

Évolution de la cohésion dans un matériau granulaire : de la capillarité à la cimentation

Jean-Yves Delenne*, Fabien Soulié, Moulay Said El Youssoufi, Christian Saix

*Laboratoire de mécanique et génie civil, UMR UMII-CNRS 5508, université Montpellier II,
CC 034, place E. Bataillon, 34095 Montpellier cedex 5, France*

Reçu le 20 juillet 2006 ; accepté le 16 janvier 2007

Disponible sur Internet le 6 mars 2007

Présenté par Michel Combarous

Résumé

Cette Note présente une étude expérimentale de l'évolution de la cohésion macroscopique de matériaux granulaires contenant une solution saline saturée. L'évaporation du solvant conduit à la cristallisation du soluté et donc à la cimentation progressive du matériau. La résistance à la compression simple est utilisée pour rendre compte de la cohésion d'échantillons granulaires cylindriques. Deux régimes distincts de cohésion sont mis en évidence : un régime capillaire et un régime cimenté. La transition entre les deux régimes n'est pas directement liée à la quantité de soluté cristallisé, mais plutôt au rapport entre la masse de soluté cristallisé et la masse totale de soluté présent dans l'échantillon. *Pour citer cet article : J.-Y. Delenne et al., C. R. Mécanique 335 (2007).*

© 2007 Académie des sciences. Publié par Elsevier Masson SAS. Tous droits réservés.

Abstract

Evolution of cohesion in a granular material: from capillarity to cementation. This Note presents an experimental study of the evolution of the macroscopic cohesion of granular materials containing a saturated solution of sodium chloride. The evaporation of the solvent leads to the crystallization of the solute and thus to the progressive cementation of the material. The compressive strength is used to evaluate the cohesion of cylindrical granular samples. Two distinct regimes of cohesion are highlighted: a capillary regime and a cemented regime. The transition between the two regimes is not directly related to the amount of crystallized solute, but rather to the ratio of the mass of crystallized solute to the total mass of solute present in the sample. *To cite this article: J.-Y. Delenne et al., C. R. Mécanique 335 (2007).*

© 2007 Académie des sciences. Publié par Elsevier Masson SAS. Tous droits réservés.

Mots-clés : Milieux granulaires ; Cohésion ; Capillarité ; Cimentation ; Cristallisation ; Chlorure de sodium

Keywords : Granular media; Cohesion; Capillarity; Cementation; Crystallization; Sodium chloride

* Auteur correspondant.

Adresses e-mail : delenne@lmgc.univ-montp2.fr (J.-Y. Delenne), soulie@lmgc.univ-montp2.fr (F. Soulié), elyous@lmgc.univ-montp2.fr (M.S. El Youssoufi), saix@lmgc.univ-montp2.fr (C. Saix).

Abridged English version

The study of the phenomena initiated by the presence of interstitial liquid in granular materials is a major stake for the comprehension of the mechanisms of cohesion which develop within these materials. These problems are of interest for various fields such as powder technology, soil mechanics and composition of concretes [1–5].

In the case of granular soils such as sands, the interstitial liquid also plays a significant role in their mechanical behaviour. The liquid is generally water containing various impurities and/or dissolved minerals. At low liquid contents, liquid bridges are formed between grains. The attractive capillary forces in the presence of liquid bridges between grains endow the material with a macroscopic cohesion of basically weak intensity [6]. Under the action of the surrounding hygrothermic conditions, water can evaporate, thus modifying the solute concentration. In the case of extreme concentration, the solutes crystallize to form solid bonds between grains. This phenomenon leads to enhanced cohesion at the macroscopic scale.

