

DURABILITÉ CHIMIQUE DU SABLE BIO-CIMENTÉ : ETUDE MÉCANIQUE ET MICROSTRUCTURALE

CHEMICAL DURABILITY OF BIO-CEMENTED SAND: MECHANICAL AND MICROSTRUCTURAL STUDY

Abdelali DADDA¹, Fabrice EMERIAULT¹, Christian GEINDREAU¹, Annette ESNAULT FILET², Aurélie GARANDET³

¹ Université Grenoble Alpes (Laboratoire 3SR), Grenoble, France

² Soletanche Bachy, Rueil-Malmaison, France

³ Compagnie Nationale de Rhône, Lyon, France

RÉSUMÉ – Une campagne expérimentale a été réalisée pour étudier les effets d'une solution agressive sur la résistance mécanique des sables bio-cimentés. Des essais de rinçage par une solution de faible pH ont été réalisés suivis par des essais mécaniques et des observations MEB. Cette étude souligne que la résistance des échantillons diminue de façon remarquable avec la diminution de densité et de taille des cristaux de calcite.

ABSTRACT – A series of experiments has been carried out to study the effects of an aggressive solution on the mechanical strength of bio-cemented sands. Rinsing tests with a low pH solution have been performed followed by mechanical tests and SEM observations. This study emphasizes that the strength of the samples decreases significantly with the decrease in the density and size of the calcite crystals.

1. Introduction

La bio-cimentation est une technique récente qui permet d'améliorer les propriétés physiques et mécaniques des sols. Elle utilise des bactéries de type *Sporosarcina pasteurii* qui ont la capacité de décomposer l'urée et d'accélérer la précipitation de la calcite dans des milieux qui contiennent du calcium (Al Qabany et al., 2011a, Feng et Montoya, 2015, Filet et al., 2012). La bio-cémentation des sols permet d'augmenter considérablement leur résistance mécanique grâce à la précipitation de la calcite entre les grains. Cette précipitation peut réduire la porosité des sols traités et ainsi conduire à une réduction de la perméabilité. Ceci se produit généralement pour un niveau de calcification élevé (Jiang et al., 2014). Plusieurs études ont montré l'intérêt de cette technique de renforcement pour des problèmes géotechniques tels que le renforcement des barrages en terre contre l'érosion interne ou la protection des talus (Jiang et al., 2016).

Le sol bio-cimenté est la plupart du temps affecté par les eaux superficielles ou souterraines. Il est bien connu que les eaux de pluie peuvent avoir un pH acide en raison des grandes quantités de gaz combustibles fossiles qui sont rejetés dans l'atmosphère. Cela dépend de l'ampleur de l'industrialisation de la région considérée et de la densité de population à proximité. De même, l'activité des macro-organismes et micro-organismes vivants peut conduire à la production de sous-produits acides qui seront transportés à travers les sols par les eaux de pluie. Cette eau de pluie acide peut influencer à long terme la stabilité chimique des cristaux de calcite comme le montrent les équations suivantes :



Le contact (acide / calcite) produit un sel de calcium et de l'acide carbonique (Eq1), qui se dissout rapidement dans l'eau et qui donne du dioxyde de carbone (Eq2). Par conséquent, il est crucial d'évaluer ce phénomène et d'explorer ses influences sur la résistance mécanique des sols renforcés. Cependant, les quelques études

