



Influence des caractéristiques intrinsèques d'un mortier sur son encrassement biologique

Thu Hien Tran

► To cite this version:

Thu Hien Tran. Influence des caractéristiques intrinsèques d'un mortier sur son encrassement biologique. Autre. Ecole Nationale Supérieure des Mines de Saint-Etienne, 2011. Français. NNT : 2011EMSE0626 . tel-00718250

HAL Id: tel-00718250

<https://theses.hal.science/tel-00718250>

Submitted on 16 Jul 2012

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.



NNT : 2011 EMSE 0626

THÈSE

Présentée par

Thu Hien TRAN

Pour obtenir le grade de

Docteur de l'École Nationale Supérieure des Mines de Saint-Étienne

Spécialité : Génie des Procédés

INFLUENCE DES CARACTÉRISTIQUES INTRINSEQUES D'UN MORTIER SUR SON ENCRASSEMENT BIOLOGIQUE

Soutenue à Saint Etienne, le 20 octobre 2011

Membres du jury

Président :

Denis DAMIDOT

Professeur, Ecole des Mines de Douai

Rapporteurs :

Françoise FEUGEAS

Maître de Conférence, INSA de Strasbourg

Gilles ESCADEILLAS

Professeur, Université Paul Sabatier

Examinateur :

Olivier DEVES

Ingénieur de Recherche, CSTB Champs-sur-Marne

Directeurs de thèse :

Philippe GROSSEAU

Directeur de Recherche, Ecole des Mines de Saint Etienne

Christine LORS

Maître assistant, Ecole des Mines de Douai

Alexandre GOVIN

Chargé de Recherche, Ecole des Mines de Saint Etienne

René GUYONNET

Directeur de Recherche, Ecole des Mines de Saint Etienne

Spécialités doctorales :

SCIENCES ET GENIE DES MATERIAUX
 MECANIQUE ET INGENIERIE
 GENIE DES PROCEDES
 SCIENCES DE LA TERRE
 SCIENCES ET GENIE DE L'ENVIRONNEMENT
 MATHEMATIQUES APPLIQUEES
 INFORMATIQUE
 IMAGE, VISION, SIGNAL
 GENIE INDUSTRIEL
 MICROELECTRONIQUE

Responsables :

J. DRIVER Directeur de recherche – Centre SMS
 A. VAUTRIN Professeur – Centre SMS
 F. GRUY Professeur – Centre SPIN
 B. GUY Maître de recherche – Centre SPIN
 J. BOURGOIS Professeur – Fayol
 E. TOUBOUL Ingénieur – Fayol
 O. BOISSIER Professeur – Fayol
 JC. PINOLI Professeur – Centre CIS
 P. BURLAT Professeur – Fayol
 Ph. COLLOT Professeur – Centre CMP

Enseignants-chercheurs et chercheurs autorisés à diriger des thèses de doctorat (titulaires d'un doctorat d'État ou d'une HDR)

AVRIL	Stéphane	MA	Mécanique & Ingénierie	CIS
BATTON-HUBERT	Mireille	MA	Sciences & Génie de l'Environnement	Fayol
BENABEN	Patrick	PR 1	Sciences & Génie des Matériaux	CMP
BERNACHE-ASSOLLANT	Didier	PR 0	Génie des Procédés	CIS
BIGOT	Jean-Pierre	MR	Génie des Procédés	SPIN
BILAL	Essaïd	DR	Sciences de la Terre	SPIN
BOISSIER	Olivier	PR 1	Informatique	Fayol
BORBELY	Andras	MR	Sciences et Génie des Matériaux	SMS
BOUCHER	Xavier	MA	Génie Industriel	Fayol
BOUDAREL	Marie-Reine	PR 2	Génie Industriel	DF
BOURGOIS	Jacques	PR 0	Sciences & Génie de l'Environnement	Fayol
BRODHAG	Christian	DR	Sciences & Génie de l'Environnement	Fayol
BURLAT	Patrick	PR 2	Génie industriel	Fayol
COLLOT	Philippe	PR 1	Microélectronique	CMP
COURNIL	Michel	PR 0	Génie des Procédés	SPIN
DAUZERE-PERES	Stéphane	PR 1	Génie industriel	CMP
DARRIEULAT	Michel	IGM	Sciences & Génie des Matériaux	SMS
DECHOMETS	Roland	PR 1	Sciences & Génie de l'Environnement	Fayol
DESRAYAUD	Christophe	MA	Mécanique & Ingénierie	SMS
DELAFOSSÉ	David	PR 1	Sciences & Génie des Matériaux	SMS
DOLGUI	Alexandre	PR 1	Génie Industriel	Fayol
DRAPIER	Sylvain	PR 2	Mécanique & Ingénierie	SMS
DRIVER	Julian	DR 0	Sciences & Génie des Matériaux	SMS
FEILLET	Dominique	PR 2	Génie Industriel	CMP
FOREST	Bernard	PR 1	Sciences & Génie des Matériaux	CIS
FORMISYN	Pascal	PR 1	Sciences & Génie de l'Environnement	Fayol
FRACZKIEWICZ	Anna	DR	Sciences & Génie des Matériaux	SMS
GARCIA	Daniel	MR	Sciences de la terre	SPIN
GIRARDOT	Jean-Jacques	MR	Informatique	Fayol
GOEURIOT	Dominique	MR	Sciences & Génie des Matériaux	SMS
GRAILLOT	Didier	DR	Sciences & Génie de l'Environnement	Fayol
GROSSEAU	Philippe	MR	Génie des Procédés	SPIN
GRUY	Frédéric	MR	Génie des Procédés	SPIN
GUY	Bernard	MR	Sciences de la Terre	SPIN
GUYONNET	René	DR	Génie des Procédés	SPIN
HERRI	Jean-Michel	PR 2	Génie des Procédés	SPIN
INAL	Karim	PR 2	Microélectronique	CMP
KLÖCKER	Helmut	DR	Sciences & Génie des Matériaux	SMS
LAFOREST	Valérie	CR	Sciences & Génie de l'Environnement	Fayol
LERICHE	Rodolphe	CR CNRS	Mécanique et Ingénierie	SMS
LI	Jean-Michel	EC (CCI MP)	Microélectronique	CMP
MALLIARAS	George Grégory	PR 1	Microélectronique	CMP
MOLIMARD	Jérôme	MA	Mécanique et Ingénierie	SMS
MONTHEILLET	Frank	DR 1 CNRS	Sciences & Génie des Matériaux	SMS
PERIER-CAMBY	Laurent	PR 2	Génie des Procédés	SPIN
PIJOLAT	Christophe	PR 1	Génie des Procédés	SPIN
PIJOLAT	Michèle	PR 1	Génie des Procédés	SPIN
PINOLI	Jean-Charles	PR 0	Image, Vision, Signal	CIS
STOLARZ	Jacques	CR	Sciences & Génie des Matériaux	SMS
SZAFNICKI	Konrad	MR	Sciences & Génie de l'Environnement	Fayol
THOMAS	Gérard	PR 0	Génie des Procédés	SPIN
TRIA	Assia		Microélectronique	CMP
VALDIVIESO	François	MA	Sciences & Génie des Matériaux	SMS
VIRICELLE	Jean-Paul	MR	Génie des procédés	SPIN
WOLSKI	Krzysztof	DR	Sciences & Génie des Matériaux	SMS
XIE	Xiaolan	PR 1	Génie industriel	CIS

Glossaire :

PR 0	Professeur classe exceptionnelle
PR 1	Professeur 1 ^{ère} classe
PR 2	Professeur 2 ^{ème} classe
MA(MDC)	Maître assistant
DR	Directeur de recherche
Ing.	Ingénieur
MR(DR2)	Maître de recherche
CR	Chargé de recherche
EC	Enseignant-chercheur
IGM	Ingénieur général des mines

Dernière mise à jour le : 23 août 2011

Centres :

SMS	Sciences des Matériaux et des Structures
SPIN	Sciences des Processus Industriels et Naturels
Fayol	Institut Henri Fayol
CMP	Centre de Microélectronique de Provence
CIS	Centre Ingénierie et Santé

REMERCIEMENTS

J'adresse tout d'abord mes remerciements à Messieurs Philippe GROSSEAU et Denis DAMIDOT pour leur accueil au sein de l'équipe Poudres et Matériaux Multi-Composants (P2MC) du Centre Sciences des Processus Industriels et Naturels (SPIN) de l'Ecole des Mines de Saint Etienne (EMSE) et du département Génie Civil et Environnemental (GCE) de l'Ecole des Mines de Douai (EMD).

Je présente mes sincères remerciements à Monsieur Bertrand RUOT, ingénieur au Centre Scientifique et Technique de Bâtiment (CSTB) pour avoir initié le projet sur lequel j'ai eu l'occasion d'effectuer cette thèse, pour sa disponibilité ainsi que ses conseils avisés.

Je remercie Mme Françoise FEUGEAS, maître de conférences de l'INSA de Strasbourg et Monsieur Gilles ESCADEILLAS, professeur de l'Université Paul Sabatier à Toulouse, d'avoir accepté de rapporter et de juger ce travail.

J'exprime également mes remerciements à Messieurs Denis DAMIDOT et Olivier DEVES pour l'intérêt qu'ils ont porté à mon travail et leur présence dans mon jury de thèse.

Mes remerciements vont également à mes directeurs de thèse Messieurs Philippe GROSSEAU et René GUYONNET pour leur disponibilité et leur conseil scientifique.

Je voudrais également exprimer ma plus profonde gratitude à mes encadrants, Monsieur Alexandre GOVIN et Madame Christine LORS, pour leur soutien tout au long de cette thèse. Ils ont su me transmettre leurs expériences et leurs connaissances qui m'ont permis d'aller jusqu'au bout de ce projet.

Je remercie aussi Monsieur Johan DEBAYLE pour sa gentillesse et sa précieuse aide à utiliser le logiciel Aphélion et à traiter les images.

Je tiens à remercier chaleureusement l'équipe technique du centre SPIN et du département GCE, les personnels des ateliers de l'EMSE et de l'EMD pour leur aide et leurs conseils sur les différentes techniques de caractérisation, les appareils et les montages en tout genre que j'ai utilisé tout au long de ce projet. J'adresse donc mes remerciements à Jean Pierre POYET, Marc ROUVIERE, Olivier VALFORT, Frédéric GALLICE (SPIN), à André GAULT (atelier de l'EMSE), à Christophe CAPPELAERE, Guillaume POTIER, Dominique DUBOIS (GCE) et à Richard METNEZ (atelier de l'EMD). Je remercie plus particulièrement Marie-Claude BARTHOLIN et Henri BESSET pour leur disponibilité et leur gentillesse.

Je remercie également les équipes techniques du CSTB de Paris et de Grenoble pour leur aide dans la réalisation d'essais.

Je souhaite également dire un grand merci à nos secrétaires Carole (Douai), Jacqueline (Douai), Carole (Saint Etienne), et bien sûre Françoise et Stéphanie pour leur gentillesse, leur bonne humeur, et leur disponibilité.

Je voudrais également remercier tous les thésards, les docteurs et les stagiaires (Virginie, Stéphanie, Jean Christophe, Laetitia, Mélanie, Marthe, Timothée, Sébastien, Akira, Thomas, Mohamad, Idriss, ...) avec lesquels j'ai pu travailler et partager des bons moments.

Je remercie profondément tous mes amis vietnamiens qui sont prêts à m'écouter et partagent avec moi de très nombreux bons souvenirs (Phuong, Hung, Loc, Thao, Duyen, Quynh, Cong, Thanh, Hung, Trinh, Ha, Dung, Trung ...).

Pour finir, un merci infini à Quang qui a toujours été à mes côtés, même dans les périodes les plus difficiles ainsi qu'à ma famille qui me soutient toujours inconditionnellement.

Table des matières

Table des matières	<i>i</i>
Liste des figures	<i>vi</i>
Liste des tableaux	<i>xvii</i>
INTRODUCTION GENERALE	1
ETUDE BIBLIOGRAPHIQUE	
CHAPITRE 1 SALISSURES DE FAÇADE	4
1.1 MATERIAUX DE FAÇADE	4
1.2 LES SALISSURES DE FAÇADE	5
1.2.1 <i>Types de salissures</i>	5
1.2.2 <i>Méthodologie de diagnostic et de maintenance</i>	9
1.3 MICRO-ORGANISMES COLONISANT LES FAÇADES	11
1.3.1 <i>Bactéries</i>	12
1.3.2 <i>Algues vertes</i>	13
1.3.3 <i>Cyanobactéries</i>	15
1.3.4 <i>Champignons</i>	15
1.3.5 <i>Lichens</i>	16
1.3.6 <i>Mousses</i>	18
1.3.7 <i>Interaction entre les micro-organismes</i>	18
1.4 FACTEURS INFLUENÇANT LES SALISSURES D'ORIGINE BIOLOGIQUE	19
1.4.1 <i>Facteurs environnementaux</i>	20
1.4.2 <i>La conception du bâtiment</i>	22
1.5 INTERACTION ORGANISMES-MATERIAUX	27
1.6 METHODES D'EVALUATION DES SALISSURES BIOLOGIQUES SUR LES FAÇADES	29
1.6.1 <i>Méthodes non-destructives</i>	29
1.6.2 <i>Méthodes destructives</i>	30

1.7 ETUDES ANTERIEURES SUR LE DEVELOPPEMENT D'ALGUES SUR DES MATERIAUX DE FAÇADE	32
1.7.1 <i>Essais en laboratoire</i>	32
1.7.2 <i>Essais in situ</i>	35
CHAPITRE 2 LES ALGUES	38
2.1 PPRINCIPALES CARACTERISTIQUES DES ALGUES	38
2.2 CLASSIFICATION DES ALGUES	38
2.3 L'INFLUENCE DE L'ENVIRONNEMENT SUR LA CROISSANCE BIOLOGIQUE.....	39
2.3.1 <i>Les solutés et l'activité de l'eau</i>	39
2.3.2 <i>La lumière</i>	40
2.3.3 <i>Le pH</i>	41
2.3.4 <i>La température</i>	41
2.4 ALGUE DE L'ETUDE : <i>KLEBSORMIDIUM FLACCIDUM</i>	42
2.4.1 <i>Présentation</i>	42
2.4.2 <i>Identification</i>	42
2.4.3 <i>Morphologie</i>	43
2.4.4 <i>Reproduction</i>	44
2.4.5 <i>Changement de morphologie cellulaire suivant l'âge de culture</i>	47
2.4.6 <i>Variabilité de morphologie cellulaire suivant le pH du milieu de culture</i>	47
CHAPITRE 3 LE MORTIER	49
3.1 CIMENT	50
3.1.1 <i>Ciment Portland</i>	50
3.1.2 <i>Hydratation du ciment</i>	52
3.2 FILLER CALCAIRE	56
3.3 ETHERS DE CELLULOSE.....	56
3.4 CARBONATATION DES MATERIAUX CIMENTAIRES	58
3.4.1 <i>Dioxyde de carbone en solution aqueuse</i>	58
3.4.2 <i>Carbonatation de la portlandite Ca(OH)₂</i>	62
3.4.3 <i>Carbonatation des silicates de calcium hydratés C-S-H</i>	62
3.4.4 <i>Carbonatation des autres constituants des matériaux cimentaires</i>	63
3.4.5 <i>Aspects morphologiques, cristallographiques et chimiques des carbonates de calcium formés</i>	63

3.4.6 <i>Effet de la carbonatation sur la microstructure</i>	64
3.4.7 <i>Paramètres influençant la carbonatation.....</i>	65
REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES 1	71

DEMARCHE EXPERIMENTALE

CHAPITRE 4 MATERIELS ET METHODES.....	81
--	-----------

4.1 TECHNIQUES MICROBIOLOGIQUES	81
4.1.1 <i>Conditions de culture des algues.....</i>	81
4.1.2 <i>Suivi de la croissance des algues.....</i>	83
4.2 LE MORTIER.....	87
4.2.1 <i>Composition du mortier.....</i>	87
4.2.2 <i>Confection et conservation des éprouvettes</i>	88
4.2.3 <i>Modifications des caractéristiques physico-chimiques du mortier</i>	89
4.2.4 <i>Caractérisation de la porosité.....</i>	91
4.2.5 <i>Caractérisation de la rugosité.....</i>	94
4.2.6 <i>Caractérisation de la carbonatation</i>	94
4.2.7 <i>Comportement du mortier vis-à-vis de l'eau</i>	94
4.2.8 <i>Quantification de la portlandite et du carbonate de calcium des éprouvettes</i>	98
4.2.9 <i>Diffractométrie des rayons X (DRX)</i>	99
4.3 ESSAI D'ENCRASSEMENT BIOLOGIQUE	99
4.3.1 <i>Dispositif expérimental de laboratoire.....</i>	100
4.3.2 <i>Dispositif expérimental in situ.....</i>	102
4.3.3 <i>Critère d'évaluation de l'encrassement biologique</i>	103

CHAPITRE 5 CARACTERISATIONS DES MATERIAUX DE L'ETUDE	107
---	------------

5.1 SUIVI DE LA CROISSANCE DES CULTURES D'ALGUES	107
5.1.1 <i>Détermination de la concentration des algues par mesure de la densité optique à 760 nm</i>	107
5.1.2 <i>Détermination de la concentration des algues par mesure de la masse sèche ...</i>	109
5.1.3 <i>Comptage des cellules par la cellule de Malassez</i>	110
5.1.4 <i>Suivi de la composition du milieu de culture.....</i>	112

5.1.5 <i>Suivi du pH de la suspension d'algues</i>	114
5.1.6 <i>Intensité de fluorescence.....</i>	114
5.1.7 <i>Relation entre la densité optique et la masse sèche</i>	115
5.2 CARACTERISATION DES MORTIERS	117
5.2.1 <i>Caractérisation des matières premières.....</i>	117
5.2.2 <i>Mesure de la porosité</i>	118
5.2.3 <i>Mesure de la rugosité</i>	124
5.2.4 <i>Mesure du pH de surface.....</i>	127
5.2.5 <i>Comportement des mortiers vis-à-vis de l'eau</i>	128
5.2.6 <i>Composition des mortiers.....</i>	136
5.2.7 <i>Diffraktion de rayon X (DRX)</i>	140
REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES 2	143

INFLUENCE DES CARACTERISTIQUES INTRINSEQUES DU MORTIER SUR SON ENCRASSEMENT BIOLOGIQUE

CHAPITRE 6 RESULTATS EXPERIMENTAUX	147
6.1 ESSAIS ACCELERES EN LABORATOIRE	147
6.1.1 <i>Remarques d'ordre général.....</i>	148
6.1.2 <i>Influence de la porosité</i>	151
6.1.3 <i>Influence de la rugosité</i>	167
6.1.4 <i>Influence de la carbonatation.....</i>	177
6.2 ESSAI <i>IN SITU</i>	188
6.2.1 <i>Influence de la porosité</i>	189
6.2.2 <i>Influence de la rugosité</i>	194
6.2.3 <i>Influence de la carbonatation.....</i>	199
6.2.4 <i>Différence entre l'essai accéléré en laboratoire et l'essai in situ.....</i>	202

CHAPITRE 7 MODELISATION	204
7.1 MODELE DE KOLMOGOROV, JOHNSON, MEHL ET AVRAMI (KJMA).....	204
7.2 APPLICATION DE LA LOI D'AVRAMI.....	205
7.2.1 <i>Accrochage</i>	206
7.2.2 <i>Croissance des germes</i>	214

7.2.3 <i>Evolution de la surface colonisée dans les premiers instants</i>	217
7.2.4 <i>Evolution de la surface colonisée dans les stades ultérieurs</i>	219
7.3 SIMULATION NUMERIQUE DE LA COLONISATION PAR LES ALGUES DES MORTIERS ETUDES DANS LES ESSAIS ACCELERES	224
7.3.1 <i>Matériaux carbonatés.....</i>	224
7.3.2 <i>Matériaux non carbonatés.....</i>	239
REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES 3	248
 CONCLUSION GENERALE	 251
ANNEXES	255

Liste des figures

CHAPITRE 1

Figure 1.1 Graffitis sur une façade (<i>Isère janvier 2009</i>)	6
Figure 1.2 Salissures dues aux pigeons	6
Figure 1.3 Efflorescences sur un mur antibruit en bétons de bois.....	7
Figure 1.4 Salissures résultant de la pollution atmosphérique	8
Figure 1.5 Salissures d'origine biologique	9
Figure 1.6 Principe du nettoyage laser (Wéry 2002)	11
Figure 1.7 Tuyau d'égout détérioré suite à l'activité bactérienne	12
Figure 1.8 Mur verdi suite à sa colonisation par des algues (<i>Seine-et-Marne juin 2003</i>)	14
Figure 1.9 Mur noirci suite à sa colonisation par des champignons (<i>Loire mars 2011</i>)	16
Figure 1.10 Terrasse en bord de mer recouverte par des lichens (<i>Ille-et-Vilaine septembre 2010</i>).....	17
Figure 1.11 Différentes sources d'humidité des façades	20
Figure 1.12 Dispositif expérimental <i>in situ</i> mise au point par Young (1997).....	36

CHAPITRE 2

Figure 2.1 Filament et fragment de <i>K. flaccidum</i> (Barberousse 2006)	43
Figure 2.2 Cellule <i>K. flaccidum</i> ($\times 8300$) v : vacuole ; n : noyau ; py : pyrénoïde (Pickett-Heaps 1975)	43

Figure 2.3 Production de disques mucilagineux servant à l'attachement des filaments (Škaloud 2006) 44

Figure 2.4 Emergence de deux zoospores ($\times 1300$) (Pickett-Heaps 1975) 46

Figure 2.5 Zoospore biflagellé (Škaloud 2006) 46

CHAPITRE 3

Figure 3.1 Répartition des activités en 2009 (SNMI 2010) 49

Figure 3.2 Structure de la cellulose 57

Figure 3.3 Structure d'un éther de cellulose avec R= H, OCH₃, POOH ou EOOH 57

Figure 3.4 Transfert de vapeur d'eau et d'eau liquide dans le réseau poreux d'une pâte pure avec (a) et sans (b) éther de cellulose 58

Figure 3.5 Fraction molaire des espèces H₂CO₃, HCO³⁻, CO₃⁻² en fonction du pH (à 20°C et à l'équilibre) (Thiery 2005) 61

Figure 3.6 Influence du rapport E/C sur l'épaisseur carbonatée de pâtes de ciment (Houst cité par Baroghel - Bouy 1994) 66

Figure 3.7 Evolution de la profondeur de carbonatation en fonction du temps pour des mortiers contenant différents pourcentages d'éther de cellulose (Omikrine Metalssi 2006) 67

Figure 3.8 Profondeur de carbonatation en fonction du temps pour différentes durées de cure (Omikrine Metalssi 2006) 68

Figure 3.9 Echantillons de béton pulvérisés de phénolphthaléine (Sanjuán et Del Olmo 2001). Moitié inférieure : béton recouvert par du mortier ; Moitié supérieure : béton non recouvert 69

CHAPITRE 4

Figure 4.1 Etapes de la mise en culture et maintien cellulaire des souches d'algue 82

Figure 4.2 Culture de la souche *Klebsormidium flaccidum* 749B sous bullage d'air et agitation magnétique 83

Figure 4.3 Spectre d'excitation (a) ($\lambda_{émission} = 685$ nm) et d'émission (b) ($\lambda_{excitation} = 467$ nm) d'une suspension d'algue <i>Klebsormidium flaccidum</i>	86
Figure 4.4 Courbe de distribution granulométrique des refus cumulés du sable Sibelco.....	88
Figure 4.5 Montage expérimental de l'essai de carbonatation accélérée	91
Figure 4.6 Dispositif de mesure de la perméabilité à l'eau sous pression (CSTB 1982).....	95
Figure 4.7 Dispositif de mesure de la perméabilité à la vapeur d'eau dit de "la coupelle sèche" (CSTB 1982)	96
Figure 4.8 Dispositif d'étude de la colonisation accélérée par les algues des mortiers (a): vue de côté, (b) : vue de face, (c) : dispositif expérimental	101
Figure 4.9 Dispositif expérimental in situ	102
Figure 4.10 Courbes spectrales de réflectance d'un mortier (E/C = 1, carbonaté, finis à l'éponge) après différentes échéances d'enrassement biologique	105
Figure 4.11 Courbe d'absorption de l'extrait de pigments de l'algue étudiée.....	105

CHAPITRE 5

Figure 5.1 Densité optique de la suspension mère en fonction du temps, (50 mL d'une culture d'algues conservée à 4°C, dilués dans 400 mL de milieu Bold de base)	108
Figure 5.2 Densité optique des cultures 1, 2 et 5 en fonction du temps, (50 mL de la suspension mère âgée de 24 jours, dilués dans 400 mL de milieu Bold de base)	109
Figure 5.3 Masse sèche des cultures 1 et 2 en fonction du temps (50 mL de la suspension mère âgée de 24 jours, dilués dans 400 mL de milieu Bold de base).....	110
Figure 5.4 Concentration cellulaire des cultures 1 et 2 en fonction du temps (50 mL de la suspension mère âgée de 24 jours, dilués dans 400 mL de milieu Bold de base)	110
Figure 5.5 Concentration en cations au sein de la culture d'algues en fonction du temps (moyenne des mesures effectuées sur les cultures 1 et 2)	112
Figure 5.6 Concentration en anions au sein de la culture d'algues en fonction du temps (moyenne des mesures effectuées sur les cultures 1 et 2)	113
Figure 5.7 pH des différentes cultures (1, 2 et 5) au cours du temps	114

Figure 5.8 Intensité de la fluorescence des cultures 1 et 2 au cours du temps	115
Figure 5.9 Relation entre la masse sèche et la densité optique mesurée à 760 nm de la suspension d'algues	116
Figure 5.10 Distribution en taille des pores des mortiers non carbonatés (a) et carbonatés (b)	121
Figure 5.11 Comparaison des mortiers adjuvantés non carbonatés et carbonatés dans la gamme des pores capillaires	123
Figure 5.12 Eprouvettes de mortier non adjuvanté et adjuvanté	124
Figure 5.13 Aspect de surface des éprouvettes de différentes rugosités (mortier adjuvanté de rapport E/C = 1)	125
Figure 5.14 Aspect des éprouvettes de mortier de rapport E/C = 1 après pulvérisation d'une solution de phénolphtaléine, avant et après 36 jours de carbonatation	128
Figure 5.15 Coefficient d'absorption d'eau par capillarité des mortiers de rugosité 1	128
Figure 5.16 Influence de la rugosité sur le coefficient d'absorption d'eau par capillarité des mortiers non carbonatés (a) et carbonatés (b)	129
Figure 5.17 Quantité d'eau absorbée par l'échantillon au cours de l'essai de perméabilité à l'eau des mortiers non carbonatés (a) et carbonatés (b)	130
Figure 5.18 Perméabilité à l'eau liquide des mortiers	130
Figure 5.19 Cinétique d'absorption d'eau du système « coupelle+matériau » pour les mortiers non carbonatés (a) et carbonatés (b)	131
Figure 5.20 Perméabilité à la vapeur d'eau des mortiers	132
Figure 5.21 Isothermes d'adsorption de vapeur d'eau des mortiers non carbonatés (a) et carbonatés (b)	133
Figure 5.22 Isothermes d'adsorption et de désorption de vapeur d'eau des mortiers non carbonatés, de rapport E/C égal à 1 et de rugosité R1	134
Figure 5.23 Isothermes d'adsorption et de désorption de la vapeur d'eau des mortiers carbonatés, de rapport E/C égal à 1 et de rugosité R1	135
Figure 5.24 Isothermes d'adsorption et de désorption de la vapeur d'eau des mortiers non carbonatés (a) et carbonatés (b), de rapport E/C égal à 0,5 et de rugosité R1	135

Figure 5.25 Courbe ATG des mortiers non carbonatés	137
Figure 5.26 Courbes ATG des mortiers carbonatés.....	138
Figure 5.27 Diffractogramme du mortier adjuvanté, E/C égal à 1,2, (a) non carbonaté et (b) carbonaté, (A = Aragonite, C = Calcite, E = Etringite, M = Monocarboaluminate, P= Portlandite, Q = Quartz, V =Vatérite)	141

CHAPITRE 6

Figure 6.1 Evolution de la surface colonisée par les algues des mortiers carbonatés, de rapport E/C égal à 1, de rugosités R1 et R3 (essai n°4)	149
Figure 6.2 Division de la surface des échantillons en différentes parties.....	150
Figure 6.3 Evolution, en fonction du temps, des coordonnées $L^*a^*b^*$ dans la direction longitudinale du mortier carbonaté, de rapport E/C égal à 1 et de rugosité R1 (essai n°4)...	151
Figure 6.4 Evolution, en fonction du temps, des coordonnées $L^*a^*b^*$ dans la direction transversale de mortier carbonaté, de rapport E/C égal à 1 et de rugosité R1 (essai n°4).....	151
Figure 6.5 Evolution, en fonction du temps, du taux de surface colonisée par les algues des mortiers non carbonatés, de rapports E/C de 1 et 1,2, de rugosités R1 et R2 (essai n°1)	152
Figure 6.6 Evolution, en fonction du temps, du taux de surface colonisée par les algues des mortiers non carbonatés, de rapports E/C de 1 et 1,2, de rugosité R3 (essai n°1).....	152
Figure 6.7 Evolution, en fonction du temps, du taux de surface colonisée par les algues des mortiers non carbonatés, de rapports E/C de 0,5 et 1(essai n°2).....	153
Figure 6.8 Cycle journalier de température et d'humidité relative dans le banc d'essai.....	155
Figure 6.9 Quantité d'eau absorbée par les mortiers non carbonatés, de rapports E/C de 0,5 et 1 au cours d'un cycle (essai n°2).....	156
Figure 6.10 Evolution, en fonction du temps, de l'intensité d'encrassement des mortiers non carbonatés, de rapports E/C de 0,5 et 1, de rugosités R1, R2 et R3 (essai n°2)	157
Figure 6.11 Evolution, en fonction du temps, de la clarté ΔL^* de la surface des mortiers non carbonatés, de rapports E/C de 0,5 et 1, de rugosités R1, R2 et R3 (essai n°2)	158
Figure 6.12 Evolution, en fonction du temps, de la chromaticité Δa^* de la surface des mortiers non carbonatés, de rapports E/C de 0,5 et 1, de rugosités R1, R2 et R3 (essai n°2) 158	

Figure 6.13 Evolution, en fonction du temps, de la chromaticité Δb^* de la surface des mortiers non carbonatés, de rapports E/C de 0,5 et 1, de rugosités R1, R2 et R3 (essai n°2)	159
Figure 6.14 Evolution, en fonction du temps, du taux de surface colonisée par les algues des mortiers carbonatés, de rapports E/C de 1 et 1,2, de rugosités R1, R2 et R3 (essai n°3).....	160
Figure 6.15 Evolution, en fonction du temps, du taux de surface colonisée par les algues des mortiers carbonatés, de rapports E/C de 0,5 et 1, de rugosités R1 et R2 (essai n°4)	160
Figure 6.16 Evolution, en fonction du temps, du taux de surface colonisée par les algues des mortiers carbonatés, de rapports E/C de 0,5 et 1, de rugosité R3 (essai n°4).....	161
Figure 6.17 Quantité d'eau absorbée par mortiers carbonatés, de rapports E/C de 0,5 et 1 au cours d'un cycle (essai n°4).....	162
Figure 6.18 Evolution, en fonction du temps, de l'intensité d'encrassement des mortiers carbonatés, de rapports E/C de 1 et 1,2, de rugosités R1, R2 et R3 (essai n°3)	163
Figure 6.19 Evolution, en fonction du temps, de la clarté ΔL^* de la surface des mortiers carbonatés, de rapports E/C de 1 et 1,2, de rugosités R1, R2, R3 (essai n°3)	163
Figure 6.20 Evolution, en fonction du temps, de la chromaticité Δa^* de la surface des mortiers carbonatés, de rapports E/C de 1 et 1,2, de rugosités R1, R2, R3 (essai n°3).....	164
Figure 6.21 Evolution, en fonction du temps, de la chromaticité Δb^* de la surface des mortiers carbonatés, de rapports E/C de 1 et 1,2, de rugosités R1, R2, R3 (essai n°3).....	164
Figure 6.22 Différents paramètres caractérisant la vitesse de colonisation.....	165
Figure 6.23 Relation entre la porosité et le temps de latence, le temps de demi-colonisation, le temps final et le coefficient C des mortiers non carbonatés (essais n°1 et n°2).....	166
Figure 6.24 Relation entre la porosité et le temps de latence, le temps de demi-colonisation, le temps final et le coefficient C des mortiers carbonatés (essais n°3 et n°4)	166
Figure 6.25 Effet de la rugosité sur le taux d'encrassement biologique pour les mortiers non carbonatés de rapport E/C égal à 1 (essai n°1)	168
Figure 6.26 Effet de la rugosité sur le taux d'encrassement biologique pour les mortiers non carbonatés de rapport E/C égal à 1,2 (essai n°1)	169
Figure 6.27 Effet de la rugosité sur le taux d'encrassement biologique pour les mortiers non carbonatés de rapport E/C égal à 1 (essai n°2)	170
Figure 6.28 Effet de la rugosité sur le taux d'encrassement biologique pour les mortiers non carbonatés de rapport E/C égal à 0,5 (essai n°2)	170

Figure 6.29 Effet de la rugosité sur le taux d'encrassement biologique pour les mortiers carbonatés de rapport E/C égal à 1 (essai n°3)	171
Figure 6.30 Effet de la rugosité sur le taux d'encrassement biologique pour les mortiers carbonatés de rapport E/C égal à 1,2 (essai n°3)	172
Figure 6.31 Effet de la rugosité sur le taux d'encrassement biologique pour les mortiers carbonatés de rapport E/C égal à 0,5 (essai n°4)	172
Figure 6.32 Effet de la rugosité sur le taux d'encrassement biologique pour les mortiers carbonatés de rapport E/C égal à 1 (essai n°4)	173
Figure 6.33 Schéma de la surface des mortiers de rugosité R3 étudiés dans l'essai n°4.....	174
Figure 6.34 Image au microscope optique de la surface des mortiers de rugosité R3 de rapport E/C égal à 0,5 (à gauche) et 1 (à droite)	174
Figure 6.35 Relation entre la valeur Ra et le temps de latence, le temps de demi-colonisation, le temps final, le coefficient de colonisation des mortiers non carbonatés (essai n°1 et n°2) 175	
Figure 6.36 Relation entre la valeur Ra et le temps de latence, le temps de demi colonisation, le temps final, le coefficient C des mortiers carbonatés (essai n°3 et n°4)	176
Figure 6.37 Evolution du taux de surface colonisée par les algues des mortiers de rapport E/C égal à 1, de rugosité R1, non carbonatés (essai n°2) et carbonatés (essai n°4)	179
Figure 6.38 Evolution du taux de surface colonisée par les algues des mortiers de rapport E/C égal à 1, de rugosité R2, non carbonatés (essai n°2) et carbonatés (essai n°4)	179
Figure 6.39 Evolution du taux de surface colonisée par les algues des mortiers de rapport E/C égal à 1, de rugosité R3, non carbonatés (essai n°2) et carbonatés (essai n°4)	179
Figure 6.40 Relation entre le pH de surface et le temps de latence, le temps de demi colonisation, le temps final, le coefficient C des mortiers étudiés dans l'essai n°2 et n°4....	180
Figure 6.41 Facteur d'accélération de la rugosité et de la carbonatation des mortiers étudiés dans l'essai n°2 (non carbonatés) et l'essai n°4 (carbonatés).....	181
Figure 6.42 Evolution du pH de la suspension d'algues	182
Figure 6.43 Evolution du pH du milieu lixivié de trois échantillons de rapports E/C de 0,5 et 1 (le milieu initial est le milieu de culture Bold de base sans algues).....	182
Figure 6.44 Suivi de la composition de la suspension d'algues dans le banc d'essai n°4 (mortiers carbonatés)	183

Figure 6.45 Suivi de la composition du milieu lixivié de trois échantillons de mortier carbonaté de rapport E/C égal à 1 (le milieu initial est le milieu de culture Bold de base sans algues).....	183
Figure 6.46 Suivi de la composition de la suspension d'algues dans le banc d'essai n°2 (mortiers non carbonatés)	184
Figure 6.47 Suivi de la composition du milieu lixivié de trois échantillons de mortier non carbonaté de rapport E/C égal à 1 (le milieu initial est le milieu de culture Bold de base sans algues).....	184
Figure 6.48 Evolution du pH de surface des échantillons de rapports E/C de 0,5 et 1 au cours de l'essai accéléré	185
Figure 6.49 Evolution, en fonction du temps, de l'intensité de fluorescence de la suspension d'algues dans le banc d'essai n°2 (mortiers non carbonatés) et n°4 (mortiers carbonatés) ...	186
Figure 6.50 Evolution dans le temps de l'aspect de la surface des mortiers carbonatés, de rapport E/C égal à 1,2, de rugosité R3 dans l'essai in situ	189
Figure 6.51 Evolution du taux d'encrassement pour les mortiers carbonatés, de rugosité R2 (essai in situ)	190
Figure 6.52 Evolution du taux d'encrassement pour les mortiers carbonatés, de rugosité R3 (essai in situ)	191
Figure 6.53 Distribution en taille des pores des mortiers carbonatés, de rapports E/C de 1 et 1,2, en début et en fin de l'essai in situ	192
Figure 6.54 Evolution de la clarté ΔL^* pour les mortiers carbonatés, de rugosité R3 (essai in situ)	193
Figure 6.55 Evolution de la chromaticité Δa^* pour les mortiers carbonatés, de rugosité R3 (essai in situ)	193
Figure 6.56 Evolution de la chromaticité Δb^* pour les mortiers carbonatés, de rugosité R3 (essai in situ)	193
Figure 6.57 Effet de la rugosité sur le taux d'encrassement pour les mortiers non carbonatés de rapport E/C égal à 1 (essai in situ)	195
Figure 6.58 Effet de la rugosité sur le taux d'encrassement pour les mortiers carbonatés de rapport E/C égal à 1 (essai in situ).	196
Figure 6.59 Effet de la rugosité sur le taux d'encrassement pour les mortiers carbonatés de rapport E/C égal à 1,2 (essai in situ).....	196

Figure 6.60 Effet de la rugosité sur la clarté ΔL^* pour les mortiers non carbonatés de rapport E/C égal à 1 (essai in situ)	198
Figure 6.61 Effet de la rugosité sur la chromaticité Δa^* pour les mortiers non carbonatés de rapport E/C égal à 1 (essai in situ)	198
Figure 6.62 Effet de la rugosité sur la chromaticité Δb^* pour les mortiers non carbonatés de rapport E/C égal à 1 (essai in situ)	198
Figure 6.63 Effet de la carbonatation sur le taux d'encrassement pour les mortiers de rapport E/C égal à 1, de rugosité R3 (essai in situ)	199
Figure 6.64 Effet de la carbonatation sur la clarté ΔL^* pour les mortiers de rapport E/C égal à 1, de rugosité R3 (essai in situ)	201
Figure 6.65 Effet de la carbonatation sur la chromaticité Δa^* pour les mortiers de rapport E/C égal à 1, de rugosité R3 (essai in situ)	201
Figure 6.66 Effet de la carbonatation sur la chromaticité Δb^* pour les mortiers de rapport E/C égal à 1, de rugosité R3 (essai in situ)	201

CHAPITRE 7

Figure 7.1 Croissance des germes dans les stades initiaux.....	218
Figure 7.2 Croissance des germes dans les stades ultérieurs.....	219
Figure 7.3 Germes réels et germes fantômes.....	220
Figure 7.4 Surface colonisée réelle et fictive.....	222
Figure 7.5 Evolution temporelle de la vitesse spécifique de « germination » des mortiers carbonatés, de rapports E/C égaux à 1 et 1,2 étudiés dans l'essai n°3	225
Figure 7.6 Evolution temporelle de la vitesse spécifique de « germination » des mortiers carbonatés, de rapports E/C égaux à 0,5 et 1 étudiés dans l'essai n°4	226
Figure 7.7 Détermination de la constante spécifique de « germination » des mortiers carbonatés étudiés dans l'essai n°3 (a) et n°4 (b)	227
Figure 7.8 Evolution temporelle de la vitesse spécifique de « germination » pour les mortiers carbonatés, de rapport E/C égal à 1, de rugosité R1 étudiés dans les essais n°3 et 4	228

Figure 7.9 Croissance d'un germe entre les instants t_i et t_{i+1}	229
Figure 7.10 Constante de vitesse de croissance des germes (k_c) calculées aux différentes échéances pour les mortiers carbonatés, de rapports E/C égaux à 1 et 1,2 étudiés dans l'essai n°3.....	230
Figure 7.11 Valeur moyenne de la constante de vitesse de croissance des germes (k_c) sur la surface des mortiers carbonatés, de rapports E/C égaux à 1 et 1,2 étudiés dans l'essai n°3 ..	231
Figure 7.12 Valeur moyenne de la constante de vitesse de croissance des germes (k_c) sur la surface des mortiers carbonatés, de rapports E/C égaux à 1 et 0,5 étudiés dans l'essai n°4 ..	231
Figure 7.13 Evolution temporelle de la vitesse spécifique de germination et du taux de colonisation des mortiers carbonatés étudiés dans l'essai n°3 et 4	232
Figure 7.14 Evolution du temps de latence t_l (a), de la constante de germination k_g (b) et du paramètre cinétique K (c) des mortiers carbonatés étudiés dans l'essai n°3 en fonction de la rugosité R_a	234
Figure 7.15 Comparaison entre les constantes de vitesse de croissance des germes calculées et déterminées expérimentalement des mortiers carbonatés étudiés dans l'essai n°3	235
Figure 7.16 Evolution avec le temps du taux de recouvrement simulé des mortiers carbonatés, de rapports E/C égaux à 1 (a) et 1,2 (b) étudiés dans l'essai n°3	236
Figure 7.17 Evolution du temps de latence t_l (a), de la constante de germination k_g (b) et du paramètre cinétique K (c) des mortiers carbonatés étudiés dans l'essai n°4 en fonction de la rugosité R_a	237
Figure 7.18 Comparaison entre les constantes de vitesse de croissance des germes calculées et déterminées expérimentalement des mortiers carbonatés étudiés dans l'essai n°4	238
Figure 7.19 Evolution du taux de recouvrement simulé des mortiers carbonatés, de rapports E/C égaux à 1 (a) et 0,5 (b) étudiés dans l'essai n°4	238
Figure 7.20 Evolution temporelle de la vitesse spécifique de « germination » des mortiers non carbonatés, de rapports E/C égaux à 1 et 1,2 étudiés dans l'essai n°2	239
Figure 7.21 Détermination de la constante spécifique de « germination » des mortiers non carbonatés étudiés dans l'essai n°2.....	240
Figure 7.22 Valeur moyenne de la constante de vitesse de croissance des germes (k_c) sur la surface des mortiers non carbonatés, de rapports E/C égaux à 1 et 1,2 étudiés dans l'essai n°2.....	241
Figure 7.23 Evolution temporelle de la vitesse spécifique de germination et du taux de colonisation des mortiers non carbonatés étudiés dans l'essai n°2	242

Figure 7.24 Comparaison entre les constantes de vitesse de croissance des germes calculées et déterminées expérimentalement des mortiers non carbonatés de l'essai n°2	243
Figure 7.25 Evolution du temps de latence t_l (a), de la constante de germination k_g (b) et du paramètre cinétique K (c) des mortiers non carbonatés étudiés dans l'essai n°2 en fonction de la rugosité R_a	244
Figure 7.26 Evolution du taux de recouvrement simulé des mortiers non carbonatés, de rapports E/C égaux à 1 (a) et 0,5 (b) étudiés dans l'essai n°2	245
Figure 7.27 Evolution temporelle de la vitesse spécifique de « germination » des mortiers de rapport E/C égal à 1, de rugosités R1 et R2 étudiés dans les essais n°2 et 4.....	246
Figure 7.28 Valeur moyenne de la constante de vitesse de croissance des germes (k_c) sur la surface des mortiers de rapport E/C égal à 1, de rugosités R1 et R2 étudiés dans les essais n°2 et 4	247

Liste des tableaux

CHAPITRE 1

Tableau 1.1 Récapitulatif des espèces d’algues sélectionnées dans les études de laboratoire 33

CHAPITRE 3

Tableau 3.1 Proportion des constituants du clinker d’un ciment Portland..... 51

Tableau 3.2 Composition des ciments Portland (NF EN 197-1)..... 51

Tableau 3.3 Notation abrégée des différents constituants du ciment 52

Tableau 3.4 Propriétés des minéraux impliqués dans la carbonatation (**Arandigoyen et al.** 2006)..... 64

CHAPITRE 4

Tableau 4.1 Composition des trois solutions A, B et trace du milieu de culture Bold de base 81

Tableau 4.2 Composition du mortier de formulation CEReM (% en masse) 88

Tableau 4.3 Composition chimique du sable Sibelco DU 0,1/0,35..... 88

Tableau 4.4 Composition des trois mortiers étudiés 90

CHAPITRE 5

Tableau 5.1 Composition en oxydes du ciment anhydre CEM I 52,5N CP2..... 117

Tableau 5.2 Teneur des phases du ciment anhydre utilisé CEM I 52,5N CP2 118

Tableau 5.3 Masse volumique vraie, masse volumique apparente, porosité totale calculée et porosité totale déterminée par PIM des mortiers	119
Tableau 5.4 Rugosité des mortiers	126
Tableau 5.5 pH de surface des mortiers de différents rapports E/C	127
Tableau 5.6 Pourcentages massiques de portlandite et de carbonate de calcium dans les matrices cimentaires non carbonatés	137
Tableau 5.7 Pourcentages massiques de portlandite et de carbonate de calcium dans les matrices cimentaires carbonatés	139
Tableau 5.8 Pourcentage massique de portlandite carbonatée, de carbonate de calcium équivalente formée et de carbonate de calcium total	140

CHAPITRE 6

Tableau 6.1 Caractéristiques des mortiers étudiés dans chaque banc d'essai	148
Tableau 6.2 Caractéristiques des mortiers étudiés dans l'essai in situ	188

CHAPITRE 7

Tableau 7.1 Constante spécifique de « germination » des mortiers carbonatés étudiés dans l'essai n°3 et 4	228
Tableau 7.2 Paramètres cinétiques et erreur de simulation de la colonisation par les algues des mortiers carbonatés étudiés dans l'essai n°3	233
Tableau 7.3 Paramètres cinétiques et erreur de simulation de la colonisation par les algues des mortiers carbonatés étudiés dans l'essai n°4	236
Tableau 7.4 Constante spécifique de « germination » des mortiers non carbonatés étudiés dans l'essai n°2	240
Tableau 7.5 Paramètres cinétiques et erreurs de simulation de la colonisation par les algues des mortiers étudiés dans l'essai n°2	243

Introduction générale

INTRODUCTION GENERALE

Les mortiers sont des matériaux très couramment utilisés pour la réalisation des enduits de façades des bâtiments en France. En effet, chaque année, 150 millions de m² de façade sont recouverts avec des mortiers industriels, ce qui équivaut à 3,5 millions de tonnes de mortiers. 55% sont utilisés pour de nouvelles constructions et le reste est dédié à la rénovation (**SNMI** 2010). Avec le temps, ce matériau vieillit naturellement sous l'effet de divers facteurs, tels que la pluie, le vent, le soleil, le CO₂ atmosphérique, les cycles de gel/dégel, ... Pour cette raison, les façades sont progressivement et inévitablement soumises à la colonisation biologique.

