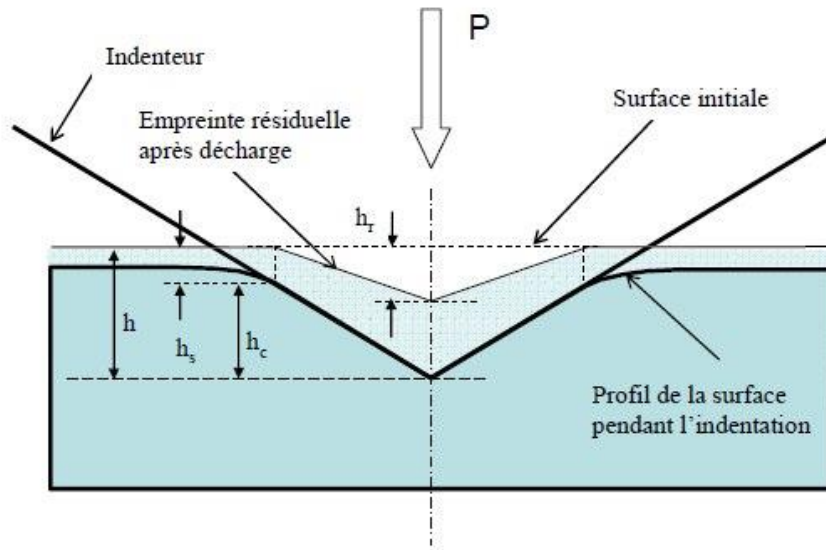
La combinaison de nano-indentation avec une modélisation d'analyse par éléments finis peut notamment améliorer cette technique expérimentale et associés beaucoup de phénomènes au processus, comme le fluage, la déformation plastique... etc. D'une part, les résultats des simulations numériques peuvent fournir une base précieuse à des expériences en l'aidant à choisir des historiques de chargement appropriées et des profondeurs d'indentation (par exemple à l'égard de la topologie de la microstructure du matériau). D'autre part, en utilisant des modèles plus avancés de la réponse non linéaires des matériaux obtenue à partir d'un test de nano-indentation, il peut être possible de récupérer les caractéristiques décrivant le comportement plastique et visqueux des phases des matériaux [49].

A l'aide de la méthode d'Oliver et Pharr (O&P) on peut obtenir les propriétés mécaniques recherché, cette méthode est basée sur l'analyse des solutions. Actuellement elle est la plus utilisée pour analyser les résultats d'indentation. Les travaux d'Oliver et Pharr proposent de découpler la contribution élastique et la contribution plastique, de façon à pouvoir se placer dans des conditions où l'approximation du comportement élastique est possible. Ils ont également mentionné que la mesure directe de la zone de contact n'est pas toujours précise et pratique, et ont proposé une procédure pour déterminer la surface de contact en fonction de la profondeur de pénétration et la fonction de la forme du pénétrateur. Un tel procédé est parfois appelé « détection de profondeur d'un test de pénétration ».

## **IV.2. Analyse d'une courbe charge-déplacement**

### **IV.2.1. Modèle d'Oliver et Pharr**

L'interprétation de l'essai de nano-indentation tel que nous le connaissons actuellement repose sur le modèle mécanique développé par Oliver et Pharr (O&P) en 1992 puis revu en 2004 par les mêmes auteurs (Oliver et Pharr (2004)) [60]. Ce dernier modèle reprend les travaux précédents sur la nano-indentation instrumentée et propose une analyse plus rigoureuse des courbes force-pénétration et une prise en compte précise des caractéristiques géométriques du contact entre l'indenteur et le matériau.



**Figure IV.2** Description de la géométrie du contact utilisée dans l'analyse O&P [60].

La figure IV.2 présente la géométrie du contact vue en coupe ainsi que les dimensions utilisées dans le modèle O&P. Les données brutes recueillies lors de l'essai sont le déplacement de l'indenteur  $h$  en fonction de la force appliquée  $P$ . La profondeur de l'empreinte résiduelle après décharge est notée  $h_r$ . Ces grandeurs se retrouvent sur la courbe force-pénétration présentée en figure IV.2.

Lors des premiers travaux sur la nano-indentation (Oliver et al. (1986)) [60], pour une charge maximale  $P_{max}$ , deux valeurs de pénétration pouvaient être choisies pour calculer l'aire de contact entre l'indenteur et l'échantillon : le déplacement maximal de l'indenteur  $h_{max}$  ou la profondeur résiduelle  $h_r$ . Cependant, ces deux grandeurs ne représentent pas en général la hauteur de contact réelle  $h_c$ . Pour un certain nombre de matériaux, la déformation élastique de l'échantillon sous l'indenteur est importante et fait que la hauteur de contact  $h_c$  est inférieure au déplacement vertical de l'indenteur  $h$ . A tout moment,  $h_c$  peut donc être définie comme [60]:

$$h_c = h - h_s \quad (IV-1)$$

$h_s$  Représentant le déplacement vertical de la surface à la limite du contact. Si  $h$  est mesuré expérimentalement, toute la difficulté de l'analyse repose sur la détermination du déplacement élastique de la surface  $h_s$  pendant l'indentation. Une première solution fut proposée par

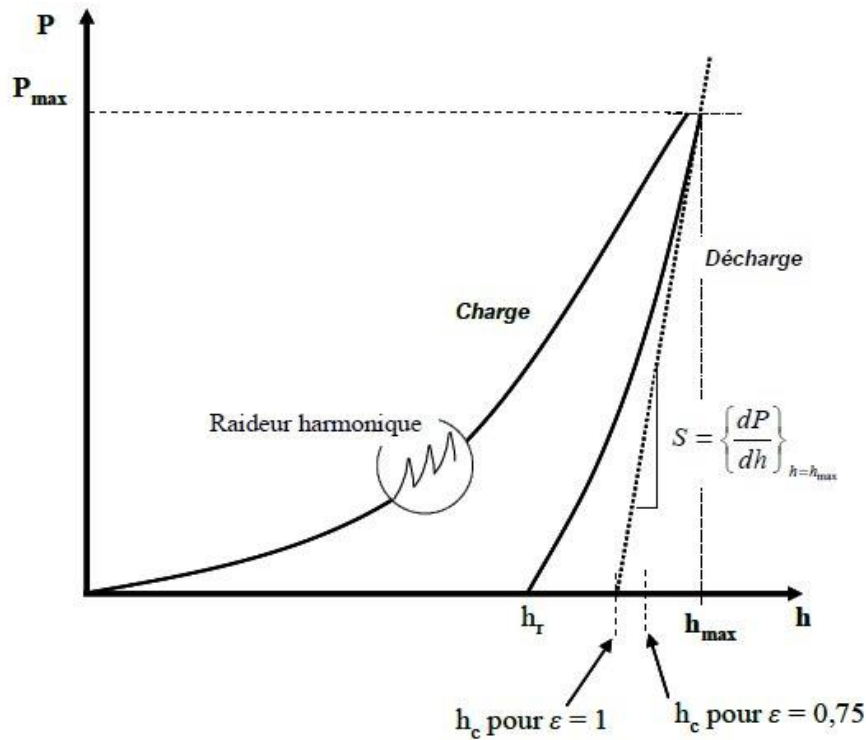
Doerner et Nix (1986): constatant que sur certains matériaux, la première partie de la courbe de décharge est linéaire, comme dans le cas d'un poinçon plat, ils déterminent la hauteur de contact  $h_c$  en extrapolant la portion linéaire pour une force nulle. Cette hauteur de contact représente une meilleure approximation que  $h_r$  ou  $h_{max}$ , mais repose sur l'hypothèse d'une décharge initialement linéaire. Oliver et Pharr proposent une relation similaire, pour déterminer  $h_s$  à partir de la force maximale appliquée  $P_{max}$  et la raideur de contact  $S$ , mais comportant un facteur correctif  $\varepsilon$ . En reprenant les travaux de Sneddon (1965) sur la déflexion élastique d'une surface sous un indenteur conique ou sphérique, ils aboutissent à la relation suivante :