expérimentales déjà menées sur ce thème ne sont pas cohérentes. Cheng et al. (2013) ont testé la résistance résiduelle d'échantillons de sable bio-cimenté après un rinçage par des eaux de pluie acide ($\text{pH} = 3,5$). Ils ont observé une forte diminution (de 1 MPa à 0.6 MPa) de la résistance à la compression des échantillons rincés par 12 l d'eau acide, correspondant à 5 ans de précipitation (1000 mm/an). Dura (2013) a utilisé des échantillons de sable bio-calcifié (12 et 16% de calcite en masse) pour étudier l'effet de la dissolution chimique sur les propriétés mécaniques. Une solution contenant des composants chimiques similaires aux pluies acides (pH compris entre 5 et 6) a été utilisée dans cette étude. Les échantillons bio-cimentés ont été rincés par 260 volumes de pores (55 l) de solution agressive pendant 10 jours. Cette opération de rinçage n'a diminué que de 4% la quantité totale de calcite initiale. La résistance à la compression de ces échantillons a quant à elle très peu diminuée (inférieure à 10%). Dura (2013) a montré qu'avec une vitesse de Darcy de 1m/jour d'eau souterraine acide, la dissolution de calcite n'excède pas 0,01% de la calcite initiale sur une période de 50 ans, ce qui représente un risque négligeable sur la durée de vie d'une structure renforcée. Cependant, les paramètres environnementaux peuvent changer d'une structure à l'autre (l'acidité de l'eau circulant dans la structure, la température, la profondeur, la vitesse de circulation, etc.) qui peuvent influencer de façon considérable la dissolution chimique de la calcite (Coto et al. 2012).

Les propriétés microstructurales des sols biocalcifiés (morphologie de la calcite précipitée, surface spécifique de la calcite, structures cristallines et taille, etc.) peuvent également jouer un rôle dans la réaction chimique de dissolution. Le processus de dissolution des cristaux de calcite à l'intérieur du sable cimenté est également un facteur clé pour cette étude : la dissolution de la calcite localisée au niveau des contacts entre les grains peut réduire considérablement la résistance du sol et la durée de vie de la structure, alors qu'à l'inverse la dissolution de la calcite précipitée sur la surface des grains ne provoquera pas de diminution significative de la résistance du sol bio-cimenté. Pour ce faire, la dissolution chimique nécessite une étude à l'échelle microscopique en utilisant des outils qualitatifs et quantitatifs tels que microscope électronique à balayage (MEB) et micro-tomographie (Dadda et al., 2017a ; Dadda et al., ; 2017b).

L'objectif de ce travail est d'analyser les changements dans les propriétés mécaniques et microstructurales d'un sable bio-cimenté soumis à une solution agressive. Des échantillons de sable ayant une teneur en calcite d'environ 6% en masse ont été extraits d'un modèle physique à grande échelle réalisé avec du sable de Fontainebleau bio-cimenté. Ces échantillons ont été soumis à une solution agressive dans des proportions différentes et comparés à un échantillon intact, afin de détecter les changements de résistance triaxiale drainée dus à la dégradation de la calcite. De petits sous-échantillons ont été extraits des échantillons triaxiaux rincés et intacts afin d'explorer qualitativement l'évolution des propriétés microstructurales à l'aide d'observations au MEB. Cet article est organisé comme suit: la section 2 présente la préparation des échantillons, la préparation de la solution agressive et le dispositif expérimental développé dans ce travail pour étudier la durabilité chimique de sols bio-cimentés. Enfin, la section 3 présente les résultats obtenus à l'échelle microscopique ainsi qu'à l'échelle macroscopique.

2. Méthode expérimentale

2.1. Préparation d'échantillons

Plusieurs blocs ayant sensiblement un même niveau de calcification de 6% de calcite en masse ont été extraits d'un essai à grande échelle de bio-cimentation de sable de Fontainebleau (NE34). Le sable a été mis en place en plusieurs couches et compacté avec un petit rouleau vibrant afin d'obtenir une porosité uniforme d'environ 40%. Deux solutions ont été injectées dans ce test de bio-cimentation: (1) une solution bactérienne

préparée à partir d'un lyophilisat de *Sporosarcina pasteurii* d'une densité optique (DO) de l'ordre de 1 et (2) une solution calcifiante (0,6 mol/L d'urée et de CaCl_2). A partir de ces blocs, cinq échantillons ont été taillés manuellement (en évitant autant que possible toute perturbation créée par les vibrations) afin de subir dans le dispositif triaxial tout d'abord un rinçage avec une solution agressive puis un essai triaxial consolidé drainé. Les échantillons sont cylindriques et de petite taille (diamètre $d=35\text{mm}$ et hauteur $h=70\text{mm}$ environ) afin d'éviter une hétérogénéité possible de la dissolution habituellement observée dans de grands échantillons.