Les biofilms rencontrés sur les façades des bâtiments sont de couleurs verte, noire ou rouge, selon les espèces impliquées. Plusieurs types de micro-organismes y sont présents mais les algues vertes et les cyanobactéries sont les espèces les plus fréquemment identifiées. Leur colonisation ouvrira la voie à l'implantation et à la croissance des lichens, suivies par celles des bryophytes, ptéridophytes et enfin les spermatophytes.

Cette colonisation biologique provoque évidemment un problème esthétique, qui s'inscrit dans la problématique du développement durable représentant aujourd'hui une préoccupation majeure. Par ailleurs, l'encrassement biologique entraîne une perte économique significative, en raison de l'entretien et de la réparation. En effet, pour la seule région d'Île-de-France, les dépenses induites par les ravalements de façade étaient évaluées entre 229 millions et 1,1 milliard d'€ par an en 1999, soit 21 à 100 € par an et par habitant.

La colonisation biologique des façades des bâtiments dépend à la fois de l'environnement et du substrat. Par rapport à un climat global (tempéré ou tropical), le micro-climat de la façade représente le facteur le plus important puisqu'il varie en fonction de l'inclinaison, de l'orientation, de l'exposition à l'ombre et de la distance avec le sol. Les caractéristiques du substrat à prendre en compte sont physiques (rugosité, porosité) et chimiques (composition minérale, pH de surface). Tous ces paramètres sont inclus dans le terme "bioréceptivité" défini par **Guillitte** (1995).

Introduction générale

Aujourd'hui, les moyens de prévenir l'encrassement biologique sont l'élimination des sources d'humidité (à travers l'architecture ou l'environnement proche de la façade d'immeuble) et l'utilisation de biocides ou hydrofuge. La première solution présente toutefois une efficacité limitée alors que la seconde n'est pas durable et donc limitée par des contraintes environnementales. La troisième tendance consiste à développer des revêtements avec des paramètres intrinsèques défavorables au développement biologique. Identifier et quantifier l'influence des différents paramètres intrinsèques du matériau sur la croissance des algues sont donc important à étudier.

Plusieurs études ont déjà été réalisées pour répondre à cet objectif. Pour ce faire, des essais accélérés ont été conçus de manière à apporter rapidement une réponse quant à la bioréceptivité des matériaux. Ces études comparent souvent des matériaux de nature différente et aucune ne propose d'étude cinétique de la colonisation. De plus, très peu d'études mettent en jeu, parallèlement, des essais accélérés de laboratoire et des essais *in situ* ; ce qui interdit toute corrélation entre les résultats obtenus dans ces conditions différentes.

Cette thèse, réalisée en collaboration avec le Centre Scientifique et Technique des Bâtiments (CSTB), a donc plusieurs objectifs :

- la comparaison des essais menés en laboratoire et *in situ*,
- la modélisation de la colonisation algale des mortiers cimentaires,
- l'étude de l'influence des caractéristiques intrinsèques (porosité, rugosité, état de carbonatation) des mortiers sur leur colonisation biologique.

Ce mémoire est divisé en trois parties.

La première partie sera dédiée à l'étude bibliographique, et sera répartie en trois chapitres. Le chapitre I portera sur l'encrassement biologique, en particulier l'encrassement généré par les algues. Dans les chapitres II et III, l'algue d'étude et le matériau d'étude seront respectivement présentés.

La deuxième partie traitera de l'aspect expérimental de l'étude. Le chapitre IV présentera le matériel utilisé et les méthodes employées. Nous y présenterons la mise en culture de la

Introduction générale

souche d’algue étudiée, la préparation et le vieillissement accéléré du mortier, la description de l’essai accéléré au laboratoire et *in situ*, les techniques d’analyses et de caractérisation. Dans le chapitre V, nous rassemblerons les caractéristiques de la matrice et de l’algue d’étude.

La dernière partie est consacrée à répondre aux objectifs principaux de ce travail. Le chapitre VI présentera des résultats expérimentaux. L’influence de la porosité, de la rugosité et de la carbonatation sera discutée. Dans le chapitre VII, sera proposé un modèle préliminaire visant à simuler les résultats expérimentaux et à prévoir la vitesse de colonisation du matériau.

Enfin, nous conclurons ce mémoire par un rappel des principaux résultats et aborderons les suites et les perspectives à donner à ce travail.

Etude bibliographique

Chapitre 1 SALISSURES DE FAÇADE

Dans le premier chapitre de ce manuscrit, nous présenterons des généralités sur les salissures de façade. Les différents types de salissure et les microorganismes impliqués dans les salissures biologiques seront successivement abordés. Ensuite, nous détaillerons les paramètres susceptibles d'influencer l'implantation et le développement de ce type d'encrassement. Des méthodes permettant d'évaluer l'encrassement biologique seront également présentées. Enfin, un bilan sur des études portant sur l'effet des propriétés des matériaux sur le développement des salissures biologiques, déjà menées soit en laboratoire soit *in situ*, sera réalisé.

1.1 Matériaux de façade

Les façades des bâtiments sont constituées de divers matériaux : des blocs de béton, des briques en terre cuite, du verre, du métal, du bois... Les maçonneries de moellons en pierre (granits, grès, pierres calcaires, etc.), de briques pleines en terre cuites, les murs en béton ont une imperméabilité suffisante et peuvent rester apparents (**CSTB** 2008). En revanche, les maçonneries de briques creuses, de bloc perforés et de blocs en béton cellulaire ne présentent pas une imperméabilité suffisante et sont toujours destinées à être revêtues par des enduits.

Les enduits assurent les fonctions de dressage, en rattrapant les irrégularités du gros œuvre, de protection, en assurant l'imperméabilisation de la paroi, et de décoration, en donnant l'aspect final de la façade.

Le choix de l'enduit extérieur dépend de la nature et de l'état du support, de l'exposition de la paroi, et des moyens, des conditions de mise en œuvre, du type de finition et du revêtement éventuellement associé (carrelage par exemple). Un enduit extérieur est avant tout un mortier. Selon leur mode de fabrication, on distingue les mortiers industriels et les mortiers de chantier.

En France, pour les seuls mortiers industriels, plus de 150 millions de m² de façades ont été enduits en 2009, correspondant à une production de 1,61 millions de tonnes.

1.2 Les salissures de façade

Avec le temps, les façades des bâtiments ont tendance à s'encrasser. Les causes de ces salissures sont nombreuses : efflorescence, corrosion, fissuration, dépôt de poussières, colonisation biologique, etc... et posent les problèmes suivants :

- Dégradation esthétique : ces traces anormales nuisent essentiellement à l'homogénéité de la façade ;
- Dégradations physique et chimique : ces salissures contribuent éventuellement à modifier les caractéristiques physiques et chimiques du substrat.

Le problème esthétique des façades peut s'inscrire dans la notion de « développement durable », qui est aujourd’hui une préoccupation majeure. L’entretien des façades est bien un problème de qualité environnementale et la mise en œuvre des protections sur les façades participe au coût global d’un bâtiment.

1.2.1 Types de salissures

Quatre types de salissures sont à l’origine de l’encrassement progressif des bâtiments et vont être détaillés à présent.

1.2.1.1 Salissures d’origine anthropiques ou animales

Ce sont les salissures involontaires d’origine anthropiques, comme les tâches d’huile, de peinture, de bitume, etc..., survenant lors de la construction ou volontaires comme les graffitis. Ce type de salissures peut être évité moyennant une prise de conscience individuelle.



Figure 1.1 Graffitis sur une façade (Isère janvier 2009)

Les salissures dues à des fientes de pigeons ou des animaux de compagnie sont également souvent rencontrées.



Figure 1.2 Salissures dues aux pigeons

1.2.1.2 Salissures d'origine interne

Parmi les salissures d'origine interne, on retrouve les efflorescences et les tâches de corrosion.

Les efflorescences désignent un dépôt de sel, observé à la surface de divers matériaux de construction (ciment, béton, brique...) (Ritchie 1961). Apparaissant comme des dépôts blanchâtres en couche mince ou même en croûte épaisse, les efflorescences causent des hétérogénéités de teinte d'autant plus perceptibles que la surface du matériau est sombre. Les

sels, constituant ce dépôt, présentent des compositions chimiques variées, comme des sulfates ou carbonates de sodium, de potassium et de calcium et plus rarement des sulfates de magnésium ou d'autres sels dont le dépôt est généralement dû à des conditions particulières liées à l'exposition (nitrates) (**Ritchie** 1961, **Brocken** et **Nijland** 2004). La formation d'efflorescence dépend de l'environnement (température, humidité relative) et des paramètres physico-chimiques des matériaux (**Brocken** et **Nijland** 2004).



Figure 1.3 Efflorescences sur un mur antibruit en bétons de bois

Les tâches de corrosion sont reconnaissables par leur couleur « rouille » caractéristique. Elles sont dues soit à l'oxydation de la pyrite (ou d'autre composé métallique) présente dans les granulats, soit à la corrosion des armatures du béton armé. Le processus de corrosion dépend de la teneur en eau, en chlorure, de la température, de la carbonatation du béton et de l'épaisseur de la couche de béton recouvrant l'armature.

1.2.1.3 Salissures résultant de la pollution atmosphérique

Les activités domestiques et industrielles fournissent des quantités importantes de particules en suspension dans l'air (usines, cheminées de chauffage, trafic routier, etc...) (**Perrin** 1995). A proximité d'une façade, ces particules sont soumises à différentes forces d'attraction (forces de gravité, de capillarité ou d'attraction électrostatique) et se déposent sur la surface (**Verhoef** 1986). Ce dépôt peut être facilité par le vent ou l'humidité.

Dans un second temps, lors des périodes pluvieuses, les particules déposées sont entraînées par l'eau. Les gouttes qui ruissent sur la façade se chargent de particules, « lavant » ainsi la façade, jusqu'à ce qu'elles n'aient plus la capacité de se charger. Elles peuvent alors redéposer les poussières.



Paris 13^e juillet 2006



Isère janvier 2009

Figure 1.4 Salissures résultant de la pollution atmosphérique

Les traces dues au dépôt de poussières minérales sont en général noirâtres, et sont plus concentrées dans les zones les plus polluées, c'est à dire les zones urbaines et industrielles.

1.2.1.4 Salissures d'origine biologique

Contrairement aux salissures résultant de la pollution atmosphérique, les salissures d'origine biologique se retrouvent sur n'importe quel bâtiment, qu'il soit situé en zone polluée ou non. De nombreux micro-organismes sont transportés dans l'air et viennent coloniser l'enveloppe des bâtiments. Les micro-organismes mis en cause sont des bactéries, des algues et des moisissures (champignons) (**Deruelle** 1991). A plus long terme, des lichens et des mousses peuvent venir supplanter ces premiers colonisateurs. Leur développement conduit à l'apparition de salissures dites « biologiques », aux couleurs variées (noires, vertes, rouges).



Loiret décembre 2002



Seine-et-Marne juin 2003



Paris 14^e mars 2007



Somme avril 2003

Figure 1.5 Salissures d'origine biologique

1.2.2 Méthodologie de diagnostic et de maintenance

Flores-Colen et al. (2008) proposent une méthode de diagnostic et de maintenance en 5 étapes : observation visuelle, diagnostic, choix de stratégie d'intervention, intervention et rapport.

1.2.2.1 Observation visuelle

L'observation visuelle des façades permet l'identification du type de salissures et l'évaluation des causes probables. Ce type d'analyse permet également l'évaluation de la nécessité de réaliser des tests complémentaires. Cette étape est généralement subjective, et dépend beaucoup de la formation et de l'expérience de l'inspecteur. De plus, elle est limitée à des zones accessibles de la façade.

1.2.2.2 Techniques d'intervention

L'intervention inclut le nettoyage, la réparation, le remplacement et le traitement préventif. Le nettoyage peut se faire avec de l'eau pure, avec des produits chimiques, en utilisant des méthodes abrasives ou par laser.

Le phénomène est parfois si intense que le nettoyage seul, avec de l'eau pure, conduit à une réapparition des micro-organismes.

Il est ainsi, parfois, nécessaire de réaliser un nettoyage chimique ou abrasif. En Ecosse, une méthode de nettoyage chimique souvent appliquée sur des façades en grès, comprend un prétraitement alcalin (NaOH) suivi par un lavage à l'acide (HF et H_3PO_4) (**MacDonald** 1993). L'agent alcalin est appliqué en solution ou sous forme de cataplasme à l'argile.

Le nettoyage abrasif des façades consiste à pulvériser du sable sous pression. La granulométrie du sable, la nature du sable, la pression sont des paramètres à définir. L'injection peut se faire à sec ou avec de l'eau.

Il est possible également de réaliser un nettoyage par laser. Le principe est basé sur la réaction photomécanique induite par l'interaction entre le faisceau lumineux (à impulsions très courtes, 10 à 30 ns, et de fortes puissances instantanées) et la couche superficielle de pollution (graisses, oxydes, peintures...). La forte énergie absorbée par la couche superficielle crée un plasma (système gazeux ionisé et électriquement neutre), qui, lors de sa détente,

engendre une onde de choc. Cela permet de fragmenter la couche de polluants sous forme de fines particules sans altérer la surface du substrat.

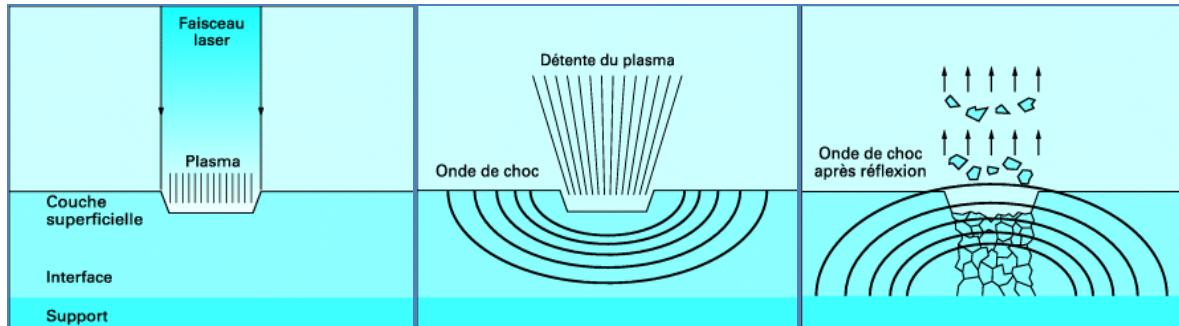


Figure 1.6 Principe du nettoyage laser (Wéry 2002)

En général, le nettoyage par laser affecte l'état du substrat : érosion de la surface, dissolution du matériau, augmentation de la porosité, résidus de produits chimiques.

1.3 Micro-organismes colonisant les façades

Les salissures d'origine biologique constituent le thème de cette étude. Dans cette partie, les différents micro-organismes recouvrant les façades, ainsi que les facteurs qui contribuent à leur apparition et leur prolifération seront présentés.

La colonisation des matériaux de façade par une communauté de micro-organismes présente un aspect dynamique. Généralement, les bactéries colonisent rapidement les façades, puis sont suivies par les algues et les cyanobactéries. Ce biofilm primaire permet ensuite la colonisation successive par les champignons, les lichens et les mousses, allant jusqu'au développement de végétaux supérieurs si rien n'est fait pour stopper la colonisation de la façade (**Deruelle** 1991).

1.3.1 Bactéries

Ce sont des micro-organismes unicellulaires procaryotes (cellules sans noyau véritable) de taille variant de 0,5 à 1,5 µm. Elles peuvent être autotrophes ou hétérotrophes. Une bactérie autotrophe est capable d'utiliser le carbone d'origine minérale pour synthétiser ces constituants cellulaires. En revanche, une bactérie hétérotrophe ne peut qu'utiliser des molécules organiques comme source de carbone.

D'une façon générale, dès la construction d'un mur ou dès la pose d'une toiture, s'installe une population bactérienne indifférenciée assurant la colonisation du support. Cette population est dans un second temps l'objet d'une sélection liée à l'inadaptation de certaines espèces et à la compétition entre les différentes bactéries. Le support est, dès le début, envahi par des bactéries ammonifiantes, ensuite des bactéries nitreuses et enfin des bactéries nitriques. En quelques mois se succèdent donc sur tous les supports vierges, quelle que soit leur nature, trois populations de bactéries se nourrissant les unes à partir des autres. Parallèlement au cycle de l'azote, en présence de composés soufrés, s'amorce le cycle du soufre caractérisé par la succession de bactéries sulfo-oxydantes et sulfato-réductrices (**Deruelle** 1991).



Figure 1.7 Tuyau d'égout détérioré suite à l'activité bactérienne

Les bactéries produisent, de part leur métabolisme, des acides intervenant dans la dégradation des matériaux. Elles peuvent ainsi entraîner une perte de cohésion du matériau par dissolution

d'éléments calcaires, par apparition de fissures suite à la transformation de composés cimentaires, par corrosion des armatures présentes dans le béton et par alvéolisation des pierres (**Perrichet** 1991, **Loutz & Dinne** 2000). Par ailleurs, si les colonies bactériennes sont invisibles à l'œil nu, ces microorganismes favorisent, de part leur développement et la création de biofilms, la bioréceptivité des revêtements de façade et favorisent ainsi l'établissement d'autres organismes.

1.3.2 Algues vertes

Les algues microscopiques désignent une série d'espèces variées de végétaux unicellulaires ou pluricellulaires, de taille généralement comprise entre 0,5 µm et 1 mm. Elles colonisent toutes les surfaces soumises à une humidité abondante, se développant ainsi en milieu marin ou dulçaquicole, mais également sur divers substrats terrestres, tels que des plantes, des roches, des sols et des bâtiments.

Les pigments photosynthétiques contenus dans les chloroplastes sont verts, rouges, oranges ou jaunes. D'autres pigments ne sont pas essentiels à la photosynthèse, mais ont pour rôle de transférer l'énergie à la chlorophylle et peuvent protéger les cellules de dommages photochimiques. Certaines algues ont des inclusions cellulaires, qui contiennent des huiles pigmentées ou d'autres composés de stockage pouvant changer la couleur de ce micro-organisme. Les algues peuvent subir des modifications de couleur lors de changements environnementaux ou de cycles de vie de la cellule. Par exemple, l'algue verte filamenteuse *Trentepohlia odorata* développe une coloration orange-rouge due à l'accumulation de pigments caroténoïdes à l'intérieur des cellules sous certaines conditions nutritives et de luminosité. Les algues vertes unicellulaires, telles que *Chlorococcum* et *Haematococcus*, acquièrent une coloration plus sombre par l'accumulation d'un pigment carotenoidien : l'astaxanthine, par l'épaississement de la paroi cellulaire avec l'âge et à faible humidité (**Bold** et **Wynne** 1985, **Pietrini et al.** 1985).

Bien qu'il existe quelques exemples d'algues hétérotrophes facultatives, la plupart des algues sont phototrophes. Elles sont capables, au cours des périodes d'obscurité prolongée, de tirer

leur énergie de l'oxydation de complexes carbonés, tels que le glucose et l'acétate. Cependant, cette forme de métabolisme hétérotrophe ne peut favoriser une communauté d'algues mise en concurrence avec des hétérotrophes obligatoires comme les champignons et certaines bactéries (**Alexander** 1977).



Figure 1.8 Mur verdi suite à sa colonisation par des algues (Seine-et-Marne juin 2003)

Les algues ont besoin également d'autres éléments, comme des vitamines et d'autres facteurs de croissance qu'elles doivent puiser dans leur environnement. Il s'agit d'azote, de soufre, de phosphore, de potassium, de magnésium et de fer. Certains ont également besoin de calcium, de sodium, de silicium, ou d'autres oligo-éléments. En l'absence d'une capacité à fixer l'azote atmosphérique, les organismes utilisent l'azote provenant de l'ammoniac, des nitrates, des acides aminés, des nucléotides, de l'acide urique ou de l'urée (**Lynch** et **Hobbie** 1988). Le soufre provient des sulfates, du sulfure d'hydrogène ou du soufre contenu dans les acides aminés. Il est généralement présent en quantités suffisantes et n'est donc pas un facteur limitant la croissance des algues (**Round** 1973). Les phosphates organiques et inorganiques solubles sont disponibles pour les organismes. Le manque de phosphate peut être un facteur limitant la croissance des algues. Le potassium, le magnésium, le fer et les autres éléments essentiels sont généralement présents en quantités suffisantes dans les substrats et ne constituent pas un facteur limitant la croissance des algues. Les vitamines B12 (cyanocobalamine), B1 (thiamine) et la biotine sont nécessaires au développement de certaines algues.

1.3.3 *Cyanobactéries*

Les cyanobactéries (ou algues bleues-vertes) sont courantes dans les couches supérieures du sol humide, pauvre en nourriture et sur la surface de roches humides. Les cyanobactéries peuvent exister sous forme de colonies, de filaments ou de cellules uniques. Certains genres sont capables de fixer l'azote atmosphérique.

Les algues bleues-vertes se distinguent des algues vertes par une différence au niveau de la structure interne de la cellule. Contrairement aux algues, les cellules des cyanobactéries sont dépourvues d'organites photosynthétiques distincts (chloroplastes). Les cyanobactéries sont des organismes photosynthétiques dépourvus de noyau, mais qui possèdent des pigments différents de ceux des algues vertes ; ces dernières générant une coloration bleu-vert au microscope. La plupart des cyanobactéries sont enrobées dans des gaines gélatineuses. Ces gaines peuvent également être pigmentées (par exemple, jaune, brun, rouge, vert, bleu) et contribuer à la couleur des organismes (**Caneva et al. 1991**). Les tâches noires associées aux cyanobactéries sont souvent dues à l'accumulation de poussières de l'air mais peuvent être aussi dues à la production de pigment de mélanine sombre (**Wilimzig et al. 1993**).

1.3.4 *Champignons*

Les champignons sont des organismes eucaryotes (cellules à noyau). Ils sont dépourvus de chlorophylle et donc incapables de photosynthèse. Ils sont hétérotrophes vis-à-vis du carbone, c'est-à-dire qu'ils ont besoin d'une source extérieure de carbone (**Dubosc 2000, Kumar et Kumar 1999**). Les déchets issus d'algues ou de bactéries (cellules mortes de ces micro-organismes), de feuilles mortes et de fientes d'oiseaux constituent des sources de carbone (**Kumar et Kumar 1999**).



Figure 1.9 Mur noirci suite à sa colonisation par des champignons (Loire mars 2011)

Les champignons peuvent être considérés comme les organismes les plus impliqués dans la biodéterioration des matériaux organiques et inorganiques (**De Leo et Urzì** 2006). Ils sont omniprésents et attaquent une grande variété de substrats, tels que le textile, le cuir, le papier, les pierres, le bois, le plastique, la peinture (**Khandelwal** 2001). Ils sont capables de pénétrer à l'intérieur du matériau par la croissance des hyphes et par une activité corrosive due soit à l'excrétion d'acides organiques soit à l'oxydation de composés de la matrice.

Les champignons se développent communément en étroite association avec des algues sur les façades et les hyphes fongiques sont souvent observés joints à des cellules d'algue. Le mutualisme est un mécanisme observé à la fois chez les algues et les champignons se développant dans des environnements pauvres en éléments nutritifs. Les lichens sont formés à la suite d'une relation symbiotique entre les champignons et les algues. L'étendue de la relation symbiotique peut aller de la « lichenisation » des algues associées librement à des hyphes fongiques (filaments d'hyphes circulant sur la surface des cellules d'algue), au développement d'un véritable thalle de lichens.

1.3.5 *Lichens*

Ces organismes résultent d'une symbiose entre un champignon et une algue verte ou une cyanobactérie. Cette association, durable et reproductible, est à bénéfices réciproques pour les partenaires, ce qui entraîne des modifications morphologiques et physiologiques. Le champignon fournit le support, les sels minéraux et la réserve d'humidité. L'algue fournit les nutriments issus de la synthèse chlorophyllienne. Dans cette association, le champignon

s'appelle le « mycobionte ». L'autre protagoniste, algue ou cyanobactérie, est nommé « phycobionte » ou « photobionte ».

Au Luxembourg, en Belgique et dans le Nord de la France, on recense aujourd’hui environ 1250 espèces de lichens et ce nombre continue d’augmenter chaque année (**Diederich et al.** 2011). Les champignons impliqués dans la symbiose lichénique représentent environ 20% de l’ensemble des champignons actuellement connus. Seulement 2% des phytobiontes sont clairement identifiés puisque les caractères morphologiques et les structures sexuées sont considérablement modifiés par la symbiose. Il s’agit souvent d’algues vertes (chlorophytes). Sur 200 espèces au total, une seule espèce d’algue jaune et rouge existe.

Lorsque le phycobionte est une algue verte, dans de nombreux cas, elle appartient au genre *Trebouxia* (lichen souvent vert) ou *Trentepohlia* (lichen souvent orange, en raison des gouttelettes de caroténoïdes de *Trentepohlia*).

Lorsque le phytobionte est une cyanobactérie, il s’agit surtout du genre *Nostoc*, de forme filamenteuse.



Figure 1.10 Terrasse en bord de mer recouverte par des lichens (Ille-et-Vilaine septembre 2010)

Deux types de lichens se développent sur les façades sous des formes nettement visibles : les lichens de surface, qui altèrent peu le matériau, et les lichens encroûtants. Les hyphes ou

rhizines de ces derniers pénètrent dans le support par des fractures existantes ou en créant de nouvelles suite à la sécrétion d'acides. Ces mécanismes érodent, alvéolisent le matériau et altèrent sa résistance (**Loutz et Dinne** 2000).

1.3.6 Mousses

Les mousses sont de petites et individuelles plantes primitives constituées de feuilles simples (une à trois couches de cellules) contenant les chloroplastes et les rhizoïdes servant au support de la plante. L'énergie et les nutriments organiques complexes sont obtenus grâce à la photosynthèse.

Les mousses colonisent de préférence les surfaces préalablement dégradées par des agents climatiques ou biologiques. Leur croissance est, par ailleurs, liée à la présence d'un microsol. Bien qu'elles produisent des substances qui peuvent contribuer à l'altération du matériau, la présence de mousses est surtout nocive pour les façades. En effet, ces derniers constituent un substrat favorable au développement de végétaux (**Perrichet** 1991). Cependant, il est rare que les propriétaires de bâtiments attendent ce stade de végétalisation pour rénover la façade.

1.3.7 Interaction entre les micro-organismes

Sur un revêtement de façade, la diversité des micro-organismes dépend de la compatibilité entre les micro-organismes dans le micro-environnement.

Il est commun que des associations symbiotiques se mettent en place entre des espèces différentes.

- Les lichens proviennent de la symbiose entre un mycète et une algue.
- Les bactéries associées aux algues : au cours de la croissance, les algues produisent un excès de composés carbonés, y compris des sucres et d'autres éléments nutritifs, qui favorisent la croissance des bactéries (**Bell et al.** 1974). Les bactéries excretent des substances, dont la vitamine B12 et l'acide folique, qui sont essentiels à la croissance de

nombreuses algues, dans la mesure où elles ne peuvent pas elles-mêmes les métaboliser (**Alexander** 1977).

En revanche, certains produits sécrétés par les algues peuvent inhiber la croissance des bactéries et des champignons (**Bell** et **Sakshaug** 1980).

La densité microbienne est sous la dépendance des saisons, du substrat, du micro-climat et, à plus long terme, du climat et de la qualité de l'air.

En général, ce sont les algues qui sont responsables de la forme et de la couleur des salissures. Selon la composition du biofilm (algues vertes et algues bleues-vertes), les salissures du revêtement de façade sont de teintes verdâtres, rougeâtres ou noirâtres (**Barberousse** et *al.* 2006). Au sein des biofilms apparaissant sur les façades, en climats tempérés, les algues vertes sont prédominantes par rapport aux algues bleues à la fois par leur nombre d'espèces et par leur masse (**Ortega-Calvo** et *al.* 1991, **Dubosc** 2000, **Barberousse** et *al.* 2006). De plus, la présence d'algues favorise la croissance des moisissures, des lichens et des mousses.

1.4 Facteurs influençant les salissures d'origine biologique

Les salissures de façade sont le fruit d'une interaction complexe entre les facteurs climatiques, l'architecture du bâtiment, la nature de la façade, son orientation et son environnement local. Ainsi, l'étude des facteurs écologiques régissant l'inoculation et le développement des micro-organismes sur un support n'est pas chose facile. En effet, d'une part, les différents facteurs ne sont pas indépendants, et, d'autre part, l'eau, le facteur capital dans la croissance des micro-organismes, provient tantôt de l'atmosphère, tantôt du support lui-même.

Nous examinerons successivement l'importance des facteurs environnementaux (climat global et environnement local) et des facteurs associés au support sur le développement des salissures.

1.4.1 Facteurs environnementaux

1.4.1.1 Le climat

Trois facteurs climatiques ont une influence sur les salissures de façade.

a-La pluie et l'humidité

La quantité d'eau disponible est le facteur le plus important qui conditionne la présence d'organismes capables de coloniser la surface des façades. En plus d'être essentielle au fonctionnement des organismes, l'eau joue également un rôle dans le transport de gaz, d'éléments nutritifs et de déchets.

Une façade souvent humide favorise la croissance des algues et des plantes supérieures (**Ariño et Saiz-Jimenez 1996, Loh 2002**). Le transfert d'humidité aux matériaux de façade est un processus complexe, notamment parce que l'apport d'eau a de nombreuses origines : la pluie, l'humidité du sol, la condensation de l'air humide sur une surface froide, etc...

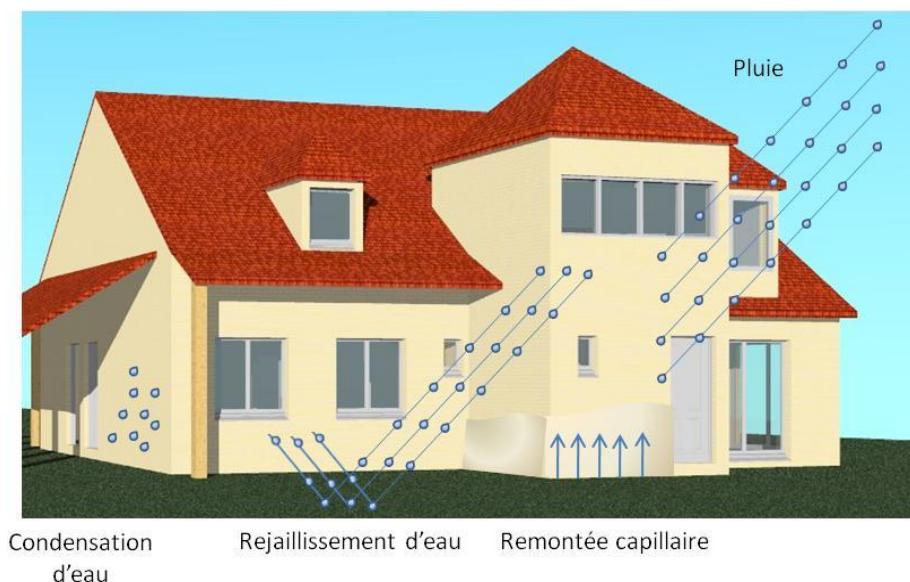


Figure 1.11 Différentes sources d'humidité des façades

Le risque d'encrassement des façades est d'autant plus élevé que la région est pluvieuse. **Young** (1997) a constaté une croissance d'algues importante sur des roches pendant les mois de fortes précipitations pluvieuses.

De plus, les bâtiments situés en région côtières sont particulièrement touchés par les salissures biologiques.

b-Le vent

Une façade est salie d'autant plus rapidement qu'elle est exposée aux vents dominants. Le vent est un vecteur des salissures. Il peut également s'associer à la pluie pour créer une pluie battante. Cette concomitance vent/pluie peut considérablement accélérer l'encrassement d'une façade.

c-La température

La température est un des facteurs les plus importants qui agissent sur la croissance des microorganismes. La température optimale de la plupart des microorganismes se situe entre 15 et 35°C. Toutefois, certains d'entre eux peuvent résister à des températures proches de 0°C et supérieures ou égales à 70°C.

En général, l'humidité, la température et le vent agissent ensemble sur l'environnement des micro-organismes. En effet, la température régit les échanges d'eau en échauffant le support et donc en favorisant l'évaporation. De même, le souffle du vent génère un effet de dessiccation.

La variation de température journalière sur une façade est moins importante sur un mur située à l'ombre ou orienté au nord que sur un mur ensoleillé. Les mesures de température d'échantillons en grès exposés sur plusieurs sites en Ecosse montrent qu'à midi, en été, la température des échantillons orientés au sud est de 3 à 4°C supérieure à celle des échantillons exposés au nord (**Young** 1997). Elles montrent également que le matin (6h) ou l'après midi (18h) il n'y a presque pas de différence. Le mur ensoleillé absorbe beaucoup de chaleur dont une partie est utilisée pour évaporer l'humidité. Le mur ensoleillé est confronté à des extrêmes de température, d'éclairage et d'humidité plus élevés que le mur situé à l'ombre.

Une température douce, associée à une humidité relative élevée, favorise fortement le développement des micro-organismes. Ainsi, certaines régions, comme le Sud de la Bretagne par exemple, réunissent les conditions environnementales décrites précédemment, et les façades des bâtiments sont très sensibles à la biodéterioration par les algues.

1.4.1.2 L'environnement local

Il faut également considérer l'environnement local lié à la hauteur au-dessus du sol, à la nature du terrain, à la topographie, à la présence d'humidité et/ou à l'activité industrielle à proximité du bâtiment, etc...

En milieu urbain, la pluie entraîne le lavage de la partie haute des immeubles ; d'où l'effet de hauteur est souvent constaté.

Par ailleurs, la croissance de micro-organismes est influencée par la proximité d'un lac, d'une rivière, d'arbres et de buissons. Ces environnements humides sont propices à l'apparition de salissures sur les façades.

Les toitures des habitats construits sur le bord de mer se recouvrent en quelques années de lichens nitrophiles de couleur caractéristique jaune ou orangé. Les embruns sont responsables de ce phénomène puisqu'ils apportent de l'azote à la surface du bâtiment (**Deruelle** 1991).

Dans les années 70, l'utilisation intensive d'engrais azotés sous forme de vapeurs gazeuses (ammoniac) et sous forme liquide (épandage par pulvérisation), en substitut des engrains granulés ou en poudre, est la cause de la défiguration des façades en calcaire d'une basilique près de Châlons-sur-Marne (**Deruelle** 1991).

1.4.2 La conception du bâtiment

1.4.2.1 L'orientation

L'influence du climat et de l'environnement local est indissociable de celle de l'orientation de la façade. En effet, les façades d'un même bâtiment seront encrassées différemment selon leur orientation.

L'évolution des cycles de mouillage et de séchage d'une paroi est influencée par les pluies et les conditions de rayonnement. En plus de la vitesse du vent et de l'intensité des précipitations, l'angle entre la direction du vent et la normale à la surface influe sur l'encrassement biologique de la façade.

Le séchage des façades peut être décomposé en deux phases : une première phase où le séchage est dû à une évaporation directe de l'eau en surface et une deuxième phase où l'évaporation se produit à l'intérieur du matériau. La première, qui voit la plupart de l'eau disparaître (90%), dépend des conditions ambiantes (température et humidité), de la température de surface, de la vitesse et de la direction du vent au voisinage de la paroi. En revanche, au cours de la deuxième phase, les caractéristiques intrinsèques du matériau prennent le pas sur les conditions climatiques pour influer sur la vitesse de séchage (**Flori** 1992).

Dans la majeure partie de l'Hexagone, sous l'influence de l'atlantique, la pluie vient de l'ouest, à l'exception de la vallée du Rhône où elle suit un axe nord-sud. Les façades susceptibles de se salir le plus rapidement sont donc à priori les façades orientées vers l'ouest. En général, une façade exposée aux vents dominants sera plus facilement salie que les autres façades du même bâtiment.

Par ailleurs, les façades orientées vers le nord, moins ensoleillées, restent plus humides et sont également susceptibles de se salir plus rapidement (**Ariño et Saiz-Jimenez** 1996, **Young** 1997, **Barberousse** 2006). Le même phénomène s'observe sur les troncs des arbres en forêt. La mousse se trouvant abondamment sur le côté le plus humide, indique le nord.

1.4.2.2 *Les points singuliers du bâtiment*

L'architecture du bâtiment peut favoriser la colonisation de la façade. Les parties de l'enveloppe du bâtiment, qui sont fréquemment mouillées et humides pendant de longues périodes, sont sujets à la colonisation (**Wee et Lee** 1980).

Le pied des murs est en général l'endroit le plus humide, en raison de l'humidité du sol et du rejaillissement du terrain. Cet endroit est propice à la croissance des micro-organismes.

On observe souvent des salissures à la jonction de différents revêtements, en particulier, lorsqu'on passe d'une surface lisse à une surface plus rugueuse ou plus poreuse (**CSTB** 2005, **Barberousse** 2006). L'eau ruisselle sur le matériau lisse, emportant facilement les salissures. Les joints canalisent l'eau et les micro-organismes se développent sur l'enduit au droit des joints.

Les éléments en saillie (corniches, moulures, bandeaux, balcons, etc...) comportent des surfaces planes horizontales ou inclinées, qui favorisent l'accumulation des salissures sur les façades par rejaillissement et/ou ruissellement (**Wee** et **Lee** 1980). Ces surfaces planes retiennent l'humidité sur une plus longue période et reçoivent des propagules plus facilement que les parois verticales. Les salissures se développent couramment au raccordement de ces éléments avec la façade.

1.4.2.3 Les matériaux de façade

Un revêtement, lorsqu'il est appliqué en façade, possède des caractéristiques propres, qui influencent sa bioréceptivité (**Guillitte** 1995). Nous pouvons citer ici la rugosité, la porosité, la composition chimique, la couleur...

a-La rugosité

Parmi les facteurs physiques pouvant influencer la croissance des micro-organismes sur les façades, la rugosité est considérée comme un facteur important par plusieurs chercheurs (**Darlington** 1981, **Dubosc** 2000). **Dubosc** (2000) a comparé la vitesse de colonisation de mortiers de différentes rugosités et inoculés par un écoulement intermittent de suspension d'algues. Il a noté que les échantillons les plus rugueux sont colonisés plus rapidement. Sur des blocs de calcaire, **Darlington** (1981) avait obtenu les mêmes résultats. Ceci est dû de la différence de capacité d'accrochage de cellules d'algue par la surface. **Joshi** et **Mukundan** (1997) ont affirmé que les façades rugueuses retenaient plus facilement des propagules microbiennes soufflées par le vent. Les façades rugueuses sont alors plus facilement colonisées par les algues que les façades lisses.

Wee et Lee (1980), étudiant la prolifération des algues sur des bâtiments de Singapour, ont également noté un développement biologique plus rapide sur les surfaces rugueuses et poreuses. **Pietrini et al.** (1985) ont observé la présence de *Haematococcus pluvialis* dans les aspérités d'une surface en marbre, où l'humidité était retenue plus longtemps.

La rugosité influe sur l'accrochage des micro-organismes et des matières organiques sur le support. Elle influe également sur l'écoulement de l'eau et sur son temps de contact avec la surface.

La rugosité influence également la température maximale atteinte au soleil par les enduits de façade (**Chevalier et Chevalier** 1991). Pour une teinte donnée, une augmentation de rugosité conduit généralement à un accroissement de l'absorption solaire, et donc à un échauffement. En effet, plus la rugosité est grande, plus la probabilité d'accroître le nombre de réflexion des rayons lumineux incidents au sein du matériau augmente, donc plus l'absorption résultante est grande. Ce phénomène présente une plus grande efficacité sur les teintes claires que sur les teintes foncées.

b-La porosité

La porosité du support influence l'absorption et la rétention d'eau par le matériau après des intempéries ou une humidification quelconque (**Dubosc** 2000). La porosité totale et la distribution entaille des pores sont des facteurs, dont il est nécessaire de tenir compte.

Les matériaux possédant de larges pores favorisent une contamination microbienne temporaire, due à la faible condensation de l'eau. Les matériaux à petits pores, avec des temps de conservation de l'eau plus longs, offrent des conditions plus favorables à la colonisation par les micro-organismes (**Warscheid et al.** 1993).

Par ces effets, la porosité joue également un rôle dans la sélection des micro-organismes. **Crispim et al.** (2003) ont comparé la réceptivité de deux types de substrat (pierre calcaire et

enduits à base de ciment) à des organismes phototrophes. L'enduit à base de ciment possède une porosité plus grande et des diamètres de pores plus petits. Il permet donc une meilleure pénétration et une meilleure rétention de l'eau. Ces auteurs ont montré que sur le calcaire, les cyanobactéries unicellulaires et coloniales constituent la majorité de la biomasse. Sur les enduits à base de ciment, les algues avec morphotypes filamentueux se développent préférentiellement. Les algues sont plus fréquentes sur les surfaces humides que sur les surfaces sèches et les micro-organismes filamentueux ont une grande capacité à croître dans un environnement humide.

Ohshima et al. (1999) ont étudié la relation entre la croissance des algues et la structure poreuse de mortier à humidité relative constante. Ils ont montré que la croissance des algues est affectée par l'équilibre hydrique de la structure poreuse mais pas directement par la valeur de la porosité. Le mortier possédant un réseau poreux serré améliore la rétention de l'eau durant la période de séchage et donc favorise la croissance des algues.

c-La composition chimique

La composition chimique influe sur le type de micro-organismes colonisateurs et sur la vitesse de colonisation.

Schlichting (1975) a identifié, en Irlande, que le genre *Chlorella* se développe sur les briques alors que les cyanobactéries du genre *Chroococcus* et *Schizothrix* se restreignent uniquement au mortier situé entre les briques. **Ortega-Calvo et al.** (1993), **Crispim et al.** (2003) ont montré qu'il y a un nombre d'espèces plus important sur le mortier que sur les pierres (granite ou calcaire). **Barberousse** (2006) a constaté que les matériaux organiques résistent généralement mieux à la colonisation par les algues et les cyanobactéries que les matériaux minéraux. Les micro-organismes sont plus diversifiés et plus abondants sur les matériaux minéraux que sur les matériaux organiques. Elle a également mis en évidence qu'un pH de surface alcalin (supérieur à 10) peut totalement inhiber la colonisation d'un matériau par une cyanobactérie.

Chaque micro-organisme a des préférences écologiques. Certains d'entre eux supportent la présence d'ions cadmium, cuivre ou mercure et des pH de surface élevés, alors que ces mêmes facteurs retardent l'implantation d'autres micro-organismes.

Les algues préfèrent un pH proche de la neutralité. Les revêtements à base de ciment présentent donc au jeune âge une fonction biocide intrinsèque, due au pH élevé du matériau (**Grant** 1982). **Dooley** et al. (1999), **Guilbeau** et al. (2003) ont montré que la carbonatation des matériaux à base de ciment Portland réduit le pH de 13 à 8 et facilite l'accrochage des cellules d'algue.

d-La couleur

La couleur de la façade peut jouer également un rôle sur son encrassement. En effet, la couleur peut avoir des conséquences sur la température atteinte par la façade au soleil. Or, la température a une influence par la suite sur l'évaporation et donc l'humidité. Les essais sur des matériaux de différentes couleurs ont été menés par le CSTB (**Chevalier** et **Chevalier** 1991). Ils ont montré qu'avec les mêmes matériaux, la température atteinte diffère selon la couleur. Une teinte foncée engendre une absorption plus élevée qu'une teinte claire et donc une température maximale plus élevée.

La bioréceptivité d'un matériau évolue avec le temps, en fonction des altérations qu'il subit sous l'effet des facteurs climatiques ou biotiques (**Guillitte** 1995). Dans un cas extrême, une fois le revêtement colonisé par un biofilm dense, les caractéristiques du matériau n'interviennent plus dans le processus de colonisation. A ce stade, ce sont les micro-organismes présents à la surface du matériau, qui conditionnent l'implantation d'autres espèces (**Barberousse** 2006).

1.5 Interaction organismes-matériaux

Les organismes peuvent se développer en surface (épilithiques), mais également à l'intérieur (cryptoendolithiques) des mortiers (**Ariño** et **Saiz-Jimenez** 1996). Sur les murs ombragés et

humides (orientés au nord), ces deux communautés se composent principalement de cyanobactéries et d'algues. Seuls quelques taxons de lichens se trouvent dans la communauté cryptoendolithique. Au contraire, sur les murs ensoleillés, les lichens dominent. Les cyanobactéries et les algues sont uniquement présentes dans les pores du mortier.

Les micro-organismes colonisent tout d'abord les cavités et les fissures débouchant à la surface. En effet, ces endroits retiennent plus facilement l'eau et les nutriments. Ces micro-niches vont ensuite s'étendre aux alentours. Sous des conditions appropriées, telle qu'une grande porosité de surface, les micro-organismes peuvent pénétrer plus profondément dans le mortier (**Ariño et Saiz-Jimenez** 1996).

Les micro-organismes ne sont pas seulement des occupants passifs de l'espace poreux du matériau. Ils sont également capables d'élargir cet espace par dissolution des minéraux (**Ariño et Saiz-Jimenez** 1996). Par ailleurs, l'accumulation d'organismes sur le matériau réduit la porosité et la perméabilité de la surface souillée du matériau (**Young** 1997).

L'action agressive des cyanobactéries et des algues sur le substrat surlequel elles se développent est considérée comme négligeable par certains auteurs. Cependant, outre la dégradation esthétique évidente dans la plupart des études, il y a des références bibliographiques qui mentionnent et se focalisent sur l'altération fonctionnelle du substrat. En effet, **Ariño et Saiz-Jimenez** (1996) ont reporté que la communauté d'algues et de cyanobactéries cryptoendolithiques altère le mortier romain antique par des processus de dissolution et de reprécipitation de carbonates. Les cyanobactéries sont capables de précipiter du carbonate de calcium sur leurs gaines qui forment ainsi des filaments calcifiés avec présence d'une couche grise en surface. Une moisissure blanche, d'aspect d'une croûte, a été également observée. Il s'agit d'une accumulation de filaments calcifiés morts et vides. En effet, les gaines calcifiées mortes perdent leur structure d'origine et deviennent des filaments calcifiés amorphes, compacts dans une couche de calcite biogène sur la surface du mortier. La surface du mortier colonisée par les lichens est également fortement altérée.

Hyvert (1973) a montré la présence de cavités sur le temple de Borobudur, en Indonésie, causées par la croissance d'algues. **Danin** (1983) a constaté le détachement de particules de calcaire autour des colonies d'une cyanobactérie cocoïde.

1.6 Méthodes d'évaluation des salissures biologiques sur les façades

1.6.1 Méthodes non-destructives

1.6.1.1 Observation visuelle

Cette méthode non destructive est subjective. Il est uniquement possible de subdiviser les échantillons en un nombre limité de catégories. L'observation visuelle peut être réalisée en prenant en compte deux indices : l'intensité d'encrassement (légère, sombre...) et la surface recouverte (pas de salissures visibles, traces dispersées, surface recouverte inférieure à 10%,...) (**Grant** et **Bravery** 1985, **Ohshima** et *al.* 1999, **Dubosc** 2000). Faute de reproductibilité, cette méthode n'est plus considérée comme pertinente. Elle peut pourtant être utilisée pour les études préliminaires.