$$h_s = \varepsilon \frac{P}{S} \quad (\text{IV-2})$$

$\varepsilon$  étant une constante géométrique dépendant de la géométrie de l'indenteur. Les résultats donnent pour un indenteur plat  $\varepsilon = 1$  (approximation de Doerner (1986)) et pour un indenteur conique :

$$\varepsilon = \frac{2}{\pi} (\pi - 2) = 0.727 \quad (\text{IV-3})$$

La forme des courbes de décharge observées par Oliver et Pharr sur de nombreux matériaux leur suggère que la meilleure approximation est obtenue avec  $\varepsilon = 0,75$ , valeur relative à l'indenteur sphérique. De nombreux travaux récents (Laval (1995), Ramond-Angelelis (1998)) ont cependant mis en évidence que le calcul de la hauteur de contact à partir des équations IV-1 et IV-2 ne s'applique en réalité qu'aux matériaux de forte élasticité (comme les polymères, les verres ou les oxydes) et homogènes. En effet, l'analyse proposée par O&P pose des problèmes fondamentaux sur les matériaux peu élastiques comme les métaux, où l'apparition d'un bourrelet (Tabor (1951)) augmente considérablement l'aire de contact.



**Figure IV.3** Courbe force-pénétration et grandeurs utilisées dans l'analyse mécanique O&P [60].

La seconde avancée notable apportée par les travaux d'O&P concerne la mesure de la raideur de contact  $S$ . Doerner et Nix en 1986 et Loubet et al. En 1984 supposaient que l'aire de contact restait constante au début de la décharge, donnant une première partie de courbe linéaire comme dans le cas d'un poinçon plat. Oliver et Pharr font cependant remarquer que dans le cas de l'indentation avec un cône ou une pyramide, et pour la plupart des matériaux, l'aire de contact change continûment pendant la phase de décharge et que par conséquent la courbe de décharge ne possède pas de partie linéaire. La mesure de la pente initiale de décharge ne peut donc pas se faire précisément par régression linéaire. Leurs observations montrent que le calcul de  $S$  par simple régression linéaire est source d'erreur, car les valeurs obtenues dépendent grandement du nombre de points utilisés pour la régression. O&P démontrent que la courbe de décharge peut être plus avantageusement représentée par une loi de type puissance :

$$P = \alpha (h - h_r)^m \quad (\text{IV-4})$$

Le calcul de la raideur de contact  $S$  se fait alors en dérivant l'équation IV-4 à  $h = h_{max}$ :

$$S = \left( \frac{dP}{dh} \right)_{h=h_{max}} = m \cdot \alpha (h_{max} - h_r)^{m-1} \quad (IV-5)$$

Des essais d'indentation sur divers matériaux montrent que l'exposant  $m$ , pour une force maximale de 120 mN, est compris entre 1,2 et 1,6 et a varié de 0,02 mN/nm pour les matériaux très élastiques comme la silice, à 0,26 mN/nm environ pour les métaux comme l'aluminium. Le calcul de  $S$  permet donc de déterminer la hauteur de contact  $h_c$  grâce aux équations IV-1 et IV-2 et l'aire de contact projetée connaissant la fonction d'aire de l'indenteur  $A(h_c)$ . La dureté est calculée selon la relation traditionnelle :

$$H = \frac{P_{max}}{A(h_c)} \quad (IV-6)$$

Le calcul du module élastique doit tenir compte de la déformation, même minime, de la pointe en diamant durant l'indentation. Il est donc défini un module effectif, ou module apparent ou bien encore un module réduit  $E_r$ , comme suit :

$$\frac{1}{E_r} = \frac{(1-\nu^2)}{E} + \frac{(1-\nu_i^2)}{E_i} \quad (IV-7)$$

Cette expression prend en compte le module de Young  $E_i$  et le coefficient de Poisson  $\nu_i$  de l'indenteur,  $E$  et  $\nu$  étant les valeurs correspondant à l'échantillon. Le module  $E_r$  est obtenu à partir de la relation de Sneddon (1965):

$$E_r = \frac{S\sqrt{\pi}}{2\beta\sqrt{A(h_c)}} \quad (IV-8)$$

$\beta$  Est un facteur de correction visant à tenir compte, entre autres choses, du caractère non axisymétrique du contact lors de l'indentation avec des indenteurs pyramidaux de type



Berkovich ou Vickers. La valeur de  $\beta$  est généralement prise égale à 1,034 pour l'indenteur Berkovich.

La figure IV.4 retrace les principales étapes de la détermination du module de Young  $E$  et de la dureté  $H$  d'un matériau en utilisant le modèle d'interprétation développé par Oliver et Pharr.

