

## Thème

# PROJET NATIONAL FASTCARB : MODELISATION DE LA FIXATION DU CO<sub>2</sub> PAR CARBONATATION DES GRANULATS DE BETON RECYCLE ET DES OUVRAGES EN BETON

Ph. Turcry<sup>1</sup>, J. Mai-Nhu<sup>2</sup>,

<sup>1</sup>LaSIE, UMR 7356 CNRS, La Rochelle Université, philippe.turcry@univ-lr.fr

<sup>2</sup>CERIB, Epernon, j.mai-nhu@cerib.com

## 1. INTRODUCTION

Le béton, matériau de construction le plus utilisé au monde, a un rôle à jouer au cœur des préoccupations sociétales et environnementales que représentent la consommation de ressources naturelles et des émissions de gaz à effet de serre. Au cours de la vie de l'ouvrage, la carbonatation du béton atténue son impact environnemental, car cette réaction chimique permet de fixer naturellement une partie du CO<sub>2</sub> émis pendant la production du ciment. En fin de vie, la carbonatation du béton concassé après déconstruction à l'aide de gaz riches en CO<sub>2</sub> est également une solution pour amplifier le phénomène.

Le projet national FASTCARB étudie cette solution appliquée aux granulats de béton recyclés (GBR) à l'aide d'approches à la fois théoriques et industrielles. Le groupe de travail GT1.2 est consacré à la modélisation de la carbonatation des GBR. Ce travail vient compléter des études menées en laboratoire afin d'aider à la compréhension du phénomène de piégeage du CO<sub>2</sub>. Le groupe de travail s'intéresse à la fixation du CO<sub>2</sub>, d'une part, par carbonatation naturelle pendant la vie de l'ouvrage, d'autre part, par carbonatation accélérée de GBR. Nous présentons dans la suite quelques résultats du GT1.2.

## 2. MODELISATION DE LA FIXATION DU CO<sub>2</sub> PENDANT LA VIE DE L'OUVRAGE

Au cours de la vie de l'ouvrage, la quantité de CO<sub>2</sub> fixée par carbonatation du béton dépend du type de liant, de la compacité du béton et des conditions environnementales. Pour prendre en compte la carbonatation dans l'évaluation environnementale des ouvrages en béton, des travaux ont été réalisés dans le cadre des groupes de normalisation européen CEN/TC229/WG5 et CEN/TC104. Une méthodologie pour considérer la carbonatation des structures en béton a été proposée dans la norme NF EN 16757 sur les déclarations environnementales des produits et éléments en béton. De plus, le FD CEN/TR 17310 fournit des recommandations détaillées concernant la carbonatation et l'absorption du dioxyde de carbone dans le béton et donne quelques précisions pour l'application de la NF EN 16757. Il s'agit d'une thématique importante pour le développement durable dans le contexte actuel d'économie circulaire et d'impact carbone liés au label énergétique français (E+C-).

Dans cette première partie de l'article, un modèle numérique de carbonatation du béton est utilisé pour estimer la capacité de fixation de CO<sub>2</sub> d'un béton traditionnel de structures, dans un environnement soumis à la carbonatation et à des cycles d'humidification séchage. Les résultats obtenus sont comparés à la méthodologie proposée en annexe BB de la norme NF EN 16757.

## 2.1. Présentation succincte des modèles utilisés

Le modèle SDReaM-crete a été développé dans le cadre de travaux collaboratifs entre le Cerib et le LMDC [1] [2] dans l'objectif d'évaluer la durabilité des ouvrages en béton. C'est un modèle numérique basé sur des équations de conservation de masse. Ce modèle permet de simuler la pénétration de chlorure, la carbonatation, les transferts d'humidité ainsi que le développement de la corrosion des armatures dans les bétons exposés à des cycles d'humidification et de séchage. Il peut être utilisé dans un contexte déterministe ou dans un contexte probabiliste pour réaliser des calculs de fiabilité en prenant en compte la variabilité des paramètres d'entrée. Dans cette étude, il est utilisé pour calculer la profondeur de carbonatation puis la quantité de CO<sub>2</sub> absorbée par le béton lors de sa phase de service.