1.6.1.2 Analyse d'images

Par cette méthode, l'aire de la surface des échantillons recouverte par les micro-organismes est estimée avec précision. Elle consiste à prendre une « photographie » de cette surface. Pour cela, des scanners bureautiques sont souvent utilisés (**Dubosc** 2000, **Barberousse** et *al.* 2007, **De Muynck** et *al.* 2009). Le scanner nous garantit des conditions reproductibles d'éclairement, de taille d'image et de paramètres de prise de vue. Il est donc facile ensuite de développer un programme automatisé de mesure de l'aire colonisée par analyse d'images. Cette méthode de quantification permet de calculer le taux du recouvrement, mais fournit peu d'indications sur son intensité ainsi que sa couleur. C'est la raison pour laquelle la mesure colorimétrique est utilisée en complément.

1.6.1.3 Mesures colorimétriques

Du fait que les organismes impliqués dans la biodéterioration des façades soient colorés, cette méthode paraît adapter à l'estimation de la dégradation esthétique des revêtements de façade par les salissures biologiques (**Young** 1997, **Grossi** et *al.* 2003, **Prieto** et *al.* 2004). Réalisée au moyen de spectrocolorimètres portables, elle est relativement rapide et n'a aucun impact sur la croissance des algues.

Cette méthode a été utilisée pour la première fois par **Young** (1997) pour étudier la croissance d’algues sur différents grès exposés en extérieur. La quantité d’algues est supposée être reliée au changement de couleur dans l’espace $CIEL^*a^*b^*$. Cette mesure n’est considérée que comme une indication semi-quantitative, dans la mesure où la variation de couleur dépend de l’espèce d’algue dominante, de l’épaisseur de cette couche et aussi de la superficie recouverte.

La mesure de réflectance, qui consiste à déterminer l’absorption et la réflexion pour chaque longueur d’onde à un éclairement donné, est également utilisée (**Escadeillas et al.** 2009, **De Muynck et al.** 2009). La réflectance est en effet reliée à la présence des pigments des algues colonisatrices.

1.6.1.4 Mesures de la fluorescence

Cette méthode est basée sur la propriété de fluorescence de la chlorophylle *a* présente dans les micro-organismes photosynthétiques. **Miller et al.** (2006) utilise un spectrofluoromètre équipé d’une fibre optique. Le spectre d’émission de fluorescence est enregistré avec une longueur d’onde d’excitation de 430 nm correspondant à l’optimum pour les molécules de chlorophylle *a*. L’intensité de fluorescence est proportionnelle à la biomasse photosynthétique présente sur la surface des échantillons. Cette méthode de haute sensibilité est très utile pour détecter la présence des micro-organismes photosynthétiques et estimer la biomasse photosynthétique. La fluorescence de la surface des échantillons sains doit être mesurée initialement, afin de déterminer uniquement la contribution de la chlorophylle à la fluorescence.

1.6.2 Méthodes destructives

1.6.2.1 Comptage des micro-organismes vivants

Cette méthode consiste à réaliser un prélèvement de surface que l’on place en culture sur gélose. Ensuite, les unités formant des colonies (UFC) sont comptées. Une UFC peut provenir d'une cellule qui a germé, ou d'un amas de cellules serrées. Des facteurs peuvent altérer l'efficacité de cette technique : la coexistence de formes unicellulaires et filamentueuses, des

comportements différents des espèces en culture, l'existence de cellules et de spores se développant uniquement dans des conditions extrêmes (**Edwards** 2000).

1.6.2.2 Quantification de la biomasse

Dans leur étude sur la bioréceptivité des matériaux de construction, **Guillitte** et **Dreesen** (1995) ont estimé l'abondance de la colonisation biologique par la mesure de l'épaisseur maximale ou par la masse du biofilm. La quantification du biofilm nécessite une récolte, qui varie avec la dureté du substrat et l'adhésion du biofilm à la surface (**Hill** et **Hawkins** 1990). Cela peut conduire à une sous-estimation de la masse du biofilm.

1.6.2.3 Quantification de la chlorophylle a

La quantification de la chlorophylle *a* a été communément utilisée pour estimer la biomasse photosynthétique dans l'eau, dans les milieux de culture, dans le sol ou occasionnellement sur le substrat rocheux. Cette méthode a été récemment utilisée pour estimer la biomasse d'algues sur des façades de monuments (**Saiz-Jimenez** et *al.* 1990). L'extraction se fait directement avec des morceaux du matériau, le grattage des algues n'est pas nécessaire. **Prieto** et *al.* (2004) ont montré que cette méthode conduisait à des résultats représentant correctement la biomasse des algues sur les matériaux. Cependant, des précautions doivent être prises lorsque l'on veut comparer les biofilms contenant diverses espèces d'algue puisque chaque espèce contient une quantité de chlorophylle différente. Une limite de détection basse permet de détecter la présence des algues sur les façades avant qu'elles deviennent macroscopiquement visibles. Elle permet également d'éviter de prélever des quantités importantes d'échantillons *in situ* (**Görs** et *al.* 2007).

1.7 Etudes antérieures sur le développement d’algues sur des matériaux de façade

1.7.1 Essais en laboratoire

Durant les trente dernières années, plusieurs essais ont été menés au niveau du laboratoire, afin d’étudier la bioréceptivité des matériaux de construction ainsi que l’efficacité des biocides vis-à-vis de la colonisation par les algues. Dans le but d’accélérer cette colonisation, qui prend normalement des années pour apparaître sur site réel, différentes méthodologies ont été mises au point.

1.7.1.1 Espèces d’algue étudiées

L’étude bibliographique indique que les classes cyanophycées et chlorophycées sont principalement responsables des salissures sur les façades des bâtiments. Parmi les milliers d’espèces de ces classes, laquelle choisit-on pour mener des essais ?

En général, ce choix est basé sur les trois critères suivants :

- La représentativité : les espèces choisies doivent être rencontrées dans les prélèvements sur site.
- La facilité de croissance : les espèces sélectionnées doivent être capables de se développer rapidement lorsqu’elles rencontrent des conditions favorables à leur croissance.
- La facilité d’homogénéisation en culture liquide : il est nécessaire de contrôler la quantité d’inoculum dispersée sur les supports testés.

Le **tableau 1.1** suivant recense les différentes espèces utilisées dans les essais de laboratoire.

Tableau 1.1 Récapitulatif des espèces d'algues sélectionnées dans les études de laboratoire

Auteurs	But de l'étude	Cyanophycées	Chlorophycées
Grant et Bravery (1985)	Evaluer la susceptibilité de différents pierres, mortier et fibrociment et de l'efficacité des inhibiteurs chimiques par rapport à la colonisation des algues	1. <i>Nostoc commune</i> 2. <i>Gloeocapsa alpicola</i>	1. <i>Trentepohlia aurea</i> 2. <i>Stichococcus baccillaris</i> 3. <i>Pleurococcus species</i>
Ohshima et al. (1999)	Influence de la structure poreuse du mortier sur le développement biologique (champignons et algues)	1. <i>Oscillatoria laetevirens</i>	1. <i>Chlorella vulgaris</i>
Dubosc (2000)	Mise au point d'un essai accéléré de vieillissement pour l'étude du développement des salissures biologiques sur les parements en béton	1. <i>Chroococcidiopsis</i>	1. <i>Chlorella</i> 2. <i>Chlorhormidium</i>
Miller et al. (2006)	Evaluer la bioréceptivité primaire de différentes pierres portugaises	1. <i>Gloeocapsa alpina</i>	1. <i>Stichococcus baccillaris</i>
Barberousse et al. (2007)	Evaluer différents matériaux de façade vis-à-vis de la colonisation par des algues		1. <i>Klebsormidium flaccidum</i> 2. <i>Chlorella mirabilis</i> cf. 3. <i>Stichococcus baccillaris</i>
De Muynck et al. (2009)	Evaluer différentes stratégies (hydrofuges et biocides) pour empêcher les salissures causées par les algues sur béton blanc et béton cellulaire		1. <i>Chlorella vulgaris var. viridis chodat</i>

1.7.1.2 Matériaux d'étude

Selon les auteurs, les matériaux étudiés sont très variés : différents types de pierre, des mortiers, du fibrociment, des revêtements organiques... Dans le but d'accélérer les essais, les matériaux à pH élevé subissent souvent un vieillissement (carbonatation et/ou lixiviation), afin d'abaisser le pH de surface. Seules les études de **Guillitte et Dreesen (1995)**, de **Ohshima et al. (1999)** ont été menées sur des mortiers non vieillis. Pour faire la part entre les phénomènes biologiques et les phénomènes chimiques, les échantillons doivent être stérilisés avant leur mise en essai.

1.7.1.3 Méthode d'humidification

Il est connu que l'eau est indispensable pour le métabolisme des algues. La forme et la nature des microorganismes composants les salissures sont fortement liées au mode d'humidification du support. On observe des salissures intenses le long des écoulements, qui dessinent le trajet de l'eau. Ces salissures sont souvent composées de chlorophycées. De part une humidification aléatoire, on constate par contre de grandes « draperies » de cyanophycées sur les façades exposées aux vents dominants.

Des essais accélérés en laboratoire ont été menés en simulant les différents types d'humidification des murs rencontrés dans la nature :

- Par écoulement (**Guillitte et Dreesen 1995, Dubosc 2000, Barberousse et al. 2007, De Muynck et al. 2009**) ;
- Par remontée capillaire (**Grant et Bravery 1985, Ohshima et al. 1999, Dubosc 2000**) ;
- Par brumisation (**Ohshima et al. 1999, Dubosc 2000**).

1.7.1.4 Méthodes d'inoculation

Les microorganismes accèdent à une façade soit par le vent soit par un écoulement d'eau (continue ou discontinue). Différents mécanismes d'implantation sont proposés : simple dépôt sur surfaces horizontales, rétention par les cavités ou par la rugosité, aspiration par les matériaux quand l'absorption d'eau se produit.

Dans les essais accélérés en laboratoire, les auteurs veillent à respecter les critères suivants :

- Simuler les modes d'inoculation des algues sur les murs en conditions *in situ* ;
- Effectuer une inoculation plus importante et plus fréquente que dans le cas de tests *in situ* tout en assurant une densité d'inoculation appropriée. Il convient d'éviter une inoculation trop faible qui ralentirait les essais voire inhiberait la colonisation ou une inoculation trop intense qui ne permettrait pas de discriminer l'influence des différents paramètres étudiés.

Trois méthodes d'inoculation ont été recensées dans la bibliographie :

- Dépôt d'un volume de culture connu sur une surface horizontale au moyen d'une pipette ou d'une brosse douce (**Grant et Bravery** 1985, **Ohshima et al.** 1999, **Dubosc** 2000, **Miller et al.** 2006) ;
- Pulvérisation intermittente d'une culture liquide chargée de cellules sur une surface inclinée (**Ohshima et al.** 1999) ;
- Ecoulement intermittent d'une culture liquide chargée de cellules sur une surface inclinée ou verticale (**Guillitte et Dreesen** 1995, **Dubosc** 2000, **Barberousse et al.** 2007, **De Muynck et al.** 2009).

1.7.1.5 La température et l'éclairement

Dans le but d'accélérer la croissance des algues sur les matériaux, une température optimale pour la croissance des algues doit être maintenue. Cependant, il existe une température optimale de croissance spécifique à chaque espèce. En générale, une température de l'ordre de 23°C garantit un développement rapide de la majorité des espèces d'algues.

En ce qui concerne la lumière, il est nécessaire de déterminer l'intensité et la photopériode optimale. Comme la température, l'intensité lumineuse optimale dépend de l'espèce étudiée. **Dubosc** (2000) a déterminé une intensité optimale de 1500 Lux pour la culture de ces trois algues : *Chroococcidiopsis*, *Chlorella*, *Chlorhormidium*, dans le banc d'essai de laboratoire. Une photopériode de 16 h de jour et 8 h de nuit ou 12 h de jour et 12 h de nuit est souvent utilisée. Une courte durée d'éclairement limite l'échauffement des échantillons testés.

1.7.2 Essais *in situ*

Etant donné que les conditions environnementales et l'inoculation des algues dans les essais accélérées sont largement différentes de celles observées en milieu extérieur, il est difficile d'extrapoler les résultats des essais accélérés aux cas réels. Peu d'études *in situ* sur le processus de colonisation biologique des matériaux de façade sont référencées dans la bibliographie.

Young (1997) est le premier à avoir étudié la colonisation d'échantillons exposés *in situ*, en particulier l'effet de la rugosité. Un dispositif expérimental a été mis au point (**figure 1.12**). Des échantillons ayant subi différents types de nettoyage ont été placés sur le dispositif d'étude tout en évitant la contamination des uns par les autres. Deux rangs d'échantillons orientés au sud et au nord permettent d'étudier l'influence de l'orientation. Des précautions ont été prises, afin d'éviter le rejaillage d'eau du terrain. Les échantillons ont été placés à 60° d'inclinaison, afin de favoriser le développement biologique.

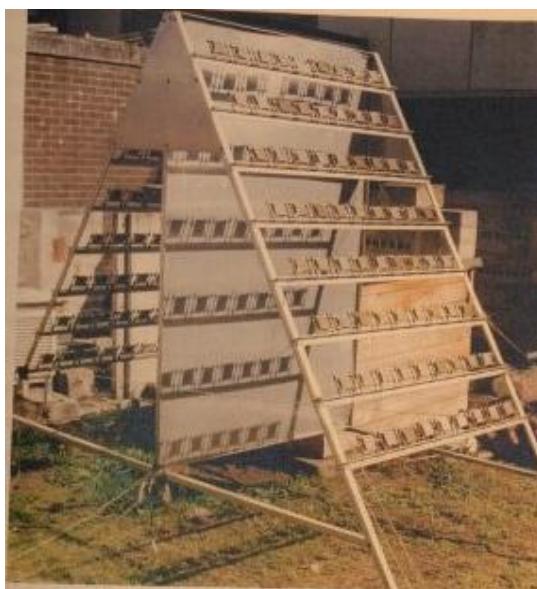


Figure 1.12 Dispositif expérimental *in situ* mise au point par **Young** (1997)

Le rôle de la rugosité, créé par un nettoyage physique, n'a pu être mis en évidence. Les auteurs ont supposé que l'inclinaison importante et une taille trop petite des échantillons (5 × 5 × 1,5 cm) atténuaien l'influence de la rugosité sur l'écoulement d'eau pluviale.

Une autre étude *in situ* sur l'influence de la porosité a été menée par la suite par **Ohshima et al.** (1999). Des échantillons de mortier ont été placés verticalement et orientés au nord. Ils étaient posés juste au-dessous d'une toiture inclinée à 10° et à 1 m au-dessus du terrain engazonné. L'observation faite après une année et demie d'exposition indique que les salissures étaient générées par des algues mais pas par des champignons. Egalement, les mortiers les plus poreux présentaient une colonisation plus importante quelle que soit leur durée de cure.

Loh (2002) a publié son étude sur la formulation d'une nouvelle peinture à base d'eau résistante à la colonisation des algues dans le climat humide et chaud de Singapour. La

performance de la nouvelle peinture a été évaluée à travers plusieurs essais *in situ* en l'appliquant, soit, sur des panneaux exposés horizontalement en plein air et soumis ainsi à l'action du soleil toute la journée, soit, sur les façades totales de différents bâtiments de Singapour.

Dans ce chapitre, nous avons montré que la colonisation biologique des façades provient de l'action de multiples microorganismes. L'analyse des biofilms prélevés sur de nombreuses façades a montré que les algues vertes et les cyanobactéries étaient les premiers colonisateurs après les bactéries. Leur développement permettait ensuite la colonisation successive d'autres microorganismes (champignons, lichen...). Plusieurs facteurs interviennent sur cette colonisation : le climat global, l'environnement local du bâtiment, la conception du bâtiment, le matériau de façade... Ce dernier paramètre, qui constitue la problématique de cette thèse, est étudié au moyen d'essais accélérés en laboratoire. Les algues sont choisies selon trois critères : la représentativité, la vitesse de croissance et la facilité de les cultiver. Essentiellement deux méthodes d'inoculation sont utilisées : dépôt initial des algues sur la surface du substrat ou apport périodique d'algues sur la surface du substrat tout au long de l'essai. Afin que le développement des algues puisse avoir lieu, l'eau nécessaire est apportée soit par remontée capillaire au travers du substrat, soit par ruissellement intermittent ou par brumisation d'une solution aqueuse. De par leur longue durée, les études *in situ* restent encore peu développées. Pour évaluer la colonisation biologique, des méthodes destructives et non destructives sont utilisées.

Chapitre 2 LES ALGUES

Le deuxième chapitre est dédié à l'étude bibliographique des algues, qui sont les colonisateurs prédominants des façades de bâtiment. Les paramètres pouvant influencer leur croissance seront développés. L'algue choisie pour notre étude, *Klebsormidium flaccidum*, sera également abordée en détail.

2.1 Principales caractéristiques des algues

Bien moins connues que les autres végétaux du fait de leur habitat essentiellement aquatique, les algues constituent pourtant un groupe de quelques 100 000 espèces. Leur présence dans la biosphère est d'une importance capitale pour le fonctionnement et l'équilibre de celle-ci. En effet, par photosynthèse, elles élaborent à partir du gaz carbonique une masse annuelle de composés organiques supérieure à celle de la matière organique produite par l'ensemble des végétaux supérieurs terrestres.

Bien que recensées majoritairement dans l'eau de mer ou dans l'eau douce, certaines algues se développent sur des substrats aériens, et notamment sur les matériaux de construction.

Les algues représentent les végétaux chlorophylliens thallophytes, c'est-à-dire dépourvus de racines, de tiges et de feuilles. Elles se différencient en cela des cormophytes, des champignons et des bactéries ne possédant pas de chlorophylle.

2.2 Classification des algues

La classification des algues est réalisée d'après leurs caractères d'ordre cytologiques et biochimiques ainsi que par leurs différences de structure et de mode de reproduction. La classification est très complexe puisque, d'une part, les critères de différenciation sont parfois très difficiles à observer, et, d'autre part, suivant leur état végétatif (croissance, survie) les

cellules d’algue peuvent prendre des aspects très différents. Les critères morphologiques sont, de plus, dépendants des conditions environnementales (**Škaloud** 2006).

En conséquence, les différentes classifications proposées dans la littérature ne sont pas identiques et certaines espèces peuvent se retrouver classées, en fonction de l’auteur, dans des familles différentes.

2.3 L’influence de l’environnement sur la croissance biologique

La croissance des micro-organismes est considérablement influencée par la nature chimique et physique de leur environnement. Une compréhension de l’influence du milieu aidera à contrôler la croissance microbienne et à étudier la distribution des micro-organismes dans les milieux naturels.

2.3.1 *Les solutés et l’activité de l’eau*

Du fait qu’ils possèdent une membrane plasmique perméable et sélective, les micro-organismes sont affectés par des modifications de concentration en molécules dissoutes au sein de leur milieu environnant.

Si un micro-organisme est introduit dans une solution hypotonique, de l’eau pénétrerait dans la cellule et provoquerait son éclatement. En fait, la plupart des algues ont la capacité de conserver la concentration de leur protoplasme au-dessus de celle de leur habitat grâce à des solutés compatibles. Ainsi, la membrane plasmique est toujours fermement maintenue contre la paroi cellulaire. Les algues augmentent leur pression osmotique interne par la synthèse ou le transport de saccharose et de polyols.

Quand des micro-organismes à paroi cellulaire rigide sont placés dans un milieu hypertonique, l’eau quitte la cellule et la membrane plasmique se rétracte. Cela déhydrate la cellule et endommage la membrane cellulaire. La cellule devient métaboliquement inactive et ne se développe plus.

La quantité d'eau disponible pour les micro-organismes peut être réduite par interaction avec des molécules de solutés (effet osmotique) ou par absorption par les surfaces des solides (effet matrice). Le degré de disponibilité en eau est généralement quantifié par l'activité de l'eau a_w .

$$a_w = \frac{P_{sol}}{P_{eau}}$$

P_{sol} : pression de vapeur de la solution

P_{eau} : pression de vapeur de l'eau pure

L'activité de l'eau est inversement proportionnellement à la pression osmotique. Si une solution a une pression osmotique élevée, son a_w sera faible.

Bien que de nombreux organismes puissent survivre à des périodes de faible disponibilité en eau, la quantité d'eau nécessaire pour la croissance active est généralement beaucoup plus élevée. **Caneva et al.** (1991) ont déterminé qu'une humidité relative de 65-70% est nécessaire pour favoriser la croissance de la plupart des micro-organismes.

Les organismes ont différentes capacités de survie pendant les périodes sèches. La croissance active des algues devient rapidement inhibée au cours de la sécheresse, avec de nombreuses cellules revenant à une étape de repos, soit enkystées, soit avec production de spores. Les lichens, toutefois, peuvent survivre pendant de longues périodes de dessiccation (**John** 1988).

2.3.2 *La lumière*

La lumière est nécessaire pour la croissance des organismes photosynthétiques y compris les algues, les lichens et quelques cyanobactéries. Elle agit sur le développement des algues de différentes manières, telles que la production photosynthétique de la biomasse, la photostimulation de la croissance et la photoinduction des différentes étapes du développement au cours de la vie des algues (**Dring** 1988, **Lüning** 1990).

Le taux de production des spores est plus grand lorsque les plantes sont exposées à des rayonnements intenses ou pour des périodes d'éclairage longs (**Edwards** 1970, **Nørdbø** 1977, **Norall et al.** 1981).

La longueur d'onde du rayonnement a également une influence. A $5 \mu\text{mol photons.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$, la croissance d'une espèce, telle que *U. pertusa*, est nettement plus faible en lumière verte qu'en lumière bleue ou rouge. Egalement, il n'y a pas de sporulation à ces longueurs d'ondes. Cependant, le degré de sporulation à $20 \mu\text{mol photons.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$ est presque deux fois plus élevé en lumière bleue ou rouge qu'en lumière verte. D'autre part, les UV-B entraînent des effets délétères, tels que la diminution de la croissance et de la photosynthèse et la photo-destruction des pigments (**Franklin et Forster 1997, Häder et Figueroa 1997, Han et al. 1998**).

2.3.3 Le pH

Chaque espèce se développe dans une gamme de pH définie et possède un pH optimal de croissance. Des variations drastiques du pH peuvent endommager la membrane plasmique des algues ou inhiber l'activité des enzymes et des protéines membranaires de transport. Les changements de pH externe altèrent également l'ionisation des molécules de nutriment et en réduisent ainsi leur disponibilité pour les algues.

Les algues modifient fréquemment le pH de leur propre habitat en produisant des déchets métaboliques acides ou basiques.

Des tampons pH sont souvent inclus dans les milieux de culture pour empêcher l'inhibition de la croissance par modifications importantes de pH. Les tampons à base de phosphates sont les plus utilisés.

2.3.4 La température

Chaque organisme possède une température optimale de croissance. Les températures minimales et maximales de développement dépendent souvent d'autres facteurs environnementaux, tels que le pH et les éléments nutritifs disponibles.

Les algues, comme tous les êtres vivants, sont profondément affectées par la température de leur environnement.

A faible température, une élévation de température augmentera la vitesse des réactions enzymatiques (le métabolisme) et donc la croissance. Au delà d'une certaine température, la

croissance diminue. Des températures trop élevées provoqueront la mort des algues. En effet, elles endommagent les algues en dénaturant les enzymes, les systèmes de transport et d'autres protéines.

2.4 Algue de l'étude : *Klebsormidium flaccidum*

2.4.1 Présentation

Klebsormidium flaccidum est une algue verte de distribution cosmopolite. Elle peut être trouvée dans le sol, sur les roches, les murs, et l'écorce des arbres (**Rindi** et al. 2008). Elle est connue pour sa large diffusion dans les régions tempérées (**John** 1988, **Ortega-Calvo** et al. 1991, **Ortega-Calvo** et al. 1993, **Gaylarde** et **Gaylarde** 2005, **Rindi** et al. 2008) et tropicales (**Gaylarde** et **Gaylarde** 2000, **Crispim** et al. 2003).

La recherche et l'identification des souches d'algues indigènes présentes sur les façades des bâtiments de France montrent que la colonisation est principalement le fait des algues vertes (**Barberousse** et al. 2006). Ainsi, sur les façades colonisées, la couleur noirâtre est due à la présence de champignons, d'algues vertes et de cyanobactéries. La coloration rouge résulte de la présence de l'algue verte *Trentepohlia iolithus*. Parmi les algues vertes, *Klebsormidium flaccidum* est une espèce de première importance, en raison de sa fréquente occurrence et de sa prédominance dans l'étude réalisée par **Barberousse** (2006).

Une telle distribution peut être attribuée à la capacité de *Klebsormidium* à survivre dans un état très déshydraté (**Rindi** et **Guiry** 2004), même si elles se développent généralement dans des lieux très humides.

2.4.2 Identification

Le genre *Klebsormidium*, constitué de huit espèces, était classé dans un premier temps dans l'ordre *Ulotrichales* de *Chlorophyceae* sur la base de leur critère morphologique commun. Toutefois, **Pickett-Heaps** (1975) puis **Stewart** et **Mattox** (1975) ont proposé de classer ce

genre dans l'ordre *Klebsormidiales* du fait de leur méthode de division cellulaire fondamentalement différente de celle des *Chlorophyceae*. Ce genre se trouve alors dans la classe *Charophyceae*, classification acceptée par plusieurs auteurs.

Klebsormidium flaccidum appartient au genre *Klebsormidium*, de l'ordre *Klebsormidiales* et de la classe *Charophyceae* (**Lokhorst** 1984).

Dans la suite, les caractéristiques de *K. flaccidum* vont être présentées.

2.4.3 Morphologie

K. flaccidum est une algue verte filamentuse. Ses filaments sont simples et constitués de cellules semblables (**figure 2.1**). La cellule *K. flaccidum* possède une forme simple, normalement cylindrique, parfois légèrement contractée aux parois transversales. La paroi cellulaire est lisse. Elle contient deux vacuoles occupant chaque extrémité de la cellule. Les vacuoles sont séparées par un pont central de cytoplasme contenant le noyau et les appareils de Golgi (**figure 2.2**) (**Pickett-Heaps** 1975). Les cellules sont uninucléées, contenant un chloroplaste pariétal avec en son sein un seul pyrénoïde. Le chloroplaste, de la forme d'une tasse, représente à peine la moitié de la circonférence de la cellule. Le pyrénoïde est couvert par une couche distincte de grains d'amidon. Dans les cellules âgées, les grains d'amidon deviennent plus larges.



Figure 2.1 Filament et fragment de *K. flaccidum* (**Barberousse** 2006)

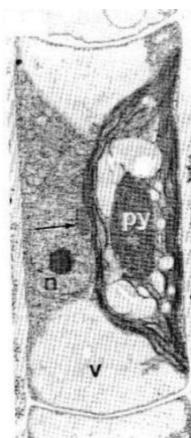


Figure 2.2 Cellule *K. flaccidum* ($\times 8300$)
v : vacuole ; n : noyau ; py : pyrénoïde
(**Pickett-Heaps** 1975)

La longueur (L) des cellules est généralement supérieure à leur largeur (l). Le rapport l/L est très variable durant le cycle de vie de l'algue (de 0,46 à 1,03) (Škaloud 2006)).

Sur milieu gélosé, les souches de *K. flaccidum* apparaissent sous forme de colonies circulaires. Les colonies se différencient par la taille et le degré de tortuosité des filaments. Dans une culture en phase liquide, elles se trouvent sous formes de touffes de filaments et de filaments hydrophobes flottant à la surface de la suspension microbienne. Parfois, des disques mucilagineux sont également observés dans les cultures liquides (figure 2.3) (Škaloud 2006). Ces disques sont produits à intervalles réguliers le long des filaments et servent, d'après Škaloud, à lier les filaments les uns aux autres.

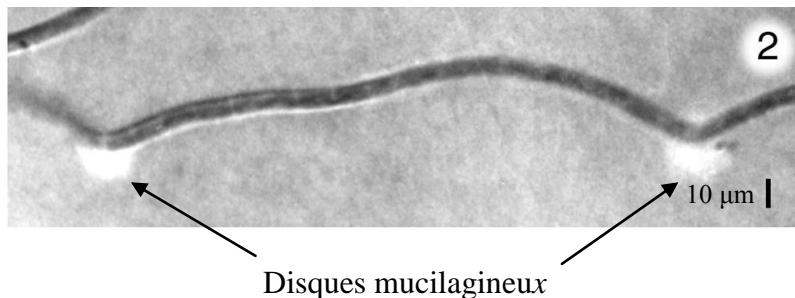


Figure 2.3 Production de disques mucilagineux servant à l'attachement des filaments
(Škaloud 2006)

Les filaments sont de taille variable. Ils peuvent être constitués de quelques cellules à plus de 1000 cellules. Dans une culture jeune, les filaments sont pour la plupart courts et droits. Dans des cultures anciennes, ils sont souvent tordus et se désintègrent facilement en filaments de quelques cellules (Škaloud 2006).

2.4.4 Reproduction

La reproduction est la multiplication ou la formation de nouveaux individus. C'est une caractéristique spécifique à tous les êtres vivants. Pour se reproduire, *K. flaccidum* fait appel à trois processus asexués différents, qui vont à présent être détaillés.

2.4.4.1 Multiplication cellulaire

Il s'agit de fission, c'est-à-dire d'une division cellulaire où le noyau est soumis à la division mitotique. Par un processus unique de fission, deux nouveaux individus sont produits à partir d'une cellule parentale. Toutes les cellules de *K. flaccidum* peuvent se diviser transversalement, ce qui fait augmenter le nombre de cellules par filament (**Škaloud** 2006).

2.4.4.2 Multiplication végétative

Ce type de reproduction est la méthode la plus commune chez les algues multicellulaires. Un filament peut être fragmenté en deux ou en plusieurs parties donnant lieu à des nouveaux individus. Pour *K. flaccidum*, la désintégration se produit à la fin des filaments (**Škaloud** 2006).

Sur milieu gélosé, les fragments unicellulaires et bicellulaires sont prédominants. Les filaments longs y sont moindres que dans le milieu de culture liquide (**Pouličková** et al. 2001).

2.4.4.3 Sporulation

L'algue est capable d'assurer sa descendance par des phénomènes ne faisant intervenir ni organe ni cellule sexuelle. Le processus fait appel à un phénomène de sporulation (**figure 2.4**). Les spores sont des unités reproductives spécialisées pour la reproduction asexuée. Les spores libérées par ouverture des sporocystes sont dispersées, tombent sur un substrat et après germination donnent naissance à un nouvel individu. Les spores peuvent être mobiles (appelées zoospores) ou non-mobiles (appelées aplanospores).

K. flaccidum produit des zoospores mais jamais plus d'une zoospore par cellule végétative. Les zoospores sont produites dans des cellules ordinaires des filaments. Ils sont de structure dorsiventrale c'est à dire avec un ventre plat et un côté dorsal rond. Les zoospores sont biflagellées, germent directement en filament végétatif sans patte d'attache (**figure 2.5**) (**Pickett-Heaps** 1975).

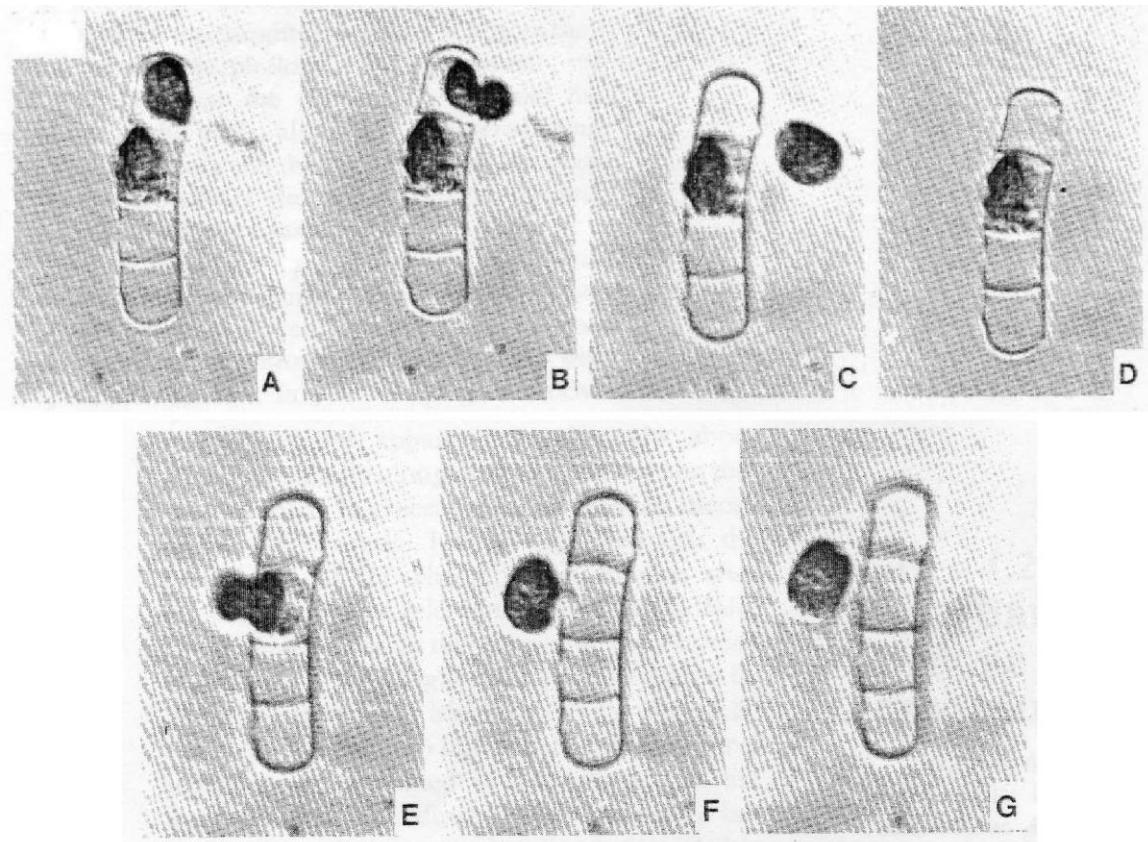


Figure 2.4 A-G : Emergence de deux zoospores ($\times 1300$) (Pickett-Heaps 1975)

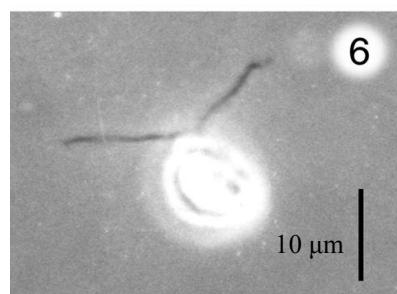


Figure 2.5 Zoospore biflagellé (Škaloud 2006)

Différents facteurs influencent la formation des zoospores : le changement de concentration du milieu de culture, la réduction de l'intensité lumineuse, le changement de température, le passage d'eau en mouvement à de l'eau stagnante (Sarabhai et Arora 1995).

Par rapport à la multiplication végétative et cellulaire, la reproduction par zoospores chez *K. flaccidum* est très rare, notamment sur substrat.

2.4.5 Changement de morphologie cellulaire suivant l'âge de culture

Dans les cultures discontinues, les largeurs et longueurs moyennes des cellules changent au cours du temps. La moyenne de la largeur fluctue de quelques dixièmes de micromètre (de 6,38 à 6,73 µm) alors que la moyenne de la longueur varie de quelques micromètres (de 9,6 à 14 µm). Pendant les premières semaines, une nette diminution de la longueur des cellules est observée, probablement influencée par une division cellulaire intensive. Cependant, après trois à cinq semaines (en fonction de l'origine des souches), les cellules se rallongent. Il est intéressant de préciser que la fragmentation des filaments correspond au moment où la longueur moyenne des cellules est la plus petite (**Škaloud** 2006).

La longueur des filaments est fortement liée à la longueur cellulaire et à la désintégration des filaments en fragments. Donc, elle varie également selon l'âge de la population (de quelques micromètres à quelques millimètres).

Après environ six semaines d'incubation, les filaments présentant des symptômes de vieillissement (grains d'amidon distincts couvrant le pyrénoïde, désintégration du chloroplaste, production de cellules en forme anormale) prédominent (**Škaloud** 2006).

2.4.6 Variabilité de morphologie cellulaire suivant le pH du milieu de culture

Le pH du milieu de culture influence la morphologie cellulaire de *K. flaccidum*. Un pH de 8,5, provoque une augmentation de la largeur et de la longueur cellulaire par rapport à un pH neutre. On observe également une forte proportion de cellules mortes, qui se manifestent par la désintégration des chloroplastes et par la formation de cellules ayant une morphologie anormale.

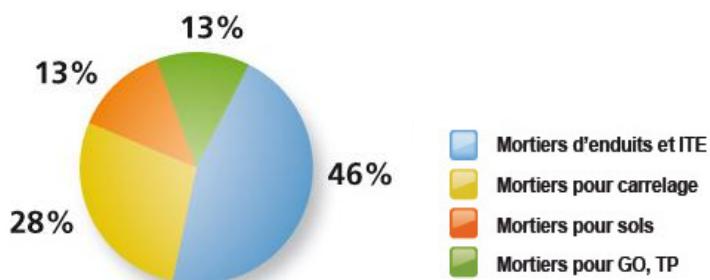
Les algues sont des êtres vivants capables de photosynthèse, dont le cycle de vie se déroule généralement en milieu aquatique ou sur les substrats. Elles constituent une part très importante de la biodiversité, et une des bases des réseaux trophiques des milieux aquatiques. Leur croissance dépend considérablement de la nature chimique et de la nature physique de leur environnement : le pH, la température et la lumière. L'algue étudiée dans cette étude, *Klebsormidium flaccidum*, est une algue verte,

filamenteuse la plus répandue sur les façades de bâtiment. Elle peut être composée d'une seule cellule à un millier. Chaque cellule est de forme cylindrique, dont la taille est très variable. Sa morphologie est fortement dépendante du pH du milieu et de l'âge de culture.

Chapitre 3 LE MORTIER

Un mortier résulte du mélange d'un liant (ciment, chaux ou plâtre), d'agrégats (sable) et d'eau. Des additifs sont parfois ajoutés pour améliorer ses caractéristiques. Les applications de ce matériau sont nombreuses : maçonnerie, chape, réparation de béton, fixation de tuiles, etc...

En 2009, la production française s'est élevée à 3,5 millions de tonnes de mortiers performanciels en poudre prête à gâcher ou en pâte prête à l'emploi (**SNMI** 2010). Ainsi, $150\ 10^6\ m^2$ de façade ont été enduites, $50\ 10^6\ m^2$ de sol ont été égalisés ou lissés, $140\ 10^6\ m^2$ de carrelage ont été posés sur des murs ou sols et $100\ 10^6\ m^2$ de murs ou cloisons ont été montés. Chaque français utilise, par an, l'équivalent de son poids en mortiers pour construire ou rénover (**SNMI** 2010). L'utilisation des mortiers est donc aujourd'hui courante, que ce soit en travaux neufs ou en rénovation.



ITE : isolation par l'extérieur ; GO : géotechnique ; TP : travaux publics

Figure 3.1 Répartition des activités en 2009 (**SNMI** 2010)

Le mortier est un matériau bioréceptif. Les observations *in situ* (**Ariño** et **Saiz-Jimenez** 1996, **Ariño** et al. 1997, **Barberousse** 2006) et les essais en laboratoire (**Ohshima** et al. 1999, **Dubosc** 2000, **Barberousse** 2006) l'ont mis en évidence.

Dans le cadre de cette étude, on s'intéresse uniquement à l'altération esthétique générée par la colonisation par les algues. L'apparition des micro-organismes phototrophes n'implique pas automatiquement une action destructive. Mais, en considérant la biodéterioration comme « n'importe quel changement indésirable du matériau causé par l'activité vitale des micro-organismes », la présence des algues sur les façades des bâtiments peut être considérée comme une forme de biodéterioration (**Hueck-van Der Plas** 1965). Ce type de biodéterioration correspond à un encrassement biologique.

Nous présenterons, dans la suite de ce chapitre, les différents constituants utilisés pour la confection de nos échantillons de mortier (ciment Portland et son hydratation, le filler calcaire et l'éther de cellulose). Ensuite, une partie sera dédiée à la carbonatation des matériaux cimentaires, technique utilisée pour baisser le *pH* de surface de nos mortiers.

3.1 Ciment

Le ciment est un liant hydraulique. Il est défini selon la norme NF EN 197-1 comme étant un matériau minéral finement moulu qui, gâché avec de l'eau, forme une pâte qui fait prise et durcit par suite de réaction et de processus d'hydratation, et, qui, après durcissement, conserve sa résistance et sa stabilité, même sous l'eau.

3.1.1 Ciment Portland

Le ciment Portland est constitué principalement de clinker. Ce dernier est issu de la cuisson à haute température (1450°C) dans des fours rotatifs d'un mélange de calcaire et d'argile dans des proportions proches de 80% - 20% respectivement. Les constituants et leur proportion du clinker sont donnés dans le **tableau 3.1**.

Tableau 3.1 Proportion des constituants du clinker d'un ciment Portland

Constituants	Proportion
Silicate tricalcique $[(\text{CaO})_3\text{SiO}_2]$	50-65 %
Silicate bicalcique $[(\text{CaO})_2\text{SiO}_2]$	15-20 %
Aluminate tricalcique $[(\text{CaO})_3\text{Al}_2\text{O}_3]$	8-10 %
Ferro-aluminate tétracalcique $[(\text{CaO})_4(\text{Al}_2\text{O}_3)(\text{Fe}_2\text{O}_3)]$	7-10 %

Du sulfate de calcium, essentiellement sous forme de gypse ($\text{CaSO}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$), est ajouté au clinker en faible quantité (~5%) pour réguler la prise.

Plusieurs types de ciment existent, afin de répondre au plus près aux besoins de chantiers spécifiques. Les ciments contiennent des constituants secondaires. Ils peuvent être des sous-produits de l'industrie (laitiers, cendres) ou des produits naturels (fillers, pouzzolanes). Certains de ces produits peuvent avoir des propriétés hydrauliques alors que d'autres sont inertes vis-à-vis de l'eau.

Les ciments courants, répondant à la norme NF EN 197-1, sont de cinq types, définis par leur composition et décrits dans le **tableau 3.2** (exprimée en % hors régulateur de prise).

Tableau 3.2 Composition des ciments Portland (NF EN 197-1)

	Clinker	Laitier	Pouzzolanes ou Cendres	Calcaire ou Silice ou Schiste	Constituants secondaires (*)
CEM I	> 95				< 5
CEM II	> 65		6 à 35		< 5
CEM III	5 à 64	36 à 95			< 5
CEM IV	45 à 89		11 à 55		< 5
CEM V	20 à 64	18 à 50	18 à 50		< 5

(*) filler ou constituants principaux (si pas déjà utilisés)

3.1.2 Hydratation du ciment

L’hydratation du ciment met en jeu des réactions entre ses constituants et l’eau de gâchage. Les phases anhydres du ciment vont réagir avec l’eau de gâchage pour former des hydrates. La nomenclature des anhydres et des hydrates cités dans ce paragraphe est donnée dans le **tableau 3.3**.

Tableau 3.3 Notation abrégée des différents constituants du ciment

Notation abrégée	Formule chimique	Dénomination
C ₃ S	(CaO) ₃ -SiO ₂	Silicate tricalcique ou alite
C ₂ S	(CaO) ₂ -SiO ₂	Silicate bicalcique ou bélite
C ₃ A	(CaO) ₃ -Al ₂ O ₃	Aluminate tricalcique
C ₄ AF	(CaO) ₄ -Al ₂ O ₃ -Fe ₂ O ₃	Alumino-ferrite tetracalcique
C \bar{S} H ₂	CaSO ₄ (H ₂ O) ₂	Gypse
CH	Ca(OH) ₂	Portlandite
C-S-H	(CaO) _x -SiO ₂ -(H ₂ O) _y	Silicate de calcium hydraté
C ₃ A.(C \bar{S}) ₃ .H ₃₂	(CaO) ₆ -Al ₂ O ₃ -(SO ₃) ₃ -(H ₂ O) ₃₂	Ettringite ou “Aft”
C ₃ A.C \bar{S} .H ₁₂	(CaO) ₄ -Al ₂ O ₃ -(SO ₃)-(H ₂ O) ₁₂	Monosulfoaluminate de calcium hydrate ou “Afm”
C ₂ AH ₈	(CaO) ₂ -Al ₂ O ₃ -(H ₂ O) ₈	Aluminate dicalcique hydraté
C ₃ AH ₆	(CaO) ₃ -Al ₂ O ₃ -(H ₂ O) ₆	Aluminate tricalcique hydraté ou Hydrogrenat
C ₄ AH ₁₃	(CaO) ₄ -Al ₂ O ₃ -(H ₂ O) ₁₃	Aluminate tétracalcique hydraté

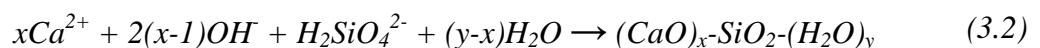
3.1.2.1 Hydratation de C₃S

Le C₃S est le constituant majeur du ciment Portland artificiel. Il joue un rôle important dans la formation des hydrates et dans l’évolution des propriétés mécaniques du matériau. Les études ont montré qu’environ 70% du C₃S a réagi au bout de 28 jours, et qu’à peu près tout le C₃S est hydraté après 1 an pour former de la portlandite et du silicate de calcium hydraté.

Les C-S-H sont des hydrates amorphes et de composition variable ($1 < x < 2$ et $2 < y < 4$) (Vallée 1999). Il est principalement à l'origine du développement des caractéristiques mécaniques du matériau. La portlandite demeure dans un état cristallisées ou amorphe selon l'espace disponible pour précipiter. Elle est composée de feuillets d'octaèdres de CaO_6 reliés entre eux par les arêtes.

La réaction du C_3S avec l'eau est décrite par **Le Chatelier** (1887) en trois phases successives :

- La période initiale correspondant à la dissolution. Au cours du gâchage, le C_3S se dissout superficiellement et libère des ions en solution : calcium Ca^{2+} , hydroxydes OH^- et silicates $\text{H}_2\text{SiO}_4^{2-}$. Très rapidement, la solution devient sursaturée par rapport au silicate de calcium hydraté, qui précipite rapidement. Les équations bilan décrivant le processus sont les suivantes :



où $x = \text{C/S}$ et $y = \text{H/S}$;

- Après cette première précipitation rapide de C-S-H, les réactions d'hydratation de C_3S se poursuivent à vitesse décroissante. Cette période d'induction est dite « dormante » ou athermique et dure quelques minutes à quelques heures suivant les conditions de gâchage et la nature du ciment. Au cours de cette période, la pâte de C_3S reste maniable et la solution devient de plus en plus sursaturée vis-à-vis de la portlandite. Dès que le seuil de sursaturation de la solution vis-à-vis de la portlandite est atteint, cette dernière précipite suivant l'équation :



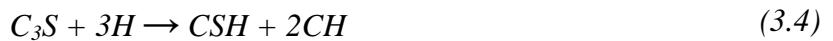
Avec la précipitation de CH, la solution interstitielle devient pauvre en ions Ca^{2+} et OH^- . Ce phénomène traduit la fin de la période dormante. La précipitation de CH entraîne une dissolution des grains de C_3S conduisant ainsi à une formation rapide et en grande quantité

d'hydrates de type C-S-H. La pâte devient alors de plus en plus consistante : c'est le début de prise. Les cristaux de CH et les fibres de C-S-H s'enchevêtrent et remplissent peu à peu les pores capillaires.