2.2. Préparation de la solution agressive

Pour étudier la durabilité chimique du sable bio-cimenté, chaque échantillon a été rincé par une solution chimique légèrement acide (définie dans le cadre d'une collaboration avec le laboratoire IGE de Grenoble). Généralement, la calcite se dissout dans un environnement acide et libère du dioxyde de carbone. La vitesse de dissolution dépend principalement du pH de l'environnement. D'autres facteurs affectent le processus de dissolution, comme la température ou d'autres composants chimiques dilués dans l'eau. Morse et Arvidson, 2002 ont observé que la vitesse de dissolution de la calcite (en échelle logarithmique) est proportionnelle au pH de la solution pour $5 > \text{pH} > 1$. Pour un $\text{pH} > 5$, la vitesse de dissolution est constante et lente. Une solution de pH égal à 6,6 a donc été retenue pour effectuer la dissolution de la calcite. Elle contient 1 litre d'eau distillée avec 0,195 mol/l de HCl et 0,2 mol/l de Tris (Trishydroxyméthylaminométhane), qui joue le rôle d'un tampon et empêche les grandes variations de pH. La capacité de dissolution de cette solution a été estimée en utilisant le logiciel PHREEQC pour le calcul de l'équilibre de la réaction suivante :



Cette capacité dépend du temps de contact entre la calcite et la solution agressive; ce temps peut être traduit en vitesse d'écoulement de la solution à l'intérieur de l'échantillon. Une quantité maximale de calcite d'environ 0,6 mmol/l (équivalente à 0,6g/l) peut être dissoute par cette solution, la solution étant alors saturée en calcite. Le pH de la solution est modifié au cours de son passage dans l'échantillon calcifié. Par conséquent, ce pH a été utilisé comme un indicateur de la dissolution à l'intérieur des échantillons. Le pH de la solution à la sortie de l'échantillon peut ainsi varier de la valeur initiale 6,6 à 7, ce qui correspond à une saturation totale de la solution par la calcite.

2.3. Dispositif et protocole de dissolution

Un dispositif de dissolution a été développé dans le cadre de ce travail. Le rôle principal du dispositif est d'effectuer la dissolution chimique des échantillons de sable bio-cimenté directement à l'intérieur de l'appareil triaxial (afin d'éviter l'endommagement d'un échantillon dissous lors de son installation dans le dispositif triaxial) en réalisant simultanément les mesures chimiques (pH et conductivité) (Figure 1). Chaque essai a été réalisé en injectant la solution chimique stockée dans un réservoir par une pompe péristaltique du bas vers le haut de la cellule triaxiale.

La solution de sortie passe par un pH-mètre et un conductimètre pour une évaluation de la calcite dissoute. La vitesse d'injection est d'abord ajustée jusqu'à ce que le pH de sortie initial soit d'au moins 6,8. Afin d'obtenir ce pH de sortie, une faible vitesse d'injection a été maintenue, à environ $5,4 \text{ cm}^3/\text{min}$ (soit une vitesse de Darcy de $9,3 \cdot 10^{-5} \text{ m/s}$), tout au long de la phase de dissolution. Différents volumes de solution chimique ont été utilisés, générant ainsi des échantillons avec différents niveaux de dissolution. Le tableau 1 résume les caractéristiques des différents essais (fraction massique initiale de calcite dans l'échantillon, volume injecté, etc.).