Le second modèle est un modèle analytique issu de la norme NF EN 16757 permettant de calculer la profondeur de carbonatation ( $x_c$ ) en fonction de la racine carrée du temps (t) et la quantité de CO<sub>2</sub> absorbée dans la zone carbonatée (CO<sub>2</sub><sub>absorbé</sub>). Le tableau 1 donne la plupart des paramètres du modèle pour décrire le matériau et l'environnement.

$$x_c = k \cdot \sqrt{t}$$

$$CO_{2\text{absorbé}} = x_c \cdot K_k \cdot U_{tcc} \cdot C \cdot D_c$$

**Tableau 1.** Description des paramètres d'entrée du modèle utilisé dans la norme NF EN 16757

	Matériau	Environnement
k: vitesse de carbonatation (mm/an <sup>0.5</sup> )	X	X
K <sub>k</sub> : facteur qui dépend de la nature du liant (-)	X	-
U <sub>tcc</sub> : capacité de fixation maximum théorique de CO <sub>2</sub> /kg de ciment	X	-
C: quantité de ciment (kg/m <sup>3</sup> )	X	-
D <sub>c</sub> : degré de carbonatation (-)	-	X

## 2.2. Comparaison des modèles

Les deux modèles ont été comparés dans le cas d'un voile en béton dont les principales caractéristiques sont données dans le tableau 2. Le voile est soumis à une ambiance extérieure correspondant à la classe d'exposition XC4 (exposition à la pluie). Le tableau 2 donne également les caractéristiques de cet environnement.

**Tableau 2.** Paramètres de composition du béton étudié et de l'environnement

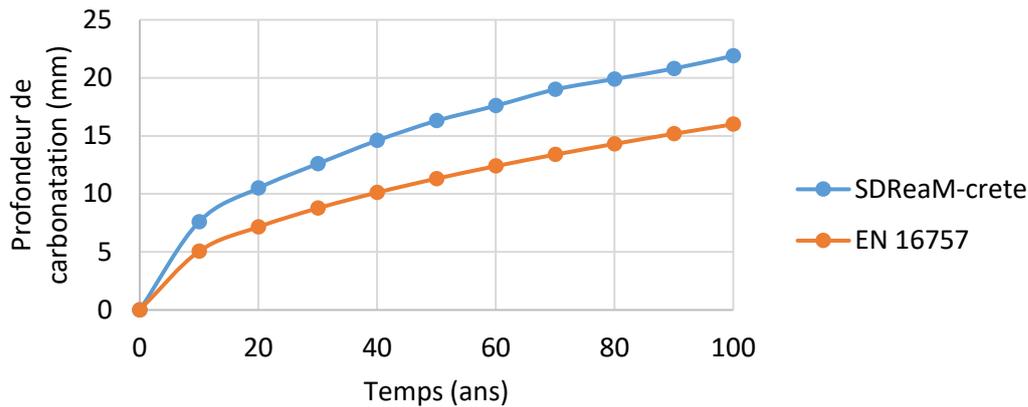
Paramètres	Valeur
Classe de résistance mécanique	C25/30
Quantité de ciment CEM I 52.5 N (kg/m <sup>3</sup> )	280
Quantité de granulats (kg/m <sup>3</sup> )	1 922
Eau efficace (l/m <sup>3</sup> )	168
E <sub>eff</sub> /C	0,60
Humidité Relative (%)	80 ± 10
Taux de CO <sub>2</sub> dans l'environnement (%)	0,04

Le tableau 3 fournit les valeurs des paramètres d'entrée utilisés pour le modèle de la norme NF EN 16757.

**Tableau 3.** Paramètres d'entrée pour le modèle utilisé dans la norme NF EN 16757

Paramètres	Valeurs
K : Vitesse de carbonatation (mm/an <sup>0.5</sup> )	1,6
K <sub>k</sub> : facteur qui dépend de la nature du liant (-)	1 (CEM I)
U <sub>tcc</sub> : capacité de fixation maximum théorique de CO <sub>2</sub> /kg de ciment	0,49 (CEM I)
D <sub>c</sub> : degré de carbonatation (-)	0,85 (béton soumis à la pluie)