The objective of this work is to consider cohesive bonds whose nature, and thus the mechanical behaviour, evolves according to environmental conditions. In this first approach we focus on the evolution of the macroscopic cohesion of a wet granular material during the evaporation of a solvent (water) and thus the crystallization of the solute (sodium chloride). The cohesion will be characterized by the compressive strength of cylindrical granular samples. Cylindrical samples (diameter 25 mm and height 17 mm) are prepared respectively with glass beads (Fig. 1(a)) and with Ventoux sand (Fig. 1(b)) whose chemical composition contains at least 99.6% of silica. These granular materials are well mixed with a solution composed of water saturated with sodium chloride (NaCl), called in the following, brine.

Three series of samples were prepared with three different levels of brine content: 3%, 5% and 7%. The samples are weighed just after preparation (the corresponding mass is noted m_i), then left to dry under temperature-controlled conditions ($T = 20^\circ\text{C}$) and in relative humidity ($RH = 43\%$). The samples are taken for several drying durations and weighed (mass m_f) then submitted to an unconfined compression test until rupture (Fig. 1(c)). The difference in mass ($m_f - m_i$) enables us to access the mass of evaporated water and thus that of crystallized NaCl.

Figs. 2(a) and 2(b) present a synthesis of 82 tests carried out on glass beads and 60 tests carried out on sand, for the brine contents 3%, 5%, and 7%. We observe the evolution of the maximal force as a function of the mass of crystallized NaCl. All plots have the same feature whatever the initial brine content. During the first stages of evolution, capillary cohesion prevails and the yield strength is pretty low as a result.

Independently of the initial brine content, the breaking strength remains low in spite of the increasing mass of crystallized NaCl. When it reached a critical value, different from the initial brine content, the yield strength increases considerably reaching values from 20 to 30 times higher than the initial strength. It is interesting to note that the strength of the granular samples is not controlled by the absolute amount of crystallized NaCl. In fact, as shown in Fig. 2, for the same mass of crystallized NaCl, the maximal compressive force F varies in different samples depending on the initial brine content.

To account for the influence of the initial brine content, a crystallization index $i_c = m_{\text{NaCl}}^S / m_{\text{NaCl}}$ is defined (with m_{NaCl}^S the mass of crystallized NaCl and m_{NaCl} the total mass of NaCl in the sample). This index is equal to 0 if NaCl is completely dissolved and equals to 1 if all the NaCl is crystallized. The variation of $F^* = F / F_{\text{cap}}$ (where F_{cap} is the maximal compressive force for a non-crystallized sample) is presented in Fig. 3 as function of i_c for the three initial brine contents. This figure clearly indicates the existence of two parts:

- the first part (*zone 1*) for which F^* seems to be constant and thus does not depend on i_c ,
- the second part (*zone 2*) for which F^* sharply increases for $i_c \geq 0.8$.

It is remarkable that these two parts are well defined whatever the initial brine content. Physically, they correspond to two distinct regimes: a capillary regime (first part) and a cemented regime (second part).

1. Introduction

La présence de liquides interstitiels peut générer une cohésion importante dans les matériaux granulaires. La compréhension des mécanismes de cette cohésion constitue un enjeu majeur des recherches dans des domaines aussi variés que la technologie des poudres, la mécanique des sols, la réalisation des bétons [1–5]. Dans le cas des sols granulaires tels que les sables, le liquide interstitiel est généralement composé d'eau, d'impuretés diverses et/ou de

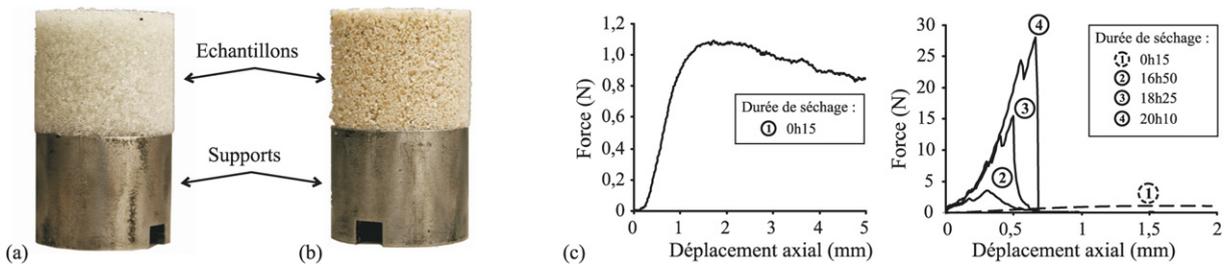


Fig. 1. Exemples d'échantillons : (a) billes de verres ; (b) sable du Ventoux ; (c) courbes force-déplacement pour une teneur initiale en saumure de 5% et des durées croissantes de séchage ; cas du sable du Ventoux.