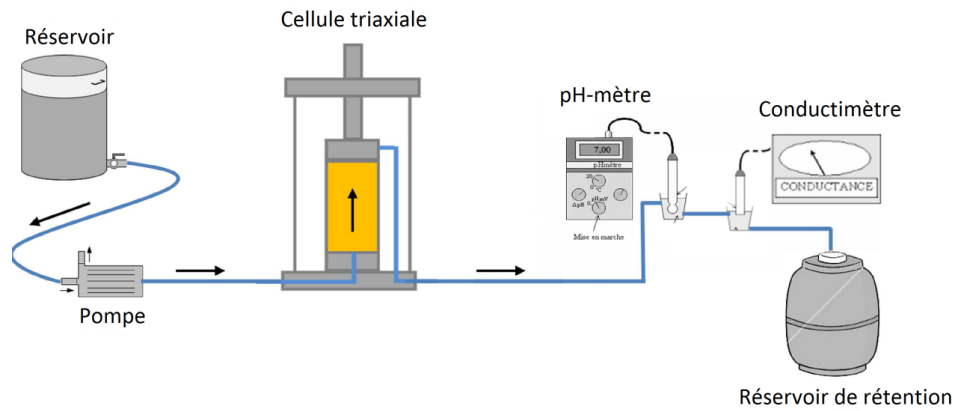


Figure 1. Schéma représentatif du dispositif de dissolution.

Tableau 1. Caractéristiques des tests effectués.

Echantillon	Fraction de calcite initiale (% en masse)	Volume injecté (L)	Pression de confinement (kPa)
S ₀	6,3	0	50
S ₁	5,7	1,2	
S ₂	5,6	2,4	
S _{3a}	6,2	6	
S _{3b}	5,8	6	

Le premier échantillon (S₀) a été testé mécaniquement sans dissolution afin d'obtenir une valeur de référence pour la résistance de ces échantillons bio-cimentés. Deux échantillons (S_{3a} et S_{3b}) ont été rincés par 6 litres de solution agressive afin de confirmer la répétabilité du processus de dissolution. Cette quantité a été choisie afin de dissoudre 50% de la calcite à l'intérieur de l'échantillon selon les estimations données par le logiciel PHREEQC. Deux autres échantillons (S₁ et S₂) ont été rincés avec de plus petites quantités (2,6 et 1,2 l) afin de suivre l'évolution de la résistance mécanique de ces échantillons à différents stades de dissolution. Après chaque opération d'injection, un essai triaxial de compression drainée est effectué avec une pression de confinement constante de 50 kPa (et dans des conditions saturées), également appliquée pendant la phase de dissolution.

2.4. Dosage chimique de calcite

La teneur en calcite a été mesurée pour tous les échantillons après les essais mécaniques. Les échantillons ont été découpés en 5 tranches de 1,4 cm de hauteur et 3 échantillons élémentaires ont été prélevés sur chaque tranche (Figure 2).

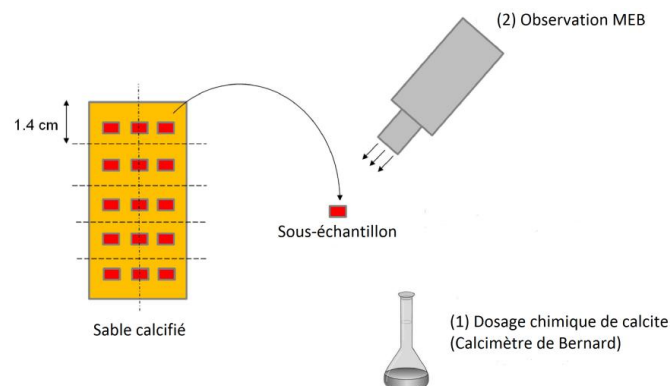


Figure 2. Schéma des analyses complémentaires après les essais triaxiaux.

La teneur en calcite de chaque échantillon élémentaire a été déterminée en utilisant le calcimètre de Bernard. Cette mesure est basée sur la dissolution de la calcite par le HCL et la détermination du volume de gaz dégagé (Dadda et al., 2017a)

2.5. Observations microstructurales

L'évolution des paramètres de résistance du sable bio-cimenté par rapport au sable non-traité est intimement lié à l'évolution de la microstructure (précipitation/dissolution de la calcite). La formation des cristaux de calcite dépend de plusieurs facteurs tels que la quantité de bactéries, la concentration des réactifs et le niveau de saturation du milieu. Dans cette étude, il était nécessaire d'observer l'évolution des cristaux de calcite pour différentes étapes du processus de dissolution. A cet effet, un sous-échantillon intact considéré comme référence et 3 sous-échantillons dissous ont été observés au MEB.