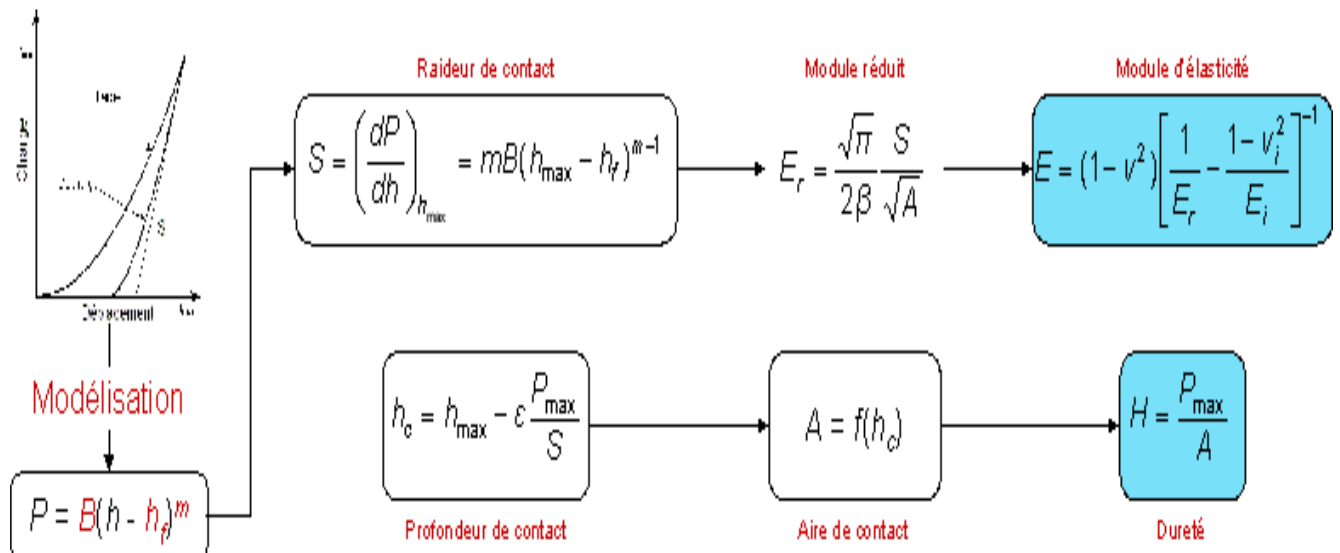


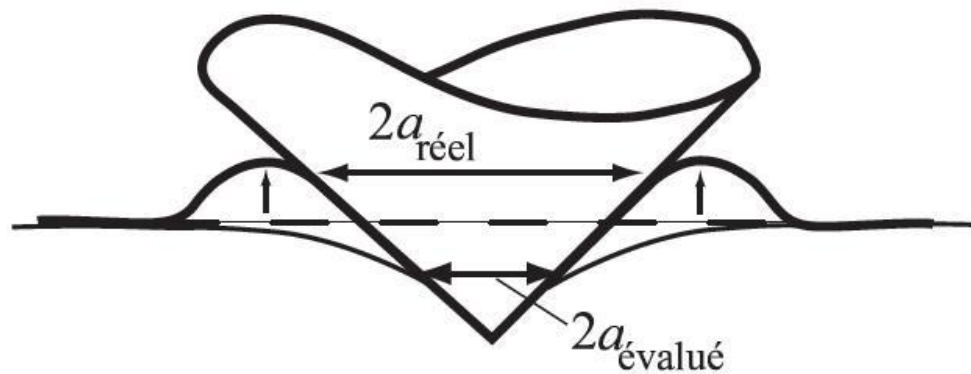
Figure IV.4 Schéma de l'analyse O&P pour le calcul de  $E$  et  $H$  [60].

## IV.2.2. Limitations de la méthode d'Oliver et Pharr et prise en compte de corrections

La méthode d'Oliver et Pharr repose sur un certain nombre d'hypothèses, qui ne sont pas toujours valides. De ce fait, il peut apparaître des problèmes qui limitent l'utilisation de la méthode d'Oliver et Pharr telle que nous venons de la présenter. Toutefois, des corrections ont été suggérées pour remédier à ces limitations [56].

### a) Problème du pile-up

Le paramètre clé de tout contact sur un matériau massif est le rayon de la zone de contact. Dans le cas de la méthode d'Oliver et Pharr,  $a$  est évalué sous l'hypothèse d'un comportement en sink-in. Or, le phénomène de pile-up se rencontre couramment dans les matériaux très mous. On se heurte alors au fait que le rayon de contact est sous-évalué (voir figure IV-5). Cette erreur induit une surestimation conséquente des valeurs du module réduit  $E_r$  (proportionnel à  $a$ ) et surtout de la dureté  $H$  (proportionnel à  $a^2$ ).

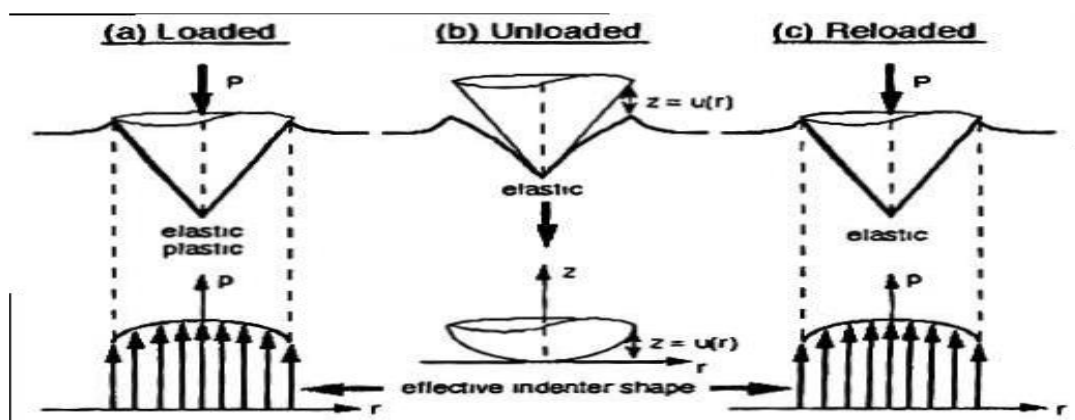


**Figure IV.5** Représentation schématique de l'erreur sur le rayon de contact induite par la présence de pile-up [56].

Une étude basée sur des simulations de l'indentation par la méthode des éléments finis a cependant montré que, dans le cas des indentations coniques, si le retour élastique reste supérieur à 30% ou si un phénomène non-négligeable d'écroûissage a lieu, le phénomène de pile-up reste négligeable.

#### b) Problème de la forme effective de l'indenteur

L'autre hypothèse faite par Oliver et Pharr est : la décharge infinitésimale de l'indenteur considérée comme similaire à la décharge infinitésimale du même indenteur obtenue sur un matériau purement élastique [56]. Le problème est que cette approche néglige un point important : si le contact élastique et non-conforme, la déformation plastique subie par l'échantillon se traduit par la perte de cette non-conformité. La décharge de l'indenteur n'est donc plus décrite par le contact de la pointe sur un demi-espace, mais par le contact d'un indenteur sur une surface déjà déformée (voir figure IV.6).



**Figure IV.6** Représentation schématique des concepts utilisés pour introduire la notion de forme effective de l'indenteur [56].

Lors de la décharge, l'indenteur n'est déjà plus en contact non-conforme avec l'échantillon du fait de la présence de l'indent. Le contact peut se ramener à un contact non-conforme, mais avec un indenteur de forme différente.

En reprenant les calculs développés par Sneddon dans le cas du contact conique, différents auteurs ont montré que le contact conforme entre l'indenteur et le substrat massif déformé pouvait être interprété en termes de contact entre le substrat non-déformé et un indenteur de forme effective de la forme réelle de l'indenteur. La correction à apporter porte alors sur la valeur du paramètre géométrique  $\varepsilon$ . Ainsi, on a :

$$\varepsilon = m \left( 1 - \frac{2\Gamma\left(\frac{m}{2(m-1)}\right)}{\sqrt{\pi} \Gamma\left(\frac{1}{2(m-1)}\right)} (m-1) \right) \quad (\text{IV-9})$$

Où  $m$  est le même paramètre que celui introduit dans l'ajustement de la courbe de décharge utilisé pour évaluer la raideur de contact par la méthode de la décharge(IV-4). Dans la pratique, l'effet de cette correction est assez faible, dans la mesure où la variation de  $\varepsilon$  est comprise entre 0.74 et 0.8.