Fig. 1. Examples of samples: (a) glass beads; (b) sand of Ventoux ; (c) force-displacement curves for a brine content of 5% and increasing duration of drying; case of the sand of Ventoux.

différents minéraux dissous constituant les solutés. La présence de ponts liquides entre les grains génère des forces capillaires attractives qui se manifestent à l'échelle macroscopique par une cohésion qui reste néanmoins relativement faible [6]. Sous l'effet de conditions hygrothermiques environnantes, l'eau peut s'évaporer, augmentant ainsi la concentration en solutés. Si la concentration limite est atteinte, ces solutés cristallisent, ce qui donne naissance à des liens locaux cimentés entre les grains. Ce phénomène se traduit à l'échelle macroscopique par une cohésion non négligeable, directement liée à l'état de la cimentation.

Dans cette étude, on utilise une saumure saturée composée d'eau et de chlorure de sodium (NaCl), un matériau granulaire modèle (billes de verre) et un matériau granulaire naturel (sable du Ventoux). Des essais de compression simple sont réalisés sur des échantillons cylindriques à différents degrés d'avancement de la cristallisation du NaCl, cet avancement étant caractérisé par un indice de cristallisation. L'évolution du seuil de rupture des échantillons est analysée en corrélation avec l'indice de cristallisation. Cette analyse fait apparaître deux régimes distincts de cohésion : un régime capillaire et un régime cimenté.

2. Préparation des échantillons et protocole d'essai

Des échantillons, de forme cylindrique (diamètre 25 mm et hauteur 17 mm), sont réalisés respectivement à base de billes de verre (Fig. 1(a)) et de sable du Ventoux (Fig. 1(b)) dont la composition chimique est au moins à 99,6% de silice (SiO_2) ; le reste étant composé de traces de différents oxydes (Fe_2O_3 , Al_2O_3 , TiO_3 , CaO , K_2O). Dans les deux cas, les matériaux sont lavés et séchés, puis tamisés pour ne garder que des grains dont les diamètres sont compris entre 0,4 mm et 0,8 mm. Ces matériaux granulaires sont mélangés à une solution aqueuse saturée en NaCl (35,6 g de NaCl pour 100 g d'eau). La sensibilité de cette concentration maximale à la température est faible [7,8].

Selon les conditions hygrothermiques de l'atmosphère environnante, l'eau peut s'évaporer. Cette évaporation conduit à un déséquilibre thermodynamique de la solution qui se traduit ici par la présence d'un excès de NaCl dans la solution déjà saturée. Le retour vers l'équilibre se fait par la cristallisation de cet excès de NaCl et donc l'apparition de dépôts de NaCl solide dont la masse est notée m_{NaCl}^S .

Pour chacun des deux matériaux granulaires, trois séries d'échantillons sont réalisées pour les teneurs initiales en saumure : 3%, 5% et 7%. Ces teneurs sont choisies dans le domaine hydrique qualifié de « pendulaire ». Les échantillons sont pesés immédiatement après leur fabrication (la masse correspondante est notée m_i), puis mis à sécher dans des conditions régulées en température ($T = 20^\circ\text{C}$) et en humidité relative ($HR = 43\%$). Pour différentes durées de séchage, les échantillons sont prélevés et pesés (masse m_f), avant d'être soumis à un essai de compression simple jusqu'à rupture. La différence de masse ($m_f - m_i$) permet d'accéder à la masse d'eau évaporée et donc à la masse de NaCl cristallisé.