- L'hydratation se poursuit mais beaucoup plus lentement puisque les hydrates formés entourent les grains anhydres de C₃S. La porosité du matériau décroît continuellement et le réseau de phases hydratés devient de plus en plus dense : c'est la période de durcissement.

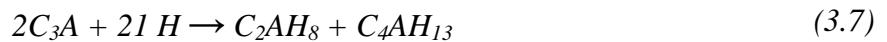
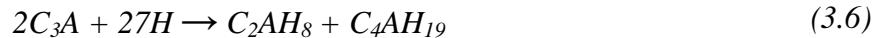
3.1.2.2 Hydratation de C₂S

Les études ont montré que le C₂S réagit de la même façon que le C₃S, mais avec une cinétique plus lente (**Tong et al.** 1991). Contrairement au C₃S, seul 30% de C₂S a réagi au bout de 28 jours, et 90% en 1 an (**Taylor** 1990). Toutefois, il se forme une proportion plus importante de C-S-H par rapport à CH lors de l'hydratation de C₂S. Cette différence de proportion d'hydrates formés est liée au rapport C/S plus faible pour le C₂S. La réaction d'hydratation de C₂S et de C₃S est résumée ci-dessous :



3.1.2.3 Hydratation de C₃A

Une pâte de ciment contenant uniquement du C₃A perd rapidement toute maniabilité ; ce qui se caractérise par une prise rapide. Au contact de l'eau, l'aluminate tricalcique forme rapidement des phases hydratées thermodynamiquement instables : C₂AH₈, C₄AH₁₉, C₄AH₁₃ (**Taylor** 1990). La prise rapide de la pâte de C₃A est liée à la formation de ces phases. Elles évoluent ensuite vers une phase stable, C₃AH₆, avec une cinétique fortement dépendante de la température. Les équations chimiques, qui gouvernent la réaction d'hydratation de C₃A, peuvent être présentées comme suit :



L'addition de gypse permet de réguler l'hydratation du C₃A et d'éviter le phénomène de « fausse prise » de la pâte du ciment. Au cours du gâchage, le C₃A et le gypse se dissolvent très rapidement. La solution devient très vite sursaturée par rapport à l'ettringite. Les ions libérés au cours de la dissolution du gypse et de C₃A se combinent pour former instantanément le trisulfoaluminate de calcium hydraté (ou Aft) jusqu'à l'épuisement du gypse.



La solution s'appauvrit alors en ions sulfates et devient sous-saturée par rapport aux sulfates. L'ettringite se dissout et libère des ions sulfate pour former avec le C₃A excédentaire le monosulfoaluminate (Afm).

3.1.2.4 Hydratation de C₄AF

Taylor (1990) a montré que, dans des conditions identiques d'hydratation, les produits issus de l'hydratation de C₄AF sont similaires à ceux formés par l'hydratation de C₃A. Dans le cas de C₄AF, une partie de l'aluminium est substituée par du fer dans l'ettringite et le monosulfoaluminate. A température ambiante, la cinétique d'hydratation de C₄AF est quatre à cinq fois plus faible que celle de C₃A. En effet, la solubilité de l'hydroxyde de fer en milieu basique est beaucoup plus faible que celle de l'hydroxyde d'aluminium.

3.2 Filler calcaire

Le calcaire est généralement extrait dans la même carrière que la cimenterie. Après avoir été très finement broyé, finesse proche de celle du ciment, on obtient le filler calcaire (**Neville** 2000). Le filler calcaire est constitué principalement de calcite, d'une petite proportion de quartz ou de silice amorphe et parfois de dolomite. Les quantités d'argile et de matière organique doivent être limitées, en raison de leur effet sur la demande en eau et sur la prise (**Taylor** 1990).

L'action du filler calcaire est à la fois physique et chimique. Il améliore la distribution des particules dans le système cimentier et fournit de nouveaux sites de nucléation pour l'hydroxyde de calcium. La portlandite se concentre en grosse masse et forme des ponts entre les grains de filler par rapport aux plus petits et plus dispersés cristaux formés en absence de filler (**Taylor** 1990). Le filler calcaire entraîne une accélération de l'hydratation des grains de clinker (en particulier les C₃S au jeune âge). La vitesse d'hydratation de C₃S est accélérée quand la quantité et la finesse de CaCO₃ augmentent.

Le filler calcaire entraîne la formation de carboaluminates de calcium, résultat de la réaction entre CaCO₃ et C₃A du clinker. La réaction entre le C₃A et le CaCO₃ a lieu à l'état solide. L'addition de CaCO₃ modifie la réaction initiale du C₃A avec l'eau par la formation rapide d'une barrière de carboaluminate de calcium hydraté (3CaO.Al₂O₃.CaCO₃.xH₂O) développé sur la surface des grains de C₃A (**Neville** 2000).

3.3 Ethers de cellulose

Les éthers de cellulose sont des polymères hydrosolubles, issus de la cellulose. Cette dernière est un hydrate de carbone ou un polysaccharide naturel, formé de maillons d'anhydroglucoside reliés entre eux par des liaisons glycosidiques β (1-4).

Parmi une large variété d'éthers de cellulose existants, trois types sont principalement utilisés dans la formulation des mortiers : hydroxypropyleméthyle cellulose (HPMC),

hydroxyéthyle méthyle cellulose (HEMC) et hydroxyéthyle cellulose (HEC). Ces polymères sont caractérisés par trois paramètres : la masse moléculaire, la teneur et la nature des substituants. Ces derniers sont des groupements méthoxyle $-OCH_3$ (dans HPMC et HEMC), hydroxypropyle $-(CH_2)_3OH$ ou POOH (dans HPMC) et hydroxyéthyle $-(CH_2)_2OH$ ou EOOH (dans HEMC et HEC). Les structures de la cellulose et des éthers de cellulose sont représentées **figures 3.2 et 3.3**.

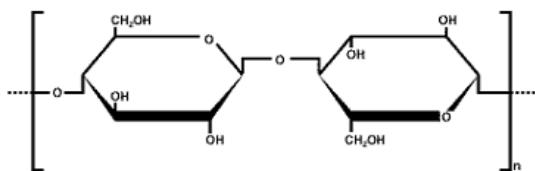


Figure 3.2 Structure de la cellulose

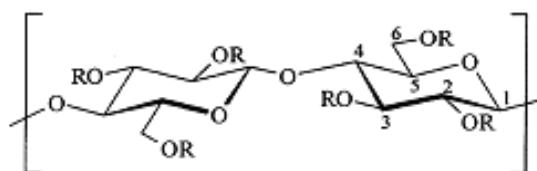


Figure 3.3 Structure d'un éther de cellulose avec
 $R = H, OCH_3, POOH$ ou $EOOH$

Les éthers de cellulose possèdent des effets significatifs sur les propriétés physiques du mortier frais. L'éther de cellulose est d'abord un épaississant, qui augmente la viscosité de la phase fluide, stabilise le réseau de bulles d'air formé durant le malaxage et assure une bonne maniabilité. Par ailleurs, il fournit la capacité de rétention d'eau au mortier (Vallée 1999). Sans cette propriété, l'eau est aspirée par le substrat et n'est donc plus disponible pour le processus d'hydratation.

L'effet de l'éther de cellulose sur la microstructure et les transferts d'eau dans le mortier durci est moins étudié. Pourtant, toutes les études ont montré que l'addition d'éther de cellulose induit une augmentation de la porosité totale du mortier et la stabilisation de bulles d'air de diamètre 50-250 μm (Jenni et al. 2005, Pourchez et al. 2010). Les éthers de cellulose peuvent procurer à un matériau cimentaire durci une faible perméabilité à l'eau liquide et une forte perméabilité à la vapeur d'eau (Pourchez et al. 2010). L'auteur a expliqué ce comportement par la formation d'un réseau poreux des grosses bulles (de diamètre 50-250 μm) reliées entre elles par des pores capillaires (de diamètre de 100-500 nm) (**figure 3.4**).

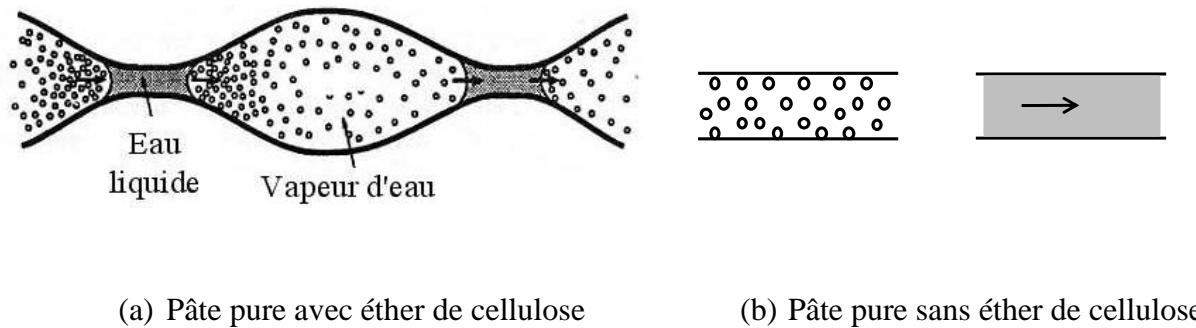


Figure 3.4 Transfert de vapeur d'eau et d'eau liquide dans le réseau poreux d'une pâte pure avec (a) et sans (b) éther de cellulose

Dans le cas de transfert de vapeur d'eau, les petits canaux dans le réseau poreux des pâtes adjuvantées sont sensibles à la condensation de l'eau. Ils améliorent la diffusion de la vapeur par un processus de condensation-évaporation ; ce qui n'est pas le cas dans les pâtes non adjuvantées. L'éther de cellulose augmente alors la perméabilité à la vapeur d'eau du matériau. En revanche, dans le cas du transfert de l'eau liquide, les petits canaux dans les pâtes adjuvantées freinent l'écoulement d'eau par la loi des liquides visqueux ; ce qui entraîne une baisse de perméabilité à l'eau liquide.

3.4 Carbonatation des matériaux cimentaires

La carbonatation est un phénomène qui se produit à la surface et dans le volume des matériaux cimentaires. Elle correspond à un ensemble de mécanismes physiques et chimiques, qui résultent principalement de la réactivité des phases $\text{Ca}(\text{OH})_2$ et C-S-H de la matrice cimentaire en présence de CO_2 atmosphérique.

3.4.1 Dioxyde de carbone en solution aqueuse

L'air contient du CO_2 et en l'assimilant à un gaz parfait, sa concentration gazeuse en (mol.L^{-1}) est donnée par (3.12) :

$$[CO_2] = \alpha_{CO_2} \frac{P_{atm}}{RT} \quad (3.12)$$

Où :

α_{CO_2} : fraction volumique en CO₂ dans l'atmosphère

R : constante des gaz parfaits (0,082 L.atm.mol⁻¹.K⁻¹)

T : température absolue (K)

P_{atm} : pression atmosphérique (atm)

Lorsqu'une solution est soumise à une pression partielle de CO₂, le gaz se dissout selon l'équation (3.13) :



A l'équilibre, la loi de Henry exprime la concentration en CO₂ dissous dans la solution (mol.L⁻¹) sous forme moléculaire en fonction de la pression partielle en CO₂, noté P_{CO_2} :

$$[CO_2]_{aq} = \frac{P_{CO_2}}{k_H} \quad (3.14)$$

Où :

k_H : constante de Henry pour le CO₂ (atm.mol⁻¹.L)

P_{CO_2} : pression partielle en CO₂, $P_{CO_2} = \alpha_{CO_2} P_{atm}$

k_H dépend de la nature de l'électrolyte et de la température. Pour une solution suffisamment diluée, **Danckwerts** (1970) montrent que k_H diffère peu de la constante de Henry k_{H0} pour l'eau pure. En combinant les équations (3.12) et (3.13), la loi de Henry peut aussi s'écrire :

$$[CO_2]_{aq} = \frac{RT}{k_H} [CO_2]_g \quad (3.15)$$

Un équilibre s'établit entre le CO₂ dissous et l'acide carbonique H₂CO₃ selon l'équation (3.16).



D'après **Dow** et **Glasser** (2003), cette réaction est très lente, et, à l'équilibre, seule une fraction du CO₂ dissous est convertie en H₂CO₃.

$$k_H = \frac{H_2CO_3}{[CO_2]_{aq}} \quad (3.17)$$

Dans l'eau, l'acide carbonique (H₂CO₃) se comporte comme un diacide faible dont la dissociation a lieu en deux phases :



Chacune de ces réactions est caractérisée par une constante d'équilibre (3.20 et 3.21) établie en considérant que l'activité chimique des ions est égale à leur concentration. Cette hypothèse est acceptable lorsque la solution est suffisamment diluée. Selon **Usdowski** (1982), ceci est vérifié pour un système CO₂-H₂O avec une pression partielle en CO₂ inférieure à 10⁵ Pa. Les coefficients d'activité $\gamma_i = a_i/[i]$ (a_i : activité chimique, $[i]$: concentration de l'espèce i) sont donc proches de l'unité.

$$K_1 = \frac{[HCO_3^-][H_3O^+]}{[H_2CO_3]} \quad (3.20)$$

$$K_2 = \frac{[CO_3^{2-}][H_3O^+]}{[HCO_3^-]} \quad (3.21)$$

A chacune de ces deux réactions de dissociation (3.18 et 3.19) correspond une acidité de H_2CO_3 : l'ion bicarbonate HCO_3^- et l'ion carbonate CO_3^{2-} . A l'équilibre, ces deux acidités ont des domaines de prédominance disjoints (**figure 3.5**). A 20°C, pour un *pH* supérieur à 10,3, c'est l'ion CO_3^{2-} qui prédomine et pour un *pH* compris entre 6,4 et 10,3 c'est l'ion HCO_3^- .

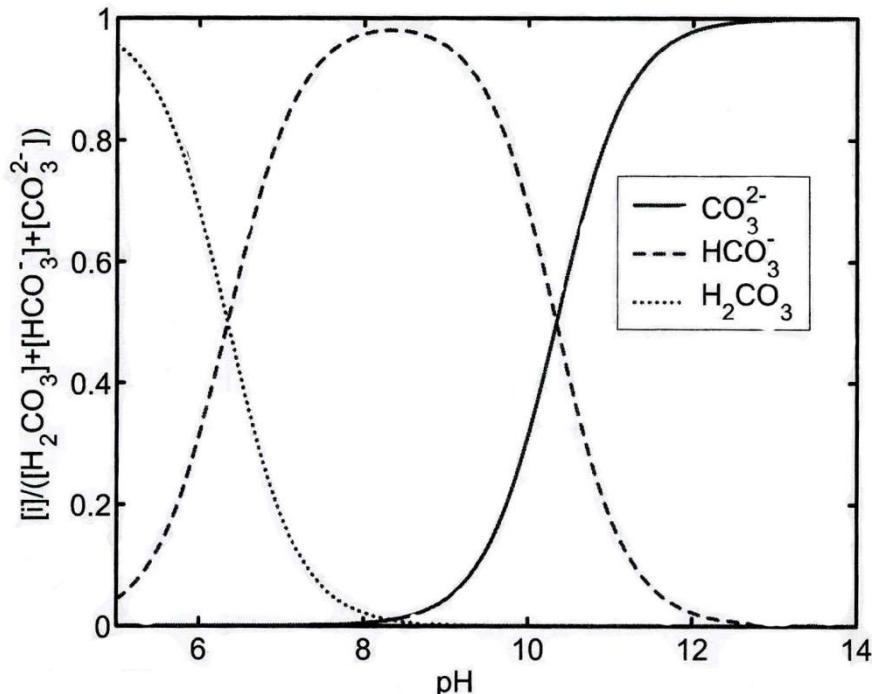


Figure 3.5 Fraction molaire des espèces H_2CO_3 , HCO_3^- , CO_3^{2-} en fonction du *pH* (à 20°C et à l'équilibre) (Thiery 2005)

Au cours de la carbonatation, le *pH* de la solution interstitielle du béton passe d'une valeur proche de 13, à une valeur inférieure à 9. L'existence de domaines de prédominance disjoints a donc un impact important sur le processus de carbonatation.

La réaction (3.22) traduit l'autoprotolyse de l'eau et l'équation (3.23) est l'équilibre associée.



$$K_E = [\text{OH}^-][\text{H}^+] \quad (3.23)$$

3.4.2 Carbonatation de la portlandite Ca(OH)_2

La dissolution du CO_2 suivant les réactions précédentes entraîne une acidification de la solution interstitielle des pores ; réduisant le pH . Pour rétablir la basicité du milieu, la portlandite se dissout suivant la réaction (3.24).



Les ions calcium ainsi libérés précipitent avec les ions carbonate pour former du carbonate de calcium CaCO_3 suivant la réaction :



3.4.3 Carbonatation des silicates de calcium hydratés C-S-H

La carbonatation des C-S-H donne naissance à du carbonate de calcium, à un composé siliceux hydraté (qualifié de « gel de silice ») et éventuellement à de l'eau libre. D'un point de vue topochimique, l'équation, symbolisant la réaction, peut s'écrire de la façon suivante (**Thiery** 2005) :



Dunster (1989) a proposé un mécanisme de carbonatation des C-S-H. Il met en évidence le passage par des intermédiaires de haut poids moléculaire dans la formation du matériau siliceux amorphe. Les ions carbonate arrachent des ions calcium aux C-S-H en libérant des anions silicate. Les ions calcium précipitent avec les ions carbonates, tandis que les anions silicate peuvent se condenser avec d'autres silicates des C-S-H. Les espèces produites sont des intermédiaires, qui peuvent à leur tour se condenser sur d'autres anions silicate pour, finalement, conduire à la formation de chaînes silicatées de plus en plus longues et de plus en

plus pauvres en calcium, au point de mener à un matériau amorphe, qui s'apparente à un gel de silice.

3.4.4 Carbonatation des autres constituants des matériaux cimentaires

Les alumates hydratés sont sensibles à la carbonatation. Une étude de **Sauman et Lach** (1972) indique qu'ils se carbonatent en produisant du carbonate de calcium, des hydroxydes d'aluminium et de l'eau. **Nishikawa et al.** (1992), **Chen et al.** (1994) ont étudié la carbonatation accélérée de l'ettringite synthétique et ils sont d'accord sur la production de gypse, de carbonate de calcium, de gel d'alumine et d'eau. **Nishikawa et al.** (1992) ont montré que la forme prédominante du carbonate de calcium est la vaterite dans la période initiale (3 jours) et l'aragonite dans les périodes ultérieures (10 jours).

3.4.5 Aspects morphologiques, cristallographiques et chimiques des carbonates de calcium formés

Différentes phases cristallines de carbonate de calcium sont identifiées dans les matériaux cimentaires carbonatés : la calcite, la vaterite et l'aragonite. Ces trois formes ont bien la même formule chimique, CaCO_3 , mais sont distinctes sur le plan cristallographique. La maille cristalline de la calcite est rhomboédrique, celle de l'aragonite est orthorhombique et celle de la vaterite est hexagonale. De plus, la morphologie des cristaux est très différente. Les cristaux de calcite s'apparentent à des macro-cristaux cubiques, dont la taille est de l'ordre du micromètre. Les cristaux de vaterite et d'aragonite sont de taille plus petite et de forme plutôt sphérique (**Hostomsky et Jones** 1991, **Taï et Chen** 1998, **Thiery** 2005).

Thiery (2005) a montré, par TG – ATD, sur des échantillons de pâtes de ciment carbonatées que la formation de calcite proviendrait essentiellement de la carbonatation de gros cristaux de $\text{Ca}(\text{OH})_2$, alors que la vaterite, l'aragonite et les carbonates de calcium amorphes seraient produits par la carbonatation des C-S-H. La présence de CaCO_3 métastable (vaterite et aragonite) dans la zone carbonatée semble caractéristique de la carbonatation accélérée (**Thiery et al.** 2007).

3.4.6 Effet de la carbonatation sur la microstructure

Les produits de carbonatation ont un volume molaire supérieur aux hydrates initiaux (Ca(OH)_2 et C-S-H) ; on s'attend donc à une diminution de la porosité (**tableau 3.4**).

Tableau 3.4 Propriétés des minéraux impliqués dans la carbonatation (Arandigoyen et al. 2006)

Minéral	Densité	Volume molaire ($\text{cm}^3 \cdot \text{mol}^{-1}$)	Forme de cristaux	Variation de volume par rapport à la portlandite (%)
Portlandite	2,23	33,20	Laminaire	-
Calcite	2,71	36,93	Prismatique	11,2
Aragonite	2,93	34,16	Fibreux	2,9
Vaterite	2,54	39,40	Sphérique	18,7

Ngala et Page (1997) ont étudié les effets de la carbonatation sur la structure poreuse de pâtes de ciment hydratées. Pour les pâtes de ciment de E/C variant de 0,4 à 0,7, ils observent des baisses de porosité totale comprises entre 10 et 15% avec une augmentation de la quantité de pores de diamètre supérieur à 30 nm.

Omkirine Metalssi (2006) a montré que la carbonatation des mortiers adjuvantés avec de l'éther de cellulose conduisaient à une diminution de leur porosité totale de 8%. Il a également constaté une augmentation de la quantité de pores de diamètre 0,9-2,5 μm et une réduction des autres pores.

Pour les pâtes de ciment CEM I de rapport E/C compris entre 0,25 et 0,60, **Thiery** (2005) a trouvé une réduction de la porosité au cours de la carbonatation (2 à 10%). Il a montré que cette réduction n'est pas uniquement due à la carbonatation de la portlandite, mais aussi à celle des C-S-H. En ce qui concerne la distribution en taille des pores, la carbonatation réduit la fraction volumique des pores de taille comprise entre 6 et 10 nm pour la pâte de ciment de E/C égal à 0,25 et entre 10 et 20 nm pour les autres pâtes. Mais parallèlement, la carbonatation crée une famille de pores de diamètre compris entre 80 et 100 nm d'autant plus

importante que le rapport E/C est élevé. Ces nouveaux pores sont dus au gel de silice formé après carbonatation des C-S-H (de structure très poreuse et de porosité centrée autour de 200 nm) et à la fissuration de la gangue de CaCO_3 qui entoure les cristaux de portlandite.

3.4.7 Paramètres influençant la carbonatation

3.4.7.1 Paramètres intrinsèques au matériau

a-Rapport E/C

Le rapport E/C a une influence importante sur l'interconnexion du réseau poreux et par conséquent sur la perméabilité du béton et sur la diffusivité des espèces gazeuses et ioniques. De nombreuses recherches ont été réalisées pour connaître l'influence du rapport E/C sur la vitesse de carbonatation (**Papadakis et al.** 1992, **Houst et Wittmann** 2002).

Houst et Wittmann (2002) ont examiné la carbonatation naturelle des mortiers de rapport E/C compris entre 0,4 et 0,9 après 40,5 mois. Ils ont trouvé une augmentation de la profondeur de carbonatation avec le rapport E/C .

Papadakis et al. (1992) montrent que la profondeur de carbonatation d'un béton fabriqué avec un ciment portland en conditions accélérées (50% de CO_2 , température de 30°C, 65% HR pour 100 jours) augmente lorsque le rapport E/C passe de 0,5 à 0,8.

La **figure 3.6** montre l'influence du rapport E/C sur la carbonatation de pâtes de ciment (**Baroghel - Bouy** 1994). La profondeur de carbonatation varie linéairement avec le rapport E/C pour des échantillons exposés à une carbonatation naturelle durant trois années.

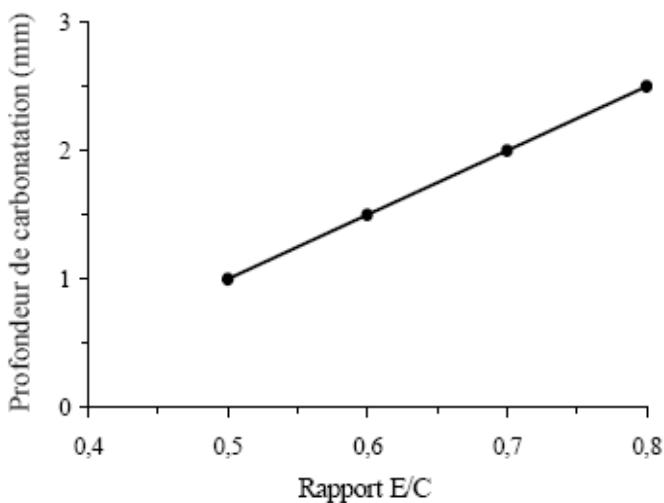


Figure 3.6 Influence du rapport E/C sur l'épaisseur carbonatée de pâtes de ciment (**Houst** cité par **Baroghel - Bouy** 1994)

b-Type du ciment

Plusieurs recherches ont été consacrées à l'influence du type de ciment sur la carbonatation (**Papadakis et al.** 1992, **Müller et Sickert** 1995, **Ngala et Page** 1997, **Zhang et al.** 2004).

Papadakis et al. (1992) ont étudié par modèle mathématique l'influence de l'incorporation de cendres volantes, en substitution du ciment ou des granulats, sur la profondeur de carbonatation. Le remplacement du ciment par des cendres volantes a pour effet d'accélérer la carbonatation. Le remplacement des granulats par des cendres volantes entraîne un effet opposé mais avec une tendance moindre.

Müller et Sickert (1995) ont comparé la résistance à la carbonatation de bétons fabriqués à partir de ciment portland ordinaire et de ciment à base de laitiers de haut fourneau. Ils montrent que les bétons de ciment à base de laitiers de haut fourneau se carbonatent beaucoup plus vite que les bétons de ciment portland pour un même rapport E/C.

c- Taux d'éther de cellulose

Omkirine Metalssi (2006) a effectué des essais de carbonatation accélérée sur deux mortiers contenant respectivement 0,5% et 0,27% d'éther de cellulose. Les proportions des autres constituants étaient identiques.

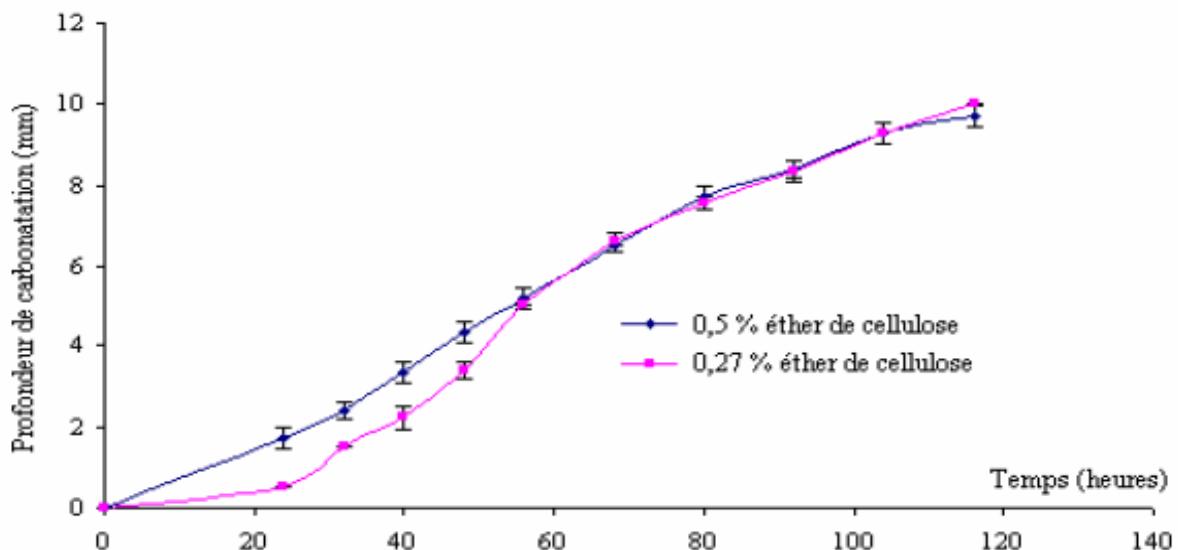


Figure 3.7 Evolution de la profondeur de carbonatation en fonction du temps pour des mortiers contenant différents pourcentages d'éther de cellulose (**Omkirine Metalssi** 2006)

Ce résultat montre que l'éther de cellulose peut jouer un rôle dans l'accélération de la carbonatation durant les premiers jours d'exposition au CO₂. L'effet du pourcentage d'éther de cellulose s'estompe à long terme. Ce résultat est à prendre avec précaution en raison d'un nombre limité de formulations étudiées.

d-Durée de cure

L'effet de la durée de cure (à 65% d'humidité relative dans une atmosphère dépourvue de CO₂) a été étudié par **Omkirine Metalssi** (2006) sur des mortiers adjuantés. Les résultats des essais ont montré que le taux de carbonatation diminue lorsque la durée de cure augmente. Au-delà de 7 jours de cure, cet effet s'estompe progressivement. La diminution de la vitesse de carbonatation serait due à la densification du matériau suite à son hydratation durant la cure, limitant ainsi la pénétration du CO₂.

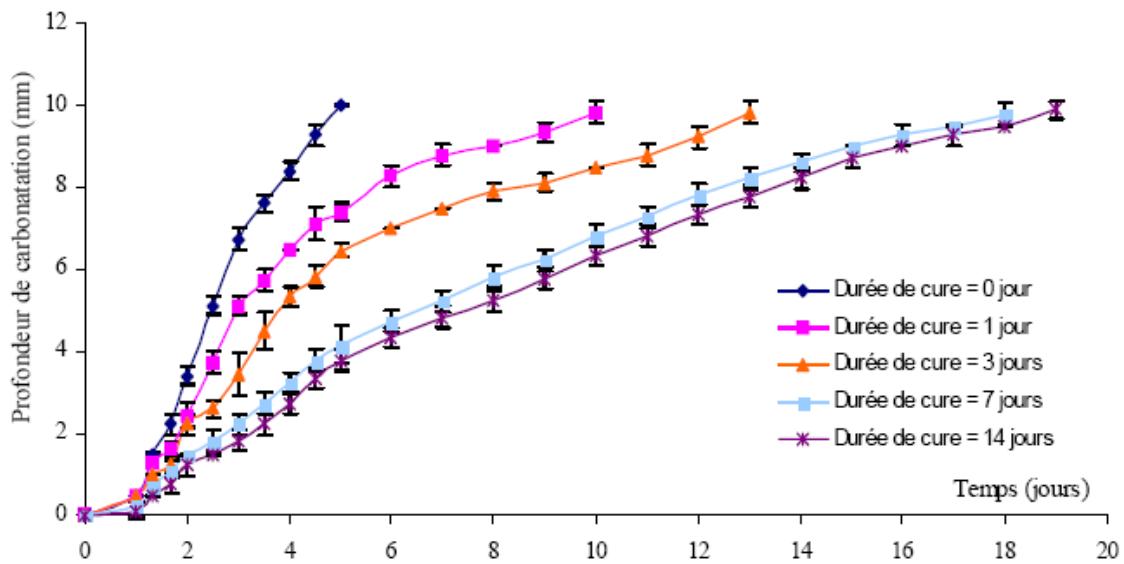


Figure 3.8 Profondeur de carbonatation en fonction du temps pour différentes durées de cure (Omkirine Metalssi 2006)

Loo et al. (1994) ont montré que le taux de carbonatation diminue lorsque l'on augmente la durée d'une cure dans l'eau. Ils notent toutefois, qu'à partir de 14 jours de cure, l'amélioration est moindre.

3.4.7.2 Paramètres extrinsèques

a-Humidité relative de l'air

Lorsque les bétons ou les mortiers sont saturés en eau, la cinétique de carbonatation est extrêmement lente puisque le coefficient de diffusion du dioxyde de carbone en phase liquide est 10^4 fois plus faible qu'en phase gazeuse. Dans le cas des matériaux secs, le gaz carbonique ne peut pratiquement pas réagir avec le ciment puisque la réaction ne peut se faire qu'en solution.

C'est pour une humidité relative comprise entre 50 et 65% que la vitesse de carbonatation est maximale (Chaussadent 1997).

b-Pression partielle en dioxyde de carbone

Il existe évidemment une corrélation étroite entre la pression partielle en CO₂ de l'atmosphère et l'aptitude du matériau à se carbonater.

Rougeau (1997) a étudié l'influence de la teneur en CO₂ sur la vitesse de carbonatation du béton. Six taux de CO₂, variant de 1 à 100% (pourcentages volumiques), et deux modes de préconditionnement ont été testés (séchage pendant 2 jours à 40°C ou 11 jours à 20°C et 65% HR). Pour les taux de CO₂ inférieur à 50%, la profondeur de carbonatation augmente avec le taux de CO₂, indépendamment du mode de préconditionnement. Au-delà de 50%, la carbonatation dépend beaucoup du préconditionnement et varie en sens inverse. Une teneur en CO₂ de l'ordre de 50% est recommandée.

Sanjuán et Del Olmo (2001) ont étudié la résistance à la carbonatation d'un mortier industriel utilisé comme revêtement de façade. Il a trouvé que plus le taux CO₂ est élevé, plus la carbonatation est importante (**figure 3.9**). Pourtant, un taux de CO₂ de 100% n'est pas conseillé dans les essais accélérés puisque la structure cristalline du carbonate de calcium formé est différente de celle du carbonate de calcium formé lors d'une carbonatation lente.

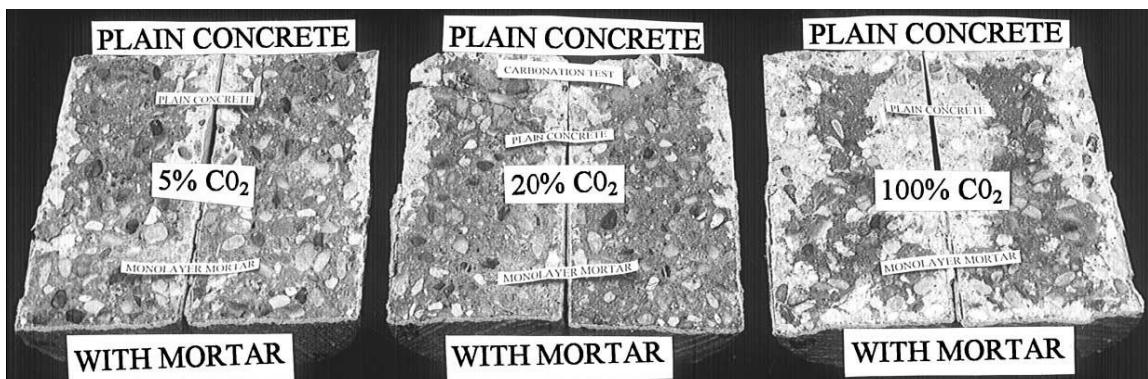


Figure 3.9 Echantillons de béton pulvérisés de phénolphtaléine (**Sanjuán et Del Olmo 2001**). Moitié inférieure : béton recouvert par du mortier ; Moitié supérieure : béton non recouvert

c-La température

Chaussadent (1997) a montré que la carbonatation est d'autant plus rapide que la température est basse. Il considère que la solubilité du CO₂ diminue quand la température augmente selon la relation empirique suivante :

$$s = 5,283 \times 10^{-6} \exp\left(\frac{2608,2}{T}\right)$$

où s (mol.l⁻¹) est la solubilité du CO₂ dans l'eau et T (K) est la température absolue.

Au cours de ce chapitre, nous avons présenté le mécanisme d'hydratation des phases constitutives du ciment. Nous avons également mis en évidence le rôle du filler calcaire sur le mécanisme d'hydratation et l'effet de l'éther de cellulose sur la microstructure du mortier durci. La carbonatation des hydrates et son effet sur la microstructure ont été ensuite abordés.

Dans la partie suivante, les matériaux et les méthodes utilisés pour la mise au point de l'essai accéléré d'encrassement biologique en laboratoire seront présentées.

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES 1

- Alexander M.** (1977). *An introduction to soiling microbiology*. John Wiley & Sons, New York.
- Ariño X. & Saiz-Jimenez C.** (1996). *Factors affecting the colonization and distribution of cyanobacteria, algae and lichens in ancient mortars*. In 8th International Congress on Deterioration and Conservation of Stone, Berlin, 725-731.
- Arandigoyen M., Bicer-Simsir B., Alvarez J.I. & Lange D.A.** (2006). *Variation of microstructure with carbonation in lime and blended pastes*. Applied Surface Science, 252, 7562-7571.
- Barberousse H.** (2006). *Etude de la diversité des algues et des cyanobactéries colonisant les revêtements de façade en France et recherche des facteurs favorisant leur implantation*. Thèse de doctorat, Muséum National d'Histoire Naturelle, Paris.
- Barberousse H., Lombardo R.J., Tell G. & Couté A.** (2006). *Factors involved in the colonisation of building façades by algae and cyanobacteria in France*. Biofouling, 22, 69-77.
- Barberousse H., Ruot B., Yéprémian C. & Boulon G.** (2007). *An assessment of façade coatings against colonisation by aerial algae and cyanobacteria*. Building and Environment, 42, 2555-2561.
- Bell W.H., Lang J.M. & Mitchell R.** (1974). *Selective stimulation of marine bacteria by algal extracellular products*. Limnology and Oceanography, 19, 833-839.
- Bell W.H. & Sakshaug E.** (1980). *Bacterial utilisation of algal extracellular products. 2. A kinetic study of natural populations*. Limnology and Oceanography, 25, 1021-1033.
- Bold H. & Wynne M.J.** (1985). *Introduction to the algae: Structure and Reproduction*. Prentice Hall Inc., London.

- Bourrelly P.** (1966). *Les algues d'eau douce. Initiation à la systématique. I. Algues vertes*. N. Boubée & Cie, Paris.
- Brocken H. & Nijland T.G.** (2004). *White efflorescence on brick masonry and concrete masonry blocks, with special emphasis on sulfate efflorescence on concrete blocks*. Construction and Building Materials, 18, 315–323.
- Caneva G., Nugari M.P. & Salvadori O.** (1991). *Biology in the conservation of works of art*. ICCROM, Rome.
- Chaussadent T.** (1997). *Etat des lieux et réflexions sur la carbonatation du béton armé*. Laboratoire Central des Ponts et Chaussées Paris.
- Chen X., Zou R. & Chen X.** (1994). *Kinetic Study of ettringite carbonation reaction*. Cement and Concrete Research, 24, 1383-1389.
- Chevalier B. & Chevalier J.L.** (1991). *Caractérisation optique des enduits de façade : Influence de la teinte et de la rugosité sur la température atteinte au soleil*. Cahiers du CSTB.
- Crispim C.A., Gaylarde P.M. & Gaylarde C.C.** (2003). *Algal and cyanobacterial biofilms on calcareous historic buildings*. Current Microbiology, 46, 79-82.
- CSTB** (2005). *Salissures de façade : comment les éviter ? Exemples de solutions techniques*. Guide pratique du CSTB.
- CSTB** (2008). *Les enduits de façade : Mise en œuvre des enduits minéraux sur supports neufs et anciens*. Guide pratique du CSTB.
- Danckwerts P.V.** (1970). *Gas-Liquid Reactions*. McGraw-Hill Book Company, New York.
- Danin A.** (1983). *Weathering of limestone in jerusalem by cyanobacteria*. Z. Geomorphol, 27, 413-421.
- Darlington A.** (1981). *Ecology of walls*. Heineman, London.
- De Leo F. & Urzì C.** (2006). *Fungi in the biodeterioration of Cultural Heritage*. In: The Materials of Cultural Heritage in their environment, Lefèvre R.A., (Eds), Edipuglia 2006.

- De Muynck W.D., Ramirez A.M., Belie N.D. & Verstraete W.** (2009). *Evaluation of strategies to prevent algal fouling on white architectural and cellular concrete.* International Biodeterioration & Biodegradation, 63, 679-689.
- Deruelle S.** (1991). *Rôle du support dans la croissance des microorganismes.* Matériaux et Constructions, 24, 163-168.
- Diederich P., Ertz D., Stapper N., Sérusiaux E., Van den Broeck D., Van den Boom P. & Ries C.** (2011). *The lichens and lichenicolous fungi of Belgium, Luxembourg and northern France.* <http://www.lichenology.info>.
- Dooley K.M., Knopf F.C. & Gambrell R.P.** (1999). *pH-neutral concrete for attached microalgae and enhanced carbon dioxide fixation – Phase I.* Technical report. http://www.osti.gov/energycitations/product.biblio.jsp?osti_id=778919.
- Dow C. & Glasser F.P** (2003). *Calcium carbonate efflorescence on Portland cement and building materials.* Cement and Concrete Research, 33, 147-154.
- Dring M.J.** (1988). *Photocontrol of development in algae.* Ann. Rev. Plant Physiol. Mol. Biol., 39, 157–174.
- Dubosc A.** (2000). *Etude du développement de salissures biologiques sur les parements en béton: Mise au point d'essais accélérés de vieillissement.* Thèse de doctorat, Institut National des Sciences Appliquées de Toulouse.
- Dunster A.M.** (1989). *An investigation of the carbonation of cement paste using trimethylsilylation.* Advances in Cement Research, 2, 99-106.
- Edwards P.** (1970). *Field and cultural observations on the growth and reproduction of Polysiphonia denudata from Texas.* European Journal of Phycology, 5, 145-153.
- Edwards C.** (2000). *Problems posed by natural environments for monitoring microorganisms.* Molecular Biotechnology, 15, 211-223.
- Escadeillas G., Bertron A., Ringot E., Blanc P.J. & Dubosc A.** (2009). *Accelerated testing of biological stain growth on external concrete walls. Part 2: Quantification of growths.* Materials and Structures, 42, 937-945.

- Flores-Colen I., De Brito J. & De Freitas V.** (2008). *Stains in façades rendering - Diagnosis and maintenance techniques classification*. Construction and Building Materials, 22, 211-221.
- Flori J.P.** (1992). *Influence des conditions climatiques sur le mouillage et le séchage d'une façade verticale*. Cahiers du CSTB.
- Franklin L.A & Forster R.M.** (1997). *The changing irradiance environment: consequences for marine macrophyte physiology, productivity and ecology*. European Journal of Physiology, 32, 207-223.
- Gaylarde P.M. & Gaylarde C.C.** (2000). *Algae and cyanobacteria on painted buildings in Latin America*. International Biodeterioration & Biodegradation, 46, 93-97.
- Gaylarde C.C. & Gaylarde P.M.** (2005). *A comparative study of the major microbial biomass of biofilms on exteriors of buildings in Europe and Latin America*. International Biodeterioration & Biodegradation, 55, 131-139.
- Grant C.** (1982). *Fouling of terrestrial substrates by algae and implications for control - A review*. International Biodeterioration Bulletin, 18, 57-65.
- Grant C. & Bravery A.F.** (1985). *A new method for assessing the resistance of stone to algal disfigurement and the efficacy of chemical inhibitors*. In Vth international congress on deterioration and conservation of stone. Proceedings, Lausanne, 25-27 September 1985.
- Guilbeau B.P., Harry F.P., Gambrell R.P., Knopf F.C. & Dooley K.M** (2003). *Algae attachment on carbonated cements in fresh and brackish waters-preliminary results*. Ecological Engineering, 20, 309-319.
- Görs S., Schumann R., Häubner N. & Karsten U.** (2007). *Fungal and algal biomass in biofilms on artificial surfaces quantified by ergosterol and chlorophyll a as biomarkers*. International Biodeterioration & Biodegradation, 60, 50-59.
- Grossi C.M, Esbert R.M., Díaz-Pache F. & Alons F.J.** (2003). *Soiling of building stones in urban environments*. Building and Environment, 38, 147-159.
- Guillitte O.** (1995). *Bioreceptivity: A new conception for building ecology studies*. The Science of the Total Environment, 167, 215-220.

- Guillitte O. & Dreesen R.** (1995). *Laboratory chamber studies and petrographical analysis as bioreceptivity assessment tools of building materials*. The Science of the Total Environment, 167, 365-374.
- Han T., Chung H. & Kang S.H.** (1998). *UV photobiology of marine macroalgae*. Korean J. Polar Res., 9, 37-46.
- Häder D.P. & Figueroa F.L.** (1997). *Photoecophysiology of Marine Macroalgae*. Photochemistry and Photobiology, 66, 1-14.
- Hill A.S. & Hawkins S. J.** (1990). *An investigation of methods for sampling microbial films on rocky shores*. Journal of the Marine Biological Association of the United Kingdom, 70, 77-88.
- Hostomsky J. & Jones A.G.** (1991). *Calcium carbonate crystallization, agglomeration and form during continuous precipitation from solution*. Journal of Physics D: Applied Physics, 24, 165-170.
- Houst Y.F. & Wittmann F.H.** (2002). *Depth profiles of carbonates formed during natural carbonation*. Cement and Concrete Research, 32, 1923-1930.
- Hueck-van Der Plas E.H.** (1965). *The biodeterioration of materials as a part of hylobiology*. Mater. Organisme, 1, 5-34.
- Hyvert G.** (1973). *Borobudur, les bas-reliefs matériaux - facteurs responsables des dégradations - programme de conservation*. Stud. Conserv., 18, 131-155.
- Jenni A., Holzer L., Zurbriggen R. & Herwegh M.** (2005). *Influence of polymers on microstructure and adhesive strength of cementitious tile adhesive mortars*. Cement and Concrete Research, 35, 35-50.
- John D.M.** (1988). *Algal growth on buildings: A general review and methods of treatment*. Biodeterioration Abstracts, 2, 81-102.
- Joshi C.D. & Mukunda U.** (1997). *Algal disfigurement and degradation of architectural paints in India*. Paintindia, 47, 27-32.
- Khandelwal A.** (2001). *Sampling and estimate fungal biodeteriogens of Lucknow, India*. In 5th International Conference on Biodeterioration of cultural property, Sydney.

- Kumar R. & Kumar A.V.** (1999). *Biodeterioration of stone in tropical environments: An Overview*. Oxford university press.
- Loh W.S.** (2002). *Product development for green productivity – a case study of the development of algae resistant surface coating for building facades in the human tropics*. In 2nd World Conference on Green Productivity, Johannesburg.
- Lokhorst G.M.** (1984). *Current ideas on classification of the ulotrichales borzi*. In *Systematics of the green algae*, Irvine, D. E. G. & John D. M. (Eds.), Academic Press, London and Orlando, 179-206.
- Loo Y.M., Chin M.S., Tam C.T. & Ong K.C.G.** (1994). *A carbonation prediction model for accelerated carbonation testing of concrete*. Magazine of Concrete Research, 46, 191-200.
- Loutz S. & Dinne K.** (2000). *Salissures et altérations des matériaux pierreux par les micro-organismes*. CSTC Magazine, 2, 2-13.
- Lüning K.** (1980). *Critical levels of light and temperature regulating the gametogenesis of three Laminaria species (Pheophyceae)*. J. Phycol., 16, 1–15.
- Lynch J.M. & Hobbie J.E.** (1988). *Micro-organisms in action: Concepts and application in microbial ecology*. Blackwell Scientific Publications, Oxford.
- MacDonald J.** (1993). The effects of commercial chemical cleaning processes on sandstones in Scotland. Thèse de doctorat, The Robert Gordon University, Aberdeen.
- Miller A., Dionísio A. & Macedo M.F.** (2006). *Primary bioreceptivity : A comparative study of different Portuguese lithotypes*. International Biodeterioration & Biodegradation, 57, 136-142.
- Müller A. & Sickert G.** (1995). *Determination of the carbonation resistance of concrete on the basis of its capillarity and microstructure*. Betonwerk + Fertigteil-Technic, 11, 70-88.
- Neville A.M.** (2000). *Propriétés des bétons*. Eyrolles, Paris.
- Ngala V.T. & Page C.L.** (1997). *Effects of carbonation on pore structure and diffusional properties of hydrated cement pastes*. Cement and Concrete Research, 27, 995-1007.