### c) **Non-idéalité de la pointe et coefficient de poisson**

Par l'introduction d'un paramètre  $\beta$  dans l'équation (IV-8), Oliver et Pharr cherchent à corriger le fait que les pointes pyramidales (Berkovich, Vickers...) ne sont pas idéalement axisymétriques. Les valeurs qu'ils proposent dans la publication décrivant leur méthode sont tirées de travaux précédents dans lesquels, ces valeurs sont évaluées au moyen de simulations par élément finis. D'autres travaux ont montré une certaine dépendance de la valeur de  $\beta$  avec le coefficient de poisson du matériau indenté. Les variations du paramètre  $\beta$  dans le cas d'un indenteur aussi courant que l'indenteur Berkovich sont cependant comprises entre 1.02 et 1.08. L'ordre de grandeur des corrections reste assez petit devant les incertitudes de mesure.

## **IV.3. La méthode de simulation numérique**

La simulation numérique est une méthode puissante largement utilisée pour résoudre de recréant mathématiquement le comportement d'un système d'ingénierie réelle. En d'autres termes, l'analyse doit aboutir à un modèle mathématique précis décrivant un phénomène physique. Au sens large, ce modèle comprend tous les nœuds, les éléments, les propriétés des

matériaux, de vraies constantes, conditions aux limites, et d'autres caractéristiques qui sont utilisées pour représenter le système physique.

Dans les problèmes d'indentation, la méthode de simulation numérique est également utile pour la compréhension de la complexité de la physique qui se pose aux petites échelles. Par exemple, certains chercheurs utilisent des méthodes de simulation numérique, avant de calculer la dureté (Kizler et Schmauder, 2007) et le module de Young (Lee et al. 2005), ainsi que par l'utilisation de la méthode inverse ils ont pu évaluer la relation contrainte-déformation (Bouzakis et al, 2001.) et d'analyser l'élasto-plastique et les comportements élasto-viscoplastiques (Cheng et al, 2005; Giannakopoulos, 2006; Vandamme et Ulm, 2006).

La Méthode des Eléments Finis (FEM) a été souvent utilisée pour évaluer les paramètres du matériau. En effet, la FEM et les codes d'éléments finis commerciaux tels qu'ABAQUS, ANSYS, et MARC se sont considérablement développées. Même la déformation locale élevée et la contrainte du test d'indentation, les non-linéarités dans le matériau, la géométrie et les contacts peuvent être simulés avec précision en utilisant la FEM (Soare et al, 2004 ; Komvopoulos et Yang, 2006). Les comportements des matières telles que les lois constitutives élastoviscoplastiques ou d'autres lois de comportement hautement sophistiqués ont également été développés grâce à la FEM.

En outre, tous les paramètres physiques tels que les relations constitutives de la matière peuvent être modifiés facilement grâce à des algorithmes. Ainsi, les corrélations entre les paramètres physiques et les résultats d'indentation seront étudiés. Afin de prédire les comportements de déformation, le pile-up, le sink-in, et la profondeur de pénétration pendant le déchargement - des matériaux durs et cassants, tels que silicium amorphe et Pyrex 7740 verre (borosilicate), (Youn et Kang, 2005) ont réalisé des simulations d'indentation pour différents rayons de pointe (40, 100, 200 nm), de demi-angle de l'élément d'indentation conique (55°, 60°, 65°), et des géométries différentes d'indenteur (conique, Berkovich, sphérique) à l'aide du Procédé d'élément finis. Les Simulations numériques similaires ont également été utilisés par d'autres chercheurs (Lee et al, 2005 ; Hernot et al, 2006 ; Pelletier, 2006) pour faire des investigations sur les propriétés mécaniques (E, H) des matériaux .

### **IV.3.1. Quelques hypothèses simplificatrices dans la simulation**

Dans la simulation nous sommes sensibles à des considérations telles que les temps de calcul. Un certain nombre de paramètres jouent sur ce temps, en particulier le nombre de nœuds, le type d'éléments utilisés et le nombre de degrés de liberté associés à chaque nœud. Pour minimiser la taille du maillage, trois hypothèses sont proposées :

- Réduction du domaine simulé : Le massif semi infini est remplacé par une boîte aux bornes de laquelle des conditions en déplacement minimales sont imposées. Le rapport entre les dimensions de la boîte et la pénétration maximale est choisi suffisamment grand pour ne pas modifier significativement le champ de déplacement.
- Choix d'un essai axisymétrique : Les essais réalisés avec la pointe conique sont choisis, le problème est donc axisymétrique et se modélise en 2 dimensions. Le temps de calcul global est considérablement réduit.
- Déformations de l'indenteur : Dans la majorité des cas, l'indenteur est considéré comme indéformable. Cette hypothèse a pour conséquence d'éliminer le temps de calcul liée à la prise en compte du contact entre deux surfaces déformables. En conséquence, il est nécessaire d'estimer l'erreur induite et le cas échéant la corriger.

### IV.3.2. Le choix d'un code de calcul

L'objet de ce mémoire n'étant pas le développement de nouvelles techniques numériques, il s'agit de sélectionner un code capable de résoudre efficacement ce type de problème. En effet, la gestion du contact entre l'indenteur et l'échantillon est un problème intéressant en lui-même et certains codes commerciaux proposent des algorithmes performants à cet effet. Nous avons choisi pour notre étude le code ABAQUS version 6.13.

Dans la terminologie ABAQUS version 6.13, le terme génération du modèle prend habituellement sur le sens étroit de générer les nœuds et les éléments qui représentent le volume spatial et la connectivité du système actuel. Ainsi, la génération de modèle se traduira par le processus de définition de la configuration géométrique des nœuds et des éléments du modèle. Le programme ABAQUS version 6.13 nous propose les approches suivantes pour la génération de modèles :