3. Analyse des résultats

Les essais ont été réalisés sur 82 échantillons de billes de verre et 60 échantillons de sable du Ventoux. La Fig. 1(c) présente des allures typiques de courbes force-déplacement obtenues dans le cas d'échantillons de sable du Ventoux avec une teneur initiale en saumure saturée de 5%, pour des durées croissantes de séchage.

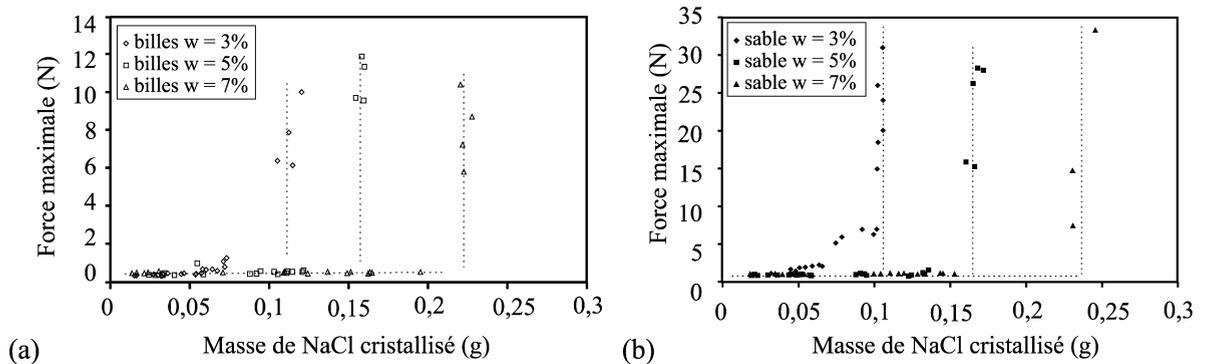


Fig. 2. Force maximale de compression en fonction de la masse de NaCl cristallisé pour les trois teneurs initiales en saumure : (a) billes de verre, (b) sable du Ventoux.

Fig. 2. Maximal compressive force versus mass of crystallized NaCl for the three initial brine contents: (a) glass beads, (b) sand of Ventoux.

La courbe obtenue pour le temps de séchage le plus court (courbe 1) montre une évolution monotone de la force de compression avec le déplacement axial. L'échantillon, de faible raideur, subit une grande déformation au cours de l'essai ; le comportement est de type plastique ductile. Les valeurs obtenues pour la force de compression sont relativement faibles et correspondent à une cohésion de type capillaire. Dans le cas du temps de séchage le plus long (courbe 4), la force de compression atteint un pic de niveau élevé pour un déplacement axial faible. Une rupture nette de l'échantillon apparaît dès le franchissement de ce pic. Le comportement du matériau est de type fragile. Enfin, les courbes 2 et 3 sont obtenues pour des temps de séchage intermédiaires. Dans tous les cas, la force à la rupture en compression peut être déterminée sans ambiguïté. Elle correspond à la force maximale de compression. Tous les échantillons testés ayant la même configuration géométrique, la force à la rupture est supposée rendre compte de la cohésion macroscopique.

Les figures 2(a) et 2(b) présentent une synthèse des essais réalisés sur les échantillons de billes de verre et de sable du Ventoux. Ces figures montrent l'évolution de la force à la rupture en fonction de la masse de NaCl cristallisé. On peut remarquer que les résultats présentent des similitudes pour les trois teneurs initiales en saumure. A l'état initial, la tenue mécanique des échantillons granulaires résulte du seul phénomène de capillarité. La résistance à la rupture ainsi que la cohésion du matériau sont faibles. Indépendamment de la teneur initiale en saumure, la résistance à la rupture reste faible malgré l'augmentation de la masse de NaCl cristallisé. Lorsque la masse de NaCl cristallisé atteint une valeur critique, différente selon la teneur initiale en saumure, la résistance à la rupture augmente considérablement et atteint des valeurs 20 à 30 fois supérieures à la résistance mécanique obtenue à l'état initial.