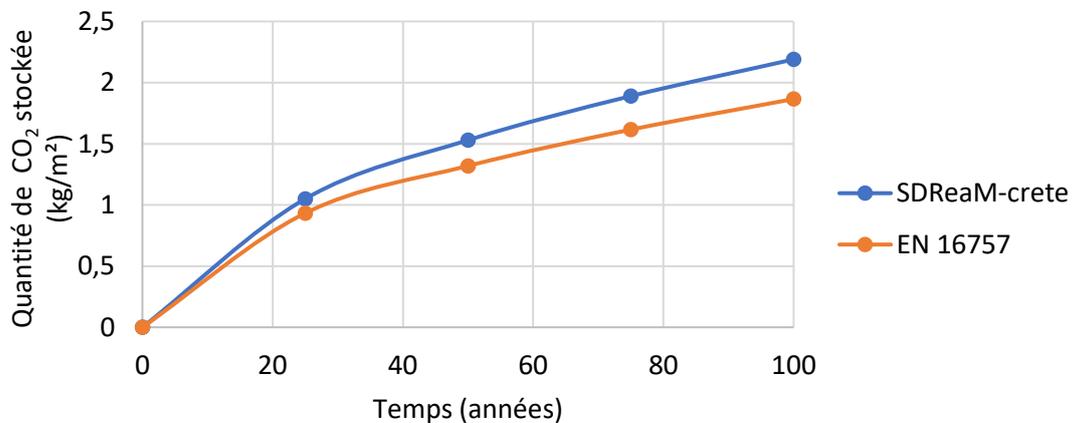
La figure 1 présente l'évolution dans le temps de la profondeur de carbonatation calculée avec chaque modèle pour la face du voile soumise à l'environnement. La profondeur de carbonatation de SDReaM-crete est déduite du profil de pH qui figure parmi les sorties du modèle.



**Figure 1.** Profondeur de carbonatation modélisée avec le modèle numérique SDReaM-crete et la méthodologie de la norme NF EN 16757

Les deux modèles conduisent à des cinétiques de carbonatation différentes. Cela s'explique par la nature des paramètres d'entrée utilisés dans les deux modèles et par la nature des phénomènes physico-chimiques modélisés. Le modèle analytique considère une évolution de la carbonatation du béton selon une loi exprimée en fonction de la racine carrée du temps et des paramètres de calage pour prendre en compte la nature du liant et les conditions environnementales. Le modèle numérique basé sur des équations de conservation de masse décrit plus précisément les mécanismes de transfert réactif au sein du matériau.

La figure 2 présente la quantité de CO<sub>2</sub> piégée par mètre carré de voile. Dans le cas du modèle analytique, cette quantité correspond à CO<sub>2</sub><sub>absorbé</sub>. Dans le cas de SDReaM-crete, cette quantité est obtenue par intégration du profil de CO<sub>2</sub> fixé.



**Figure 2.** Quantité de CO<sub>2</sub> stockée par mètre carré de béton considéré avec les deux modèles

Les deux modèles, bien que basés sur des méthodes de calculs de la quantité de CO<sub>2</sub> absorbé différentes, conduisent à des résultats proches dans ce scénario spécifique. La méthodologie décrite dans la norme NF EN 16757 conduit à un degré de carbonatation du même ordre de grandeur que celui estimé par des modèles plus complexes en termes de prise en compte des phénomènes physico-chimiques. L'avantage d'utiliser des modèles plus avancés réside dans une meilleure prise en compte des paramètres environnementaux, la possibilité de simuler le comportement du béton concassé, sa réutilisation dans du béton neuf comme granulats recyclés. Les simulations ont été réalisées en considérant des conditions environnementales uniformes mais non représentatives de conditions d'exploitation réelles de l'ouvrage. Le recours à des modèles numériques avancés est indispensable lorsqu'on souhaite modéliser les cinétiques de fixation du CO<sub>2</sub> dans des conditions d'exploitation proches des conditions réelles.

### 3. MODELISATION DE LA FIXATION DU CO<sub>2</sub> PAR CARBONATATION ACCELEREE DE GBR

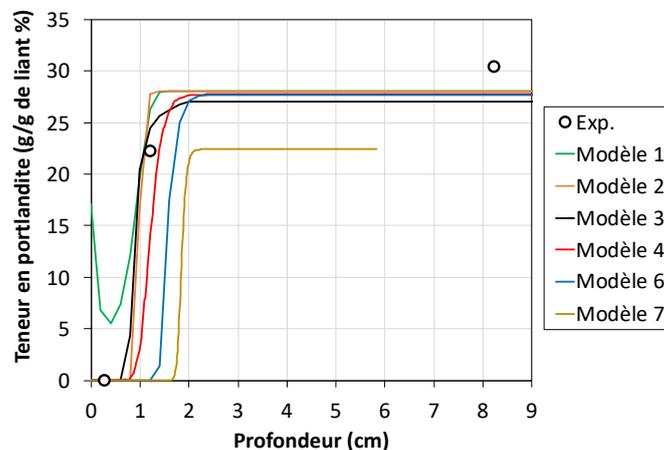
#### 3.1. Benchmark

Le groupe GT1.2 travaillant sur la modélisation de la fixation du CO<sub>2</sub> par les GBR rassemble des laboratoires à l'origine de différents modèles de carbonatation (CERIB, GeM, IRC, LaSIE, UGE). Les modèles sont basés sur des équations de conservation de masse permettant de décrire les phénomènes de transfert réactif, comme la diffusion du CO<sub>2</sub> à l'état gazeux et les transferts d'humidité.