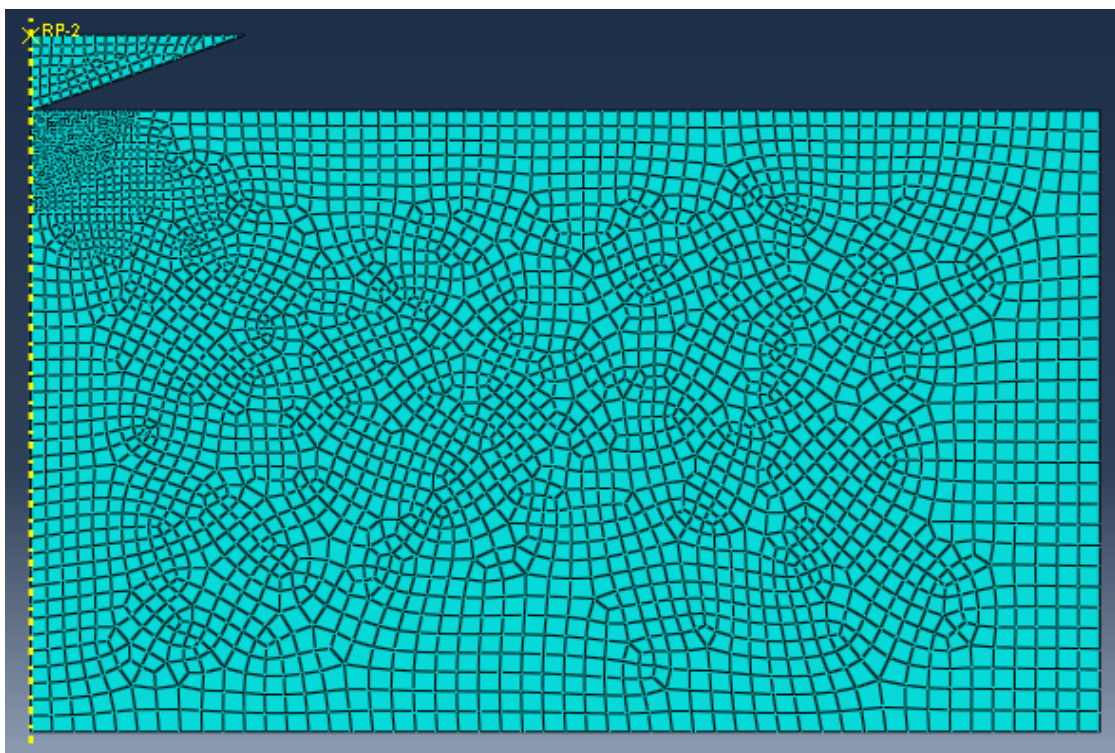
- La Création d'un modèle solide à l'intérieur ABAQUS version 6.13.
- L'Utilisation de la génération directe.
- L'importation d'un modèle créé dans un système de conception assistée par ordinateur (CAO).

### IV.3.3. Construction du maillage

L'utilisation d'un maillage simple, reproductible et efficace est avantageuse. Le domaine maillé est de forme rectangulaire et donc facilement discrétisé. Pour rendre compte de la richesse du champ de déplacement, il est judicieux d'adapter la taille du maillage en fonction des zones de contact, des éléments de petite taille sont nécessaires dans les zones de contact

entre l'indenteur et l'échantillon et des éléments de grande taille sont suffisants dans les zones qui son loin du contact entre l'indenteur et l'échantillon. Dans le cas présent, on distingue deux zones particulières.

La figure IV.7 montre la structure du maillage sélectionné. La zone A y situe sous le contact ou les gradients de déformation sont potentiellement importants et la zone B située loin du contact ou les déformations sont principalement élastiques et leurs gradients plus faibles. Au cours des simulations, les éléments situés sous le contact subissent des déformations importantes, c'est la zone qui nous intéresse le plus.



**Figure IV.7** *une structure typique du maillage.*

# ***Chapitre V***

## ***Résultats et interprétations***

### **V.1. Introduction**

La technique de nano-indentation est largement utilisée pour mesurer les propriétés mécaniques, telles que la dureté (H), le module d'élasticité (E), la résistance aux rayures, le fluage,... etc.

Récemment, différentes techniques numériques ont été développées et qui sont utilisées dans de nombreux domaines de la science et de l'ingénierie ainsi que dans les problèmes d'indentation. La technique des éléments finis est utilisée pour la détermination des propriétés mécaniques, et aussi pour l'étude des champs très complexes de contrainte-déformation dans un procédé de nano-indentation.

Afin d'obtenir les propriétés mécaniques (E, H) par la procédure nano-indentation, la modélisation par éléments finis (FEM) a été réalisée et discutée sur AAFA, dans ce dernier chapitre. La modélisation de l'empreinte a été réalisée avec un logiciel ABAQUS. pour simuler la réponse de nano-indentation. Ce modèle est une tentative, donc il n'a pas fait des résultats que l'on peut comparer avec l'expérimental.

### **V.2. Présentation des résultats expérimentaux**

Les essais de nano-indentation ont été réalisés par J. Němeček, et al [100] sur des échantillons de AAFA avec une surface lisse à des endroits aléatoires à environ 170 jours d'âge. La technique de mise en retrait de la grille sur la zone de représentation est préférée pour nano-indentation dans le cas de matériaux hétérogènes tels que AAFA.

L'objectif étant d'analyser la courbe de nano-indentation individuelle correspondant à chaque phase de AAFA et non de déterminer leurs fractions volumiques.

D'après J. Němeček et al [100] les phases ont été regroupées en en quatre phases, la phase NASH (bien activé), la phase partiellement activé (rigidité supérieure), les particules non activés (principalement laitier et haute rigidité) et les cendres volantes particules (la plus haute rigidité), les valeurs représentatives du module d'indentation (E) et la dureté (H) de l'ensemble des quatre phases ont été déterminées sur la base de l'analyse statistique des données de mesure.

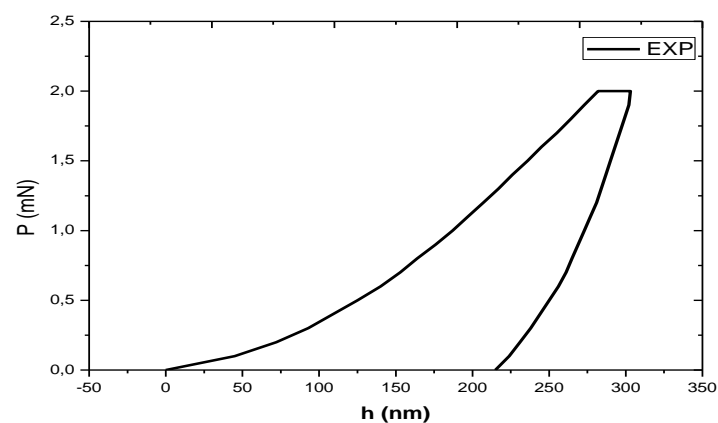
Nous avons choisi la phase NASH (bien activé) parce que représente un grand taux dans AAFA, les valeurs moyennes du module d'indentation (E) et la dureté (H) obtenues par la technique d'indentation sont présentés dans le tableau V.1. Ces valeurs sont en bon accord avec ceux rapportés dans la littérature J. Němeček et al [18,20]. Il convient de noter que les propriétés mécaniques moyennes pour toutes les phases correspondent à une charge d'indentation égale à 4 mN.

phase	NASH
Module de Young	17.75
La dureté	0,67

**Tableau V.1** Module d'indentation et la dureté de la phase NASH en GPa [100].

La courbe charge-déplacement correspondant à la charges d'indentation de pointe est présentés dans la figure V.1 pour la phase NASH.

Les essais de nano-indentation ont également été effectués à plusieurs endroits pour capturer les courbes charge-déplacement correspondant à chacun de ces deux phases de l'échantillon de AAFA avec une charge de pointe d'indentation de 4 mN.