- Nishikawa T., Suzuki K. & ITO S.** (1992). *Decomposition of synthesized ettringite by carbonation*. Cement and Concrete Research, 22, 6-14.
- Norall T.L., Mathieson A.C. & Kilar J.A.** (1981). *Reproductive ecology of four subtidal red algae*. J. Exp. Mar. Biol. Ecol., 54, 119-136.
- Nørdby Ø.** (1977). *Optimal conditions for meiotic spore formation in Ulva mutabilis Føyn*. Bot. Mar., 20, 19-28.
- Ohshima A., Matsui I., Yuasa N. & Henmi Y.** (1999). *A study on growth of fungus and algae on mortar*. Transactions of the Japan Concrete Institute, 21, 173-178.
- Omikrine Metalssi O.** (2006). *Étude des couplages hydratation-échanges hydriques-carbonatation dans les mortiers modifiés polymères*. Thèse de doctorat, Université de La Rochelle.
- Ortega-Calvo J.J., Hernandez-Marine M. & Saiz-Jimenez C.** (1991). *Biodeterioration of building materials by cyanobacteria and algae*. International Biodeterioration, 28, 165-185.
- Ortega-Calvo J.J., Sanchez-Castillo P.M., Hernandez-Marine M. & Saiz-Jimenez C.** (1993). *Isolation and characterization of epilithic chlorophytes and cyanobacteria from two Spanish cathedrals (Salamanca and Toledo)*. Nova Hedwigia 57, 239-253.
- Papadakis V.G., Fardis M.N. & Vayenas C.G.** (1992). *Effect of compostion, environmental factors and cement-lime mortar coating on concrete carbonation*. Materials and Structures, 25, 293-304.
- Perrichet A.** (1991). *Développement de micro-organismes à la surface des bétons et enduits*. Sycodès Informations, 11, 19-24.
- Perrin F.** (1995). *L'encrassement des façades, principe et processus*. Rapport interne de l'ANAH.
- Pickett-Heaps J. D.** (1975). *Green algae: Structure, reproduction, and evolution in selected genera*. Sinauer Associates, Inc., Sunderland Massachusetts.

- Pietrini A.M., Ricci M., Bartolini M. & Giuliani M.R.** (1985). *A reddish colour alteration caused by algae on stoneworks*. In Vth international congress on deterioration and conservation of stone, Lausanne, 653-662.
- Pouličková A., Dřímalová D., Novotný R., Válová P. & Havránek P.** (2001). *Morphological reponses to varying environmental conditions in Klebsormidium flaccidum isolated from marrocan desert soils*. Nova Hedwigia, 123, 397-409.
- Pourchez J., Ruot B., Debayle J., Pourchez E. & Grosseau P.** (2010). *Some aspects of cellulose ethers influence on water transport and porous structure of cement-based materials*. Cement and Concrete Research, 40, 242-252.
- Prieto B., Silva B. & Lantes O.** (2004). *Biofilm quantification on stone surfaces: comparison of various methods*. Science of The Total Environment, 333, 1-7.
- Ritchie T.** (1961). *Efflorescence*. Digest de la Construction au Canada, Institut de Recherche en Construction, Conseil National des Recherches, Canada.
- Rindi F. & Guiry M.D.** (2004). *Composition and spatial variability of terrestrial algal assemblages occurring at the bases of urban walls in Europe*. Phycologia, 43, 225-235.
- Rindi F., Guiry M.D. & López-Bautista J.M.** (2008). *Distribution, morphology, and phylogeny of Klebsormidium (Klebsormidiales, Charophyceae) in urban environments in Europe*. Journal of Phycology, 44, 1529-1540.
- Rougeau P.** (1997). *Les résultats d'essais croisés AFREM: Essai de carbonatation accélérée*. In : *Etat des lieux et reflexions sur la carbonatation du béton armé*. Laboratoire Central Des Ponts et Chaussées Paris.
- Round F.E.** (1973). *The biology of the algae*. Edward Arnold, London.
- Sanjuán M.A. & Del Olmo C.** (2001). *Carbonation resistance of one industrial mortar used as a concrete coating*. Building and Environment, 36, 949-953.
- Sarabhai B.P. & Arora C.K.** (1995). *Textbook of algae*. Anmol Publications PVT LTD, New Delhi.
- Sauman Z. & Lach V.** (1972). *Long term carbonization of the phases $3CaO.Al_2O_3.6H_2O$ and $3CaO.Al_2O_3.SiO_2.4H_2O$* . Cement and Concrete Research, 2, 435-446.

- Saiz-Jimenez C., Garcia-Rowe J., Garcia del Cura M.A., Ortega-Calvo J.J., Roekens E. & Van Grieken R.** (1990). *Endolithic cyanobacteria in Maastricht limestone*. Sci. Total Environ., 94, 209-220.
- Schlichting H.E.** (1975). *Some subaerial algae from Ireland*. British Phycological Journal 10, 257-261.
- SNMI** (2010). *Syndicat National des Mortiers Industriels*. www.snmi.org.
- Škaloud P.** (2006). *Variation and taxonomic significance of some morphological features in european strains of Klebsormidium (Klebsormidiophyceae, Streptophyta)*. Nova Hedwigia, 83, 533-550.
- Stewart K.D. & Mattox K.R.** (1975). *Comparative cytology, evolution and classification of the green algae, with some consideration of the origin of other organisms with chlorophylls a and b*. Bot. Rev., 41, 104-135.
- Tai C.Y. & Chen F.B.** (1998). *Polymorphism of CaCO₃ precipitation in a constant composition environment*. Journal for the American Institute of Chemical Engineers, 44, 1790-1798.
- Taylor H.F.W.** (1990). *Cement chemistry*. Academic Press.
- Thiery M.** (2005). *Modélisation de la carbonatation atmosphérique des matériaux cimentaires ; prise en compte des effets cinétiques et des modifications microstructurales et hydriques*. Thèse de doctorat, Ecole Nationale des Ponts et Chaussées de Paris.
- Thiery M., Villain G., Dangla P. & Platret G.** (2007). *Investigation of the carbonation front shape on cementitious materials: Effects of the chemical kinetics*. Cement and Concrete Research, 37, 1047-1058.
- Tong Y., Tu H. & Fei L.** (1991). *Comparaison between the hydration processes of tricalcium silicate and beta-dicalcium silicate*. Cement and Concrete Research, 21, 509-514.
- Usdowski E.** (1982). *Reactions and equilibria in the systems CO₂ - H₂O and CaCO₃ - CO₂ - H₂O*. N. Jb. Miner. Abh., 144, 148-171.

Vallée F. (1999). *Durabilité des composites polymères/ciment : Application au cas des enduits minces sur isolants*. Thèse de doctorat, Institut National Polytechnique de Grenoble.

Verhoef L.G.W. (1986). *Soiling and cleaning of building façades*. RILEM Report, Technical Committee, 62.

Warscheid T., Becker T., Braams J., Bruggerhoff S., Gehrmann C., Krumbein W.E. & Petersen K. (1993). *Studies on the temporal development of microbial infection of different types of sedimentary rocks and its effect on the alteration of the physico-chemical properties in building materials*. In *Consevation of stone and other materials*, M. Thiel (Ed.), E & FN Spon, London, 303-310.

Wee Y.C. & Lee K.B. (1980). *Proliferation of algae on surfaces of buildings in Singapore*. International Biodeterioration Bulletin, 16, 113-117.

Wéry M. (2002). *Décapage mécanique des surfaces métalliques*. Techniques de l'Ingénieur.

Wilimzig M., Fahrig N., Meyer C. & Bock E. (1993). *Biogene schwarze krusten auf gesteinen*. Bautenschutz + Bausanierung, 16, 22-25.

Young M.E. (1997). *Biological growth and their relationship to the physical and chemical characteristics of sandstones before and after cleaning*. Thèse de doctorat, The Robert Gordon University, Aberdeen.

Zhang X., Wu K. & Yan A. (2004). *Carbonation property of hardened binder pastes containing super-pulverized blast-furnace slag*. Cement and Concrete Composites, 26, 371-374.

Démarche expérimentale

Chapitre 4 MATERIELS ET METHODES

4.1 Techniques microbiologiques

4.1.1 Conditions de culture des algues

4.1.1.1 Milieu de culture

Les souches axéniques *Klebsormidium flaccidum* 749B proviennent de l'algothèque ALCP/PMC WDCM 792 du Muséum National d'Histoire Naturelle (Paris, France). Les souches d'algues sont cultivées dans le milieu de culture Bold de base. Ce milieu est préparé à partir de deux solutions aqueuses minérales A, B et d'une solution trace détaillées dans le **tableau 4.1**.

Tableau 4.1 Composition des trois solutions A, B et trace du milieu de culture Bold de base

	Produit	Concentration (g.L ⁻¹)
Solution A	NaNO ₃	25
	CaCl ₂ .2H ₂ O	2,5
	MgSO ₄ .6H ₂ O	6,95
	Fe EDTA	2
Solution B	K ₂ HPO ₄	7,5
	KH ₂ PO ₄	17,5
	NaCl	2
Solution trace	H ₃ BO ₃	2,4
	MnCl ₂ .4H ₂ O	1,8
	(NH ₄) ₆ Mo ₇ O ₂₄ .4H ₂ O	0,02
	ZnSO ₄ .7H ₂ O	0,22
	CuSO ₄ .5H ₂ O	0,08
	Co(NO ₃) ₂ .6H ₂ O	0,143
	VoSO ₄ .5H ₂ O	0,557

Pour préparer 1 L de milieu de culture de type Bold de base, 10 mL de solution A, 10 mL de solution B et 1 mL de solution trace sont ajoutés à de l'eau désionisée. La solution est ensuite stérilisée à 120°C pendant 20 min en autoclave.

4.1.1.2 Mise en culture et maintien cellulaire

La mise en culture et le maintien cellulaire des souches d'algues nécessitent plusieurs étapes (**figure 4.1**).

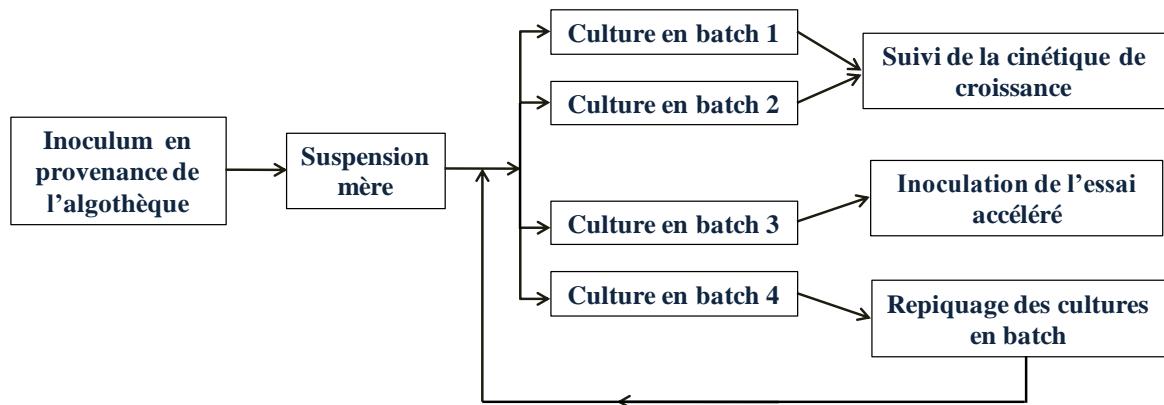


Figure 4.1 Etapes de la mise en culture et maintien cellulaire des souches d'algue

La suspension mère est obtenue par dilution de 50 mL inoculum par 400 mL de milieu de Bold de base. Après 24 jours de culture, la suspension mère se trouve en phase de croissance exponentielle. Elle est ensuite repiquée en 4 batchs avec la même dilution. Deux batchs (1 et 2) sont utilisés pour suivre la croissance des algues. Un des batchs (3) est utilisé pour inoculer l'essai accéléré d'encrassement biologique (*partie 4.3.1*) et le dernier (4) est utilisé pour repiquer un milieu neuf. Afin d'avoir toujours à disposition des algues fraîches dans le même état pour démarrer l'essai accéléré, le repiquage est effectué au bout de 24 jours de croissance.

Toutes les cultures sont effectuées dans des flacons en verre de contenance d'1 L, dans les mêmes conditions d'agitation, de température et d'éclairage.

Les cultures sont maintenues sous agitation à l'aide d'un agitateur magnétique à une vitesse fixée de 100 rpm pendant la période diurne. En revanche, aucune agitation n'est réalisée pendant la période nocturne. L'apport de dioxyde de carbone est assuré par un bullage d'air dans la culture. L'air qui y est introduit est préalablement passé à travers une solution de CuSO₄ ($c = 15 \text{ g.L}^{-1}$), afin d'éliminer les éventuelles spores (figure 4.2). Les cultures sont placées dans une chambre climatisée à 20°C et sont éclairées par deux lampes fluorescentes OSRAM Fluora L36W/77 selon une photopériode de 12 h.

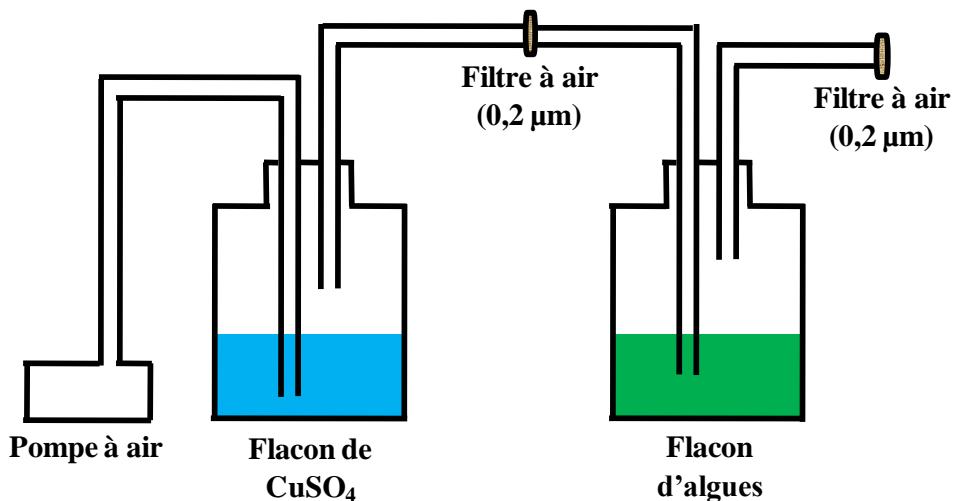


Figure 4.2 Culture de la souche *Klebsormidium flaccidum* 749B sous bullage d'air et agitation magnétique

4.1.2 Suivi de la croissance des algues

4.1.2.1 Mesure des spectres d'absorption des suspensions d'algues

La concentration des algues au sein des cultures microbiennes est évaluée par spectrophotométrie d'absorption dans le visible. Deux millilitres de culture d'algues sont placés dans une cuve en PMMA. Le spectre d'absorption est enregistré à l'aide d'un spectrophotomètre Cary 300, Varian, entre 400 et 800 nm. La solution est diluée 2 fois, à partir de 24 jours de culture, afin de ne pas dépasser une densité optique de 0,8 quelle que soit la longueur d'onde.

Une culture d'algues est une suspension cellulaire, qui peut être modélisée comme étant une suspension de particules monodisperses diffusant et absorbant la lumière. Dans le cas de

suspensions diluées, il existe une relation entre la concentration en particules et la densité optique (D_0) selon la loi de Beer-Lambert :

$$D_0(\lambda) = \log \frac{I_0(\lambda)}{I_f(\lambda)} = C_{ext}LN_p \quad (4.1)$$

Où :

D_0 : densité optique (ou absorbance) de la solution à la longueur d'onde λ

I_0 : intensité du rayonnement incident transmis à travers le solvant pur

I_f : intensité de rayonnement transmis à travers la solution

$C_{ext} = C_{abs} + C_{sca}$ coefficient d'extinction, somme du coefficient d'absorption (C_{abs}) et du coefficient de diffusion pure (C_{sca})

L : longueur du trajet optique correspondant à l'épaisseur de la cuve utilisée

N_p : concentration en particule de la solution

La densité optique de la suspension d'algues a été déterminée à 760 nm. En effet, l'absorption des pigments (chlorophylles et caroténoïdes) à 760 nm est très faible. La densité optique mesurée à 760 nm ne dépend donc pas de la teneur en pigments des cellules d'algue mais essentiellement de la quantité de cellules dans la culture. Il s'agit de la densité optique apparente due à la diffusion de la lumière par les algues.

4.1.2.2 Détermination de la concentration des algues par mesure de la masse sèche

Des filtres en acétate de cellulose de porosité 0,45µm (Sartorius Stedim Biotech 11106-047N) sont préalablement séchés à 60°C pendant 24 h. Leur masse est enregistrée. Un volume connu de culture d'algues (30 mL pendant les dix premiers jours de culture et 15 mL ensuite) est filtré sous vide sur ces membranes grâce à une trompe à eau. Ces filtres sont ensuite séchés à nouveau à 60°C pendant 24 h. La masse correspondant aux micro-organismes secs est ensuite

déterminée et rapportée au volume filtré. La masse sèche est exprimée en mg.mL^{-1} . Cette méthode ne permet pas de distinguer les cellules viables des cellules mortes.

4.1.2.3 Comptages cellulaires

Cette technique permet de déterminer le nombre de cellules contenues dans un volume précis de milieu liquide. La concentration cellulaire s'exprime en nombre de cellule par mL.

La numération cellulaire est réalisée directement par comptage au microscope, à l'aide d'une cellule de numération (cellule de Malassez). Les cellules vivantes sont uniquement comptées. Pour chaque culture d'algues, le comptage est fait sur 25 rectangles de la grille de la cellule de Malassez équivalent de $0,01 \text{ mm}^3$ en volume.

4.1.2.4 Mesure de la fluorescence chorophyllienne

La mesure de fluorescence dite « lente » permet d'évaluer l'ensemble de l'activité photosynthétique des micro-algues : absorption de la lumière, transport et conversion des photons dans le mécanisme de photosynthèse (**Védrine** 2003).

La fluorescence est mesurée à l'aide d'un spectrofluorimètre Spex Fluorolog 0.22 m 1681. Un volume de 3,5 mL de suspension d'algues est agité dans une cuve en quartz. La lumière d'excitation est émise par une lampe xénon (150 W) et la lumière de fluorescence est détectée par un photomultiplicateur R928 Hamamatsu refroidi par effet Peltier.

L'émission de fluorescence des cellules d'algue présente un maximum d'intensité vers 685 nm et un épaulement vers 740 nm (**Rabinowitch** et **Govindjee** 1969).

La longueur d'onde d'excitation optimale est déterminée en mesurant l'émission à 685 nm. Le spectre d'excitation comporte trois pics à 430 nm, 467 nm et 646 nm. Ces pics sont également observés par **Babichenko** et *al.* (2001) et **Védrine** (2003). La longueur d'onde pour laquelle l'excitation est maximale est 467 nm.

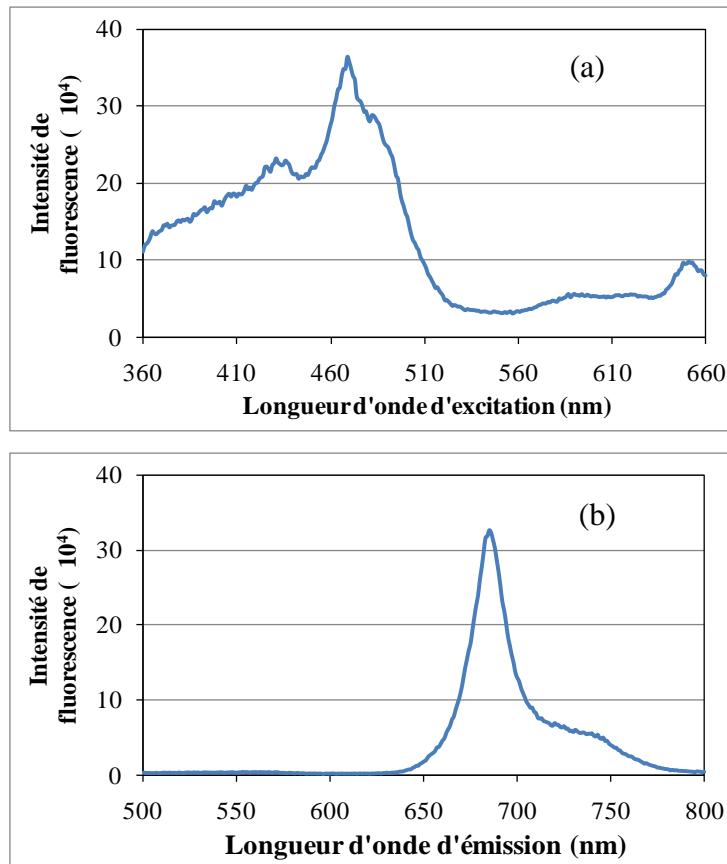


Figure 4.3 Spectre d'excitation (a) ($\lambda_{\text{émission}} = 685 \text{ nm}$) et d'émission (b) ($\lambda_{\text{excitation}} = 467 \text{ nm}$) d'une suspension d'algue *Klebsormidium flaccidum*

La longueur d'onde d'excitation à 467 nm et la longueur d'onde d'émission à 685 nm ont été utilisées pour les mesures de fluorescence.

L'intensité de fluorescence correspond à la valeur moyenne obtenue pendant 3 minutes après 4 minutes de stabilisation sans excitation.

4.1.2.5 Suivi du pH

Le pH du filtrat issu de la mesure de la masse sèche a été suivi. L'électrode combinée WTW Sentix Sur a été utilisé. Le filtrat est homogénéisé par agitation magnétique lors de la mesure.

4.1.2.6 Suivi de la composition du milieu de culture

La concentration des ions présents dans la suspension d’algues est déterminée par chromatographie ionique (CI). Cette technique est basée sur les propriétés des résines échangeuses d’ions qui permettent une fixation sélective des anions ou des cations présents dans une solution.

L’appareil utilisé est un Dionex DX500. Pour le dosage des anions, une colonne AS11-HC (Dionex) contenant des groupes fonctionnels d’ammonium quaternaire a été utilisée avec comme l’éluant une solution de NaOH ($c = 25 \text{ mM}$). Pour le dosage des cations, une colonne CS5A (Dionex) contenant des groupes fonctionnels d’acide sulfonique a été utilisée. L’éluant est une solution de HMSA (acide hydroxyméthanesulphonique) ($c = 22 \text{ mM}$). Le volume de la boucle d’injection était de $25 \mu\text{L}$. Le débit est de $1,5 \text{ mL}\cdot\text{min}^{-1}$ pour l’analyse anionique et de $1 \text{ mL}\cdot\text{min}^{-1}$ pour l’analyse cationique. Chaque espèce ionique est ensuite détectée et dosée par un détecteur conductimétrique en sortie de colonne.

4.2 Le mortier

4.2.1 Composition du mortier

La composition du mortier type pour cette étude est détaillée dans le **tableau 4.2**.

Le rapport massique eau/ciment (E/C) du mortier type est fixé à 1. Plusieurs rapports E/C ont été utilisés dans le but de faire varier uniquement la porosité. Toutefois, pour les mortiers de faible rapport E/C , l’éther de cellulose a été supprimé en raison de la faible maniabilité de la pâte (*partie 4.2.3.1*).

Tableau 4.2 Composition du mortier de formulation CEReM (% en masse)

Ciment	Sable	Filler Calcaire	Ether de cellulose ^a	E/C
30 %	65 %	5 %	0,27 %	1

^a : par rapport à la masse sèche (ciment, sable et filler calcaire)

Le ciment utilisé est de type CEM I 52,5N CP2 HOLCIM (Héming, France).

Le sable est de type Sibelco DU 0,1/0,35. Sa composition chimique fournie par le fabricant est donnée dans le **tableau 4.3**.

Tableau 4.3 Composition chimique du sable Sibelco DU 0,1/0,35

SiO₂	Fe₂O₃	Al₂O₃	TiO₂	CaO	K₂O	MgO	Na₂O
> 98,2 %	< 0,055 %	< 0,9 %	< 0,023 %	< 0,030 %	< 0,430 %	< 0,040 %	< 0,090 %

La **figure 4.4** donne la courbe de distribution granulométrique fournie par le fabricant de ce sable. L'ouverture de maille pour laquelle 50% du sable est refusé est de 248 µm.

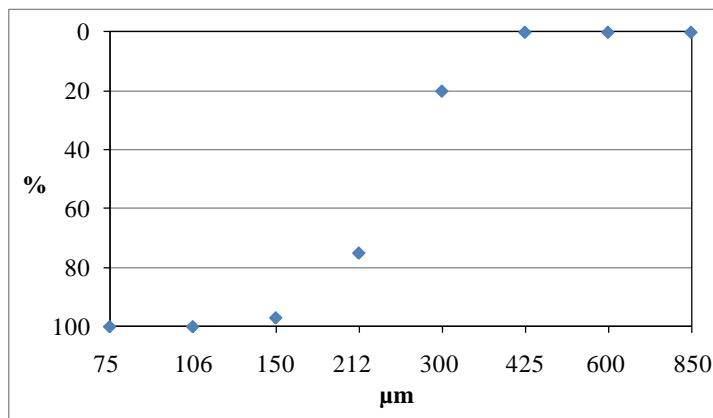


Figure 4.4 Courbe de distribution granulométrique des refus cumulés du sable Sibelco

4.2.2 Confection et conservation des éprouvettes

La gâchée est réalisée par ajout d'eau aux ingrédients (ciment Portland, sable, filler calcaire et éther de cellulose). Après un mélange manuel puis un malaxage de 60 s à vitesse lente (140 tours/min), 30 s à vitesse rapide (280 tours/min) (malaxeur Controlab), les parois du récipient sont raclées afin d'en détacher les résidus. La gâchée est ensuite malaxée pendant 60 s supplémentaires à vitesse rapide. La préparation est ensuite coulée dans des moules en polystyrène puis conditionnée à $20 \pm 1^\circ\text{C}$ et $95 \pm 5\%$ d'humidité relative.

Les dimensions des moules sont de $50 \times 50 \times 1 \text{ cm}^3$ pour les essais en laboratoire et de $100 \times 50 \times 1 \text{ cm}^3$ pour les essais *in situ* en sachant que des précautions ont été prises pour éviter les effets de bord.

Les mortiers non carbonatés sont découpés en éprouvettes après 28 jours de cure et sont utilisés en l'état. Pour les mortiers carbonatés, le temps de cure n'est que de 7 jours.

Pour l'essai de laboratoire, les dimensions des éprouvettes de mortier sont fixées à $20 \times 8 \times 1 \text{ cm}^3$. Pour l'essai *in situ*, elles sont fixées à $30 \times 21 \times 1 \text{ cm}^3$.

4.2.3 Modifications des caractéristiques physico-chimiques du mortier

4.2.3.1 Variation de la porosité

On a fait le choix de conserver la formulation du mortier. Pour cela, la seule solution possible est de changer le rapport eau/ciment (E/C) du mortier. Plusieurs valeurs de E/C , comprises entre 0,8 et 1,4, ont été testées. Les mortiers de E/C inférieur à 1 se sont révélés trop pâteux et difficiles à mettre en œuvre. Les porosités totales obtenues étaient alors supérieures à celles obtenues avec le rapport E/C égal à 1. Les mélanges réalisés avec des rapports E/C supérieurs à 1,2 étaient trop liquides. Un phénomène de ségrégation apparaissait lors de la mise en œuvre. On a retenu donc deux valeurs de E/C : 1 et 1,2.

Cependant, la différence de porosité entre ces deux mortiers ($E/C = 1$ et 1,2) n'a pas été suffisamment importante. Nous avons donc changé la composition du mortier en enlevant l'éther de cellulose. Pour cette composition, un rapport E/C de 0,5 assure encore une bonne maniabilité du mortier.

La composition des mortiers testés au cours de notre étude est détaillée dans le **tableau 4.4**.

Tableau 4.4 Composition des trois mortiers étudiés

	Ciment	Sable	Filler Calcaire	Ether de cellulose	E/C
Composition 1	30 %	65 %	5 %	0,27 %	1,2
Composition 2	30 %	65 %	5 %	0,27 %	1,0
Composition 3	30 %	65 %	5%	0 %	0,5

4.2.3.2 Variation de la rugosité

Trois rugosités distinctes ont été obtenues en utilisant différentes techniques de finition : la règle et deux taloches éponges différentes. L'utilisation de la règle permet d'obtenir une surface lisse. En revanche, les deux taloches éponges permettent d'obtenir des surfaces plus ou moins rugueuses. Le tirage à la règle est appliqué sur le mortier frais alors que le frottement aux taloches éponges est effectué sur mortiers en cours de prise. Il faut noter la présence de bulles d'air à la surface des mortiers contenant l'éther de cellulose et ceux finis à la règle.

4.2.3.3 La carbonatation accélérée

Les échantillons, après 7 jours de cure dans les conditions décrites précédemment (*partie 4.2.2*), sont découpés au jet d'eau, démoulés et séchés pendant 24 h à 40°C avant de subir un processus de carbonatation accélérée.

Le dispositif expérimental utilisé pour réaliser cette opération est illustré sur la **figure 4.5** et se compose de trois parties.



Figure 4.5 Montage expérimental de l'essai de carbonatation accélérée

- Le premier compartiment est constitué d'un barboteur qui fait buller le gaz (CO_2) pur dans de l'eau avant d'entrer dans l'enceinte. Ce dispositif permet de réguler le débit et d'apporter une certaine humidité.
- Une enceinte ($30 \times 30 \times 25 \text{ cm}^3$) compose la seconde partie du montage. Les échantillons sont tenus verticalement et placés sur un support, afin de les éloigner du fond de l'enceinte. Un hygromètre permettant d'enregistrer l'évolution de l'humidité relative et de la température au cours de l'essai est placé à l'intérieur de l'enceinte.
- Enfin, la dernière partie, constituée d'un tuyau plongeant dans de l'eau, assure la sortie du gaz. Le bullage de sortie nous renseigne sur le balayage à l'intérieur de l'enceinte.

Le barbotage du CO_2 dans l'eau apporte en continu de l'humidité dans l'enceinte. Une solution saline de carbonate de potassium (K_2CO_3) est utilisée, afin de réguler l'humidité relative à une valeur proche de 65% à l'intérieur de l'enceinte. La température est régulée à $20 \pm 1^\circ\text{C}$.

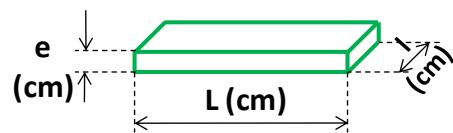
4.2.4 Caractérisation de la porosité

La porosité des mortiers a été caractérisée selon deux méthodes différentes, soit par l'intermédiaire de la pycnométrie à Hélium soit par porosimétrie au mercure. La première nous indique la porosité totale alors que le deuxième nous donne uniquement la porosité ouverte.

4.2.4.1 Détermination de la porosité par pycnométrie à Hélium

- *Masse volumique apparente des échantillons de mortier ρ_a*

La masse volumique apparente (ρ_a) d'une plaque de mortier a été définie comme étant le rapport de la masse sur le volume total soit son enveloppe géométrique (somme du volume poreux et du volume de solide). Ce volume est calculé à partir de la mesure des dimensions de l'éprouvette à l'aide d'un pied à coulisse.



$$\rho_a = \frac{m}{V} = \frac{m}{L \times l \times e} \left(\frac{g}{cm^3} \right) \quad (4.2)$$

Où :

m : masse de l'échantillon (g)

L, l, e : respectivement la longueur, la largeur et l'épaisseur de l'échantillon (cm)

V : volume de l'échantillon (cm^3).

- *Masse volumique vraie de mortier ρ_s*

Il s'agit de la masse volumique réelle du matériau constitutif du mortier. La masse volumique réelle est déterminée par pycnométrie à Hélium. Cette technique consiste à mesurer le volume de mortier préalablement broyé en poudre, afin d'éviter la présence de pores fermés. En connaissant sa masse, la masse volumique peut être déduite. L'appareil utilisé est un AccuPyc 1330 Micromeritics. Le principe du pycnomètre à hélium est décrit dans l'**Annexe 1**.

- *Relation pour déterminer la porosité*

La relation permettant de calculer la fraction volumique de pores d'un échantillon est la suivante :

$$p(\%) = 100 \times \frac{(\rho_v - \rho_a)}{\rho_v} \quad (4.3)$$

4.2.4.2 Porosimétrie par intrusion au mercure (PIM)

L'appareil utilisé pour cette étude est un porosimètre Micromeritics AutoPore IV 9500 V1.03. De petits morceaux de mortier sont d'abord immergés dans l'acétone puis séchés sous vide, afin d'éliminer l'eau présente dans les pores. Un morceau est pesé, transféré dans la chambre de mesure puis mise sous vide. Le mercure est introduit. Le mercure étant non mouillant ne pénètre pas dans les pores sauf si une pression est appliquée. La pression est augmentée progressivement et le volume de mercure introduit est mesuré pour chaque incrément de pression.

Le rayon moyen r_p de la classe de pores remplis (supposés cylindriques) est calculé par l'équation de Washburn en fonction de la pression moyenne appliquée p_{Hg} :

$$r_p = \frac{-2\sigma_{Hg} \cos \theta_{Hg}}{p_{Hg}} \quad (4.4)$$

Où :

r_p : rayon du pore (m)

σ_{Hg} : tension superficielle du mercure ($0,485 \text{ N.m}^{-1}$)

θ_{Hg} : angle de contact entre la surface du solide et le ménisque formé par le mercure (140°)

p_{Hg} : pression appliquée au mercure (N.m^{-2}).

La courbe d'intrusion du mercure représentant le volume cumulé de mercure introduit en fonction du rayon des pores accessibles est obtenue. Par différentiation, la distribution des volumes poreux en fonction des diamètres des pores ($\Delta V/\Delta D$) est construite.

4.2.5 Caractérisation de la rugosité

La rugosité de surface des matériaux a été évaluée en utilisant un capteur optique CHR (STIL) dont le principe est fondé sur la technologie d'imagerie confocale chromatique (**Annexe 2**). Ce capteur est composé de trois parties : un coffret optoélectronique CHR 150 comprenant la source lumineuse, un crayon optique OP24000 et une fibre optique reliant les deux. Les échantillons sont placés horizontalement sur un banc équipé du capteur, qui se déplace en balayant la surface de l'éprouvette tous les 0,02 mm sur l'axe des x et tous les 0,5 mm sur l'axe des y. La hauteur z de chaque point est mesurée avec une précision de 3 µm. Ces mesures permettent l'obtention d'un profil topographique qui est analysé pour en extraire le paramètre R_a - écart moyen arithmétique du profil (**Gadelmawla et al.** 2002).

4.2.6 Caractérisation de la carbonatation

4.2.6.1 Test à la phénolphtaléine

Le test à la phénolphtaléine est couramment employé pour visualiser le front de carbonatation. Le pH de surface des mortiers a été évalué par dépôt de quelques gouttes de phénolphtaléine (0,2% dans l'éthanol) sur la surface ou sur la tranche des mortiers. Le changement de coloration en rose s'effectue lorsque le pH est supérieur à 9 (**Thiery** 2005).

4.2.6.2 Mesure du pH de surface

Le pH de surface des éprouvettes de mortier a été mesuré à l'aide de la même électrode (WTW Sentix Sur) déjà utilisée pour suivre le pH de la suspension d'algues. Une goutte d'eau est déposée sur la surface de l'éprouvette afin d'assurer le contact avec l'échantillon.

4.2.7 Comportement du mortier vis-à-vis de l'eau

4.2.7.1 Absorption d'eau par capillarité

La mesure de l'absorption d'eau par capillarité est effectuée dans une enceinte à $23 \pm 2^\circ\text{C}$ et $90 \pm 5\%$ HR (**CSTB** 1982, 1993) sur des échantillons de dimension $8 \times 16 \times 1 \text{ cm}^3$

(représentant la forme de nos échantillons dans l'essai d'encrassement accéléré – *partie 4.3.1*). Pour chaque matériau, trois échantillons ont été testés.

Le principe consiste à immerger dans l'eau la base des éprouvettes, la plus grande dimension en position verticale, sur une hauteur de 5 mm. Le suivi de la masse durant 90 min est ensuite réalisé. La courbe de remontée capillaire est obtenue en traçant M/S en fonction de \sqrt{t} (avec t le temps (min), M la masse (g) et S la section (cm^2)). Le coefficient de capillarité est égal à la pente de la droite passant par les points de mesures compris entre 10 et 90 minutes.

4.2.7.2 Perméabilité à l'eau liquide

Cette mesure est effectuée sur trois éprouvettes d'épaisseur 1 cm et d'au moins 75 cm^2 de surface utile (CSTB 1982, 1993). Ces éprouvettes sont fabriquées selon la procédure (moulage, conservation, découpage et éventuellement carbonatation) décrite précédemment (*partie 4.2.2*).

Pour la perméabilité à l'eau liquide, chaque éprouvette est placée pendant 72 heures dans un dispositif permettant de maintenir une hauteur d'eau de 100 mm au dessus de la surface de l'éprouvette et de mesurer la quantité d'eau nécessaire pour maintenir ce niveau constant (**figure 4.6**). Les résultats sont tracés en reportant cette quantité d'eau accumulée en fonction du temps.

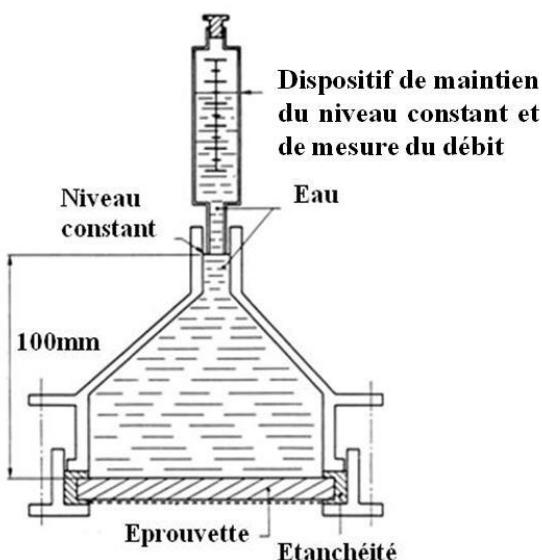


Figure 4.6 Dispositif de mesure de la perméabilité à l'eau sous pression (CSTB 1982)

La perméabilité à l'eau liquide du matériau est calculée selon l'équation :

$$k = \frac{Q \times e}{A \times \Delta h} \quad (4.5)$$

Où :

k : perméabilité à l'eau liquide du matériau (m/s)

Q : vitesse du flux d'eau ($\text{m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$)

e : épaisseur de l'éprouvette (m)

A : surface utile de l'éprouvette, perpendiculaire à la direction du flux d'eau (m^2)

Δh : hauteur de la colonne d'eau (m)

4.2.7.3 Perméabilité à la vapeur d'eau

Pour la perméabilité à la vapeur d'eau, chaque éprouvette est disposée sur une coupelle contenant 50 g de chlorure de calcium (jouant le rôle de desséchant) (**figure 4.7**).

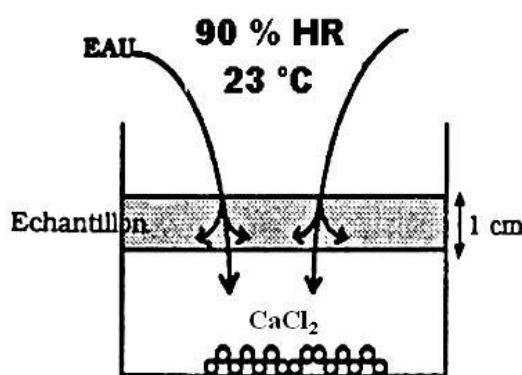


Figure 4.7 Dispositif de mesure de la perméabilité à la vapeur d'eau dit de « la coupelle sèche » (CSTB 1982)

Après s'être assuré de l'étanchéité du dispositif, les coupelles sont placées à 23°C et 90% HR. Les coupelles sont alors pesées régulièrement jusqu'à ce qu'une augmentation en masse de 5% soit atteinte.

La « perméabilité à la vapeur de l'enduit » ou perméance (noté Π) ($\text{kg} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{s}^{-1} \cdot \text{Pa}^{-1}$) est donnée par l'équation suivante :

$$\Pi = \frac{A \times e}{S \times \Delta P} \quad (4.6)$$

Où :

A : coefficient de proportionnalité entre la masse de l'éprouvette et le temps ($\text{kg} \cdot \text{s}^{-1}$)

ΔP : gradient de pression de vapeur d'eau imposé (Pa)

e : épaisseur de l'éprouvette (m)

S : surface de l'éprouvette traversée par le flux de vapeur (m^2)

4.2.7.4 Détermination des isothermes de sorption de la vapeur d'eau

Cette mesure consiste à déterminer la teneur en eau des échantillons en fonction de l'humidité relative, à l'équilibre et à 23°C.

Les échantillons de dimension $8 \times 20 \times 1 \text{ cm}^3$ sont d'abord séchés à 70°C jusqu'à stabilisation de la masse. Ils sont ensuite placés dans une enceinte à 23°C avec une humidité relative de 30%, 50%, 75%, 85% et enfin 95%. La masse des échantillons est mesurée à l'équilibre pour chaque humidité relative. La courbe obtenue décrit l'évolution de la masse de l'échantillon en fonction de l'humidité relative. En baissant l'humidité relative dans le sens inverse, nous obtenons la courbe de désorption.

L'interaction eau/surface solide est quantifiée et fournit des informations importantes sur le comportement hydrique des échantillons dans nos essais.

4.2.8 Quantification de la portlandite et du carbonate de calcium des éprouvettes

Le dispositif utilisé pour caractériser des échantillons est une thermobalance Setaram TG 92. L'analyse est conduite entre 20°C et 1000°C avec une rampe de 10°C/min sous flux d'argon, sur des échantillons d'environ 650 mg. Les pertes de masse de l'échantillon associées à des départs d'eau ou de dioxyde de carbone sont mesurées en fonction de la température.

A partir des courbes thermogravimétriques, il est possible d'évaluer la teneur en hydrates du mortier, en particulier la portlandite, ainsi que la teneur en carbonate de calcium.

Les pourcentages massiques de portlandite et de carbonate de calcium sont calculés à partir des formules suivantes :

$$Q_{\%CH} = \frac{Q_{\%H_2O}}{M_{H_2O}} M_{CH} \quad (4.7)$$

$$Q_{\%CaCO_3} = \frac{Q_{\%CO_2}}{M_{CO_2}} M_{CaCO_3} \quad (4.8)$$

$Q_{\%CH}$, $Q_{\%CaCO_3}$, $Q_{\%H_2O}$ et $Q_{\%CO_2}$ représentent respectivement la perte de masse en % de la portlandite, de CaCO₃, de l'eau et du CO₂. M_{CH} , M_{CaCO_3} , M_{H_2O} et M_{CO_2} correspondent aux masses molaires de la portlandite, de CaCO₃, de l'eau et de CO₂.

Ces pourcentages massiques sont corrigés par rapport à la masse de matrice cimentaire contenue dans les mortiers. Un rapport E/C égal à 0,43% est suffisant pour hydrater la totalité du ciment et l'eau de gâchage en excès s'évapore (Thiery 2005). Le pourcentage massique de ciment hydraté dans les mortiers est alors de 48,17%.

4.2.9 Diffractométrie des rayons X (DRX)

La diffraction des rayons X permet l'analyse non destructive d'échantillons cristallisés. L'interaction d'un faisceau de rayons X avec la matière donne naissance à une émission dans toutes les directions d'un rayonnement de même longueur d'onde et de phase cohérente. La diffusion d'un ensemble d'atomes entraîne une interférence des ondes cohérentes diffusées par chaque atome. Cette onde, dite diffractée, dépend de la structure atomique de la matière.

La direction du faisceau diffracté est donnée par la loi de **Bragg** :

$$n\lambda = 2dsin\theta \quad (4.9)$$

Où :

n : ordre de diffraction

λ : longueur d'onde du rayonnement incident (nm)

d : distance interréticulaire séparant deux plans de même famille (h, k, l) (nm).

La diffractométrie des rayons X a été réalisée sur un appareil Siemens D5000. La raie K $\alpha 1$ du cuivre ($\lambda = 0,15406$ nm) a été utilisée. Le dispositif comprend une anticathode de cuivre et un détecteur ponctuel. L'analyse se fait sur une plage de 2θ allant de 5° à 60° . Les analyses sont effectuées sur les poudres issues de nos échantillons.

4.3 Essai d'encrassement biologique

Le but des essais expérimentaux est de caractériser l'influence de la rugosité, de l'alcalinité de surface et de la porosité du matériau sur la cinétique d'encrassement biologique. Des essais au laboratoire ont été menés en parallèle à des essais *in situ*.

4.3.1 Dispositif expérimental de laboratoire

Les essais en laboratoire sont réalisés à l'aide d'un banc d'essai, dans lequel est généré le ruissellement d'une suspension d'algues sur la surface des matériaux permettant d'accélérer la cinétique d'encrassement des mortiers. Cet essai reproduit le phénomène de colonisation d'un revêtement de façade par les algues. Ces dernières sont transportées par la solution pour qu'elles puissent adhérer et se développer sur le revêtement en fonction des caractéristiques du matériau.

4.3.1.1 Description du dispositif

Le système est constitué d'un caisson en verre de dimensions $100 \times 50 \times 50 \text{ cm}^3$ équipé d'un couvercle en plexiglas pour limiter l'évaporation. A l'intérieur, deux supports en acier inoxydable placés dos à dos, permettant de maintenir deux rangées de 10 éprouvettes à 45° d'inclinaison (**figure 4.8**).

Au dessus de ces deux rangées d'échantillons, se trouvent deux tubes en acier inoxydable de diamètre 1 cm, percés de trous de diamètre 1,1 mm, tous les centimètres. Les quatre extrémités de ces deux tubes sont chacunes reliées à une pompe d'aquarium (Rena Flow 600 BF) par des tuyaux en silicone et des raccords en PVC.