Au début du projet, les laboratoires ont confronté leurs modèles au cours d'un benchmark. Celui-ci portait sur la carbonatation accélérée d'une pâte de ciment soumise pendant 1 an à une concentration de 1% de CO<sub>2</sub> dans des conditions de température et d'humidité connues. Des résultats expérimentaux pour cette pâte étaient disponibles dans la littérature, mais non communiqués aux participants. Ces derniers ne disposaient que de quelques données sur le matériau, telles que sa porosité et sa composition minéralogique.

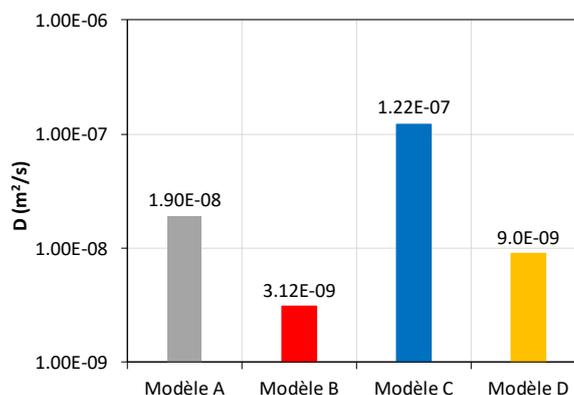
La figure 3 donne à titre d'exemple les profils de teneur en portlandite obtenus par chaque modèle, comparés aux données expérimentales. A l'échelle de l'échantillon de 9 cm, les résultats des simulations sont assez proches des résultats expérimentaux. Certains modèles permettent de bien approcher la teneur dans la zone carbonatée.

Dans l'ensemble, les profils numériques sont néanmoins quelque peu dispersés. Ces écarts proviennent des différences d'écritures des modèles ou de certains paramètres empiriques de calage. A ce titre, la figure 4, qui montre les coefficients de diffusion du CO<sub>2</sub> gazeux utilisés par les participants pour un même matériau, fournit un bon exemple d'origine des différences entre les simulations.



**Figure 3.** Benchmark : comparaison des profils de teneur en portlandite obtenus par 6 modèles de carbonatation et des teneurs expérimentales (Exp.) après 1 an de carbonatation d'une pâte de ciment.

Ce premier travail a permis d'identifier des voies d'amélioration des modèles, initialement développés pour étudier la durabilité des ouvrages en béton, afin de les appliquer à la fixation du CO<sub>2</sub> par des GBR. Une partie des différences dans les modèles a cependant été conservée. Nous avons considéré dans la suite des travaux du GT1.2 que les différences peuvent être représentatives de la diversité de comportement des bétons. Par exemple, le coefficient de diffusion gazeuse des modèles sont écrits en fonction de la porosité du matériau. Or, pour une même porosité, la diffusivité dépend fortement de la nature du liant [3].



**Figure 4.** Comparaison des coefficients de diffusion du CO<sub>2</sub> gazeux calculés avec les modèles de quatre participants au GT pour un matériau de porosité égale à 20% conservé à l'équilibre hydrique à 65% HR et 20°C.

### 3.2. Étude paramétrique

Suite au benchmark, les modèles ont été exploités dans une campagne de simulations pour identifier les paramètres ayant le plus d'influence sur le processus de carbonatation accélérée. La modélisation est faite à l'échelle d'un granulat recyclé de géométrie sphérique et de composition homogène. L'étude paramétrique porte sur les variables suivantes :