Il est intéressant de remarquer que pour les échantillons constitués de billes de verre comme pour les échantillons constitués de sable, la résistance mécanique ne dépend pas seulement de la quantité de NaCl cristallisé. En effet, comme le montrent les figures 2(a) et 2(b), pour une même masse de NaCl cristallisé, la force à la rupture des échantillons n'est pas nécessairement identique, elle dépend aussi de la teneur initiale en saumure.

On constate que, pour de faibles masses de NaCl cristallisé, la force maximale observée au cours des essais de compression simple est sensiblement la même pour un matériau donné quelle que soit la teneur initiale en saumure. Cette situation, où seule la cohésion par capillarité est mobilisée, a fait l'objet d'études à la fois expérimentales, théoriques et numériques [9,10]. La force maximale observée pour ces faibles masses de NaCl cristallisé, notée F_{cap} , sera utilisée comme référence. Dans la suite, la force maximale F sera remplacée par la force maximale adimensionnée $F^* = F/F_{\text{cap}}$.

Afin de s'affranchir de la teneur initiale en saumure, un indice de cristallisation $i_c = m_{\text{NaCl}}^S / m_{\text{NaCl}}$ est défini (avec m_{NaCl} la masse totale de NaCl présent dans le milieu). Cet indice est égal à 0 si le NaCl est totalement dissous et à 1 si la totalité du NaCl est cristallisée.

Pour l'ensemble des essais, la variation de F^* en fonction de i_c est donnée à la Fig. 3. Cette figure met clairement en évidence deux zones :

- la première zone, où F^* est sensiblement constante et ne dépend donc pas de i_c ,
- la deuxième zone, où F^* augmente rapidement à partir de $i_c \approx 0,8$.

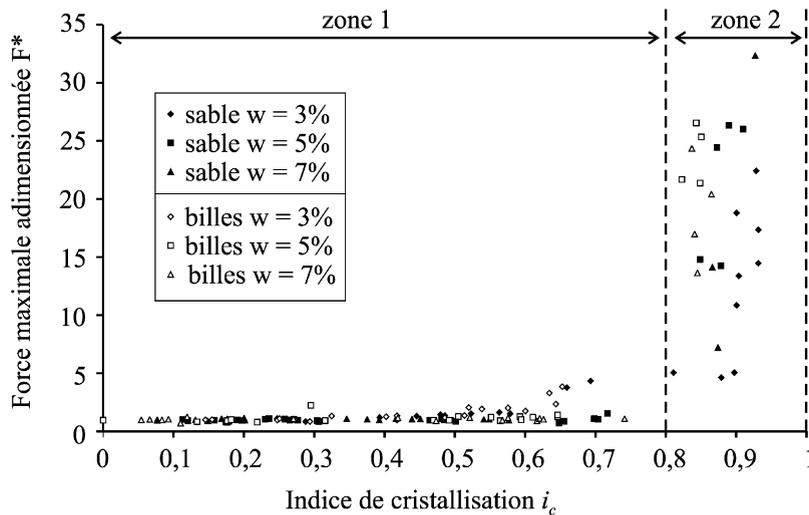


Fig. 3. Evolution de la force maximale adimensionnée en fonction de l'indice de cristallisation pour l'ensemble des essais.

Fig. 3. Maximal adimensional force versus crystallization index for all compression tests.

Il est remarquable que ces zones soient identifiables quel que soit le matériau et quelle que soit la teneur initiale en saumure. Ces zones correspondent à deux régimes distincts : un régime capillaire (première zone) et un régime cimenté (deuxième zone). Enfin, on peut remarquer que la valeur maximale de l'indice de cristallisation ($i_c = 1$) n'est jamais atteinte. Ceci est dû à une quantité d'eau résiduelle qui reste piégée par le NaCl cristallisé dans l'échantillon.