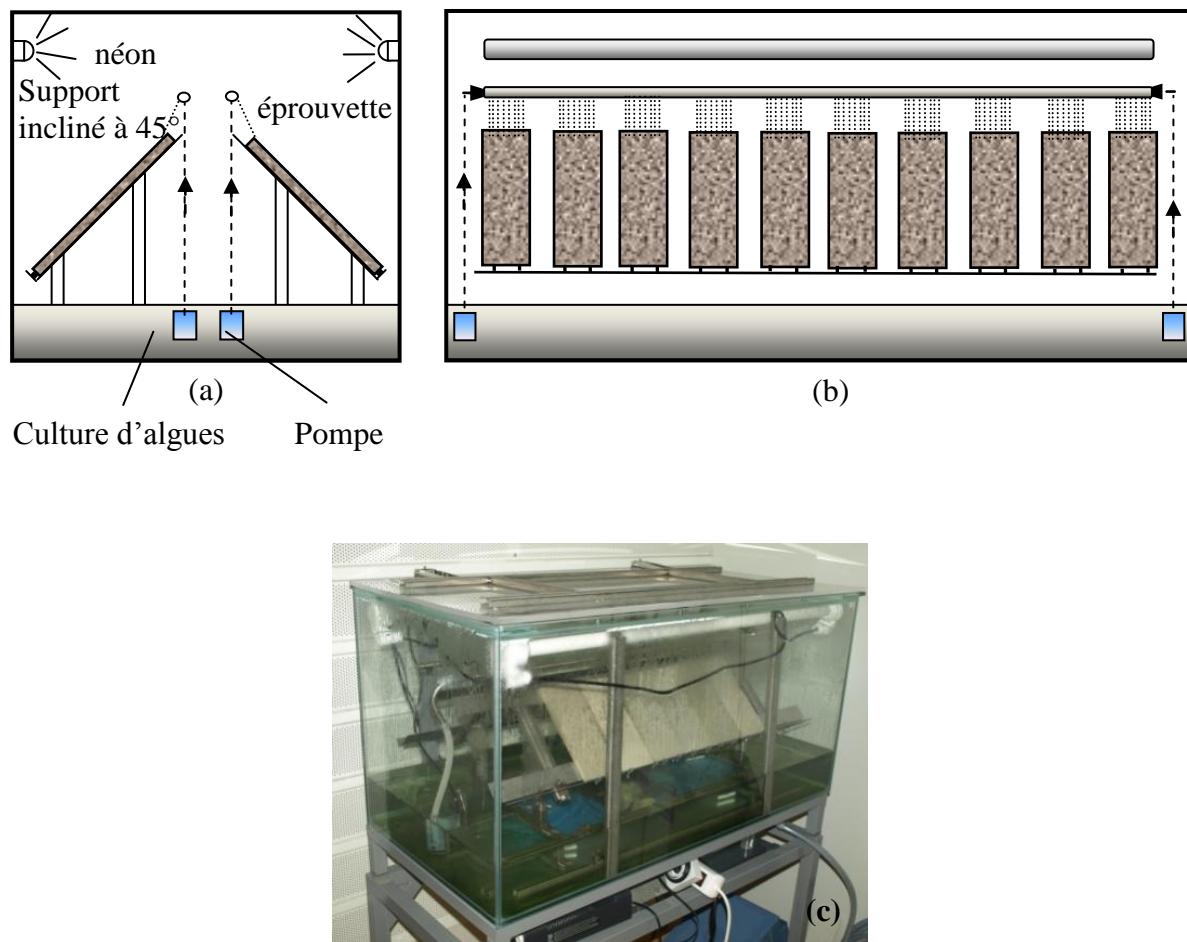


Figure 4.8 Dispositif d'étude de la colonisation accélérée par les algues des mortiers

(a) : vue de côté, (b) : vue de face, (c) : dispositif expérimental

4.3.1.2 Mode opératoire

Le caisson est tout d'abord rempli avec 50 L du milieu Bold de base stérilisé. Un petit volume de culture d'algues y est ajouté de façon à obtenir une concentration en début d'expérience d'environ 4 mg.L^{-1} de masse sèche. Cette suspension est maintenue sous agitation à 24°C . Les cycles d'arrosage sont déclenchés toutes les 12 h et ont une durée de 90 min. Le volume de culture ruisselant à la surface des éprouvettes est égal à $26 \pm 2 \text{ L.h}^{-1}$. Les éprouvettes sont éclairées par deux lampes néons (tubes fluorescents 30 W) selon une photopériode de 12 h. L'éclairage est réglé pour commencer en même temps que le premier cycle d'arrosage. Le banc d'essai est placé dans une pièce obscure conditionnée à $23 \pm 2^\circ\text{C}$.

L'ensemble est mis en route pendant deux jours avant l'introduction des échantillons. Les éprouvettes carbonatées et non carbonatées sont étudiées séparément et chaque matériau est analysé en triplicat. Pour chaque campagne d'essai, le banc contient 18 échantillons soient six matériaux différents (deux rapports E/C et trois rugosités).

Chaque jour, les échantillons sont décalés d'une place, afin d'éviter l'effet d'éventuelles différences d'éclairage ou de débit d'arrosage. Le dosage de la concentration des algues et des ions en solution est effectué chaque semaine.

4.3.2 Dispositif expérimental *in situ*

L'essai *in situ* est réalisé au CSTB de Grenoble situé à Saint-Martin-d'Hères. Des conditions favorables ont été choisies, afin d'accélérer l'enrassement biologique de la surface des échantillons. Les éprouvettes de mortier sont placées sur un bâti en acier inoxydable situé dans un parc. Les échantillons sont situés à proximité des arbres et orientés au Nord sous un angle de 45° afin de favoriser l'enrassement biologique (**figure 4.9**).



Figure 4.9 Dispositif expérimental *in situ*

Les échantillons sont disposés de façon à ce que l'écoulement d'eau sur une éprouvette ne puisse pas contaminer une autre. La première rangée d'éprouvettes est située à 1 m au dessus du sol, afin d'éviter les éclaboussures sur les éprouvettes lors des périodes pluvieuses.

4.3.3 Critère d'évaluation de l'encrassement biologique

4.3.3.1 Estimation de la surface colonisée des mortiers par analyse d'images

La surface des mortiers est numérisée à l'aide d'un scanner bureautique Epson V300. La position des échantillons et la fenêtre d'acquisition (853×2298 pixels) sont fixées. La résolution (300 dpi) des images est toujours constante. Cette procédure est particulièrement importante pour l'identification de nouvelles taches apparaissant sur la surface des échantillons au cours du temps. Cette partie sera détaillée dans le chapitre modélisation.

Le scanner nous permet d'obtenir des images dans l'espace couleur *RGB*. Dans cet espace, les bulles d'air, les algues et les anfractuosités sont difficiles à séparer. Ces images sont alors converties en images dans l'espace couleur *YIQ* à l'aide du logiciel Aphélion.

Cette espace est, en fait, obtenue de l'espace *RGB* par combinaisons linéaires (NTSC 2010) :

$$\begin{pmatrix} Y \\ I \\ Q \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 0,299 & 0,587 & 0,114 \\ 0,596 & -0,274 & -0,321 \\ 0,211 & -0,523 & 0,311 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} R \\ G \\ B \end{pmatrix}$$

Y correspond à la luminance. *I* et *Q* sont des coordonnées chromatiques. *I* dans la zone orange-bleu, *Q* dans la zone pourpre-vert.

Sur le canal *Q*, les zones colonisées par les algues sont très distinctes des zones saines et les problèmes mentionnés précédemment ont été résolus. Une fois les zones colonisées bien délimitées, leur surface est calculée automatiquement par le logiciel.

Le taux de recouvrement par les algues au temps *t* est calculé selon la relation suivante :

$$X(t)(\%) = 100 \times \frac{S(t)}{S_0} \quad (4.10)$$

Où :

$S(t)$: surface colonisée par les algues au temps t

S_0 : surface totale de l'échantillon

4.3.3.2 Estimation de la densité de l'encrassement par mesure spectrocolorimétrique

La densité de l'encrassement par les algues est un paramètre important. En effet, dans notre problématique, l'atteinte à l'esthétique d'une façade par ce type de salissure dépend de sa forme, de sa couleur mais également de l'intensité de sa teinte. De plus, un recouvrement peu dense sur un mur peut disparaître facilement lors de conditions de sécheresse. La méthode d'analyse d'images nous renseigne sur la surface recouverte mais fournit peu d'indications sur sa densité. C'est la raison pour laquelle nous utilisons une méthode complémentaire, la spectrocolorimétrie.

a-Estimation de la densité de l'encrassement par mesure de la perte de réflectance

Cette méthode n'a été utilisée que pour les échantillons du banc d'essais de laboratoire. Les mesures s'effectuent à l'aide d'un spectrocolorimètre portable Minolta CM-2600d. La gamme de longueur d'onde s'étend de 360 à 740 nm. Sur chaque échantillon, les mesures sont réalisées sur 36 points répartis sur la surface de l'échantillon. A chaque point, une zone de diamètre de 8 mm est analysée.

La **figure 4.10** représente l'évolution de la courbe spectrale de réflectance d'un matériau en fonction du temps. Plus la surface de l'échantillon est colonisée, plus sa réflectance diminue suite à l'absorption par les pigments des algues. En effet, les courbes montrent l'existence d'une plage de réflectance minimale, de 360 à 480 nm, et d'un minimum à 670 nm. Ces zones correspondent aux longueurs d'onde d'absorption des chlorophylles et des caroténoïdes (**figure 4.11**).

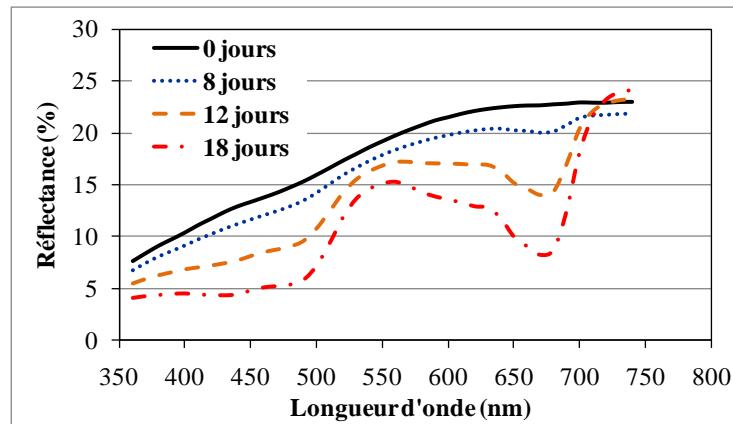


Figure 4.10 Courbes spectrales de réflectance d'un mortier ($E/C = 1$, carbonaté, finis à l'éponge) après différentes échéances d'encrassement biologique

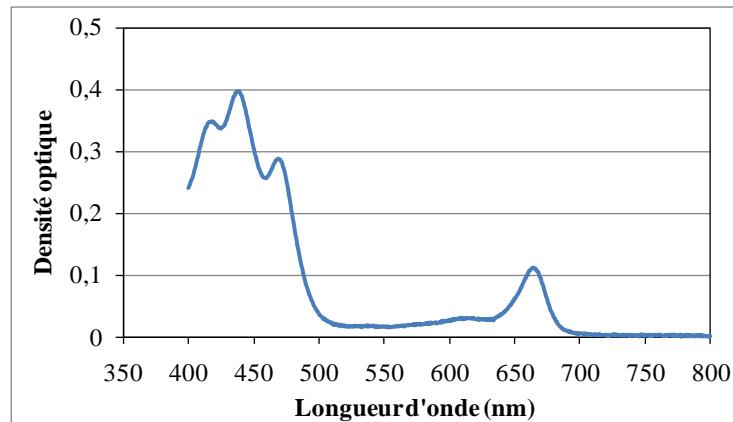


Figure 4.11 Courbe d'absorption de l'extrait de pigments de l'algue étudiée

La réflectance à 730 nm ne change pas au cours du temps. Il est alors possible d'évaluer la densité de l'encrassement des échantillons de la manière suivante (De Muynck et al. 2009) :

$$\begin{aligned}
 & \text{Densité d'encrassement au temps } t \text{ (unité arbitraire)} \\
 &= (\text{Réflectance}_{730\text{nm}} - \text{Réflectance}_{670\text{nm}})_t \\
 &\quad - (\text{Réflectance}_{730\text{nm}} - \text{Réflectance}_{670\text{nm}})_0
 \end{aligned}$$

Les résultats des mesures dépendent beaucoup de l'humidité à la surface des échantillons. Celles-ci sont donc réalisées 5 heures après une période de ruissellement.

*b-Estimation de la densité de l'encrassement biologique dans l'espace couleur L*a*b**
(Annexe 3)

Cette mesure est effectuée pour les essais de laboratoire et les essais *in situ*.

Pour les essais de laboratoire, nous utilisons le même appareil et la même procédure que pour la mesure de réflectance.

Pour les essais *in situ*, l'appareil utilisé est un chromamètre Konica Minolta CR-410. Sur un échantillon, 18 mesures de 50 mm de diamètre réparties sur l'échantillon sont effectués.

La variation de couleur est évaluée en fonction du temps par les différentes coordonnées suivantes :

$$\Delta L_t^* = L_t^* - L_{t0}^*$$

$$\Delta a_t^* = a_t^* - a_{t0}^*$$

$$\Delta b_t^* = b_t^* - b_{t0}^*$$

$L_{t0}^*, a_{t0}^*, b_{t0}^*$ sont des valeurs mesurées à temps initial

L_t^*, a_t^*, b_t^* sont des valeurs mesurées à l'instant t

Chapitre 5 CARACTERISATIONS DES MATERIAUX DE L'ETUDE

Dans ce chapitre, les caractéristiques des matières premières nécessaires pour l'essai d'enrassement accéléré seront présentées.

La croissance des cultures d'algues est suivie et détaillée (mesure de la densité optique, de la masse sèche, comptage des cellules, intensité de fluorescence).

Les caractéristiques intrinsèques des mortiers étudiés sont ensuite analysées (porosité, rugosité, carbonatation, comportement vis-à-vis de l'eau).

5.1 Suivi de la croissance des cultures d'algues

Toutes les cultures sont initiées avec une même concentration. Cette dernière est contrôlée à l'aide de la masse sèche ($0,02 \text{ mg.mL}^{-1}$) et de la densité optique (0,04 à 760 nm). L'inoculum de la culture dite « suspension mère » provenait d'une culture d'algues, conservée à 4°C pendant une quinzaine jours, alors que les autres cultures numérotées 1, 2 et 5 sont issues d'une culture jeune en phase de croissance.

5.1.1 Détermination de la concentration des algues par mesure de la densité optique à 760 nm

Le suivi de la densité optique de la suspension mère montre une phase de latence d'environ dix jours avant que la croissance s'initie (**figure 5.1**). Pendant cette phase, il n'y a ni division cellulaire, ni augmentation de la masse, mais de nouveaux composants cellulaires commencent à être synthétisés. Issues d'une culture refroidie, les cellules doivent se réorganiser, répliquer leur ADN avant de commencer à augmenter leur masse et se diviser (**Prescott et al. 2003**). Après cette phase de latence, une phase exponentielle de croissance

apparaît. Celle-ci présente une vitesse maximale de développement et de divisions et persiste jusqu'à 45 jours (densité optique $\sim 1,1$).

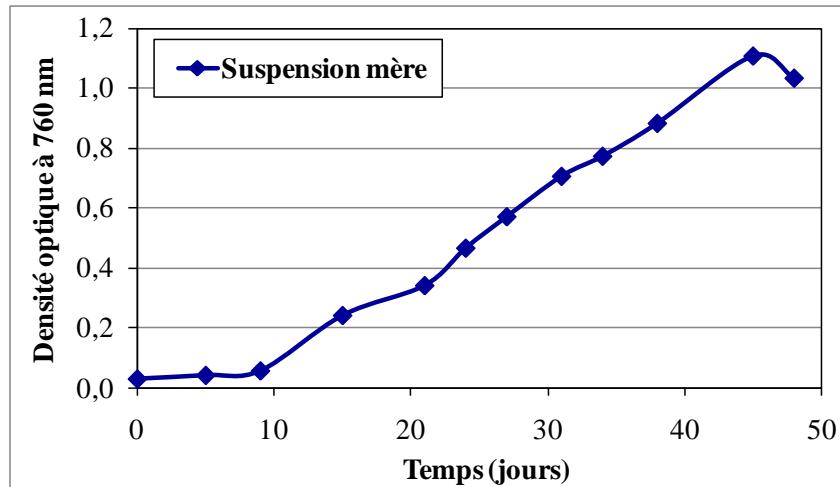


Figure 5.1 Densité optique de la suspension mère en fonction du temps, (50 mL d'une culture d'algues conservée à 4°C, dilués dans 400 mL de milieu Bold de base)

La croissance des cultures 1 et 2 issues d'un repiquage de la suspension mère, et de la culture 5 issue de la culture 4 (voir partie 4.1.1.2) a également été suivie au cours du temps, afin de vérifier leur reproductibilité. Sur la **figure 5.2**, les courbes de densité optique des trois cultures sont représentées. On note une bonne reproductibilité entre les différentes cultures.

On constate que pour ces trois cultures aucune phase de latence n'est décelable. En effet, la densité optique croît immédiatement. Un léger décrochement est à noter entre 24 et 27 jours. A partir de 33 jours, la densité optique des cultures n'augmente plus. Les algues se trouvent en phase stationnaire. La limitation en éléments nutritifs, l'accumulation des déchets toxiques en sont responsables.

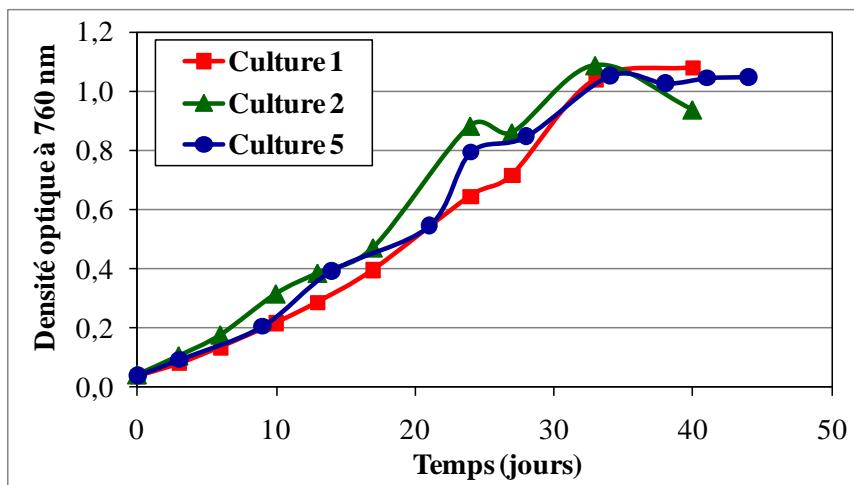


Figure 5.2 Densité optique des cultures 1, 2 et 5 en fonction du temps, (50 mL de la suspension mère âgée de 24 jours, dilués dans 400 mL de milieu Bold de base)

Cette phase stationnaire peut traduire un équilibre entre la mort cellulaire et la division cellulaire. Elle peut représenter également un état de persistance des cellules vivantes en absence de division cellulaire. Dans ce cas, le nombre de cellules vivantes est constant et les cellules vieillissent. Aucune phase de mortalité (décroissance de la DO) n'a été observée durant les 44 jours de culture.

5.1.2 Détermination de la concentration des algues par mesure de la masse sèche

Le suivi de la masse sèche a été effectué sur deux cultures d'algues (1 et 2). La **figure 5.3** montre également une bonne reproductibilité entre les deux cultures.

La masse sèche des cultures augmente sans cesse jusqu'à 44 jours malgré que la densité optique se stabilise après 33 jours. Cela provient de l'accumulation continue de biomasse des cellules d'algues vivantes et mortes. Un décrochement est également observé sur la masse sèche entre 24 et 27 jours.

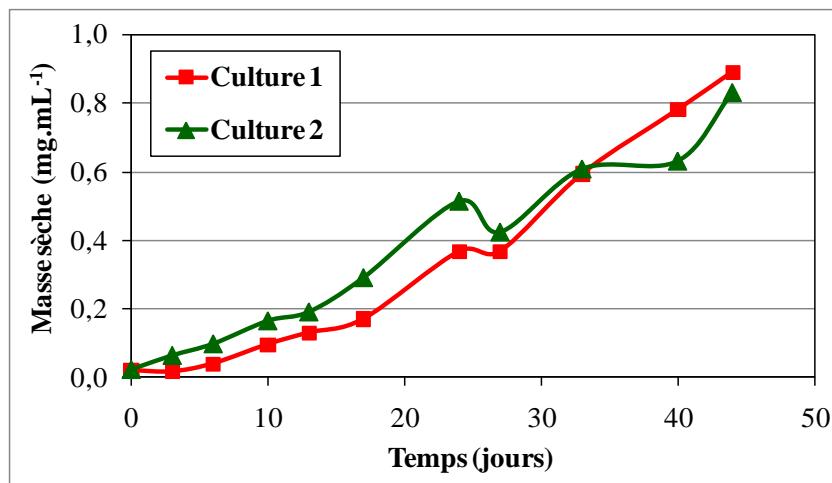


Figure 5.3 Masse sèche des cultures 1 et 2 en fonction du temps (50 mL de la suspension mère âgée de 24 jours, dilués dans 400 mL de milieu Bold de base)

5.1.3 Comptage des cellules par la cellule de Malassez

La concentration en cellules vivantes des deux cultures 1 et 2 a été déterminée (**figure 5.4**).

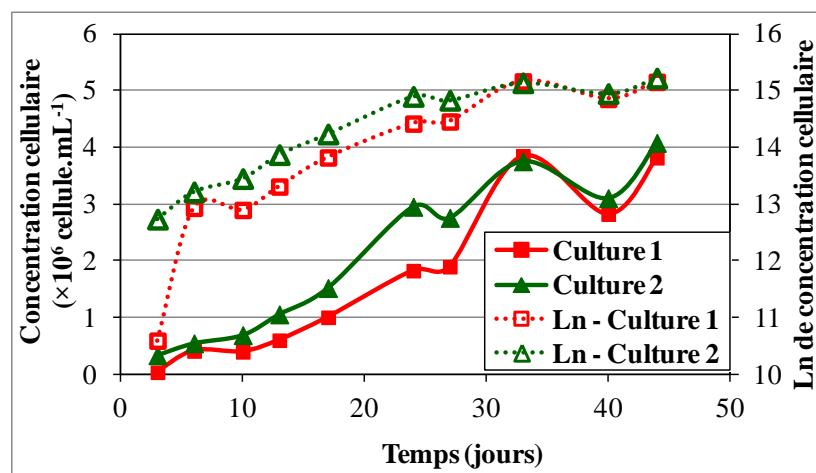


Figure 5.4 Concentration cellulaire des cultures 1 et 2 en fonction du temps (50 mL de la suspension mère âgée de 24 jours, dilués dans 400 mL de milieu Bold de base)

Les résultats du comptage des algues en cellule de Malassez est bien en accord avec ceux obtenus par mesure de la DO et de la masse sèche. Comme dans le cas de la DO et de la masse sèche, un décrochement peut être noté entre 24 et 27 jours. Les cultures sont en phase de croissance exponentielle jusqu'à 33 jours. Le temps de génération moyenne (temps nécessaire à la population pour doubler sa taille) de *K. flaccidum* est calculé et égale à environ 10 jours. Il s'agit d'une algue qui se développe lentement par rapport à *Chlorella vulgaris*. En effet, pour cette dernière, le temps de génération moyenne est seulement de 2 jours selon **Védrine** (2003).

A 33 jours, le nombre de cellules atteint son maximum soit 4 millions de cellules par mL. Cette population correspond à la concentration couramment rencontrée pour les cultures d'algues en phase stationnaire (**Prescott et al.** 2003).

En divisant la masse sèche par la concentration cellulaire, il est possible de calculer la masse sèche d'une cellule. Cette dernière varie de $136 \text{ pg.cellule}^{-1}$ à $239 \text{ pg.cellule}^{-1}$ en fonction de l'âge de la culture. Ces valeurs sont tout à fait conformes à celles de **Jahnke et al.** (2010) pour l'algue *K. flaccidum*.

Les résultats obtenus montrent que la culture de *K. flaccidum* est reproductible. La cinétique de croissance de *K. flaccidum* obtenue par trois méthodes différentes (densité optique, masse sèche, comptage cellulaire) est cohérente. A l'exception de la « suspension mère » provenant d'une culture stockée à 4°C et montrant une période de latence, les cultures issues d'une culture jeune se développent immédiatement sans phase de latence. La croissance de ces dernières continue jusqu'à 33 jours. Au-delà, on atteint la phase stationnaire. Au bout de 44 jours, durée maximale de nos cultures d'algues, la phase de mortalité n'a été atteinte.

5.1.4 Suivi de la composition du milieu de culture

Les algues ont besoin de micro-éléments et de macro-éléments pour leur croissance. La concentration de quelques oligo-éléments n'a pas été suivie (Zn^{2+} , Cu^{2+} , Co^{2+} , Vo^{2+} , Mo^{2+} , Mn^{2+}). Pour les autres éléments du milieu, les résultats des mesures à l'instant initial sont proches des valeurs calculées à partir de la composition du milieu Bold de base ; ce qui indique un bon dosage.

La concentration des anions (Na^+ , K^+ , Mg^{2+} , Ca^{2+}), et des cations (SO_4^{2-} , PO_4^{3-} , Cl^{-1}) reste presque constante (**figures 5.5 et 5.6**). En revanche, les ions nitrate sont beaucoup consommés, si bien qu'ils sont épuisés vers 27 jours. La concentration des ions ammonium fluctue légèrement au cours du temps.

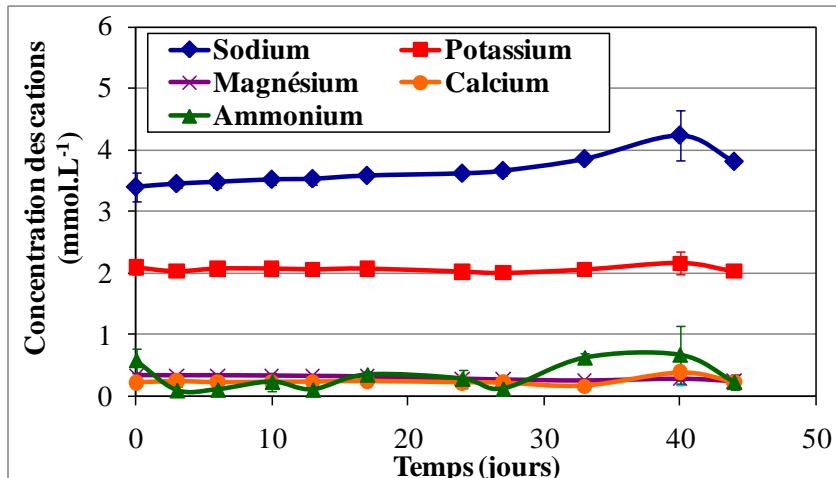


Figure 5.5 Concentration en cations au sein de la culture d'algues en fonction du temps (moyenne des mesures effectuées sur les cultures 1 et 2)

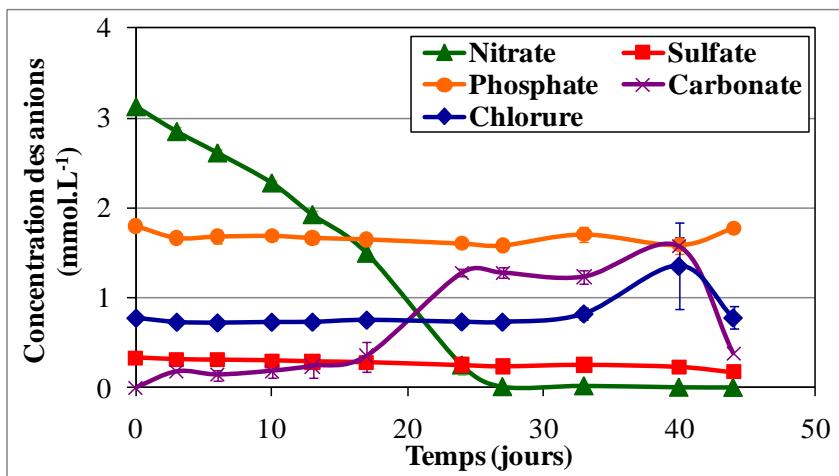


Figure 5.6 Concentration en anions au sein de la culture d’algues en fonction du temps (moyenne des mesures effectuées sur les cultures 1 et 2)

L’épuisement des nitrates correspond au décrochement observé sur les courbes de densité optique et de masse sèche. En effet, un changement de processus métabolique des algues, dû à l’épuisement de l’azote, a été souligné par plusieurs auteurs. D’Souza et Kelly (2000) ont observé une augmentation de la quantité de polysaccharides et une baisse de la quantité de lipides et de protéines dans les cellules d’algues lorsque l’azote est épuisé. Ces changements s’aggravent d’autant plus que l’azote est épuisé. Young et Beardall (2003) ont également noté la diminution des protéines contenues dans les cellules.

L’épuisement des nitrates a lieu après 27 jours de culture, mais les courbes de densité optique montrent une croissance des algues jusqu’à 33 jours. Les algues ont la capacité de stocker de l’azote et de continuer à se développer pendant un certain temps dans le milieu dépourvu d’azote. Ce phénomène dépend de l’espèce et de la concentration en azote de la culture dont elles sont issues (Fogg 2001). Fujita (1985) a observé une poursuite de la croissance d’une algue verte marine (*Ulva*) pendant 6 à 9 jours en absence d’azote dans le milieu. Young et Beardall (2003) ont également observé une division cellulaire d’une algue verte (*Dunaliella*) après épuisement du milieu en azote.

5.1.5 Suivi du pH de la suspension d'algues

Le *pH* de la suspension d'algues augmente continuellement de 6,5 à environ 8,4 après 27 jours de culture. Au-delà, le *pH* reste stable (**figure 5.7**). Cette période correspond à l'épuisement des nitrates.

En effet, l'augmentation du *pH* du milieu de culture accompagnée de la consommation des nitrates est bien connue. Un excès d'ions OH^- apparaît dans le milieu de culture. Par analyse élémentaire des cellules (C, H, O, N), **Cramer et Myers** (1948) montrent qu'il y a libération d'un ion OH^- pour un ion NO_3^- consommé par *Chlorella*. **Raven et De Michelis** (1979) ont obtenu 0,75 ion OH^- libéré par ion NO_3^- consommé pour *Hydrodictyon*.

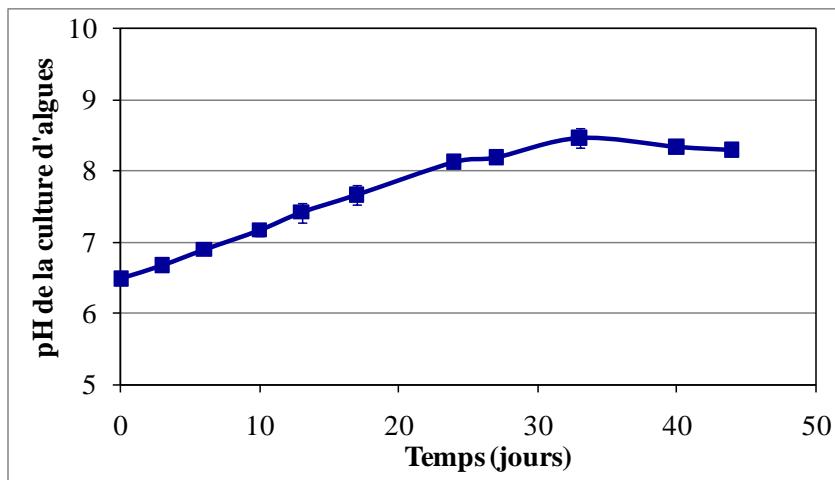


Figure 5.7 *pH* des différentes cultures (1, 2 et 5) au cours du temps

5.1.6 Intensité de fluorescence

L'intensité de fluorescence de la suspension d'algues augmente jusqu'à 27 jours (**figure 5.8**). Cette augmentation observée durant la phase de croissance des algues est tout à fait normale. En effet, la quantité de chlorophylle par rapport à la culture totale augmente au cours du temps.

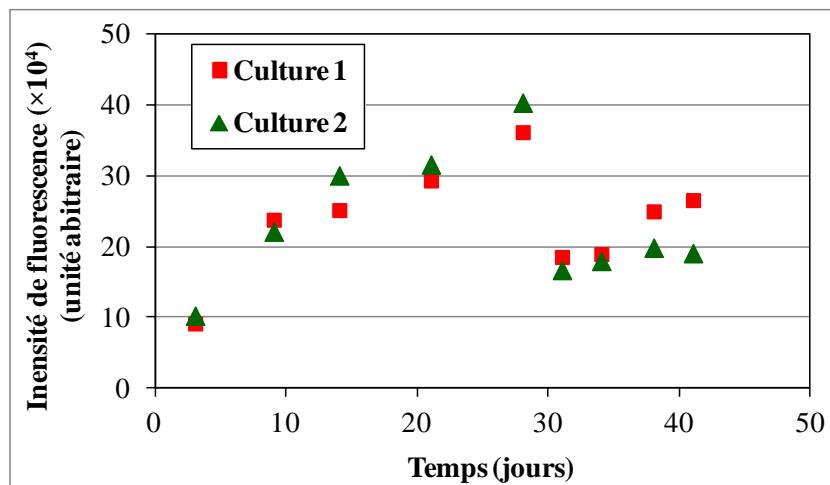


Figure 5.8 Intensité de la fluorescence des cultures 1 et 2 au cours du temps

A 27 jours, nous observons une baisse de l'intensité de fluorescence. En effet, **Hipkin** et **Syrett** (1977), **Choi** et *al.* (2003) ont mis en évidence la dégradation de la chlorophylle (riche en azote) lorsque le milieu de culture est épuisé en azote.

Pendant la phase stationnaire, l'intensité de fluorescence reste quasi-stable. Ce résultat également observé par **Young** et **Beardall** (2003), peut s'expliquer par une concentration constante de chlorophylle (**Berden-Zrimec** et *al.* 2008).

5.1.7 Relation entre la densité optique et la masse sèche

A partir des mesures de densité optique et de masse sèche effectuées sur les cultures 1 et 2, il est possible d'obtenir une relation linéaire entre les deux. La relation est établie seulement pour les 27 premiers jours de culture. Une bonne corrélation entre les deux méthodes a été obtenue puisque le coefficient de corrélation est de 0,97.

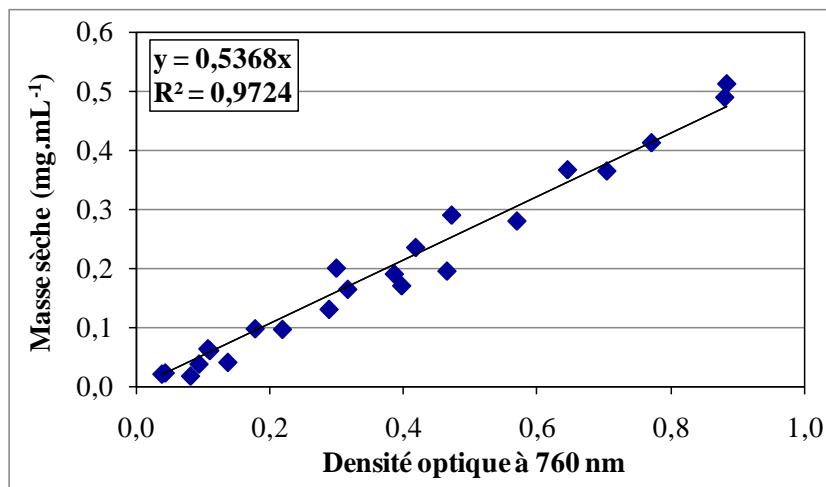


Figure 5.9 Relation entre la masse sèche et la densité optique mesurée à 760 nm de la suspension d'algues

Cette relation nous permet d'estimer rapidement la concentration en algues des suspensions par mesure de la densité optique.

Le suivi de la composition du milieu de culture révèle un épuisement en ions nitrate vers 27 jours. Cet épuisement intervient au même moment que le décrochement observé sur la courbe de croissance des algues obtenue par mesure de la densité optique. Le même décrochement apparaît sur les courbes d'intensité de fluorescence en fonction du temps. Afin d'éviter cette échéance, les algues seront prélevées au bout de 24 jours de culture pour inoculer le banc d'essais. Afin d'obtenir une suspension d'algues de concentration égale à 4 mg.L⁻¹ en masse sèche pour les essais accélérés, environ 450 mL de culture sont ajoutés aux 50 L de milieu Bold de base contenu dans le banc.

5.2 Caractérisation des mortiers

Dans cette partie, les différentes caractéristiques des mortiers (porosité, rugosité, pH surfacique et comportement vis-à-vis de l'eau) sont successivement présentées. La composition en phase des différents mortiers est détaillée.

Afin de faciliter la présentation des résultats, une nomenclature a été adoptée. Elle se compose de trois parties :

- La première partie représente le rapport E/C du mélange : 0,5 ; 1 ou 1,2 (voir *partie 4.2.3.1*).
- La deuxième correspond à la rugosité de surface. Trois grades de rugosité ont été réalisées R1, R2, R3 par ordre croissant (voir *partie 4.2.3.2*).
- La troisième partie désigne l'état de carbonatation : NC pour le mortier non carbonaté et C pour le mortier carbonaté (voir *partie 4.2.3.3*).

Par exemple : un mortier 05R1-NC a été obtenu avec un rapport E/C égal à 0,5, avec la surface la plus lisse et sans carbonatation.

Ce principe de notation est appliqué aux échantillons testés au laboratoire et pour les essais *in situ*.

5.2.1 Caractérisation des matières premières

L'analyse par fluorescence X permet de quantifier la teneur en éléments du ciment exprimée en équivalent oxydes (**tableau 5.1**).

Tableau 5.1 Composition en oxydes du ciment anhydre CEM I 52,5N CP2

Oxydes	SiO ₂	Al ₂ O ₃	Fe ₂ O ₃	CaO	MgO	MnO	TiO ₂	K ₂ O	P ₂ O ₅	Na ₂ O	SO ₃
%	19,38	4,50	3,12	63,93	4,83	0,06	0,22	0,95	0,19	0,25	5,79

A partir de la teneur en oxydes, nous pouvons calculer la composition potentielle des phases à partir des formules de Bogue (**Taylor** 1990).

$$C_3S = 4,0710C - 7,6024S - 1,4297F - 6,7181A$$

$$C_2S = -3,0710C + 8,6024S + 1,0785F + 5,0683A$$

$$C_3A = -1,6920F + 2,6504A$$

$$C_4AF = 3,0432F$$

Le CaO est également présent dans le gypse. Un facteur correctif à sa teneur est appliqué en déduisant 0,7SO₃. Les teneurs des phases principales sont consignées dans le **tableau 5.2**.

Tableau 5.2 Teneur des phases du ciment anhydre utilisé CEM I 52,5N CP2

Oxydes	C ₃ S	C ₂ S	C ₃ A	C ₄ AF
%	61,7	9,0	6,6	9,5

5.2.2 Mesure de la porosité

5.2.2.1 Porosité totale

Le **tableau 5.3** recense la masse volumique vraie, la masse volumique apparente, la porosité calculée et la porosité déterminée par PIM des six mortiers (non carbonatés et carbonatés, rapport E/C de 0,5 ; 1 et 1,2).

Tableau 5.3 Masse volumique vraie, masse volumique apparente, porosité totale calculée et porosité totale déterminée par PIM des mortiers

	Masse volumique vraie (g.cm ⁻³)	Masse volumique apparente (g.cm ⁻³)	Porosité totale calculée (%)	Porosité totale déterminée par PIM (%)
05-NC	2,57 ± 0,00	2,00 ± 0,02	22,3 ± 0,6	15,9 ± 0,6
10-NC	2,53 ± 0,02	1,46 ± 0,02	42,4 ± 1,0	37,2 ± 0,0
12-NC	2,52 ± 0,02	1,44 ± 0,07	43,1 ± 0,3	38,9 ± 0,3
05-C	2,60 ± 0,01	2,05 ± 0,05	21,1 ± 2,0	10,6 ± 0,4
10-C	2,59 ± 0,01	1,56 ± 0,01	39,8 ± 0,5	32,1 ± 1,9
12-C	2,59 ± 0,00	1,56 ± 0,01	39,8 ± 0,2	36,2 ± 0,1

Remarques d'ordre général

Quels que soient les rapports E/C , la densité vraie des mortiers carbonatés est très légèrement supérieure à celle des mortiers non carbonatés. L'effet du E/C est en revanche négligeable. Concernant la masse volumique apparente, on constate l'effet d'une part de la carbonatation pour les E/C élevés et d'autre part du E/C (entre 0,5 et les deux autres).

Pour nos échantillons, on obtient des porosités totales calculées de l'ordre de 21 à 22% pour $E/C = 0,5$. Pour les E/C élevés, on note un effet plus marqué de la carbonatation que du E/C . En effet, pour $E/C = 1$ ou $1,2$, la porosité totale calculée des échantillons non carbonatés est comprise entre 42 et 43% contre 40% pour les carbonatés. La porosité au mercure fournit les mêmes tendances. En revanche, la porosité calculée est toujours supérieure à la porosité déterminée par PIM. Ce résultat indique soit l'existence de porosités hors gamme de l'appareil soit de porosités fermées.

Nos résultats sont conformes à ceux de la bibliographie (**Houst** 1992, **Monge** 2007). Pour les mortiers non adjuvantés, de rapport $E/C = 0,6$ et de même rapport sable/ciment que le nôtre, **Houst** (1992) a trouvé une porosité totale calculée de l'ordre 23,6 et 23,1% respectivement pour les non carbonatés ou carbonatés. Pour le mortier de rapport E/C égal à 1, non carbonaté, **Monge** (2007) obtient la même valeur de porosité au PIM sur la même formulation.

Influence du rapport E/C sur la porosité totale

En analysant les résultats du **tableau 5.3**, les conclusions suivantes peuvent être données :

- Le mortier adjuvanté de rapport E/C égal à 1,2 est légèrement plus poreux que celui de rapport E/C égal à 1. La différence est plus accentuée par PIM. Une relation non linéaire entre le rapport E/C et la porosité a été obtenue par **Lafhaj et al.** (2006). L'effet du rapport E/C sur la porosité totale s'atténue lorsque ce dernier est élevé.
- Les mortiers adjuvantés sont beaucoup plus poreux que les mortiers non adjuvantés. **Malatrait** (1992) a observé une augmentation de 50% de porosité suite à l'ajout d'un éther de cellulose au mortier. Dans notre cas, l'augmentation de la porosité est beaucoup plus importante (par exemple : le mortier non carbonaté de E/C égal à 1 augmente de 133% par rapport au mortier de E/C égal à 0,5 par PIM). Ceci provient de l'effet de l'ajout d'adjuvant ainsi que de l'augmentation de la teneur en eau.

Effet de la carbonatation sur la porosité totale

La masse volumique vraie des mortiers carbonatés est très légèrement supérieure à celle des mortiers non carbonatés. En revanche, la masse volumique apparente augmente plus significativement avec la carbonatation. La carbonatation a pour effet d'augmenter la masse des échantillons (**Baroghel-Bouy** 1994).

Par rapport aux mortiers non carbonatés, la porosité des mortiers carbonatés est inférieure, quelle que soit la méthode de détermination. La carbonatation est connue pour provoquer une réduction du volume poreux du matériau (**Baroghel-Bouy** 1994, **Thiery** 2005). **Houst** (1992) a constaté que cette réduction était d'autant plus marquée que le rapport *E/C* était bas.

5.2.2.2 Distribution en taille des pores

Les **figures 5.10a** et **5.10b** montrent respectivement la distribution en taille des pores en fonction du rapport *E/C* pour les échantillons non carbonatés et carbonatés.

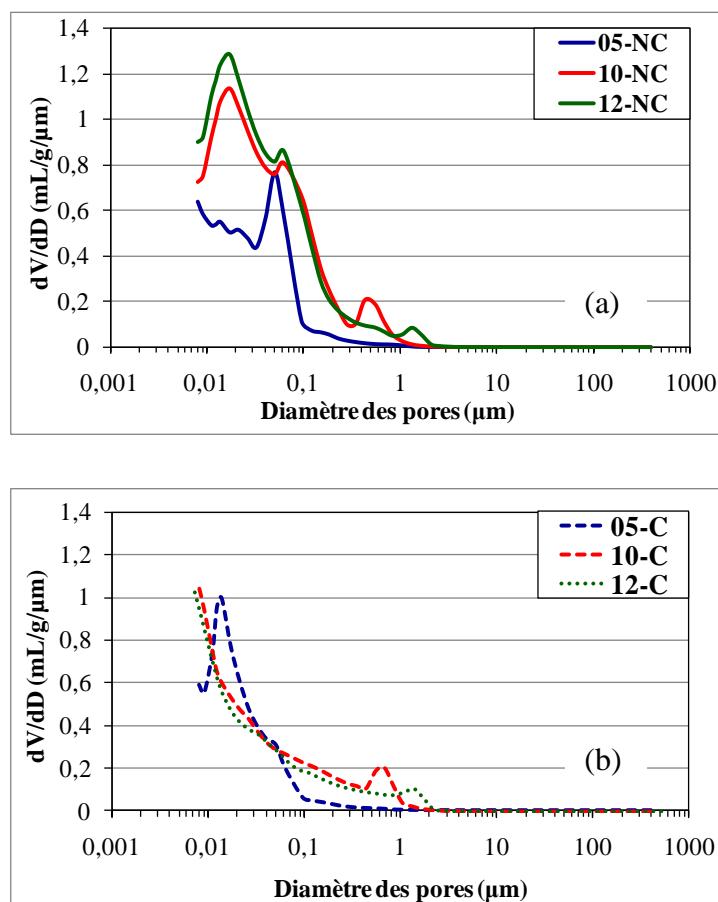


Figure 5.10 Distribution en taille des pores des mortiers non carbonatés (a) et carbonatés (b)

Influence du rapport E/C sur le diamètre d'entrée des pores

Pour les mortiers non carbonatés, de rapport E/C égal à 0,5, une seule population de pores centrée sur 0,05 μm apparaît. Pour ceux de rapports E/C égaux à 1 et 1,2, trois populations de pores apparaissent. Les deux premières se situent respectivement vers 0,02 et 0,06 μm . Ces populations sont caractéristiques des pores du gel de C-S-H. Elles correspondent à l'espace poral lié à l'architecture des amas d'hydrates, principalement les C-S-H (**Baroghel-Bouy** 1994, **Monge** 2007). La troisième population de pores se situe vers 0,43 μm pour le mortier 10-NC et vers 1,32 μm pour le mortier 12-NC. Cette dernière population de pores représenterait l'espace poral initial situé entre les grains de ciment hydraté et qui apparaît lors du départ d'eau par dessiccation. On appelle cette gamme de pores les pores capillaires. Le décalage de cette population vers les pores plus larges pour le mortier de E/C égal à 1,2 pourrait provenir de sa forte teneur en eau.