**Figure V.1** La courbe expérimentale de chargement-déchargement de Nano-indentation pour la phase NASH [100].



### V.3. Présentation de simulation numérique

A l'aide de la Méthode des Eléments Finis (FEM), on a pu simuler les expériences de nano-indentation. Ces expériences ont été réalisées par les chercheurs J. Němeček et al [100] sur *NASH*. Pour obtenir les propriétés mécaniques ( $E$ ,  $H$ ) de la phases de *NASH*.

Notre model a été établi à l'aide du code de calcul ABAQUS version 6.13.1 en 2D axisymétrique pour lesquelles chaque nœud comporte seulement deux degrés de liberté. Par conséquent, un seul tiers de l'échantillon et de la pointe de nano-indentation (indenteur) ont été modélisés. Un indenteur de type Berkovich en forme de pyramide avec un rayon de pointe de 100 nm a été utilisé dans l'expérience, avec un demi-angle de  $70,3^\circ$  par rapport à la verticale et aussi modelisé en un triangle comprenant ces mêmes dimensions.

Les paramètres de la loi élastique de l'indenteur en diamant sont :

$E = 1141. 10^3$  Mpa et  $\nu = 0.07$ . L'échantillon modélisé est représenté avec un carré dont les dimensions sont celle de l'échantillon utilisée dans l'expérimentale, avec une hauteur et une largeur 40mm, 11 mm respectivement [100].

Le modèle d'élément finis utilise trois différents types d'éléments afin de simuler les mécanismes de contact entre l'indenteur et l'échantillon (figure V.2). La pertinence du calcul et la précision des résultats dépend fortement du maillage choisi, et en particulier de sa représentativité en termes de microstructure.

Une fois le maillage conçu, il suffit de définir un chargement mécanique, dans notre cas la charge d'indentation maximale appliqué est de  $4 \mu\text{N}$ , et sans oublier les conditions aux limites.

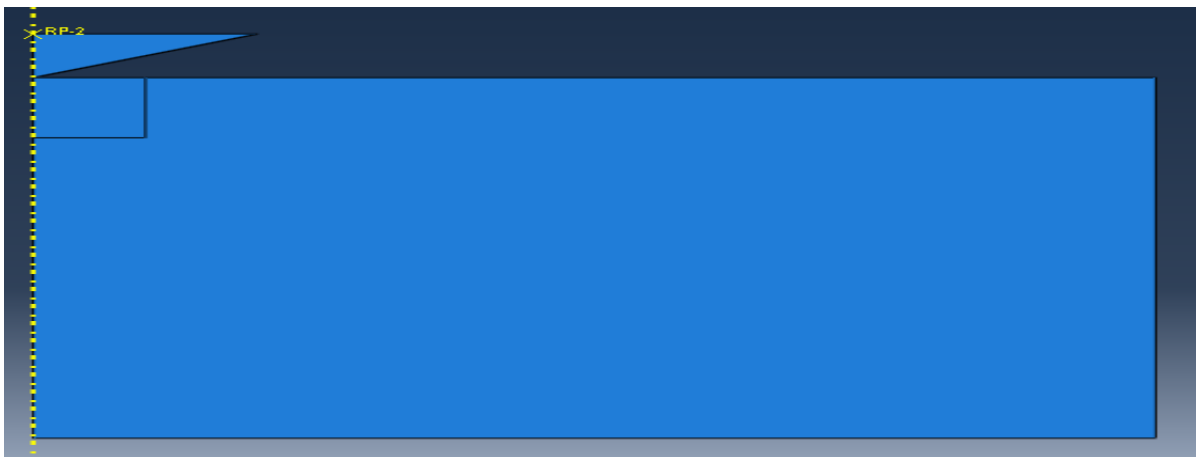


Figure V.2 Représentation de l'échantillon et l'indenteur.

Les résultats obtenues par simulation numériques, sont présentés dans les figures suivantes:

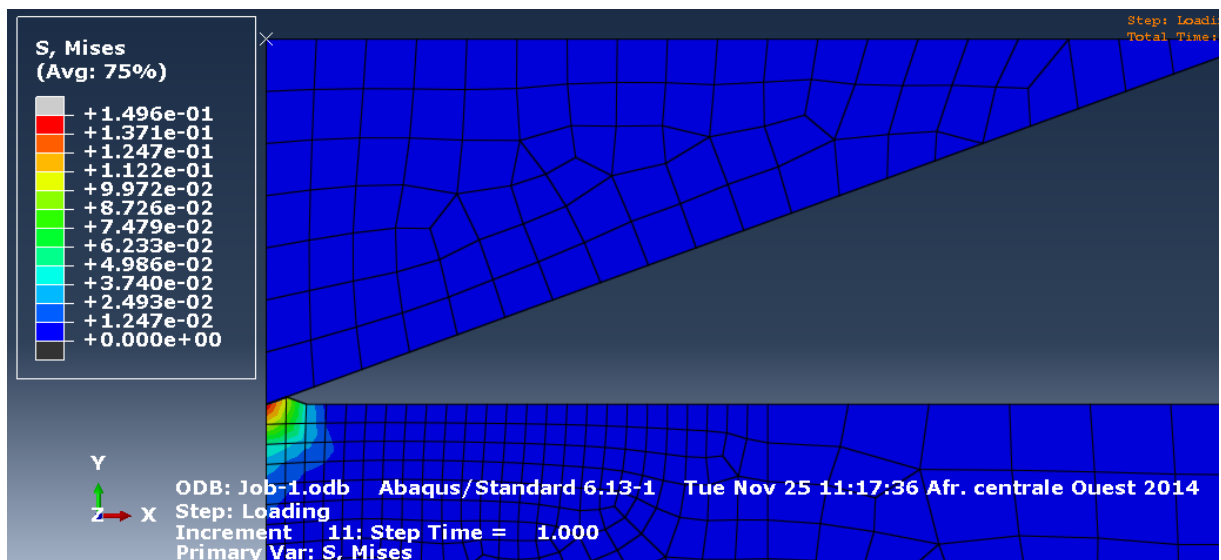


Figure V.3 modélisation numérique de chargement de NASH montre la distribution de contraintes de Von mises