3. Résultats

3.1. Evolution de la résistance mécanique

Au total cinq essais triaxiaux drainés ont été effectués dans ce travail. Le premier échantillon a été testé mécaniquement sans dissolution, les quatre autres échantillons ont été rincés avec une quantité différente de solution agressive afin d'obtenir différents degrés de dissolution comme mentionné dans les paragraphes précédents (Figure 3a). Les échantillons étaient tous saturés en eau et ont été testés sous les mêmes pressions de confinement (50 kPa) couvrant la gamme de contraintes effectives horizontales rencontrées dans les applications pratiques. Les essais de compression ont été effectués à une vitesse de déplacement axial constante de 0,1 mm/min, ce qui assure une réponse complètement drainée pour le sable bio-cimenté (perméabilité mesurée sur des échantillons de teneur en calcite identique égale à $4 \cdot 10^{-5}$ m/s).

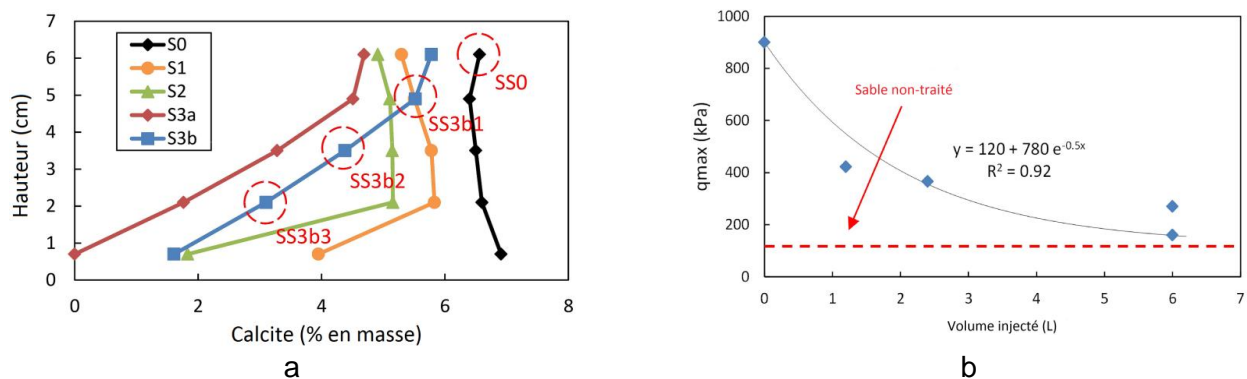


Figure 3. a) Profil de calcite de tous les échantillons testés, b) résistance vs volume injecté

L'échantillon intact (S_0) montre une contrainte déviatorique maximale d'environ 900 kPa sous 50 kPa de pression de confinement. Cet échantillon a un comportement typique de sable cimenté (rupture fragile et dilatance). Les échantillons dissous présentent une contrainte déviatorique de pic inférieure et une dilatance plus faible avec la disparition du comportement fragile. Le comportement et la résistance des échantillons rincés sont contrôlés essentiellement par la partie faible (inférieure) qui contient une plus petite quantité de calcite (Figure 3a). Du fait de cette forte hétérogénéité des échantillons dissous, les valeurs de contrainte mesurées peuvent être vues comme des estimations par excès de la résistance de l'échantillon.

A titre de comparaison, un essai triaxial similaire effectué sur le même sable bio-cimenté avec une teneur en calcite de 3% (valeur théorique homogène correspondant à 6 l de solution agressive circulant dans un échantillon avec une teneur initiale de 6%) serait de 200 kPa correspondant à une cohésion de 25 kPa et un angle de frottement de 40° .