Deux points particuliers sont à noter :

- Une diminution des pores du gel C-S-H pour les mortiers non adjuvants. **Pourchez et al.** (2010a) ont suggéré que la couche de C-S-H formée autour des grains C_3S en absence d'éther de cellulose est moins épaisse et moins poreuse qu'avec l'adjuvant.
- Une absence des pores capillaires pour les mortiers non adjuvants (05-NC). La faible quantité d'eau et l'absence de l'effet « entraîneur » d'air de l'adjuvant pourraient en être la cause (**Malatrait** 1992, **Jenni et al.** 2006, **Monge** 2007, **Pourchez et al.** 2010b). D'après **Jenni et al.** (2006), la présence de 0,5% d'éther de cellulose entraîne la formation de bulles d'air, de forme sphérique et de dimension 100 μm , dont le volume total représente 20% du volume poreux. De plus, les bulles d'air, sont accessibles par des pores de l'ordre du micromètre. Il en résulte un effet « bouteille », surestimant la porosité associée au diamètre d'entrée des pores de l'ordre du micromètre et sous estimant les pores de diamètre 100 μm .

Effet de la carbonatation sur le diamètre d'entrée des pores

Nous remarquons que les courbes de distribution du volume poreux des mortiers adjuantés carbonatés (10-C et 12-C) ne représentent plus qu'un seul pic compris entre 0,68 et 1,38 µm. Ce résultat confirme que la carbonatation affecte systématiquement les pores du gel de C-S-H en réduisant la fraction des pores de taille compris entre 0,02 et 0,06 µm (**Thiery** 2005). En effet, le carbonate de calcium formé possède un volume molaire plus grand que celui de la portlandite dont il est issu, qui conduit à une obstruction des pores.

Par rapport aux échantillons non carbonatés, le volume des pores capillaires des mortiers carbonatés sont plus importants (**figure 5.11**).

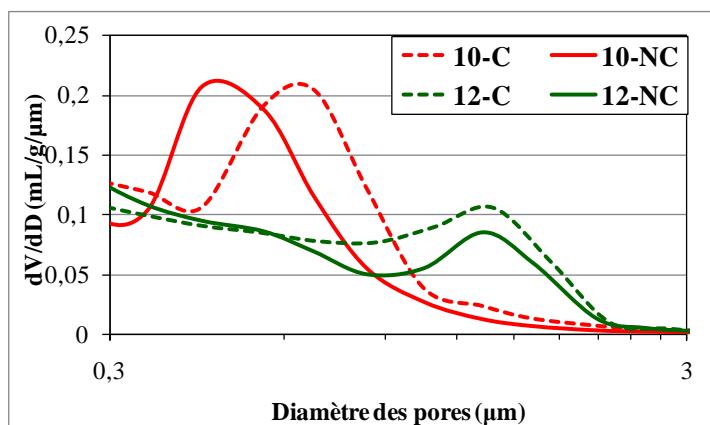


Figure 5.11 Comparaison des mortiers adjuantés non carbonatés et carbonatés dans la gamme des pores capillaires

Voici l'explication possible à cette augmentation de macroporosité citée par **Thiery** (2005) : les fissures et craquelures de la gangue de CaCO₃ apparaissent autour des cristaux de portlandite en raison d'un gradient hydrique entre la surface et le pore.

Les mortiers non adjuantés et carbonatés (05-C) présentent également une diminution du volume poreux avec une baisse de la quantité de pores centrés sur 0,05 µm. Ce pic se décale vers les pores de diamètre plus petits (de l'ordre de 0,012 µm).

Deux grades de porosités pour les mortiers non carbonatés et carbonatés ont été obtenus. Entre le mortier sans adjuant et le mortier adjuanté, un écart de porosité de 20% est observé. En revanche, une différence très modeste est notée entre les mortiers adjuantés. Cette différence est légèrement plus marquée sur les mortiers carbonatés que sur les mortiers non carbonaté.

Il est à noter également que les mortiers de formulation CEReM utilisés sont des matériaux très poreux et dont le principal mode se situe dans la gamme des pores capillaires.

5.2.3 Mesure de la rugosité

A l'aide des trois méthodes de finition, nous avons obtenu trois grades de rugosité.

Les échantillons finis à la règle représentent la surface la plus lisse. Cependant, sur les échantillons adjuantés, nous remarquons la présence de nombreuses bulles d'air, absentes sur les mortiers non adjuantés (**figure 5.12**).



Figure 5.12 Eprouvettes de mortier non adjuanté et adjuanté

Le frottement de la surface des échantillons à l'éponge a pour effet d'obstruer les bulles d'air remontés à la surface. Le frottement avec une éponge moins rugueuse permet d'obtenir une rugosité intermédiaire plus homogène et plus reproductible.

Le frottement à l'aide de l'éponge la plus rugueuse est difficilement reproductible. De ce fait, la rugosité obtenue sur plusieurs échantillons présente une forte dispersion.

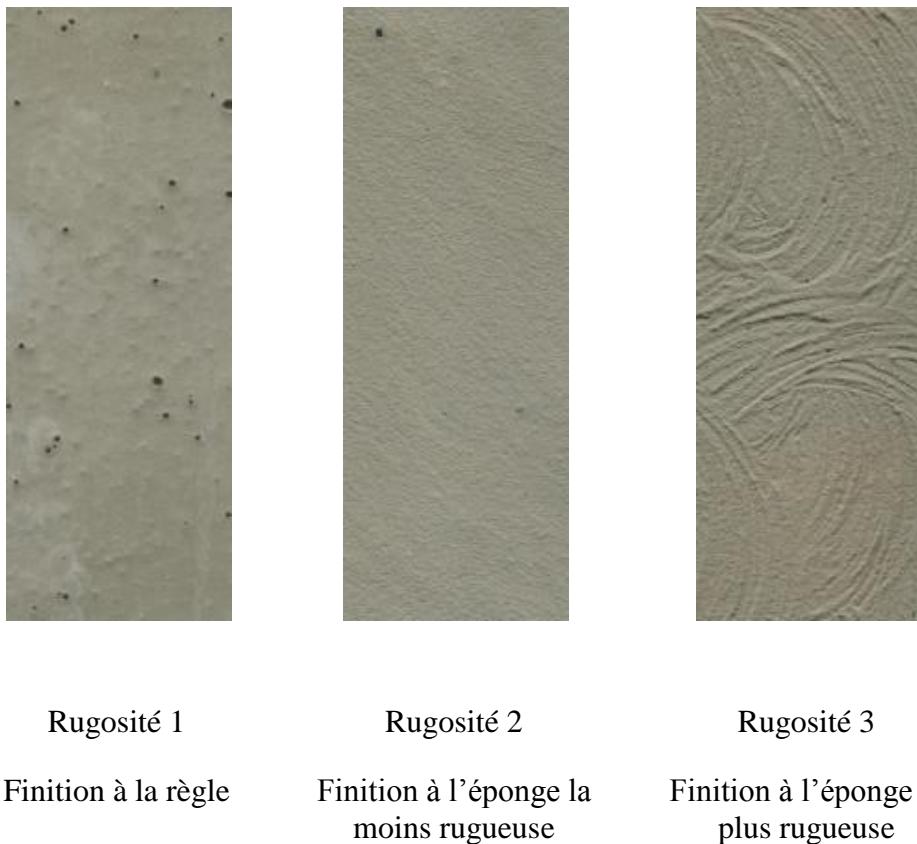


Figure 5.13 Aspect de surface des éprouvettes de différentes rugosités (mortier adjuvanté de rapport E/C = 1)

Les rugosités des mortiers étudiés au cours de nos essais sont données dans le **tableau 5.4**.

Pour chaque essai, trois gammes de rugosité ont été testées. La valeur de R_a entre la rugosité 1 et la 2 est proche. En revanche, un écart important entre les rugosités 2 et 3 est constaté. Pour la rugosité R3, nous constatons une forte dispersion des valeurs de R_a .

Tableau 5.4 Rugosité des mortiers

Essai	Rugosité	Rapport E/C	R_a (μm)
N° 1	R1	1	29 ± 5
		1,2	29 ± 5
	R2	1	47 ± 6
		1,2	47 ± 6
	R3	1	70 ± 8
		1,2	123 ± 9
N° 2	R1	0,5	29 ± 5
		1	29 ± 5
	R2	0,5	47 ± 6
		1	55 ± 4
	R3	0,5	123 ± 9
		1	123 ± 9
N° 3	R1	1	29 ± 5
		1,2	32 ± 4
	R2	1	47 ± 6
		1,2	47 ± 6
	R3	1	138 ± 15
		1,2	145 ± 18
N° 4	R1	0,5	40 ± 9
		1	30 ± 3
	R2	0,5	90 ± 8
		1	55 ± 4
	R3	0,5	186 ± 21
		1	169 ± 17

5.2.4 Mesure du pH de surface

Le *pH* de surface des mortiers (non adjuvantés et adjuvantés, non carbonatés et carbonatés) sont données dans le **tableau 5.5**.

Les échantillons non carbonatés représentent une surface très alcaline. Le *pH* de surface de ces mortiers est de l'ordre de 11.

Tableau 5.5 *pH de surface des mortiers de différents rapports E/C*

Rapport E/C	0,5	1	1,2
pH de surface	Non carbonaté		
	$11,20 \pm 0,40$	$10,80 \pm 0,45$	$11,05 \pm 0,25$
	Carbonaté		
	$9,45 \pm 0,20$	$9,05 \pm 0,10$	$8,95 \pm 0,10$

La carbonatation, par la transformation de la portlandite en carbonate de calcium, a pour effet d'abaisser le *pH* de surface des échantillons. La durée de carbonatation a été fixée à 36 jours pour tous les échantillons. A cette échéance, la profondeur de carbonatation a été vérifiée à l'aide de la phénolphtaléine sur la surface et à l'intérieur des échantillons prélevés de chaque type de mortier. La disparition de la coloration rose indique que le *pH* est inférieur à 10 dans tout le volume de l'échantillon (**figure 5.14**).

Le *pH* de surface des mortiers carbonatés est de l'ordre de 9 pour les mortiers adjuvantés (*E/C* = 1 et 1,2). Pour le mortier non adjuvanté, il est un peu plus élevé. Ce résultat pourrait provenir d'une carbonatation plus lente due à sa plus faible porosité (voir *partie 3.4.6*).



Figure 5.14 Aspect des éprouvettes de mortier de rapport E/C = 1 après pulvérisation d'une solution de phénolphthaléine, avant et après 36 jours de carbonatation

Pour chaque mortier (trois rapports E/C différents), deux gammes du pH de surface ont été obtenues : l'une aux environs de 11 pour les mortiers non carbonatés et l'autre aux environs de 9 pour les mortiers carbonatés.

5.2.5 Comportement des mortiers vis-à-vis de l'eau

5.2.5.1 Absorption d'eau par capillarité

Le coefficient d'absorption d'eau par capillarité des différents mortiers est donné par la **figure 5.15**.

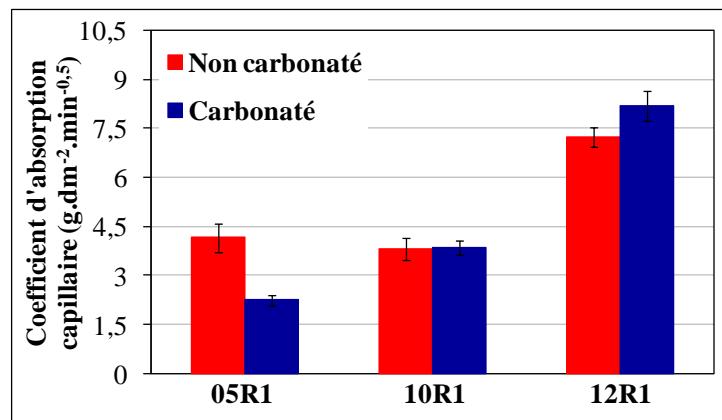


Figure 5.15 Coefficient d'absorption d'eau par capillarité des mortiers de rugosité 1

Le coefficient d'absorption par capillarité de nos mortiers varie de 2 à 8 g.dm⁻².min^{-0,5}. Il est légèrement supérieur à ceux obtenus par **Pourchez et al.** (2010b). Sachant que nous travaillons sur le mortier et pas sur la pâte pure comme eux et que nos mortiers ont été fabriqués avec des rapports E/C plus élevés.

Pour les mortiers non carbonatés, seuls les mortiers de E/C égal à 1,2 ont un coefficient d'absorption d'eau par capillarité supérieure aux autres. Pour les mortiers carbonatés, ce coefficient a tendance à augmenter avec l'augmentation du rapport E/C.

Nous ne trouvons pas une nette influence de la carbonatation sur l'absorption d'eau par capillarité des échantillons.

Dans cette expérience, seule une faible hauteur (5 mm) de l'éprouvette est trempée dans l'eau. L'influence de l'aspect de la surface est alors négligeable. En effet, le coefficient d'absorption par capillarité est identique pour deux rugosités différentes (**figure 5.16**).

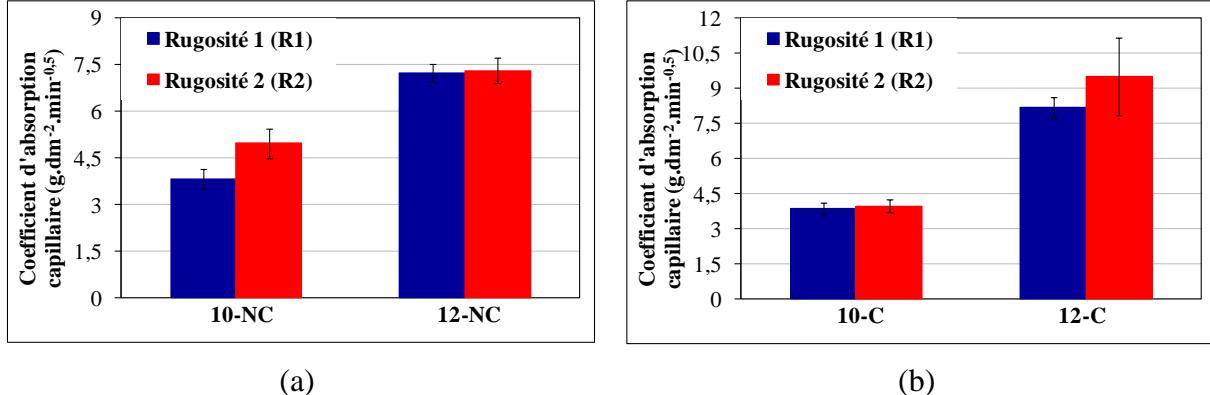


Figure 5.16 Influence de la rugosité sur le coefficient d'absorption d'eau par capillarité des mortiers non carbonatés (a) et carbonatés (b)

5.2.5.2 Permeabilité à l'eau liquide

L'évolution au cours du temps, de la quantité d'eau absorbée ou traversant l'échantillon pour les mortiers non carbonatés et carbonatés est présentée sur la **figure 5.17**.

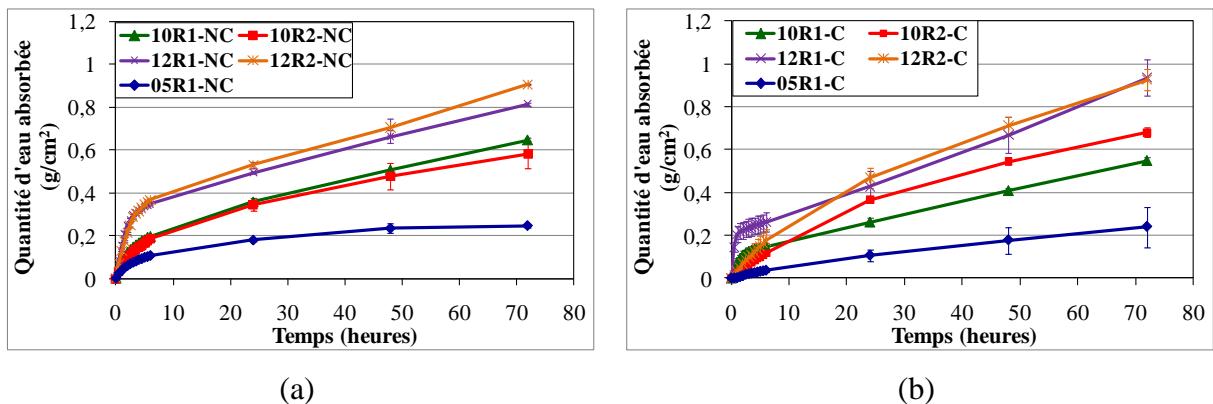


Figure 5.17 Quantité d'eau absorbée par l'échantillon au cours de l'essai de perméabilité à l'eau des mortiers non carbonatés (a) et carbonatés (b)

Comme pour Malatrait (1992), la plupart des échantillons présente un comportement en deux étapes : une première étape correspondant à l'intrusion de l'eau, très vite suivie par une phase stationnaire. En général, après 24 heures, les échantillons sont saturés en eau.

La perméabilité des différents mortiers, non carbonatés et carbonatés, calculée durant la phase stationnaire (entre 24 h et 72 h) est donnée sur la **figure 5.18**.

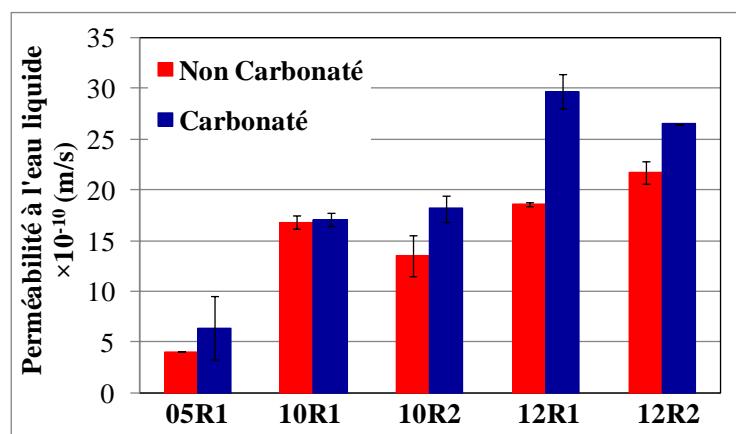


Figure 5.18 Perméabilité à l'eau liquide des mortiers

Pour les mortiers non carbonatés, la perméabilité des mortiers adjuvantés ($E/C = 1$ et $1,2$) est quasi identique. En revanche, une différence significative de perméabilité est observée entre les mortiers adjuvantés et les non adjuvantés ($E/C=0,5$). Nous avons vu, dans la partie 5.2.2, une nette différence de porosité entre ces deux types de mortiers qui pourrait expliquer cette différence de perméabilité à l'eau liquide.

Pour les mortiers carbonatés, la perméabilité à l'eau liquide augmente avec le rapport E/C .

De façon assez générale, la rugosité n'a pas d'effet sur la perméabilité à l'eau liquide de nos mortiers.

La carbonatation a tendance à légèrement augmenter la perméabilité à l'eau liquide de nos mortiers malgré son effet d'obstruer les pores et de réduire la porosité totale. Il faut retenir cependant que la perméabilité dépend non seulement de la porosité totale mais également de la tortuosité, de la connectivité et de la distribution des pores.

5.2.5.3 Perméabilité à la vapeur d'eau

La cinétique d'absorption d'eau par le système « coupelle + matériau » (dispositif décrit en partie 4.2.7.3) des différents mortiers est présentée sur la **figure 5.19**. On constate que quel que soit l'échantillon testé, la quantité d'eau absorbée par le système évolue linéairement avec le temps.

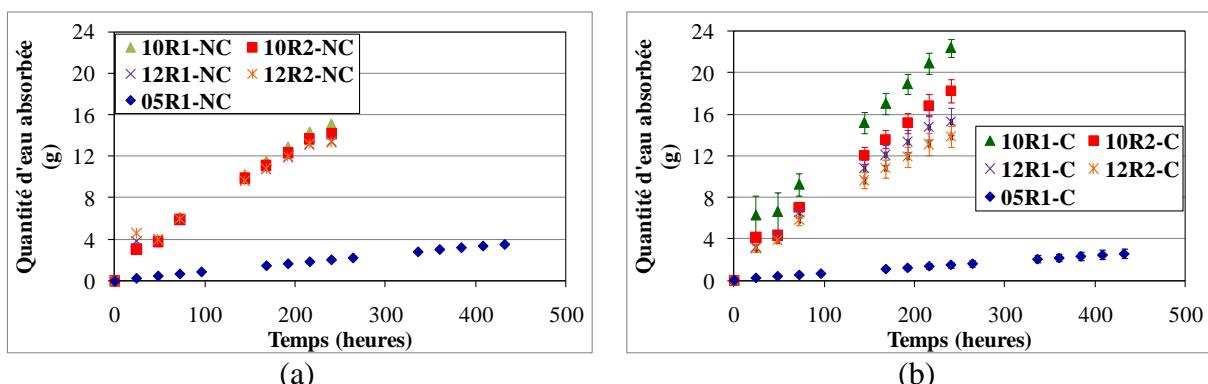


Figure 5.19 Cinétique d'absorption d'eau du système « coupelle+matériau » pour les mortiers non carbonatés (a) et carbonatés (b)

La **figure 5.20** représente les valeurs de perméabilité à la vapeur d'eau de différents échantillons. Le mortier de rapport E/C égal à 0,5 a une perméabilité à la vapeur beaucoup plus faible que les autres mortiers. Cette dernière est d'environ 1×10^{-12} (kg/m.s.Pa) contre une perméabilité supérieure à 8×10^{-12} (kg/m.s.Pa) pour les échantillons de E/C égaux à 1 et 1,2. Nous remarquons que la perméabilité à la vapeur d'eau de nos mortiers est du même ordre de grandeur que celle trouvée par **Malatrait** (1992) sur des mortiers commerciaux et de laboratoire.

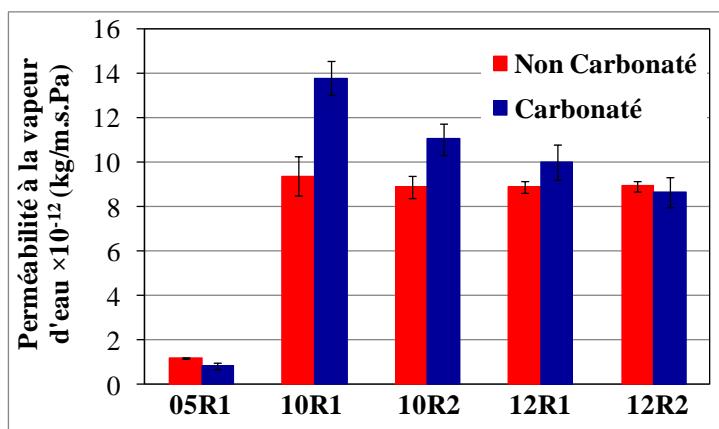


Figure 5.20 Perméabilité à la vapeur d'eau des mortiers

Le mortier de rapport E/C égal à 0,5 possède la porosité la plus faible (suite à l'absence d'adjuvant et au faible rapport E/C). **Malatrait** (1992) a trouvé que la perméabilité à la vapeur d'eau diminue lorsque la porosité diminue. De plus, la taille des pores, en particulier dans la gamme de porosité capillaire, des mortiers de rapport E/C égal à 0,5 est plus petite que celle des autres mortiers (*partie 5.2.2.2*). Or, dans cette gamme de pores, la diffusion de la vapeur d'eau n'est pas gênée par les parois des pores (libre parcours moyen de la molécule d'eau de l'ordre de 0,1 μm d'après **Malattrait** (1992)).

La perméabilité des mortiers non carbonatés de rapport E/C égaux à 1 et 1,2 est globalement identique. Pour la série carbonatée, le mortier de E/C de 1 est même plus perméable que le mortier de E/C de 1,2. Ce résultat n'était pas attendu. Il semblerait que l'écart de porosité entre ces deux mortiers ne soit pas discriminant par rapport à la perméabilité à la vapeur d'eau.

L'effet de la rugosité n'est pas observé sur les échantillons non carbonatés. Pour les échantillons carbonatés, une légère diminution de la perméabilité est observée avec l'augmentation de la rugosité.

5.2.5.4 Détermination de l'isotherme de sorption de vapeur d'eau

Les résultats présentés au-dessous sont obtenus sur un seul échantillon pour chaque formulation. Comme nous l'avons déjà exposé dans la partie 4.2.7.4, nous réalisons d'abord l'adsorption, puis la désorption. La première adsorption est effectuée pour une humidité relative de 30% sur des échantillons secs. L'isotherme d'adsorption de vapeur d'eau des mortiers non carbonatés et carbonatés est représentée sur la **figure 5.21**.

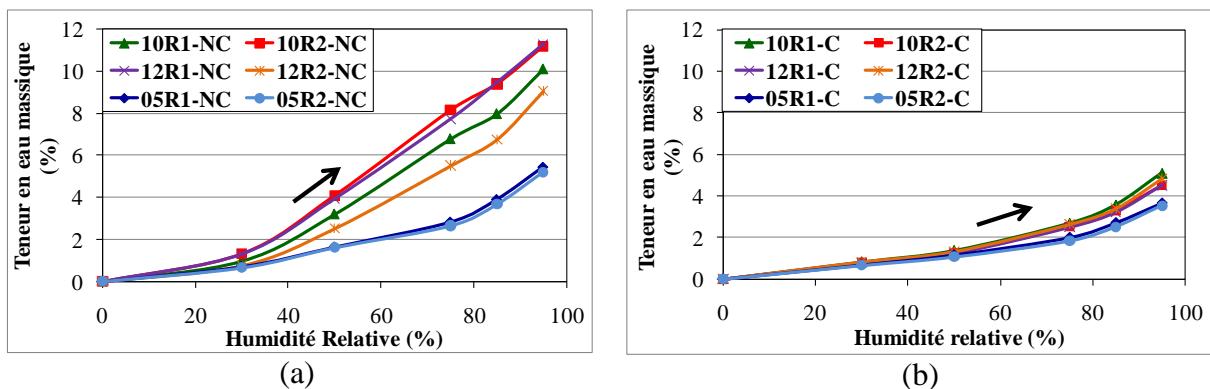


Figure 5.21 Isothermes d'adsorption de vapeur d'eau des mortiers non carbonatés (a) et carbonatés (b)

Au niveau de l'adsorption d'eau, deux catégories de mortiers se dégagent. La première correspond au mortier de E/C égal à 0,5 dont l'adsorption d'eau est relativement faible. La seconde, constituée des autres mortiers, présente une teneur en eau adsorbée supérieure.

Pour les mortiers adjuvants, le rôle du rapport E/C (1 et 1,2) n'est pas mis en évidence quels que soient les échantillons non carbonatés ou carbonatés. Ces mortiers ont, en effet, une porosité proche les uns des autres. En revanche, une différence entre ces mortiers et les mortiers de rapport E/C faible (0,5) est visible à partir de 50% HR pour les échantillons non

carbonatés et à partir de 75% HR pour les échantillons carbonatés. **Baroghel-Bouy** (1994) a également observé que les teneurs en eau adsorbée sont d'autant plus basses que la porosité est faible.

La carbonatation a un effet important sur l'adsorption de la vapeur d'eau. En effet, la quantité d'eau adsorbée est supérieure pour les échantillons non carbonatés que ceux carbonatés. On a vu en *partie 5.2.2* que la carbonatation diminue le volume total des pores.

Comme dans le cas de la perméabilité à l'eau liquide et à la vapeur, la rugosité n'a pas d'influence sur l'adsorption d'eau des échantillons.

Au cours des expériences de sorption de vapeur d'eau, des phénomènes d'hystérésis se manifestent par l'obtention de courbes différentes au cours de l'adsorption et au cours de la désorption. L'hystérésis entre l'adsorption et la désorption peut être d'origines diverses : un état d'équilibre non atteint à un palier d'HR, une carbonatation des mortiers au cours de l'expérience, une tortuosité des pores (« bouteille à encre ») (**Houst** 1992, **Malatrait** 1992).

Les mortiers adjuvantés non carbonatés présentent cette hystérèse. Nous présentons donc ici uniquement celle des mortiers de rapport E/C égal à 1 et de rugosité R1. L'hystérésis proviendrait de la carbonatation. En effet, notre mortier est un matériau très poreux et l'expérience dure longtemps (439 jours).

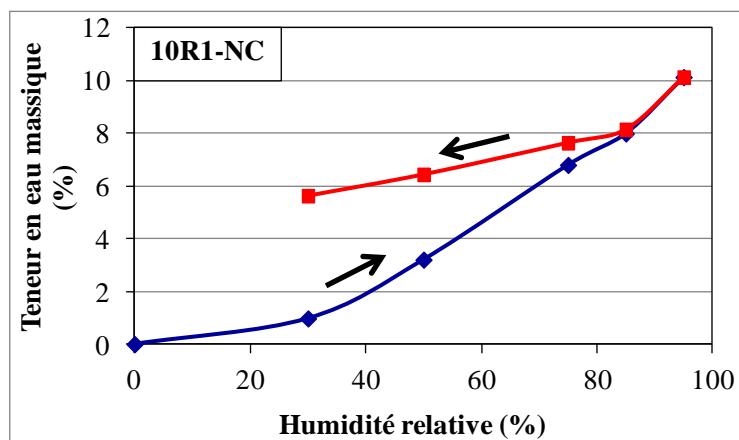


Figure 5.22 Isothermes d'adsorption et de désorption de vapeur d'eau des mortiers non carbonatés, de rapport E/C égal à 1 et de rugosité R1

Pour les mortiers adjuvantés carbonatés, l'hystérésis entre l'adsorption et la désorption est très petite (**figure 5.23**) parce que la carbonatation ne se produit plus au cours d'expérience.

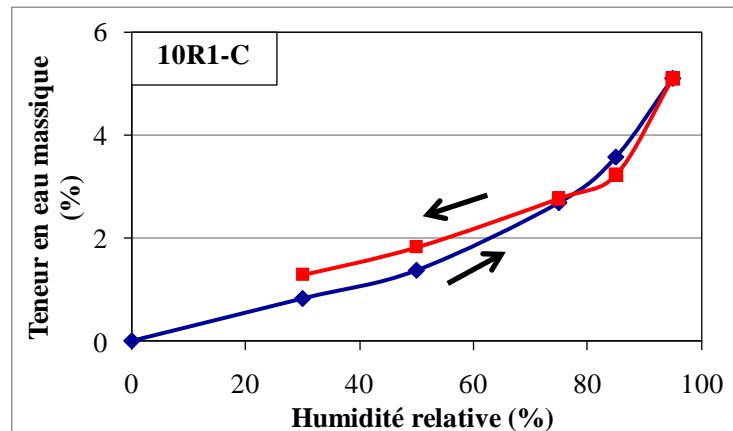


Figure 5.23 Isothermes d'adsorption et de désorption de la vapeur d'eau des mortiers carbonatés, de rapport E/C égal à 1 et de rugosité R1

Une importante hystérésis entre l'adsorption et la désorption de la vapeur d'eau pour les mortiers non adjuvantés est observée (**figure 5.24**). Il faut noter que pour les mortiers non adjuvantés, pour chaque palier d'HR, l'équilibre n'est jamais atteint. Également, la carbonatation des mortiers non adjuvantés est plus faible que celle des mortiers adjuvantés.

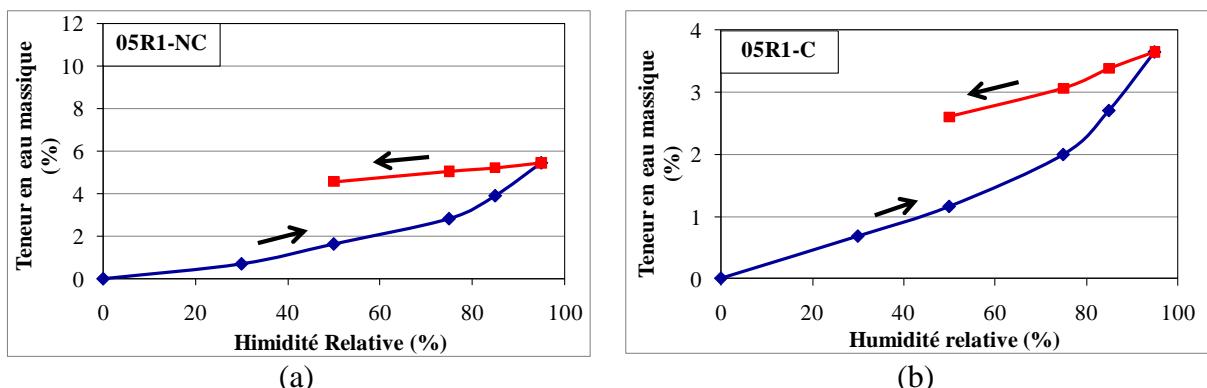


Figure 5.24 Isothermes d'adsorption et de désorption de la vapeur d'eau des mortiers non carbonatés (a) et carbonatés (b), de rapport E/C égal à 0,5 et de rugosité R1

Pour les mortiers adjuvantés, l'effet du rapport E/C (1 et 1,2) sur le comportement vis-à-vis de l'eau n'est pas observé. En revanche, une nette différence est toujours observée entre les mortiers adjuvantés et les mortiers non adjuvantés ($E/C=0,5$). Les mortiers non adjuvantés sont moins perméables à l'eau liquide et à la vapeur d'eau. Ils absorbent également moins d'eau par capillarité et à différentes pressions partielles de vapeur d'eau.

La rugosité n'a pas d'influence sur les phénomènes de transfert hydrique. L'effet de la carbonatation est négligeable sauf pour l'isotherme d'adsorption d'eau. Les mortiers carbonatés adsorbent moins d'eau que les non carbonatés ; ce qui résulterait de leur plus faible porosité.

5.2.6 *Composition des mortiers*

Mortiers non carbonatés

Les thermogrammes des mortiers hydratés pendant 28 jours non carbonatés montrent une importante perte de masse vers 160°C, attribuée à la déshydratation de l'ettringite (TSA) et des CSH (Bhatty 1991). Un second pic apparaît vers 212°C sur la courbe de DTG, dû à la décomposition du monocarboaluminat (MCA) issu de la réaction du filler calcaire et du C₃A (Kuzel 1996, Matschei et al. 2007). La perte de masse située entre 450 et 550°C correspond à la déshydroxylation de la portlandite (Bhatty 1991, Sha et al. 1999). La perte de masse située entre 600 et 900°C correspond à la décarbonatation du carbonate de calcium du filler calcaire (Bhatty 1991), qui est essentiellement due à la présence de filler calcaire dans la formulation (voir Annexe 4).

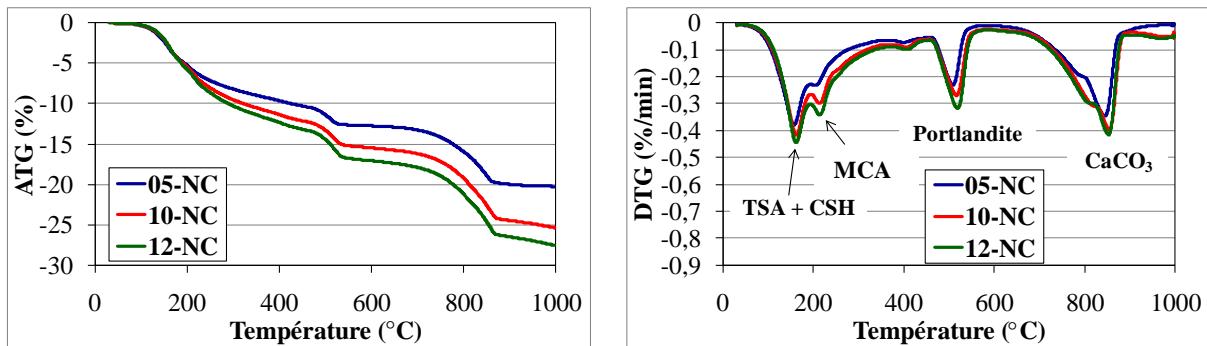


Figure 5.25 Courbe ATG des mortiers non carbonatés

Les pourcentages massiques de portlandite et de carbonate de calcium dans les matrices cimentaires non carbonatés sont donnés dans **tableau 5.6**.

Tableau 5.6 Pourcentages massiques de portlandite et de carbonate de calcium dans les matrices cimentaires non carbonatés

Mortier	Pourcentage de Ca(OH) ₂ (%)	Pourcentage de CaCO ₃ (%)
05-NC	6,65	14,98
10-NC	8,34 ± 0,27	19,46 ± 0,86
12-NC	7,76 ± 0,04	20,88 ± 0,21

Les quantités de chaux et de CaCO₃ des échantillons 10-NC et 12-NC sont semblables et supérieures à celles des échantillons 05-NC.

Mortiers carbonatés

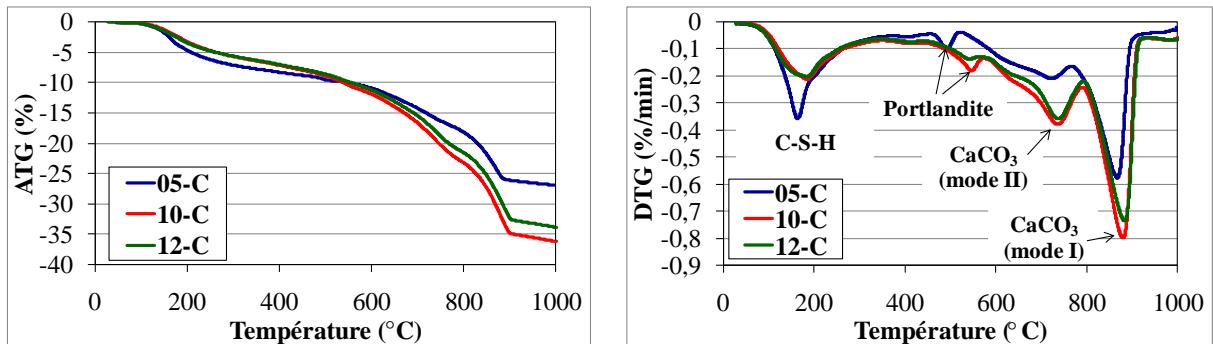


Figure 5.26 Courbes ATG des mortiers carbonatés

Pour les mortiers adjuvantés, les courbes DTG présentent un pic vers 184°C correspondant à la déshydratation des C-S-H. Le pic correspondant à la décomposition de la portlandite est encore présent et se décale vers des températures plus élevées, entre 500 et 560°C.

Concernant la décomposition du carbonate de calcium, nous observons deux modes de décomposition :

- Le mode II de décomposition thermique de CaCO₃, situé vers 730°C, correspond à la décomposition des phases métastables, comme la vaterite ou l'aragonite, qui sont produits par la carbonatation des C-S-H (**Thiery** 2005) et de l'ettringite (**Nishikawa et al.** 1992). Nous vérifierons l'existence de ces phases cristallines par DRX (*partie 5.2.7*).
- Le mode I (vers 870°C) est attribué à la décomposition de la calcite formée à partir de la portlandite. Ce pic s'ajoute à la décomposition du filler calcaire déjà présent dans la formulation initiale (entre 800 et 900°C).

Pour les mortiers non adjuvantés, nous observons un pic correspondant à la décomposition thermique de l'ettringite et des C-S-H plus important que pour les mortiers adjuvantés. Un pic de portlandite est présent vers 480°C. Deux modes de décomposition du carbonate de calcium sont également observés vers 730 et 870°C.

Le décalage du pic de décomposition de la portlandite se produit uniquement pour les mortiers adjuvantés. Cela pourrait provenir du chevauchement de la décomposition du carbonate de calcium amorphe formé par carbonatation de la portlandite et des C-S-H (entre 500 et 680°C). Ce carbonate de calcium amorphe apparaît préférentiellement lorsque le *pH* est bas ($pH \leq 9$) ; ce qui est le cas lorsque les matériaux cimentaires sont en phase ultime de carbonatation, et donc pour nos mortiers adjuvantés (Thiery 2005).

Dans le tableau ci-dessous, les pourcentages massiques de chaux et de carbonate de calcium dans les matrices cimentaires carbonatés sont donnés en supposant la perte de masse entre 500 et 560°C totalement attribuée à la déshydroxylation de la portlandite.

Tableau 5.7 Pourcentages massiques de portlandite et de carbonate de calcium dans les matrices cimentaires carbonatés

Mortier	Pourcentage de $\text{Ca}(\text{OH})_2$ (%)	Pourcentage de CaCO_3 (%)
05-C	1,44	23,02
10-C	$3,43 \pm 0,13$	$33,90 \pm 0,50$
12-C	$2,12 \pm 0,04$	$31,01 \pm 0,52$

Par rapport aux mortiers non carbonatés, la quantité de portlandite diminue et la quantité de carbonate de calcium augmente. La quantité de CaCO_3 formée dans les mortiers non adjuvantés est bien moins importante que pour les mortiers adjuvantés. Ces résultats sont expliqués par une porosité plus faible des mortiers non adjuvantés et donc une carbonatation plus lente.

A partir des résultats d'analyse thermique, nous pouvons calculer la quantité de carbonate de calcium formée à partir de la carbonatation de la portlandite. Le pourcentage de carbonate de calcium total calculé est égal à la somme de la quantité de carbonate de calcium formée à partir de la portlandite et du filler calcaire initialement ajouté (**tableau 5.6**).

Tableau 5.8 Pourcentage massique de portlandite carbonatée, de carbonate de calcium équivalente formée et de carbonate de calcium total

Mortier	Pourcentage de $\text{Ca}(\text{OH})_2$ transformée (%)	Pourcentage de CaCO_3 formé (%)	Pourcentage de CaCO_3 total (%)
05-NC	5,21	7,04	22,02
10-NC	4,91	6,62	26,08
12-NC	5,64	7,62	28,50

La quantité totale de CaCO_3 calculée est inférieure à celle déterminée par ATG pour tous les échantillons carbonatés. Si on tient compte de l'augmentation de masse des matrices cimentaires due à la carbonatation, la quantité totale de CaCO_3 calculée est encore plus faible. On peut donc conclure qu'en plus de la portlandite, les autres hydrates (C-S-H, ettringite, ...) sont également carbonatés.

5.2.7 Diffraction de rayon X (DRX)

Les diffractogrammes des échantillons adjuvantés ($E/C = 1,2$) non carbonatés et carbonatés sont donnés ci-dessous. Les diffractogrammes des autres mortiers sont données en **Annexe 5**.

Sur le diffractogramme présenté en **figure 5.27a**, il est possible d'identifier les phases cristallines correspondant au monocarboaluminate, à la portlandite, à l'ettringite et à la calcite. Ce résultat confirme ceux obtenus en thermogravimétrie. Le quartz provenant du sable est prépondérant.

Sur le diffractogramme du mortier carbonaté, l'intensité des pics associés à la portlandite diminue considérablement, alors que les pics de la calcite augmentent. Les pics de l'ettringite et du monocarboaluminate diminuent également ; ce qui témoigne leur carbonatation. L'apparition des phases aragonite et vatérite sur le diffractogramme confirme les résultats d'analyse thermique et l'apparition du mode II de la décomposition de CaCO_3 .

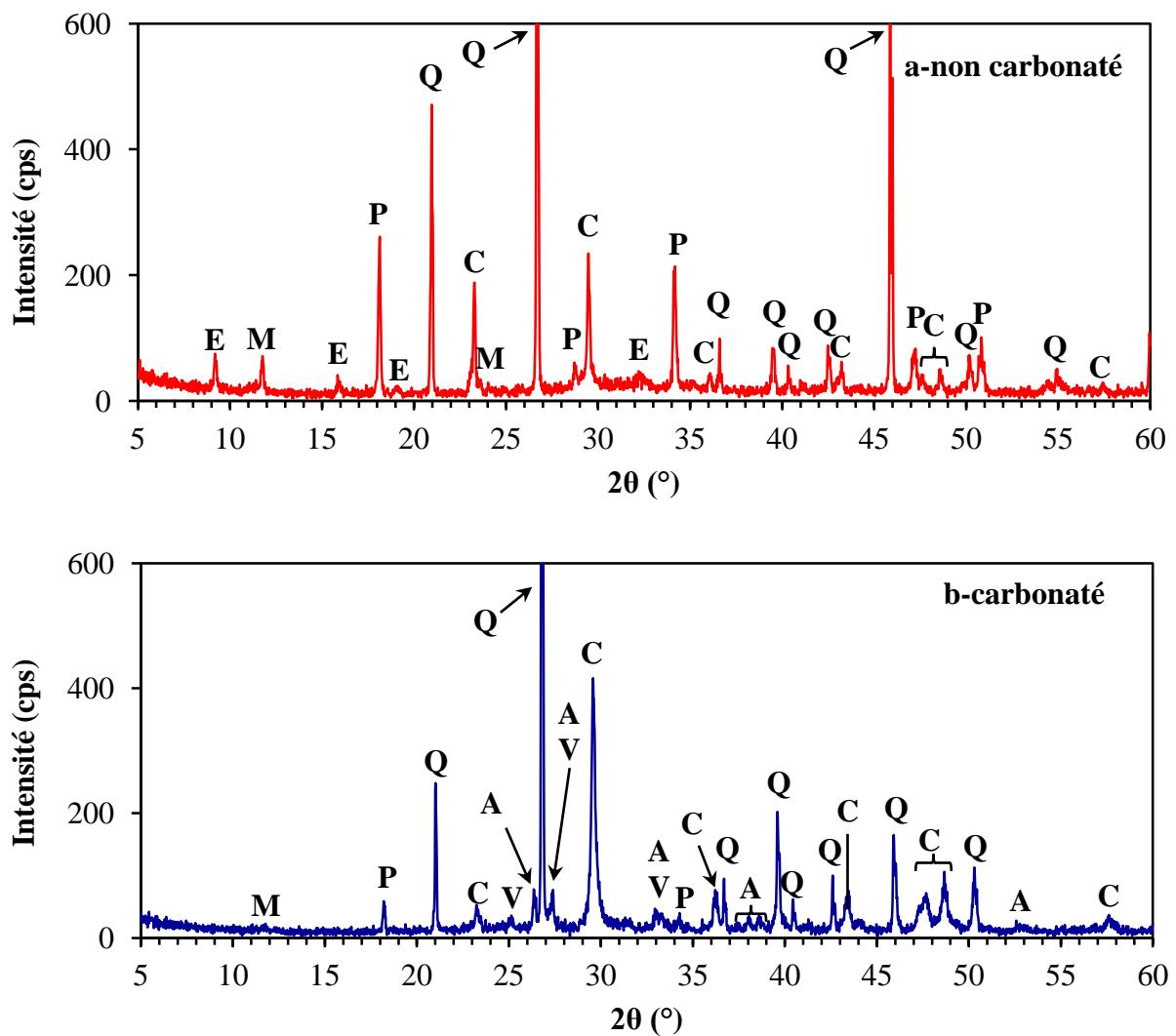


Figure 5.27 Diffractogramme du mortier adjuvanté, E/C égal à 1,2, (a) non carbonaté et (b) carbonaté, (A = Aragonite, C = Calcite, E = Etringite, M = Monocarboaluminate, P = Portlandite, Q = Quartz, V = Vatérite)

La carbonatation a changé la composition des mortiers. En effet, la quantité de portlandite diminue. Les carbonates de calcium polymorphes – aragonite, vatrénite et calcite sont formés. L’ettringite est également carbonaté.

Par ce chapitre, nous avons présenté les caractéristiques des matières premières utilisées dans les essais d'encrassement biologique. Notre algue est une algue verte qui se développe lentement. L'inoculation du banc d'essai d'encrassement devra être réalisée après 24 jours de culture au laboratoire.