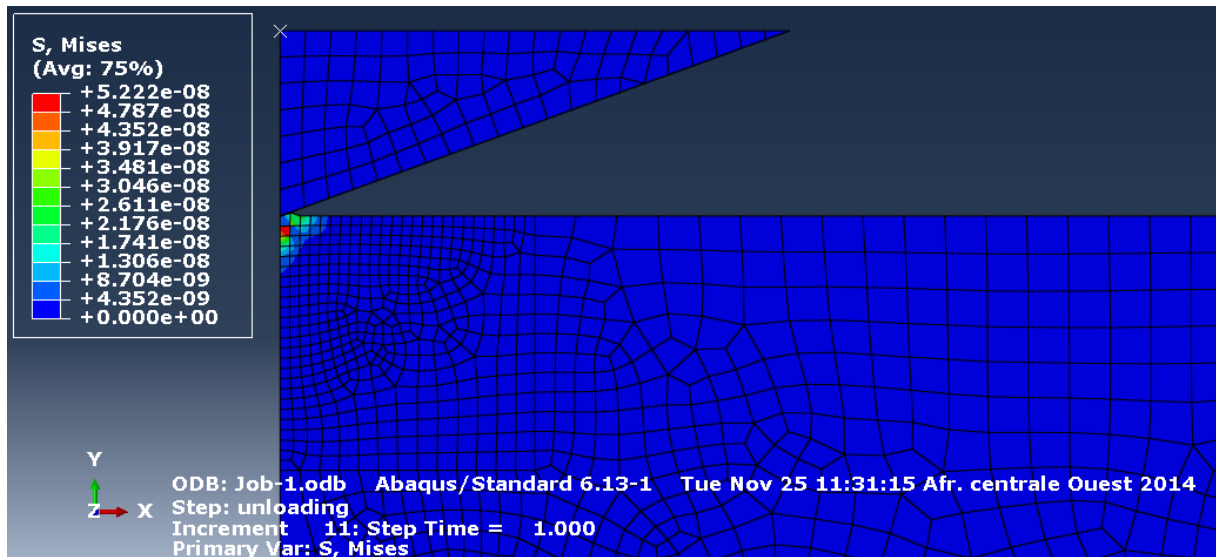


Figure V.4 modélisation numérique de déchargement de *NASH* montre la distribution de contraintes de Von mises

#### V.4. Discussion

Ma simulation n'a pas des résultats que l'on peut comparer avec les résultats expérimentales, donc on va voir une description de ma tentative de simulation.

Nous remarquons une concentration de contraintes aux bords de l'indenteur dès les premiers incréments de chargement et la figure V.3 présente, cette zone de concentration

se maintenant durant le test d'indentation, représente cette concentration de contraintes en fin chargement.

Pour la phase de déchargement nous remarquons une diminution de concentration de contraintes dès les premiers incréments de déchargement et la figure V.4 présente la diminution de contraintes jusqu'à la fin de déchargement.

La loi de comportement qui peut décrire les déformations permanente de *NASH* est élasto-plastique

les difficultés qu'on a rencontré dans la simulation sont :

1. La détermination des paramètres plastique pour identifier la loi élasto-plastique, le problème est que la nano-indentation du matériau élasto-plastique est un essai qui ne peut être analytiquement résolu

2. On'a pas arrivé à faire une période de chargement de 30 seconde comme l'essai expérimental, ABAQUS ne termine pas le calcul qu'avec la période 1 seconde.

La technique de nano-indentation, qui date d'environ quarante ans, a connu une évolution technologique très importante et permet une mesure de propriétés mécaniques des matériaux. Le développement des techniques permis une avancée considérable dans la compréhension des phénomènes physiques.

la simulation numérique permet d'identifie des paramètre de plusieurs matériaux et leurs comportement dans déférents conditions donc la simulation numérique peut être mieux que l'expérimental pour observer toute les phase de nano-indentation

## ***Conclusion Générale***

AAFA c'est un nouveau matériau semble être un bon candidat pour un remplacement partiel du béton ordinaire dans l'application structurelle en termes de durabilité, lessivage, résistance au feu, alcali silicate réaction, ou fluage de base et le séchage. Composites à base de liant activé de cendres volantes produisent des émissions de CO<sub>2</sub> négligeables et d'utiliser la matière de déchets.

L'objectif de cette étude c'est l'obtention des propriétés élastiques intrinsèques ; le module d'Young et la dureté du gels N-A-S-H qui est une phase principale du AAFA en utilisant la technique Nano-indentation, et l'obtention de ces même Propriétés à travers la modélisation numérique.

Pour cela un code de calcul nommé ABAQUS a été utilisé. Le logiciel cité est une plateforme de simulation numérique qui utilise la méthode des éléments finis.

L'analyse des propriétés mécaniques à des profondeurs d'enfoncement faibles devient de plus en plus indispensable. La solution existe grâce aux progrès réalisés ces dernières années dans le domaine de l'indentation instrumentée.

L'essai d'indentation consiste, comme dans le cas de la mesure de dureté et module d'Young, à faire pénétrer une pointe supposée indéformable et de géométrie connue dans un matériau pour en déduire des propriétés mécaniques. L'évolution de la force appliquée sur la pointe d'indentation et son enfoncement dans le matériau sont mesurés en continu.

L'essai d'indentation a montré que la nano-mécanique de gel N-A-S-H se comporte comme un matériaux elasto-plastique, ces résultats ont beaucoup d'intérêt pour la recherche scientifique et pour connaître mieux le comportement à l'échelle nanomètre.

Ce travail c'est une initiation à la recherche qui nous donne l'occasion pour aller plus loin dans la technique nano-indentation instrumentée et l'usage et développement du matériaux de AAFA.

***Références bibliographiques***

- [1]. Stanton, T.E., Expansion of Concrete Through Reaction Between Cement and Aggregate. American Society of Civil Engineers, 1940. 66 : p. 1781-1811.
- [2] LCPC. Recommandations pour la prévention des désordres dus à l'alcali-réaction. LCPC, 1994.
- [3]. P.E. Grattan-Bellew. Alkali-silica reaction - Canadian experience, in : the alkali aggregate reaction in concrete. Ed. R.N Swamy, Blackie, London, UK, 1992.
- [4]. Graham West. Alkali-aggregate reaction in concrete roads and bridges. Ed. Thomas Telford,London, UK, 1996
- [5]. Yann Monnin. Méthodologie pour décrire le gonflement multi-échelle de calcaires siliceux soumis à la réaction alcali-silice dans le matériau béton. PhD thesis.
- [6]. Thomas, M.D.A., - The Sidney Diamond Symposium, 2002: p. 325-331.
- [7]. Catherine Larive.Ecole Nationale Des Ponts et Chaussées, France, 1997
- [8]. Stéphane Multon. Laboratoire Central des Ponts et Chaussés, 2004.
- [9]. Kefei Li.PhD thesis, ecole Nationale des Ponts et Chaussées, France, 2002
- [10]. Stéphane Poyet. PhD thesis, Université de Marne-La Vallée, France, 2003.
- [11]. Angélique Vichot, Jean-Pierre Ollivier, and Collectif Presses de l'Ecole Nationale des Ponts et Chaussées (ENPC).
- [12]. H.F.W. Taylor. Cement Chemistry, second edition. Telford, 1997.
- [13]. Alain Sellier and Geneviève Thevenin ForayDEA Géomatériaux, Université Paris-Est.
- [14]. T.C. Powers and H.H. Steinour. Journal of the American Concrete Institute, 26-6 :497 – 516, 1955.
- [15]. T.C. Powers and H.H. Steinour. Journal of the American Concrete Institute, 26-8 :497 – 516, 1955.
- [16]. H. Wang and J.E. Gillott. Cement and Concrete Research, 21 :647 – 654, 1991.
- [17] L.S. Dent-Glasser and N. Kataoka. Cement and Concrete Research, 11 :1 – 9, 1980. p. 23
- [18] L.S. Dent-Glasser and N. Kataoka. Cement and Concrete Research, 12 :321 – 331, 1982.
- [19] A.B. Poole. of the 9th International Conference on Alkali-Aggregate Reaction (ICAAR). London, UK,pages 782 – 789, 1992.
- [20]. S. Chatterji, A.D. Jensen, N. Thaulow, and P. Christensen. Cement and Concrete Research, 16 :246 – 254, 1986.
- [21]. S. Chatterji, N. Thaulow, and A.D. Jensen. Cement and Concrete Research, 17 :777 – 783, 1987.
- [22]. R. Dron and F. Brivot. Cement and Concrete Research, 22 :941 – 948, 1992.