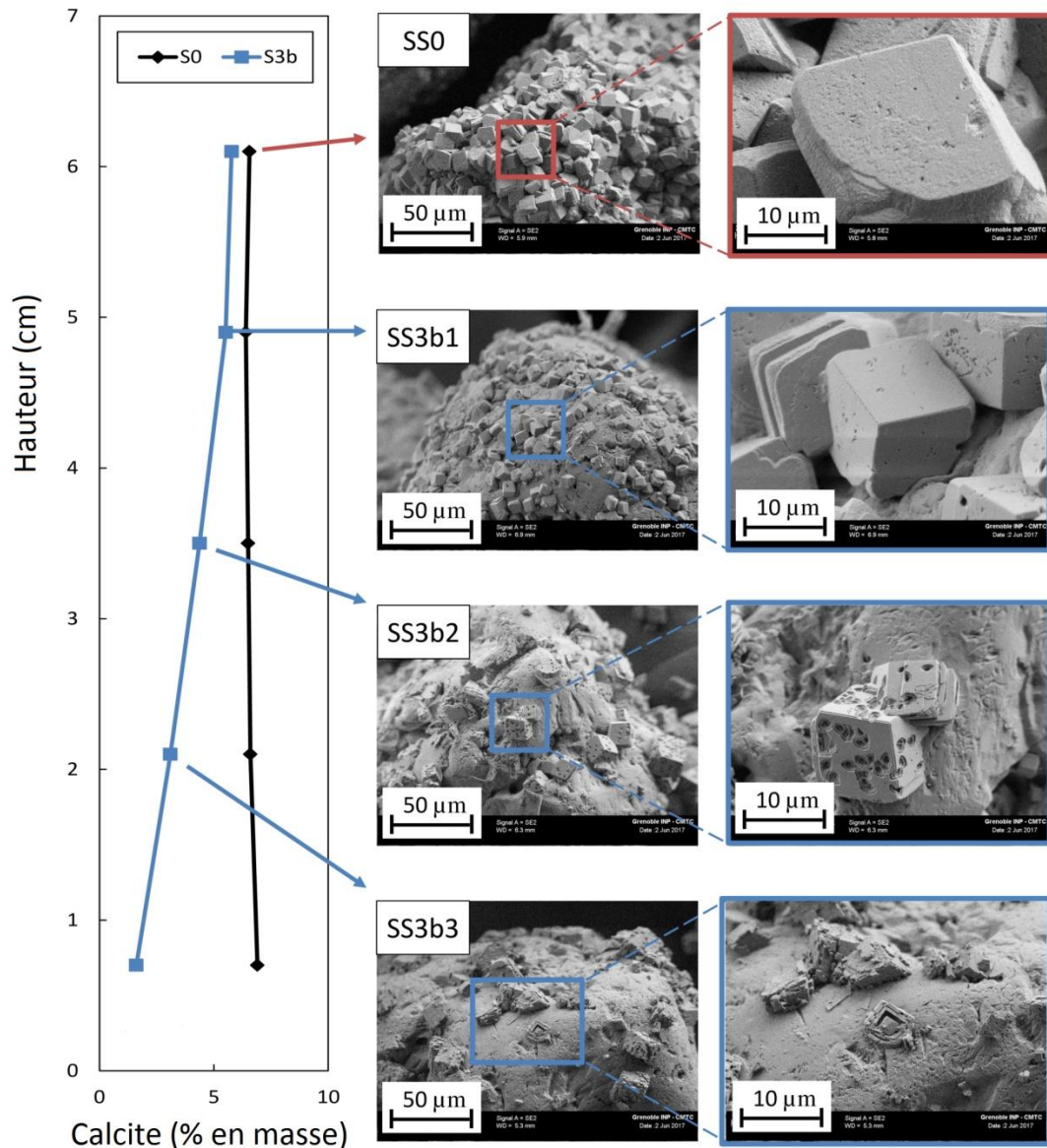


Figure 4. Image MEB des sous-échantillons SS_0 , SS_{3b1} , SS_{3b2} et SS_{3b3} .