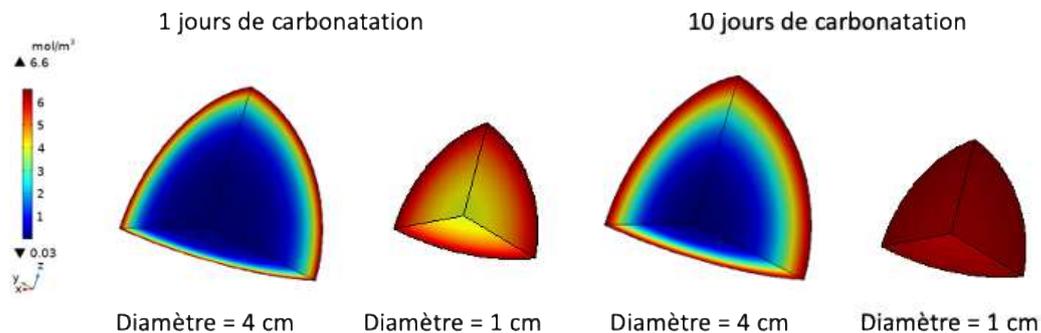
- les propriétés initiales du matériau : sa porosité et sa teneur en produits carbonatables ;
- son degré de saturation initial ;
- le diamètre du grain.

Le matériau est supposé initialement à l'équilibre hydrique dans une ambiance où l'humidité relative est imposée. Le tableau 4 donne leurs valeurs des paramètres prises pour l'étude. La combinaison de chaque paramètre nécessite au total plus d'une centaine de simulations. Notons que, pour simplifier l'approche et limiter le nombre de simulations, une même isotherme de désorption de vapeur d'eau et une même perméabilité à l'eau sont prises pour chaque simulation. Également, la teneur en CSH est fixée à partir de celle de la portlandite, en prenant un rapport molaire CSH/CH de 0,8 (on suppose que 1 mole de CSH compte 3,4 moles de Ca). Des simulations supplémentaires ont été réalisées pour évaluer l'influence de la concentration en CO<sub>2</sub>.

**Tableau 4.** Valeurs des variables de l'étude paramétrique

Variable	Valeurs
Porosité initiale (%)	15 ; 20 ; 25
Teneur en portlandite (mol/m <sup>3</sup> )	500 ; 1000 ; 1500
Degré de saturation en eau (-)	0,3 ; 0,6 ; 0,9
Diamètre du grain (mm)	1 ; 4 ; 10 ; 40

Le grain est soumis à une carbonatation dans une ambiance à 20°C et une pression partielle de 15% de CO<sub>2</sub> (cette pression est dans l'ordre de grandeur de celle des fumées des cimenteries). L'humidité relative imposée aux limites est calculée à partir de l'isotherme et du degré de saturation en eau initial. La figure 5 donne un exemple de résultats de simulations. La répartition spatiale de la teneur en CO<sub>2</sub> fixée dans des grains de différents est obtenu numériquement (ici après 1 et 10 jours de carbonatation).

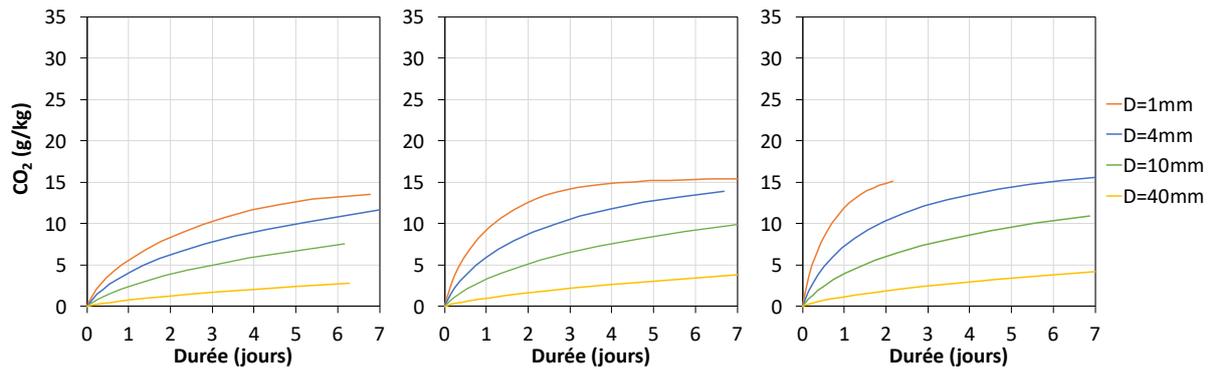


**Figure 5.** Répartition spatiale de la concentration en CO<sub>2</sub> fixé par des grains de porosité de 19% et de teneur en portlandite initiale de 1000 mol/m<sup>3</sup> - Simulations de l'IRC.