- [23]. R. Dron and F. Brivot. *Cement and Concrete Research*, 23 :93 – 103, 1993.
- [24]. D. Bulteel, E. Garcia-Diaz, C. Vernet, and H. Zanni. *Cement and Concrete Research*, 32: 1991
- [25]. D. Bulteel, N. Rafai, P. Materials characterization, 53 :141 – 154, 2004.
- [26]. E. Garcia-Diaz, J. Riche, D. Bulteel, and C. Vernet. reaction. *Cement and Concrete Research*, 36 :395 – 400, 2006.
- [27]. Patrice Rivard, Jean-Pierre Ollivier, and Gérard Ballivy. *Cement and Concrete Research*, 32 :1259 – 1267,2002.
- [28]. Tsuneki Ichikawa and Masazumi Miura. Modified model of alkali-silica reaction. *Cement and Concrete Research*, 37 :1291 – 1297, 2007.
- [29]. S. Diamond and N. Thaulow. *Cement and Concrete Research*, 4 :591 – 607, 1974.
- [30]. S. Multon, M. Cyr, A. Sellier, P. Diederich, and L. Petit. *Cement and Concrete Research*, 40 :508 – 516, 2010.
- [31]. K.E. Kurtis, P.J.M. Monteiro, J.T. Brown, and W. Meyer-Ilse. Imaging of ASR gel by soft X-ray microscopy. *Cement and Concrete Research*, 28 :411 – 421, 1998.
- [32]. J. Verstraete, L. Khouchaf, and M.H. Tuilier. *Journal of Materials Science*, 39 :6221 – 6226, 2004.
- [33]. Xiaoqiang Hou, Leslie J. Struble, and R. James Kirkpatrick. *Cement and Concrete Research*, 34 :1683 – 1696, 2004.
- [34]. Xiaoqiang Hou, R. James Kirkpatrick, Leslie J. Struble, and Paulo J.M. Monteiro. *Journal of the American Ceramic Society*, 88-4 :943 – 949,2005.
- [35]. Valérie Michaud. PhD thesis, Université de Bourgogne, France, 1995.
- [36]. Fabien Gaboriaud. PhD thesis, Université de Bour-gogne, France, 1999.
- [37]. Fabien Gaboriaud, André Nonat, Denis Chaumont, and Aldo Craievich. *Journal of Non-Crystalline Solids*, 351 :351–354,2005.
- [38]. Mohsen Ben Haha. PhD thesis, EPFL, Suisse, 2006.
- [39]. John W. Phair, Sergey N. Tkachev, Murli H. Manghani, and Richard A. *Journal of Materials Research*,20 - 2 :344 – 349, 2005.
- [40]. B. Durand, R. Roux, J. Houde, and A. Blanchette. *Proceedings of the 9th International Conference on Alkali-Aggregate Reaction(ICAAR)*. London, UK, 1992.
- [41]. Tetsuya Katayama. *Proceedings of the fourteenth ICAAR*. Austin, Texas, 2012.
- [42]. Andreas Leeman. *Proceedings of the 14th International Conference on Alkali-Aggregate Reaction (ICAAR)*. Austin, Texas, 2012.
- [43]. R.N. Swami and M.M. Al-Asali. *ACI materials journal*, pages 367 – 374, 1988.
- [44]. D.W. Hobbs. *Alkali-silica reaction in concrete*. Thomas Telford, London, 1988.

- [45]. Mitsunori Kawamura and Kazuma Iwahori. *Cement and Concrete Composites*, 26(1) :47 – 56, 2004.
- [46]. M. Berra, G. Faggiani, T. Mangialardi, and A.E. Paolini. *Cement and Concrete Research*, 40(9) :1403 – 1409, 2010.
- [47]. Adil Binal. *Construction and Building Materials*, 21(6) :1218 – 1228, 2007.
- [48]. C.F. Ferraris, J.R. Clifton, E.J. Garboczi, and F.L. Davis. *Mechanisms of chemical degradation of cement-based systems*, pages 75–82, 1997.
- [49]. Cyrille F. Dunant and Karen L. Scrivener. *Cement and Concrete Research*, 42(3) :567 – 576, 2012.
- [50]. Jiri Nemecek, Ph.D, *Principals of Nanoindentation on Heterogeneous*, Habilitation thesis, Faculty of Civil Engineering, 2009.
- [51]. TAYLOR H.F.W., *Cement Chemistry, Thomas Telford, 2nd Edition*, 1997.
- [52]. Gaylord GUILLONNEAU, L'école centrale de Lyon, 2012.
- [53] Noura Oumarou, Thèse de Doctorat, Ecole National superieure des mines de nancy, 2009.
- [54]. G. Constantinides, F.-J. Ulm and K. Van Vliet, *On the use of nanoindentation for cementitious materials*, Massachusetts Institute of Technology, Cambridge, 2003
- [55]. Chorfa Abdellah, Université Ferhat Abbas-Setif, 2010.
- [56]. Paramita Mondal, *Nanomechanical Properties of Cementitious Materials*, Northwestern university, 2008.
- [57]. Antoine Perriot, *Nanoindentation de couches minces déposées sur substart de verre de silice* thèse de doctorat, l'Université de paris VI, 2005.
- [58]. Paramita Mondal, *Nanomechanical Properties of Cementitious Materials*, Northwestern university, 2008.
- [59]. Johnny angel mendoza delgado, thèse de doctorat, Université des sciences et technologies de Lille, 2009.
- [60]. Oliver, W.C., Pharr, G.M. *J. Mat. Res.* 7, 1564–1583 (1992)
- [61]. Rangan, B.V.: *Fly ash-based geopolymer concrete*, Research Report GC 4, Curtin University of Technology, Perth, Australia (2008)
- [62]. Sherer, G.: *Structure and properties of gels*. *Cem. Concr. Res.* 29, 1149–1157 (1999)
- [63]. Škvára, F., et al.: *Material and structural characterization of alkali activated lowcalcium brown coal fly ash*. *Journal of Hazardous Material* (2009) (submitted)
- [64]. Siham Kamali-Bernard, Fabrice Bernard, William Prince, Mohammed Hjiiaj, *Laboratoire de Génie Civil et Génie Mécanique - EA 3913INSA, 25e rencontres de l'AUGC*, 2007.