La diminution de la résistance maximale suit de façon monotone le volume injecté à l'intérieur de l'échantillon (Figure 3b): la diminution de la force est significative pour les petits volumes injectés (moins de 2 litres). La contrainte déviatorique maximale tend asymptotiquement vers la résistance du sable non-traité (120kPa) (sable propre de Fontainebleau) sous la même pression de confinement (50 kPa). Puisque la résistance de ces échantillons dissous est contrôlée par la partie la plus faible qui a une hauteur plus petite par rapport aux standards, la diminution de résistance d'échantillons homogènes équivalents devrait être plus sévère que ce qui a été mesuré lors de ces essais.

3.2. Evolution de la microstructure

Pendant le dosage de la calcite de l'échantillon "S_{3b}", de petits sous-échantillons (SS_{3b1} , SS_{3b2} , SS_{3b3}) ont été extraits de chaque couche afin d'effectuer des observations MEB. Un sous-échantillon (SS_0) a également été extrait de l'échantillon intact "S₀" afin d'analyser l'évolution de la microstructure pendant la dissolution. Les positions de ces sous-échantillons observés sont précisées sur la Figure 3a. La Figure 4 présente des images MEB à différentes échelles des quatre sous-échantillons. Grâce à ces images, il

est possible d'observer une différence de teneur en calcite en termes de densité des cristaux et d'intégrité structurelle. Dans le sous-échantillon intact (SS_0), une densité élevée de cristaux couvre presque toute la surface des grains et forme des ponts de calcite au voisinage des contacts. Le zoom montre que les surfaces cristallines sont plates et régulières. Les cristaux de calcite bien formés confirment la saturation du milieu avec les ions calcium Ca^{2+} au cours du processus de calcification. Dans les échantillons dissous (SS_{3b1} , SS_{3b2} , SS_{3b3}), le nombre de cristaux de calcite diminue et les surfaces des grains deviennent visibles. La taille des cristaux de calcite apparaît également réduite. En effet, la taille des cristaux de calcite est d'environ $10\mu m$ pour le sous-échantillon intact et de moins de $4\mu m$ pour les sous-échantillons dissous. La solution acide a ainsi probablement réussi à détacher certains cristaux des grains et pour les autres à endommager leur surface. Ces dommages forment des motifs différents qui augmentent la surface spécifique de la calcite, conduisant ainsi à une dissolution plus rapide et localisée (près du point d'injection).

4. Conclusion

Dans ce travail, des blocs de sable bio-cimenté ont été prélevés dans un modèle physique à grande échelle et des échantillons triaxiaux ont été extraits à partir de ces blocs. Une solution agressive a été utilisée pour étudier l'influence de la dissolution de la calcite sur les propriétés mécaniques et microstructurales des échantillons. Cette solution est composée essentiellement de HCL et de Tris et a un pH initial de 6,6. Des éprouvettes intactes et dissoutes ayant un degré de dissolution différent mais contenant initialement la même quantité de calcite (environ 6% en masse) ont été testées dans des essais de compression triaxiale (en conditions saturées et drainées). Quatre sous-échantillons ont ensuite été extraits afin d'effectuer des observations MEB.

La dissolution de la calcite s'est avérée non-homogène dans chaque échantillon malgré les conditions expérimentales utilisées. Près du point d'injection, le processus de dissolution est également augmenté en raison de l'augmentation de la surface de la calcite en contact avec la solution chimique. En effet, comme observé avec le MEB, lorsque la dissolution commence, les cristaux de calcite sont endommagés et donc leur surface en contact avec la solution chimique augmente. La résistance mécanique des échantillons dissous est contrôlée directement par celle de la partie inférieure de l'échantillon. Cette résistance diminue de façon non-linéaire quand le niveau de dissolution augmente, puis tend vers la résistance du sable non-traité. Pour une dissolution d'environ 12% de la quantité totale de calcite, la résistance est typiquement réduite de 55%. À l'échelle du grain, le processus de dissolution réduit la taille des cristaux de calcite et crée des dommages aléatoires sur leur surface. Les observations MEB ont montré que la taille des cristaux de calcite peut ainsi passer de $10\mu m$ dans l'échantillon intact à $4\mu m$ dans les échantillons dissous.