4. Conclusion

Une étude expérimentale a permis d'aborder l'effet de la cristallisation d'un soluté (NaCl) sur la résistance mécanique d'un matériau granulaire. Les résultats obtenus, à la fois sur un matériau modèle (billes de verre) et sur un matériau naturel (sable du Ventoux), ont clairement montré l'existence de deux régimes nettement distincts selon l'avancement de la cristallisation dans le matériau : un régime capillaire et un régime cimenté. Afin de caractériser la dépendance entre résistance mécanique et avancement de la cristallisation, un indice de cristallisation i_c a été introduit. L'évolution de la force à la rupture en fonction de cet indice apparaît indépendante de la teneur initiale en saumure.

Les résultats macroscopiques obtenus devraient contribuer à la caractérisation de lois d'évolution par cristallisation (ou dissolution) des liens cohésifs dans un matériau granulaire. De telles lois sont très attendues pour la modélisation par éléments discrets du comportement mécanique de matériaux granulaires cohésifs. L'apport des approches discrètes est ici particulièrement intéressant pour étudier le changement d'échelle entre les phénomènes physiques décrits à l'échelle microscopique et leurs manifestations à l'échelle macroscopique. L'objectif est d'étendre la démarche déjà utilisée dans le cas de la capillarité [6] et de la cimentation [11,12] au cas d'un lien cohésif dont la nature évolue en fonction des conditions environnementales.

Références

- [1] J.K. Mitchell, *Fundamentals of Soil Behavior*, 2^e édition, Wiley Interscience, New York, 1993.
- [2] S.M. Iveson, J.D. Litster, K. Hapgood, B.J. Ennis, Nucleation, growth and breakage phenomena in agitated wet granulation processes: A review, *Powder Technology* 117 (2001) 3–39.
- [3] A. Nokhodchi, An overview of the effect of moisture on compaction and compression, *Pharmaceutical Technology* 29 (2005) 46–66.
- [4] C. Cardell, F. Delalieux, K. Roumpopoulos, A. Moropoulou, F. Auger, R. Van Grieken, Salt-induced decay in calcareous stone monuments and buildings in a marine environment in SW France, *Construction and Building Materials* 17 (2003) 165–179.
- [5] L.A. Rijniers, L. Pel, H.P. Huinink, K. Kopinga, Salt crystallization as damage mechanism in porous building materials—a nuclear magnetic resonance study, *Magnetic Resonance Imaging* 23 (2005) 273–276.
- [6] F. Soulié, F. Cherblanc, M.S. El Youssoufi, C. Saix, Influence of liquid bridges on the mechanical behaviour of polydisperse granular materials, *International Journal for Numerical and Analytical Methods in Geomechanics* 30 (2006) 213–228.

- [7] D.W. Kaufmann, Sodium Chloride, the Production and Properties of Salt and Brine, Reinhold Publishing Corporation, New York, 1960.
- [8] H. Langer, H. Offermann, On the solubility of sodium chloride in water, *Crystal Growth* 60 (1982) 389–392.
- [9] F. Soulié, Cohésion par capillarité et comportement mécanique de milieux granulaires, Thèse de doctorat, Université Montpellier II, 2005.
- [10] V. Richefeu, M.S. El Youssoufi, F. Radjaï, Shear strength properties of wet granular materials, *Physical Review E* 73 (2006) 1–11.
- [11] J.-Y. Delenne, M.S. El Youssoufi, J.-C. Bénéat, Comportement mécanique et rupture de milieux granulaires cohésifs, *C. R. Mecanique* 330 (2002) 475–482.
- [12] J.-Y. Delenne, M.S. El Youssoufi, F. Cherblanc, J.-C. Bénéat, Mechanical behaviour and failure of cohesive granular materials, *International Journal for Numerical and Analytical Methods in Geomechanics* 28 (2004) 1577–1594.