La quantité totale de CO<sub>2</sub> fixée par masse de matériau peut être déterminée à partir d'une intégration de cette répartition. La figure 6 donne la quantité fixée au fil du temps, dans l'exemple d'un granulat à différentes teneurs en éléments carbonatables. Au final, les évolutions dans le temps permettent de cartographier l'influence des paramètres pour une durée de carbonatation donnée, comme sur l'exemple en figure 7.

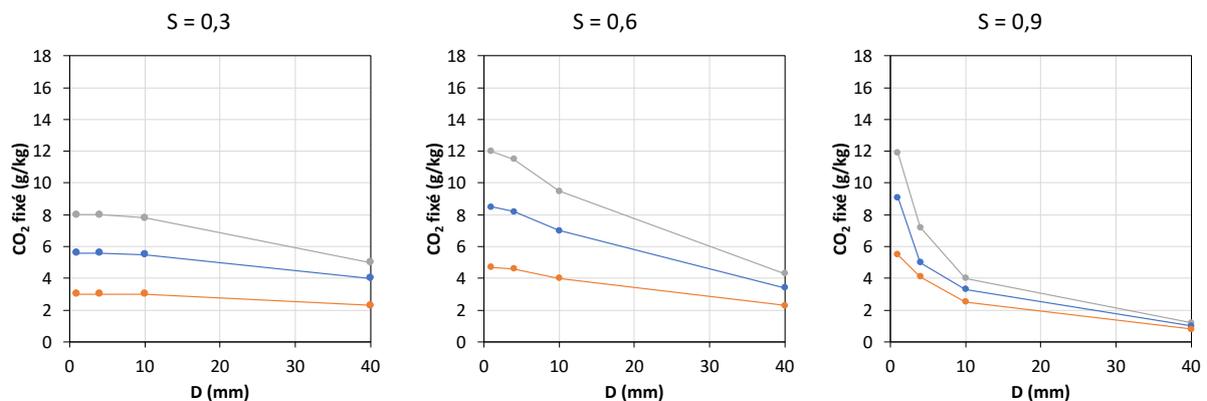
L'analyse des résultats permet d'évaluer l'influence de chaque paramètre et leurs éventuelles interactions. La porosité a peu d'influence par rapport aux autres paramètres, comme la teneur en éléments carbonatables. Cette dernière est néanmoins couplée avec la teneur en eau initiale. Pour un degré de saturation initial élevé ( $S = 0,9$ ), l'influence de la teneur en éléments carbonatables est beaucoup moins marquée qu'aux autres degrés simulés (figure 7). La carbonatation d'un matériau fortement saturé en eau ralentit fortement dans les

premiers jours. Ce phénomène s'explique par le fait que la carbonatation de la portlandite provoque une augmentation de la saturation en eau de la porosité, ce qui tend à bloquer la diffusion du CO<sub>2</sub>.



**Figure 6.** Évolution de la quantité de CO<sub>2</sub> fixé par unité de masse de GBR selon le diamètre du grain de porosité de 15% pour un degré de saturation en eau de 0,9 et trois teneurs en portlandite, 500 mol/m<sup>3</sup> (gauche), 1000 mol/m<sup>3</sup> (milieu), 1500 mol/m<sup>3</sup> (droite) – Simulations du LaSIE.

Le degré de saturation en eau est un des paramètres les plus influents. Entre 0,3 et 0,6, quelles que soient les conditions, le matériau tend à fixer plus de CO<sub>2</sub> à 60% de saturation qu'à 30%. Cela traduit assez bien les observations expérimentales du groupe GT1.1 [4]. Entre 0,6 et 0,9, l'effet de S est plus complexe, car il est couplé aux autres paramètres. A 1 jour, les grains les plus petits (< 4 mm) se carbonatent plus à 90% qu'à 60% de saturation. Pour un sable, la diffusion est rapide, même à une teneur en eau élevée : la vitesse de carbonatation est contrôlée par les cinétiques chimiques. A cette même échéance, la carbonatation des grains plus gros (> 10 mm) est dépendante du gradient de concentration en CO<sub>2</sub> gazeux et donc du coefficient de diffusion (beaucoup plus faible pour S = 0,9). A 7 jours, la quantité fixée est, dans presque tous les cas, supérieure pour S = 0,6 que pour S = 0,9. Ce changement de tendance s'explique par le fait que la carbonatation à un degré de 0,9 est fortement ralentie par la production d'eau liée à la carbonatation de la portlandite, comme évoqué précédemment. Pour les diamètres les plus gros, on observe à 7 jour une influence prédominante du terme « diffusif » et donc une carbonatation moins avancée.

