

Soutenance de Thèse



LABORATOIRE de MÉCANIQUE et GÉNIE CIVIL

Anthony SALIOU



Lundi 1er Juillet à 14:00

 Amphithéâtre Jean Jacques Moreau
 860, rue de Saint Priest, Bat. 2
 34090 Montpellier

« **Multiscale Modeling of Geopolymers: From Liquid to Solid State** »

Le jury est composé de :

Jérôme DELHOMMELLE, Professeur Associé, UMass Lowell
Virginie MARRY, Professeure, Sorbonne Université
Jean-François DUFRECHE, Professeur, Université de Montpellier
Daniel FERRY, Chargé de Recherche, CNRS, CINaM
Agathe ROBISSON, Professeure, Vienna University of Technology
Jean-Marc DELAYE, Directeur de Recherche, CEA Marcoule
Katerina IOANNIDOU, Chargée de Recherche, CNRS, LMGC
Roland PELLENQ, Directeur de Recherche, CNRS, IEM
Arnaud POULESQUEN, Directeur de Recherche, CEA Marcoule
Romain DUPUIS, Chargé de Recherche, CNRS, LMGC

Rapporteur
 Rapportrice
 Examineur
 Examineur
 Examinatrice
 Examineur
 Directrice de thèse
 Directeur de thèse
 Invité
 Invité

Résumé

Modélisation multi-échelle de géopolymères : du liquide au solide

Alternative aux ciments, les matériaux géopolymères sont prometteurs dans le domaine du génie civil et de l'ingénierie nucléaire. Formés à partir d'aluminosilicates, ils présentent des propriétés mécaniques intéressantes pour le stockage de déchets radioactifs ou encore le développement de mousses isolantes. Le processus de géopolymérisation commence avec la dissolution d'un solide d'aluminosilicates par une solution alcaline à haut pH. Des oligomères de quelques nanomètres se forment alors et s'agrègent en un réseau poreux 3D à méso-échelle (plusieurs centaines de nm). Après 5h, les propriétés mécaniques sont atteintes, similaires à celles des matériaux cimentaires.

Plusieurs questions se posent pour bien comprendre le processus complexe de géopolymérisation : d'où provient la cohésion ? Quel est le comportement de l'eau à l'interface des grains dans le gel ? Comment modéliser cette phase de gel à l'échelle atomique ? Dans cette thèse, des simulations de dynamique moléculaire sont utilisées pour mieux comprendre les mécanismes de formation de ces gels à l'échelle atomique (~1nm) et mésoscopique (~100nm), difficilement observable expérimentalement.

A partir de grains d'aluminosilicate obtenus grâce à un potentiel d'interactions réactif, le potentiel d'interactions entre grains de géopolymères dans l'eau peut-être calculé. Ces calculs ont été effectués avec plusieurs charges de grains, modélisant différents pH. Deux approches

sont proposées et comparées : une méthode perturbative et une méthode de métadynamique. Après analyse et discussion de leurs limites, la méthode de métadynamique est choisie pour une analyse approfondie de la cohésion. A faible charge de grains/niveau de déprotonation, une attraction est constatée, transitant vers une répulsion de Poiss-Boltzmann à plus hautes charges. Ainsi, la déprotonation apparaît comme un facteur déterminant de la formation du gel.

Un modèle de « meta-grains » est proposé à partir de l'étude de la géométrie de nos grains et de leur polarizabilité ionique. De ce point de vue, les interactions peuvent être décomposés en termes plus fondamentaux à l'échelle du grains, avec des interactions de coulomb, dipole-dipole et de dispersion. Les interactions dipole-dipoles se trouvent être à l'origine du régime soit attractif soit répulsif entre les grains. A très courte distance, l'attraction est de plus renforcée par la formation de liaisons hydrogènes à l'interface entre les grains, faisant office de liaison de transition avec la formation de liaison Si-O-Si ou Si-O-Al entre les deux entités. Ces résultats sont discutés en comparaisons avec les expériences et les études menés sur la cohésion des argiles et ciments (CSH).

Finalement, des modèles méso-échelle sont proposés pour la croissance de gels de géopolymères, à partir de ces potentiels d'interactions obtenus à conditions ambiantes. Les distributions de pores et intensités de dispersions pour les structures obtenues à partir de simulations d'agrégation de grains par Monte Carlo sont étudiées et comparés aux données expérimentales d'intrusion de mercure/nitrogen et de dispersion à petits angles.