La solution agressive utilisée dans cette étude ne reflète pas les conditions réelles extrêmes qu'on peut rencontrer. Cette solution est a priori plus agressive que les eaux acides qu'on peut rencontrer dans la nature. Cette solution a été choisie pour accélérer la dégradation mécanique et microstructurale de la calcite à l'échelle du laboratoire. Une étude géochimique est nécessaire afin de définir le temps réel équivalent pour chaque niveau de dissolution avec cette solution artificielle.

Des observations tomographiques, réalisées lors de dissolution chimique de la calcite, peuvent constituer la base expérimentale de mesures quantitatives de la microstructure (Dadda, 2017c). Ces observations permettraient ensuite d'estimer des propriétés mécaniques homogènes comme la cohésion et les modules élastiques à l'aide de modèles analytiques de la littérature (basés sur des approches micromécaniques) ou par des calculs numériques avancés (on peut mentionner à ce titre la méthode par éléments

discrets ou DEM). Elles permettraient une analyse plus fine des résultats d'essais triaxiaux faite ici sans tenir compte du caractère hétérogène de la dissolution.

5. Remerciements

Cette recherche fait partie du projet BOREAL financé dans le cadre du programme FUI 16 et bénéficie du soutien financier de BPI, de la Métropole de Lyon et du CD73. Les auteurs reconnaissent le soutien technique fourni par Axelera, Indura et tous les partenaires du projet BOREAL pour cette recherche. Ils remercient en particulier la société CNR pour le financement de la thèse du premier auteur, et le laboratoire IGE de Grenoble pour la préparation de la solution agressive. Le laboratoire 3SR fait partie du LabEx Tec 21 (Convention Investissements d'Avenir-Grant ANR11 269 LABX0030).

6. Références bibliographiques

- Al Qabany, A., Soga, K., and Santamarina, C. (2011a). Factors affecting efficiency of microbially induced calcite precipitation. *Journal of Geotechnical and Geoenvironmental Engineering*, 138(8) : 992–1001.
- Cheng, L., Cord-Ruwisch, R., and Shahin, M. A. (2013). Cementation of sand soil by microbially induced calcite precipitation at various degrees of saturation. *Canadian Geotechnical Journal*, 50(1) :81–90.
- Coto, B., Martos, C., Peña, J. L., Rodríguez, R., and Pastor, G. (2012). Effects in the solubility of caco 3 : experimental study and model description. *Fluid Phase Equilibria*, 324 :1–7.
- Dadda, A., Emeriault, F., and Geindreau, C. (2017a). Relation between microstructural properties and strength parameters of biocemented sands. 6th International Young Geotechnical Engineers Conference (iYGEC).
- Dadda, A., Geindreau, C., Emeriault, F., du Roscoat, S. R., Garandet, A., Sapin, L., and Filet, A. E. (2017b). Characterization of microstructural and physical properties changes in biocemented sand using 3d x-ray microtomography. *Acta Geotechnica*, 12(5) :955–970.
- Dadda, A. (2017). Étude mécanique et microstructurale des sols bio-cimentés : application aux ouvrages hydrauliques en terre. PhD thesis, Université Grenoble Alpes.
- Dura, H. (2013). Durability of biogROUT. Technical report, Delft University of Technology, Department of Geoengineering.
- Feng, K. and Montoya, B. (2015). Influence of confinement and cementation level on the behavior of microbial-induced calcite precipitated sands under monotonic drained loading. *Journal of Geotechnical and Geoenvironmental Engineering*, 142(1) :04015057.
- Filet, A. E., Gadret, J.-P., Loygue, M., and Borel, S. (2012). Biocalcis and its applications for the consolidation of sands. In *Grouting and deep mixing 2012*, pages 1767–1780.
- Jiang, N.-J., Soga, K., and Kuo, M. (2016). Microbially induced carbonate precipitation for seepage-induced internal erosion control in sand–clay mixtures. *Journal of Geotechnical and Geoenvironmental Engineering*, 143(3) :04016100.
- Morse, J. W., & Arvidson, R. S. (2002). The dissolution kinetics of major sedimentary carbonate minerals. *Earth-Science Reviews*, 58(1), 51-84.