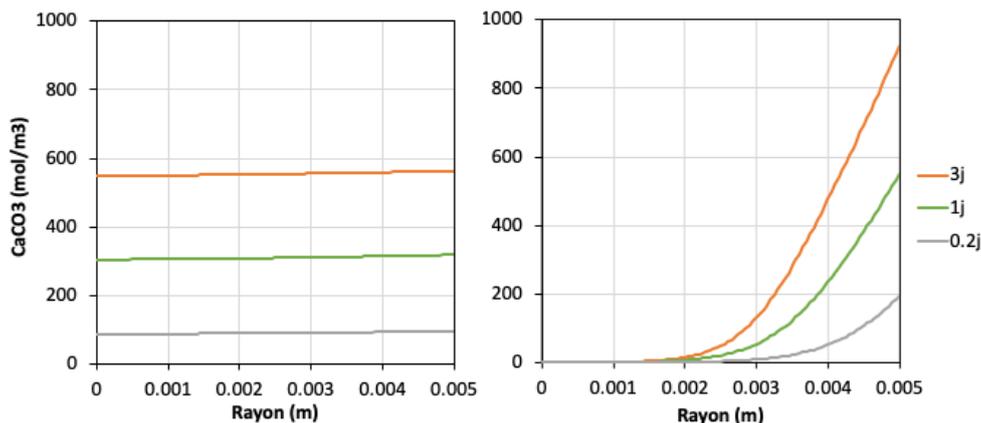


**Figure 7.** Masses de CO<sub>2</sub> fixé par kg de granulat de porosité initiale de 15% après 1 jour de carbonatation en fonction du diamètre pour différents degrés de saturation en eau (S) et trois teneurs en portlandite : 500 mol/m<sup>3</sup> (orange), 1000 mol/m<sup>3</sup> (bleu), 1500 mol/m<sup>3</sup> (gris) – Simulations du LaSIE.

De manière générale, la quantité de CO<sub>2</sub> fixé à 1 ou 7 jours est fonction décroissante du diamètre. L'influence du diamètre dépend néanmoins aussi du degré de saturation en eau. Pour S entre 0,3 et 0,6, le diamètre a peu d'effet sur la quantité de CO<sub>2</sub> fixé entre 1 et 10 mm. C'est un résultat intéressant, car la carbonatation à ces teneurs en eau a quasiment la même vitesse pour un sable et un gravillon de moins de 10 mm. Un gradient de CO<sub>2</sub> faible, associé à un coefficient de diffusion élevé, fait que la vitesse de carbonatation est contrôlée surtout par les cinétiques chimiques.

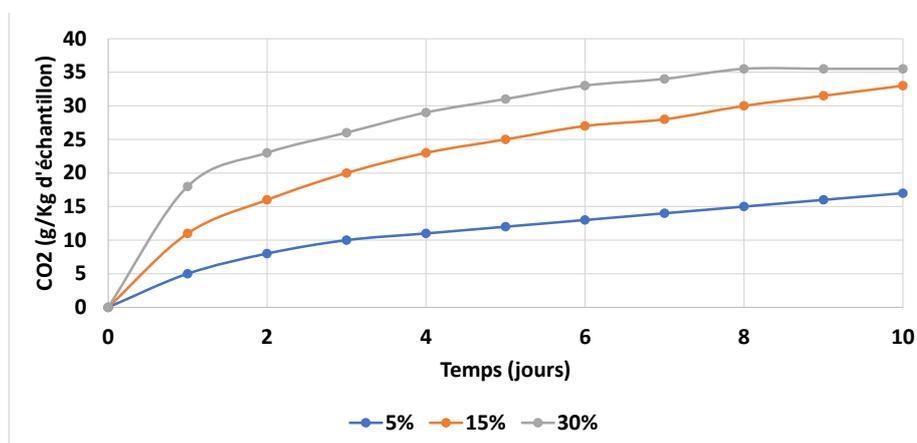
La figure 8 permet d'illustrer la compétition entre diffusion gazeuse et cinétiques chimiques qui contrôle le couplage entre les paramètres (diamètre, degré de saturation, teneur en produits carbonatables). Dans le cas

où la diffusivité est élevée (faible  $S$ ), la carbonatation est quasiment uniforme. A l'inverse, pour  $S = 0,9$ , le profil de  $\text{CO}_2$  est marqué : la peau est bien plus carbonatée que le cœur.



**Figure 8.** Profils de  $\text{CaCO}_3$  formé pour un grain de diamètre de 10 mm de porosité 20% et concentration en portlandite de  $1000 \text{ mol/m}^3$  avec  $S = 0,3$  (gauche) et  $0,9$  (droite) – Simulations numériques du LaSIE.

La concentration en  $\text{CO}_2$  ambiante est également un paramètre influent, comme le montrent quelques simulations complémentaires (figure 9). D'après les résultats obtenus ici dans le cas d'un grain de 5 mm de diamètre, la quantité de  $\text{CO}_2$  fixée à une durée donnée ne dépend pas linéairement de la concentration en  $\text{CO}_2$ .



**Figure 9.** Quantité de  $\text{CO}_2$  fixé par le granulats de diamètre 5 mm en carbonatation à 5%, 15% et 30% de  $\text{CO}_2$  – Simulations du GeM.

#### 4. CONCLUSION

Les travaux de modélisation du groupe GT1.2 du projet FASTCARB viennent en soutien des études en laboratoire du GT1.1 et permettent de compléter les résultats expérimentaux qui ne peuvent balayer l'ensemble des paramètres contrôlant la vitesse de carbonatation des granulats recyclés. Les simulations numériques montrent que les propriétés des GBR (teneur en eau, teneur en éléments carbonatables, taille) sont pour la plupart en interaction. La construction du modèle empirique pour prédire la quantité de  $\text{CO}_2$  fixée à partir de l'étude paramétrique du GT1.2 nécessiterait de prendre en compte ces couplages. Les simulations numériques permettent également d'obtenir des profils de teneur en  $\text{CO}_2$  dans le granulats, qu'il serait difficile d'acquérir au moyen des mesures.

Le groupe GT1.2 vient également compléter les investigations du projet FASTCARB en abordant la question du piégeage de  $\text{CO}_2$  par carbonatation atmosphérique au cours de la vie de l'ouvrage en béton.

Les travaux du groupe se poursuivent actuellement sur plusieurs fronts. Des études de cas sur des bâtiments existants sont en cours pour évaluer l'absorption de  $\text{CO}_2$  sur une durée de service de 50 ans. Dans le cas de la carbonatation accélérée des GBR, des études théoriques ont démarré pour comprendre l'influence du paramètre peu abordé jusqu'à présent dans le projet, voire dans la littérature, qu'est la température du gaz utilisé pour le traitement des GBR. Le gaz capté d'une fumée de cimenterie est en effet très chaud ( $60-80^\circ\text{C}$ ) d'après le retour des démonstrateurs à l'échelle 1 du projet FASTCARB.

## 5. REMERCIEMENTS

Les auteurs remercient l'ensemble des membres du projet national FASTCARB et en particulier les acteurs du groupe de travail GT1.2 : M. Achour et O. Amiri (GeM, Université de Nantes), P. Dangla (Université Gustave Eiffel), N. Jacquemet (chercheur indépendant/consultant), J. Jeong (IRC, ESTP), L. Schmitt (CERIB), M. Thiery (Direction générale de l'aménagement, de la nature et du logement).

La recherche présentée est réalisée dans le cadre du projet FastCarb soutenu par le Ministère de la Transition écologique et solidaire.

## 6. REFERENCES

[1] J. Mai-Nhu, P. Rougeau, F. Duprat, A. Sellier, Probabilistic optimization of the concrete cover for structures exposed to chlorination and carbonation according to climate change, International Conference on Structural Safety & Reliability, New-York, USA, 2013.

[2] L. Schmitt, J. Mai-Nhu, F. Duprat, T. De Larrard, P. Rougeau, Interest of using a model combining carbonation/chloride ingress and depassivation to better anticipate the rehabilitation of concrete structures, International Conference on Concrete Repair, Rehabilitation, and Retrofitting, Cape Town, South Africa, 2019.

[3] F. Gendron, Carbonatation des matériaux cimentaires : étude de la diffusion du CO<sub>2</sub>, Thèse de doctorat de La Rochelle Université, 2019.

[4] M. Sereng, Amélioration des propriétés des granulats recyclés par stockage de CO<sub>2</sub> : étude de la faisabilité pré-industrielle, Thèse de doctorat de l'Université Paris Est, 2021.