Par la variation du rapport E/C , les mortiers de trois porosités différentes ont été obtenus. Cependant, la différence entre les mortiers de rapport E/C égaux à 1 et 1,2 est modeste. En revanche, un écart important de porosité est constaté entre ces deux mortiers et le mortier de rapport E/C égal à 0,5. Par conséquent, la perméabilité à l'eau liquide, la perméabilité à la vapeur d'eau, l'absorption d'eau par capillarité, l'adsorption d'eau à différentes HR des mortiers de E/C égaux à 1 et 1,2 sont identiques mais nettement plus importantes que celles des mortiers de rapport E/C de 0,5. Trois classes de rugosités de surface ont été également obtenues. Par la carbonatation, nous avons des mortiers de deux pH de surface différents : environ 11 pour les mortiers non carbonatés et environ 9 pour les mortiers carbonatés.

L'influence des caractéristiques des mortiers sur leur colonisation par les algues sera présentée dans le chapitre suivant.

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES 2

- Ana** (2008). *Analyse des couleurs, parlons clair.* <http://www.konicaminolta.eu/fr/instruments-de-mesure/colour-light-knowledge.html>
- Babichenko S., Leeben A. & Poryvkina L.** (2001). *Variability of Chlorella sp. fluorescence in response to different nitrogen conditions.* Int. J. Remote Sensing, 22, 403-414.
- Baroghel-Bouy V.** (1994). *Caractérisation des pâtes de ciment et des bétons. Méthodes, analyses, interprétation.* Thèse de doctorat, Ecole Nationale des Ponts et Chaussées de Paris.
- Bhatty J.I.** (1991). *A review of the application of thermal analysis to cement – admixture systems.* Thermochimica Acta, 189, 313- 350.
- Berden-Zrimec M., Drinovec L., Molinari I., Zrimec A., Umani S.F. & Monti M.** (2008). *Delayed fluorescence as a measure of nutrient limitation in Dunaliella tertiolecta.* Journal of Photochemistry and Photobiology B: Biology, 92, 13-18.
- Chen M., Tang H., Ma H., Holland T.C., Simon Ng K.Y & Salley S.O.** (2011). *Effect of nutrients on growth and lipid accumulation in the green algae Dunaliella tertiolecta.* Bioresource Technology, 102, 1649-1655.
- Choi A., Kim S.G., Yoon B.D. & Oh H.M.** (2003). *Growth and Amino Acid Contents of Spirulina platensis with Different Nitrogen Sources.* Biotechnology and Bioprocess Engineering, 8, 368-372.
- Cramer M. & Myers J.** (1948). *Nitrate Reduction and Assimilation in Chlorella.* The Journal of General Physiology, 32, 93-102.
- CSTB** (1982). *Modalités d'essais des enduits extérieurs d'imperméabilisation de mur à base de liants hydrauliques.* Cahiers du CSTB 1779, 1-8.
- CSTB** (1993). *Certification CSTBat des enduits monocouches d'imperméabilisation (classification MERUC).* Cahiers du CSTB 2669, 1-16.

- D'Souza F.M.L. & Kelly G.J.** (2000). *Effects of a diet of a nitrogen-limited alga (*Tetraselmis uecica*) on growth, survival and biochemical composition of tiger prawn (*Penaeus semisulcatus*) larvae*. Aquaculture, 181, 311-329.
- Fujita R.M.** (1985). *The role of nitrogen status in regulating transient ammonium uptake and nitrogen storage by macroalgae*. Journal of Experimental Marine Biology and Ecology, 92, 283-301.
- Fogg G.E.** (2001). *Algal Adaptation to Stress – Some General Remarks*. In: Rai, L.C., Gaur, J.P. (Eds). Algal Adaptation to Environmental Stresses. Physiological, Biochemical and Molecular Mechanisms. Springer-Verlag, Berlin, 1-19.
- Gadelmawla E.S., Koura M.M., Maksoud T.M.A., Elewa I.M. & Soliman H.H.** (2002). *Roughness parameters*. Journal of Materials Processing Technology, 123, 133-145.
- Hipkin C.R. & Syrett P.J.** (1977). *Some Effects of Nitrogen-Starvation on Nitrogen and Carbohydrate Metabolism in *Ankistrodesmus braunii**. Planta, 133, 209-214.
- Houst Y.F.** (1992). *Diffusion de gaz carbonatation et retrait de la pâte de ciment durcie*. Thèse de doctorat, Ecole Polytechnique Fédérale de Lausanne.
- Jahnke J., Mahlmann D.M., Jacobs P. & Priefer U.B.** (2010). *The influence of growth conditions on the cell dry weight per unit biovolume of *Klebsormidium flaccidum* (Charophyta), a typical ubiquitous soil alga*. Journal of Applied Phycology.
- Jenni A., Holzer L., Zurbriggen R. & Herwegh M.** (2005). *Influence of polymers on microstructure and adhesive strength of cementitious tile adhesive mortars*. Cement and Concrete Research, 35, 35-50.
- Kuzel H.J.** (1996). *Initial Hydration Reactions and Mechanisms of Delayed Ettringite Formation in Portland Cements*. Cement and Concrete Composites, 18, 195-203.
- Lafhaj Z., Goueygou M., Djerbi A. & Kaczmarek M.** (2006). *Correlation between porosity, permeability and ultrasonic parameters of mortar with variable water/cement ratio and water content*. Cement and Concrete Research, 36, 625-633.
- Matschei T., Lothenbach B. & Glasser F.P.** (2007). *The AFm phase in Portland cement*. Cement and Concrete Research, 37, 118-130.

- Malatrait M.** (1992). *Propriétés hydriques du mortier pour enduits de façades en relation avec sa structure poreuse, mise en œuvre, durabilité.* Thèse de doctorat, Institut National Polytechnique de Toulouse.
- Monge J.** (2007). *Fissuration des mortiers en couches minces - Effets de l'hydratation, du séchage et de la carbonatation.* Thèse de doctorat, Ecole Normale Supérieure de Cachan.
- NTSC** (2010). *National Television System Committee* (<http://www.ntsc-tv.com>)
- Pourchez J., Grosseau P. & Ruot B.** (2010a). *Changes in C_3S hydration in the presence of cellulose ethers.* Cement and Concrete Research, 40, 179-188.
- Pourchez J., Ruot B., Debayle J., Pourchez E. & Grosseau P.** (2010b). *Some aspects of cellulose ethers influence on water transport and porous structure of cement-based materials.* Cement and Concrete Research, 40, 242-252.
- Prescott L.M., Harley J.P. & Klein D.A.** (2003). *Microbiologie.* De Boeck Université (Eds).
- Rabinowitch E. & Govindjee** (1969). Photosynthesis. John Wiley & Sons, New York.
- Raven J.A. & De Michelis M.I.** (1979). *Acid-Base regulation during nitrate assimilation in *Hydrodictyon africanum*.* Plant, Cell and Environment, 2, 245-257.
- Sha W., O'Neill E.A. & Guo Z.** (1999). *Differential scanning calorimetry study of ordinary Portland cement.* Cement and Concrete Research, 29, 1487-1489.
- Thierry M.** (2005). *Modélisation de la carbonatation atmosphérique des matériaux cimentaires ; prise en compte des effets cinétiques et des modifications microstructurales et hydriques.* Thèse de doctorat, Ecole Nationale des Ponts et Chaussées de Paris.
- Védrine C.** (2003). *Exploitation des signaux biologiques pour la réalisation de capteurs environnementaux. Application à la construction d'un biocapteur à micro-algues immobilisées et d'une bioélectrode à enzyme immobilisée.* Thèse de doctorat, Ecole Nationale Supérieure des Mines de Saint Etienne.

Young E.B. & Beardall J. (2003). *Photosynthetic function in Dunaliella tertiolecta (Chlorophyta) during a nitrogen starvation and recovery cycle*. Journal of Phycology, 39, 897-905.

Influence des caractéristiques intrinsèques du mortier sur son encrassement biologique

Chapitre 6 RESULTATS EXPERIMENTAUX

Dans ce chapitre, nous présentons les résultats obtenus au cours des essais accélérés en laboratoire et des essais *in situ*. Pour chaque type d'essai, les effets de la porosité, de la rugosité et de la carbonatation seront examinés. Trois méthodes d'évaluation (estimation de la surface colonisée par analyse d'images, estimation de l'intensité d'encrassement et mesure de couleur dans l'espace $L^*a^*b^*$) ont été utilisées pour les essais accélérés en laboratoire. Les résultats de deux méthodes (analyse d'images et mesure de couleur dans l'espace $L^*a^*b^*$) seront présentés pour les essais *in situ*.

6.1 Essais accélérés en laboratoire

Dans cette partie, nous allons nous attacher à présenter les résultats obtenus avec le banc d'essai. Ce banc d'essai présente, entre autre, deux avantages :

- Une bonne maîtrise et une bonne reproductibilité des paramètres de culture des algues,
- Une accélération du mécanisme d'encrassement des matériaux cimentaires par rapport aux essais *in situ*.

Au cours de cette étude, quatre essais ont été réalisés dans le banc d'essai, afin d'étudier l'influence de la porosité, de la rugosité et de la carbonatation du mortier sur le développement d'algues.

Les mortiers étudiés dans chaque banc d'essai ainsi que leur nomenclature sont récapitulés dans le **tableau 6.1**.

Tableau 6.1 Caractéristiques des mortiers étudiés dans chaque banc d'essai

	Rapport E/C	Rugosité	Carbonatation	Nomenclature
Essai n°1	1 et 1,2	R1, R2, R3	Non carbonatés	10R1-NC-1, 10R2-NC-1, 10R3-NC-1 12R1-NC-1, 12R2-NC-1, 12R3-NC-1
Essai n°2	0,5 et 1	R1, R2, R3	Non carbonatés	05R1-NC-2, 05R2-NC-2, 05R3-NC-2 10R1-NC-2, 10R2-NC-2, 10R3-NC-2
Essai n°3	1 et 1,2	R1, R2, R3	Carbonatés	10R1-C-3, 10R2-C-3, 10R3-C-3 12R1-C-3, 12R2-C-3, 12R3-C-3
Essai n°4	0,5 et 1	R1, R2, R3	Carbonatés	05R1-C-4, 05R2-C-4, 05R3-C-4 10R1-C-4, 10R2-C-4, 10R3-C-4

6.1.1 Remarques d'ordre général

L'encrassement des échantillons s'initie par de petites tâches d'algues accrochées sur la surface. Souvent, ces tâches apparaissent sur des sites privilégiés comme les trous formés par les bulles d'air ou les aspérités créées par la rugosité. L'extension de l'encrassement résulte ensuite de l'élargissement de ces premières tâches lié au développement des algues et de l'apparition de nouvelles tâches.

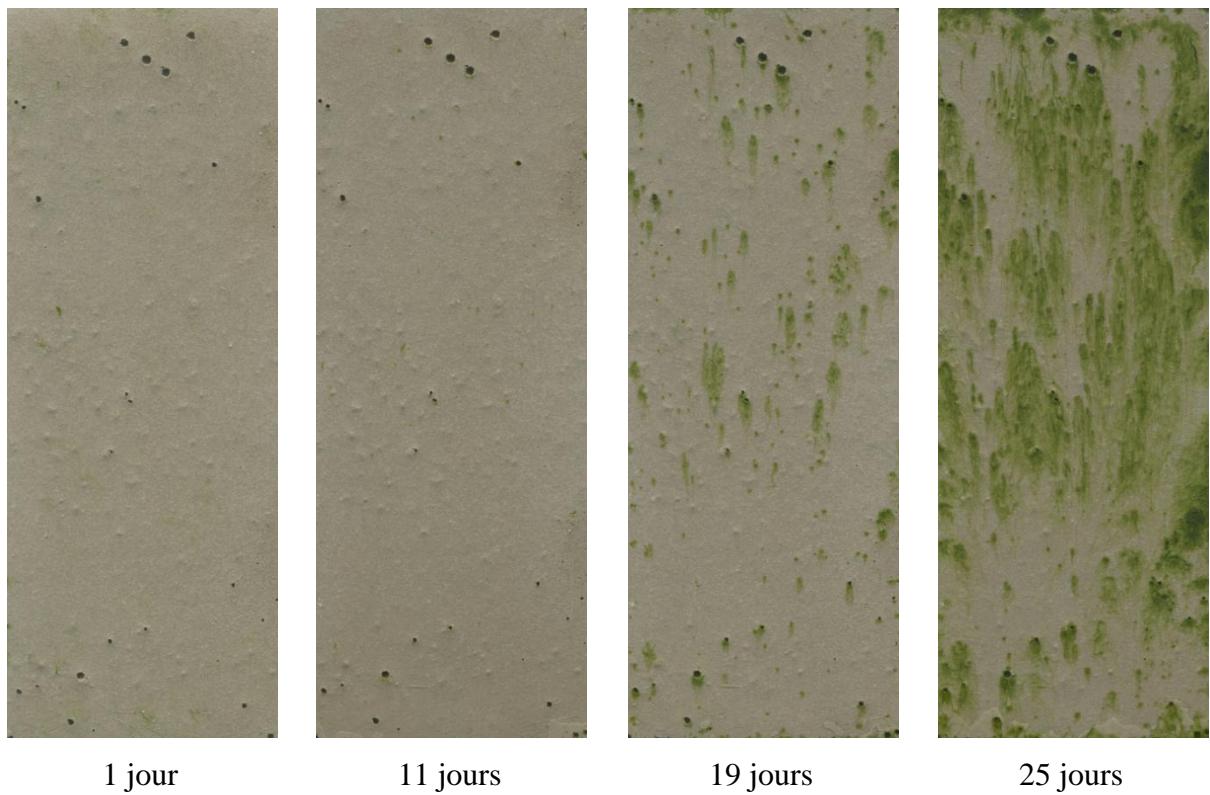
Dans notre banc, l'encrassement par les algues forme des traînées sur la surface des mortiers due à l'écoulement de la suspension pour les rugosités les plus faibles (R1 et R2). Cette forme d'encrassement est souvent observée sur les façades des bâtiments (**Barberousse et al.** 2007).

Pour les mortiers ayant la rugosité la plus importante (R3), l'écoulement de la suspension d'algues est fortement influencé par la rugosité. Le développement de l'encrassement suit alors les aspérités de la rugosité.

La **figure 6.1** illustre la colonisation des échantillons par les algues après différentes échéances. La colonisation de *Klebsormidium flaccidum* produit une couche dense constituée de nombreux filaments enchevêtrés (**Rindi et al.** 2008).

Afin de s'affranchir de la variabilité des algues, chaque test sera étudié séparément. En revanche, des échantillons confectionnés avec un rapport E/C égal à 1 sont intégrés dans chaque banc d'essai, afin de servir de référence. Les résultats présentés dans les parties suivantes correspondent aux valeurs moyennes et aux écart-types calculés sur trois échantillons. Une bonne reproductibilité de chaque essai a été observée.

Rugosité R1



Rugosité R3

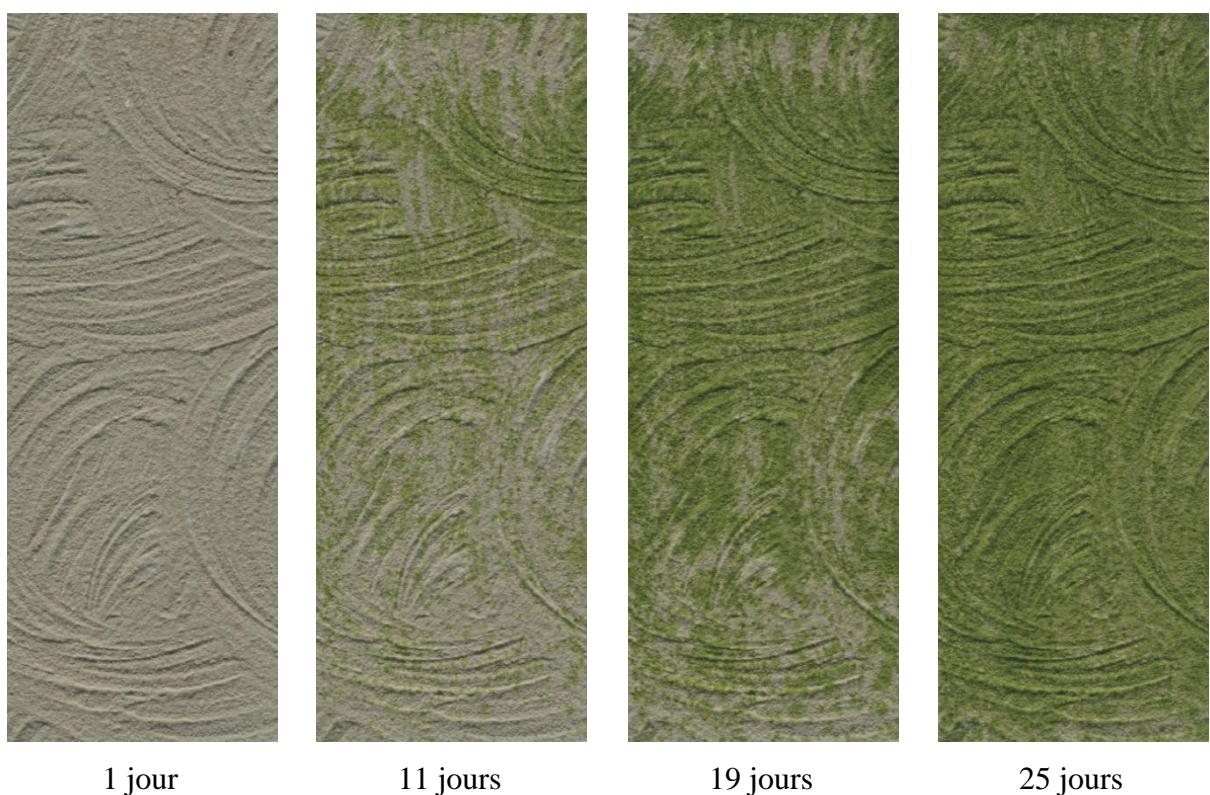


Figure 6.1 Evolution de la surface colonisée par les algues des mortiers carbonatés, de rapport E/C égal à 1, de rugosités R1 et R3 (essai n°4)

Par ailleurs, nous avons cherché à vérifier l'uniformité de la colonisation sur l'ensemble de la surface de nos échantillons. Pour le démontrer, nous avons examiné l'évolution de la couleur sur différentes parties de la surface des échantillons.

La surface des échantillons a été divisée en plusieurs parties de superficie équivalente (**figure 6.2**) selon la direction longitudinale (haut, milieu et bas) et selon la direction transversale (bord et centre).

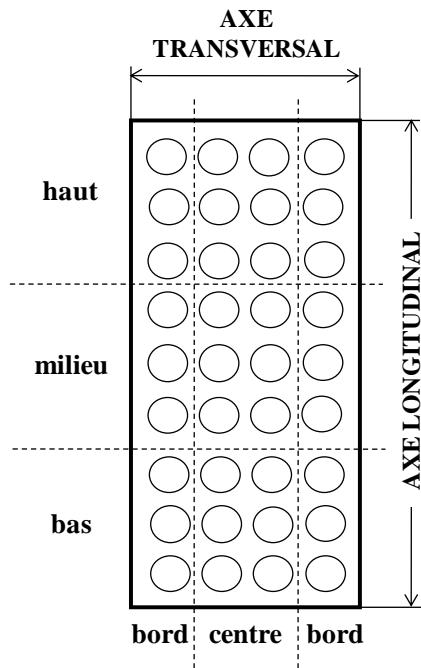


Figure 6.2 Division de la surface des échantillons en différentes parties

Les **figures 6.3** et **6.4** présentent l'évolution des trois coordonnées de l'espace couleur $L^*a^*b^*$ des différentes parties d'un échantillon 10R1-C de l'essai n°4.

Nous constatons que, suivant l'axe longitudinal ou transversal, l'évolution de la couleur des différentes parties est identique. Cela signifie que la colonisation est homogène. Ces résultats ont été obtenus pour tous les échantillons utilisés au cours des essais accélérés.

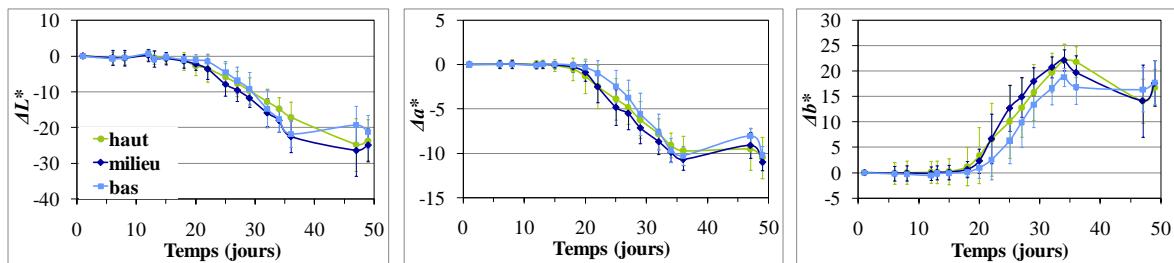


Figure 6.3 Evolution, en fonction du temps, des coordonnées $L^*a^*b^*$ dans la direction longitudinale du mortier carbonaté, de rapport E/C égal à 1 et de rugosité R1 (essai n°4)

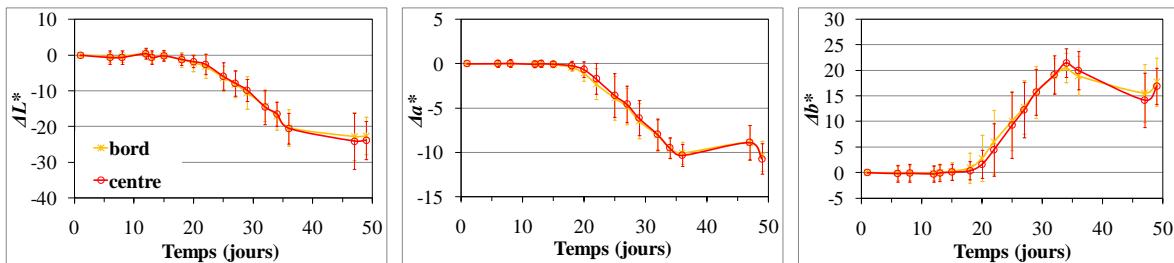


Figure 6.4 Evolution, en fonction du temps, des coordonnées $L^*a^*b^*$ dans la direction transversale du mortier carbonaté, de rapport E/C égal à 1 et de rugosité R1 (essai n°4)

La colonisation par les algues rend la surface des échantillons de plus en plus sombre (diminution de ΔL^*), de plus en plus verte (diminution de Δa^*) et de plus en plus jaune (augmentation de Δb^*). Ces couleurs sont directement liées aux chlorophylles et aux caroténoïdes contenus dans les cellules des algues. En effet, ces pigments cellulaires absorbent moins la lumière dans ces gammes de couleur (**figure 4.11**).

6.1.2 Influence de la porosité

Dans cette partie, nous avons étudié l'effet de la porosité sur la colonisation par les algues des mortiers. Des mortiers fabriqués avec les trois rapports E/C différents sont donc testés.

6.1.2.1 Mortiers non carbonatés

a- Estimation par analyse d'images de la surface colonisée des mortiers

La **figure 6.5** représente l'influence du rapport E/C (1 et 1,2) des mortiers non carbonatés, pour deux rugosités différentes (R1 et R2). Ces mortiers ne présentent pas de différence

significative de porosité (*partie 5.2.2.1*). De ce fait, compte-tenu des barres d'erreur, leur encrassement biologique est similaire.

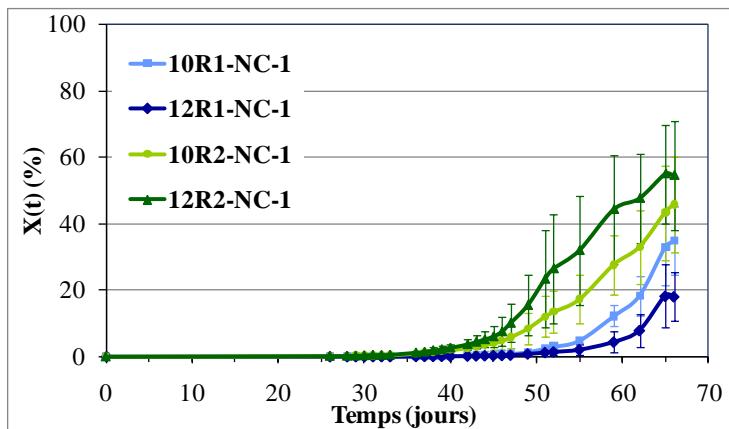


Figure 6.5 Evolution, en fonction du temps, du taux de surface colonisée par les algues des mortiers non carbonatés, de rapports E/C de 1 et 1,2, de rugosités R1 et R2 (essai n°1)

Pour les mortiers de plus forte rugosité (R3), nous constatons une vitesse de colonisation par les algues dépendante du rapport E/C (**figure 6.6**). En effet, les échantillons 12R3-NC-1 sont colonisés plus rapidement que les échantillons 10R3-NC-1. Pourtant, cette différence est plutôt due à l'effet d'une variation de rugosité que de la porosité. La mesure de rugosité de surface des échantillons donne une valeur de R_a environ $123 \pm 10 \mu\text{m}$ pour le mortier de $E/C = 1,2$ contre $70 \pm 4 \mu\text{m}$ pour le mortier de $E/C = 1$. Ce problème de reproductibilité provient de la création manuelle de cette rugosité en début de prise du mortier.

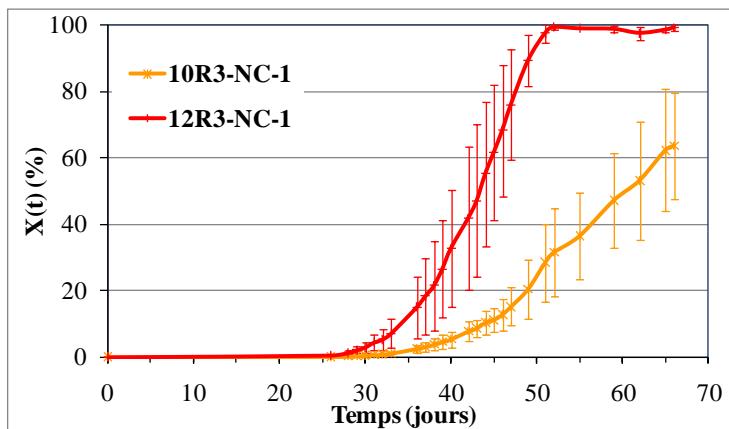


Figure 6.6 Evolution, en fonction du temps, du taux de surface colonisée par les algues des mortiers non carbonatés, de rapports E/C de 1 et 1,2, de rugosité R3 (essai n°1)

Les mortiers de rapport E/C égal à 0,5 et 1 possèdent une grande différence de porosité (15,9% pour le premier contre 37,2% pour le dernier). En revanche, son influence sur la colonisation des mortiers par les algues n'a, également, pas été mise en évidence (**figure 6.7**).

Pour la rugosité R3, la colonisation des échantillons commence après 20 jours d'essai. Au bout de 50 jours, la colonisation couvre la totalité de la surface des échantillons. L'évolution de la surface colonisée pour les deux E/C est totalement identique. Il en est de même pour les mortiers de rugosité R1. En effet, à l'erreur expérimentale près, la vitesse de colonisation de la surface des échantillons de porosité faible est identique à celle des mortiers plus poreux. Le petit écart pouvant peut-être s'expliquer par la présence de bulles d'air à la surface des échantillons 10R1-NC-2, inexistantes sur échantillons 05R1-NC-2.

Pour la rugosité R2, la colonisation des échantillons des deux rapports E/C testés (0,5 et 1) est différente. Pourtant, elle ne résulte pas d'une variation de porosité. Il semble que ces mortiers présentent un comportement anormal. La colonisation par les algues ne s'étend pas d'une manière homogène sur leur surface. Il existe une partie ayant été très tardivement colonisée. Pourtant, la mesure du pH de surface ne montre pas de différences à différents endroits des échantillons. Par ailleurs, la colonisation des échantillons 05R2-NC-2 débute beaucoup plus tardivement que les échantillons 10R2-NC-2. La faible différence de rugosité entre eux ne peut pas permettre d'expliquer ce phénomène. En général, l'état surfacique de ces échantillons présente des hétérogénéités liées à l'étape de fabrication (frottage par éponge).

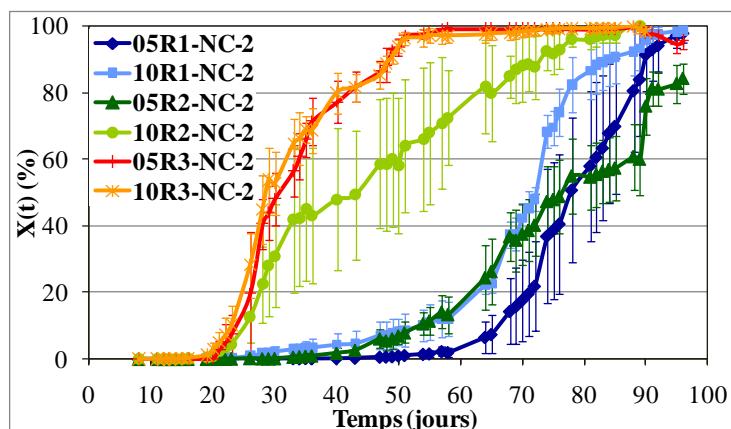


Figure 6.7 Evolution, en fonction du temps, du taux de surface colonisée par les algues des mortiers non carbonatés, de rapports E/C de 0,5 et 1 (essai n°2)

Malgré quelques résultats dispersés, l'influence de la porosité au cours de nos essais est négligeable. Elle est plus affirmée à travers les mortiers carbonatés, qui seront traités dans la partie suivante.

Pourtant, ces considérations ne sont pas en accord avec la littérature. En effet, des essais de laboratoire, menés par plusieurs auteurs ont prouvé que la porosité était un facteur important et influant sur la colonisation biologique (**Guillitte & Dreesen** 1995, **Ohshima** et al. 1999, **Tomaselli** et al. 2000, **Prieto** et **Silva** 2005, **Miller** et al. 2006, **Barberousse** et al. 2007, **Escadeillas** et al. 2009, **Miller** et al. 2009). Il a été constaté que plus les matériaux sont poreux, plus ils sont sensibles à la colonisation biologique. Egalement, l'absorption d'eau par capillarité et la sorption d'eau, qui sont étroitement liées au réseau poreux, sont des paramètres importants. Pourtant, il faudrait distinguer les essais menés par ces auteurs selon deux catégories :

- Humidification des matériaux par remontée d'eau par capillarité ou par sorption d'eau sous différentes hygrométries (**Ohshima** et al. 1999, **Tomaselli** et al. 2000, **Prieto** et **Silva** 2005, **Miller** et al. 2006, **Miller** et al. 2009);
- Humidification des matériaux par ruissellement intermittent (**Guillitte** et **Dreesen** 1995, **Barberousse** et al. 2007).

Dans le premier cas, l'effet de la porosité est très bien mis en évidence. En effet, une grande porosité permet aux matériaux d'absorber un volume d'eau important et de le retenir plus longtemps. L'eau « piégée » dans ces matériaux est alors disponible en grande quantité pour les algues, et ce, même pendant la période sèche. Ils favorisent alors la croissance des algues.

Dans le deuxième cas, les auteurs ont comparé des matériaux de natures très différentes. Ils ont mélangé les roches, les matériaux cimentaires, les briques, etc... L'effet de la porosité peut donc interférer avec des paramètres chimiques.

Dans notre cas, l'effet de la porosité n'est pas observé en raison d'une humidité relative (HR) élevée dans le banc d'essai. Avec le ruissellement d'eau ayant lieu deux fois par jour et l'isolement du banc d'essai du milieu extérieur (par un couvercle étanche), l'humidité relative est constamment comprise entre 80 et 100% en fonction de la période diurne ou nocturne. Les

néons ont pour effet de réchauffer l'atmosphère du banc, contribuant à la baisse de l'HR. La température varie entre 24 et 30 °C (**figure 6.8**).

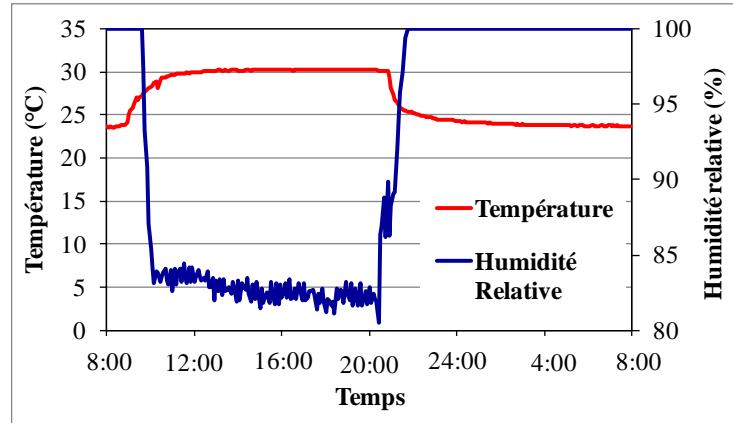


Figure 6.8 Cycle journalier de température et d'humidité relative dans le banc d'essai

Le suivi de la masse des échantillons ($m_{éch}$) au cours d'un cycle journalier nous permet d'évaluer la quantité d'eau, par unité de volume, absorbée par les échantillons (**figure 6.9**). Cette quantité q est calculée comme suit :

$$q(\%) = 100 \times \frac{V_{eau}}{V_{éch}} = 100 \times \frac{m_{eau}}{\rho_{eau} \times V_{éch}} \quad (6.1)$$

Où :

V_{eau} : volume d'eau absorbée par l'échantillon (cm^3)

m_{eau} : masse d'eau absorbée par l'échantillon (g) ($m_{eau} = m_{éch} - m_{éch} \text{ à l'état sec}$)

ρ_{eau} : masse volumique de l'eau (1 g/cm³)

$V_{éch}$: volume apparent de l'échantillon (cm^3) (*partie 4.2.4.1*)

Le taux (ε) de pores de l'échantillon rempli par de l'eau est calculé selon l'équation suivante :

$$\varepsilon = \frac{q}{p_{PIM}} \quad (6.2)$$

Où :

p_{PIM} : porosité mesurée par PIM de l'échantillon (%) (partie 5.2.2.1)

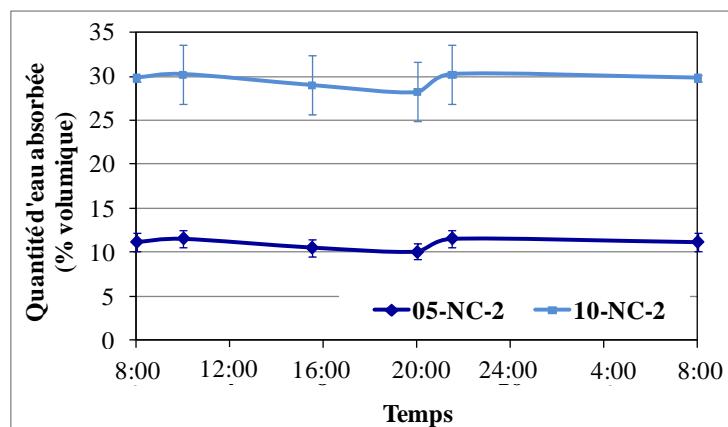


Figure 6.9 Quantité d'eau absorbée par les mortiers non carbonatés, de rapports E/C de 0,5 et 1 au cours d'un cycle (essai n°2)

La quantité d'eau absorbée par les échantillons est maximale juste après le cycle d'arrosage et reste constante pendant la période nocturne. Au cours de la période diurne, l'eau s'évapore sous l'effet des néons. La quantité d'eau absorbée occupe, cependant, au minimum 63% de la porosité des échantillons 05-NC et 75% de la porosité des échantillons 10-NC en fin de période diurne. C'est la raison pour laquelle, l'eau ne constitue pas un facteur limitant pour le développement des algues et que nous n'observons donc pas de différences de cinétique de colonisation par les algues entre deux mortiers de porosités très différentes.

b- Estimation de l'intensité d'encrassement par mesure de la perte de réflectance

L'évolution de l'intensité d'encrassement des échantillons non carbonatés de l'essai n°2 est donnée sur la **figure 6.10**.

Nous remarquons que l'évolution de l'intensité d'encrassement est en bon accord avec les résultats obtenus par analyse d'images. En effet, pour les mortiers de rugosité R3, le temps de latence est d'environ 20 jours et l'intensité d'encrassement atteint son maximum après 50 jours. Ils correspondent respectivement aux temps de latence de la colonisation et aux temps de recouvrement total estimé par analyse d'images. Pour les mortiers de rugosité R1, nous pouvons noter les mêmes observations.

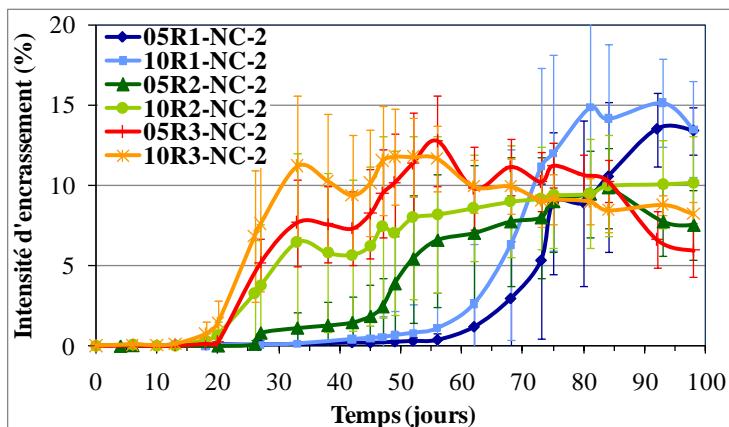


Figure 6.10 Evolution, en fonction du temps, de l'intensité d'encrassement des mortiers non carbonatés, de rapports E/C de 0,5 et 1, de rugosités R1, R2 et R3 (essai n°2)

L'intensité d'encrassement augmente avec l'extension de la surface colonisée. Elle atteint le maximum entre 10 et 15% quand la totalité de la surface des échantillons est colonisée.

Pour la rugosité R2, malgré les barres d'erreur si importantes, les résultats semblent cohérents avec les résultats précédents obtenus par analyse d'images.

Pour les deux autres rugosités (R1 et R3), nous n'observons pas de différence significative d'encrassement entre les mortiers des deux rapports E/C testés (0,5 et 1). Les courbes d'intensité d'encrassement de ces deux mortiers sont identiques aux erreurs expérimentales

près. Ce résultat confirme que la porosité n'a pas d'influence sur la colonisation des mortiers par les algues dans nos essais.

*c- Estimation de l'intensité d'encrassement dans l'espace couleur L*a*b**

Le changement des coordonnées de l'espace couleur $L^*a^*b^*$ en fonction du temps est représenté sur les **figures 6.11, 6.12 et 6.13**.

Conformément à ce que l'on attendait, la surface des échantillons devient de plus en plus sombre (diminution de ΔL^*), de plus en plus verte (diminution de Δa^*) et de plus en plus jaune (augmentation de Δb^*). Ces couleurs reflètent la couleur de l'algue étudiée.

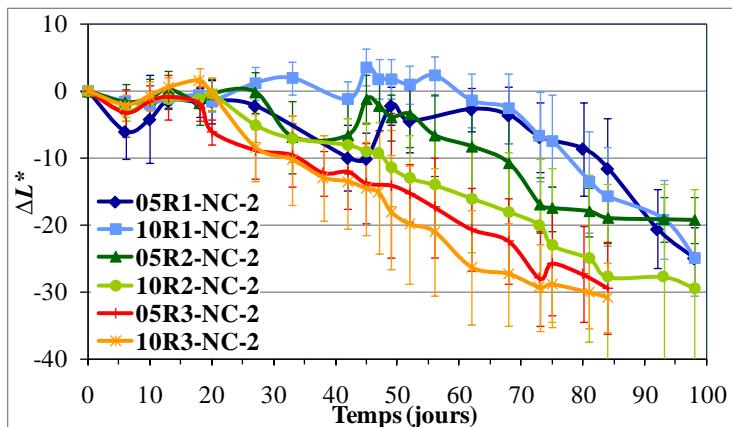


Figure 6.11 Evolution, en fonction du temps, de la clarté ΔL^* de la surface des mortiers non carbonatés, de rapports E/C de 0,5 et 1, de rugosités R1, R2 et R3 (essai n°2)

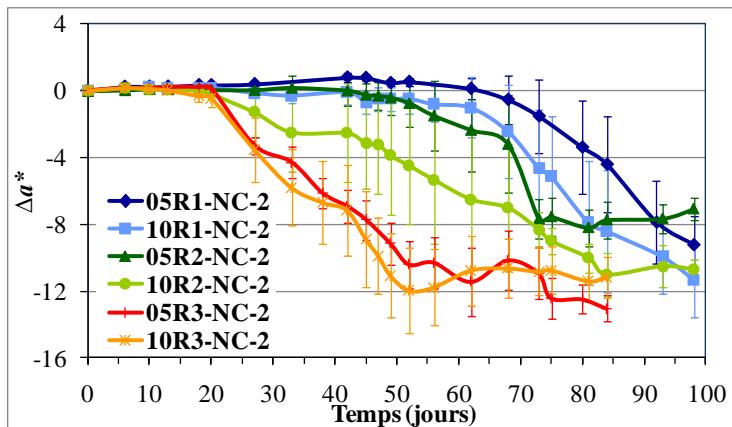


Figure 6.12 Evolution, en fonction du temps, de la chromatique Δa^* de la surface des mortiers non carbonatés, de rapports E/C de 0,5 et 1, de rugosités R1, R2 et R3 (essai n°2)

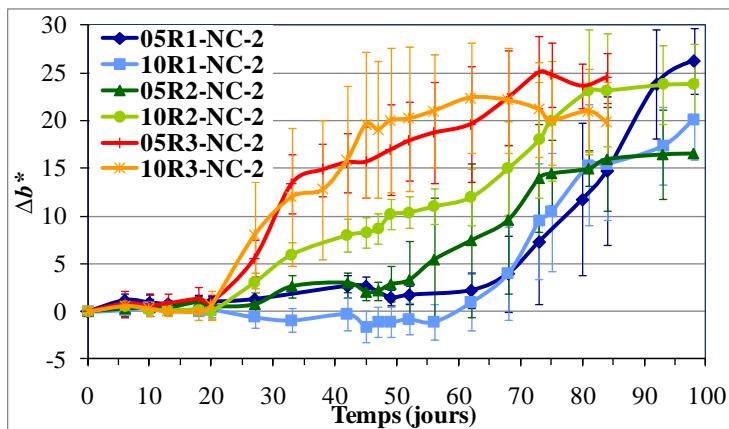


Figure 6.13 Evolution, en fonction du temps, de la chromaticité Δb^* de la surface des mortiers non carbonatés, de rapports E/C de 0,5 et 1, de rugosités R1, R2 et R3 (essai n°2)

En comparant l'évolution des trois coordonnées de couleur, aucune différence de vitesse de colonisation n'est constatée entre les mortiers de rapports E/C égaux à 0,5 et 1 pour la rugosité R1 et R3. Même si les barres d'erreur sont importantes, les résultats obtenus pour la rugosité R2 semblent être cohérents avec ceux obtenus par analyse d'images.

6.1.2.2 Mortiers carbonatés

a- Estimation par analyse d'images de la surface colonisée des mortiers

Sur la **figure 6.14** est représentée l'influence de la porosité (32,1% pour $E/C=1$ et 36,2% pour $E/C=1,2$) sur l'encrassement biologique des mortiers carbonatés de rugosités R1, R2 et R3 de l'essai n°3.

Nous constatons que, comme pour les mortiers non carbonatés, la cinétique de colonisation par les algues de la surface des échantillons est de type sigmoïde. Elle se déroule en trois phases : une phase de latence, une phase de croissance exponentielle et une phase de « saturation ». L'effet de la porosité est ici encore négligeable.

Pour les trois rugosités, les courbes représentant l'évolution de la surface colonisée des mortiers de rapports E/C différents coïncident.

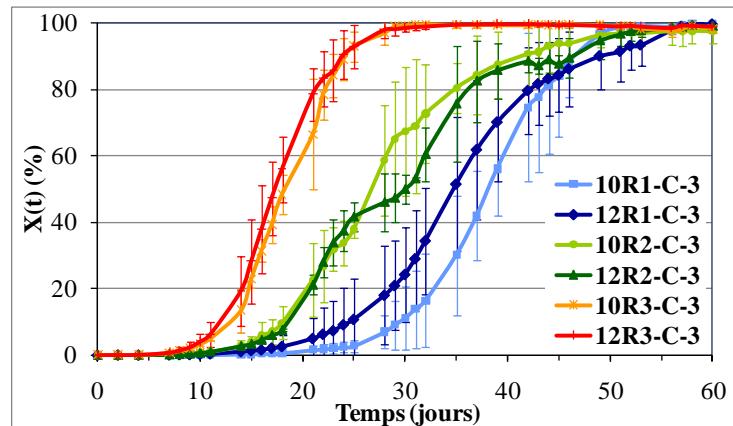


Figure 6.14 Evolution, en fonction du temps, du taux de surface colonisée par les algues des mortiers carbonatés, de rapports E/C de 1 et 1,2, de rugosités R1, R2 et R3 (essai n°3)

Les **figures 6.15** et **6.16** représentent les résultats de l'essai n°4. Pour les rugosités R1 et R2, la porosité n'influe pas sur le développement des algues (**figure 6.15**). Quelle que soit la porosité, 10,6% avec E/C égal à 0,5 et 32,1% avec E/C égal à 1, la cinétique de colonisation est identique. La colonisation des mortiers de rugosité R1 débute vers 11 jours et couvre la totalité de l'échantillon vers 32 jours contre 8 et 25 jours pour ceux de rugosité R2.

Nous observons une diminution vers 25 jours du taux de recouvrement du mortier 05R2. Ce point particulier correspond à un détachement d'algues de la surface des échantillons.

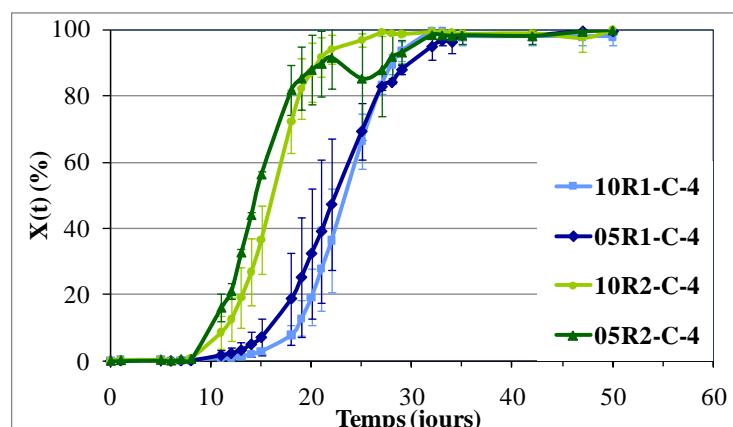


Figure 6.15 Evolution, en fonction du temps, du taux de surface colonisée par les algues des mortiers carbonatés, de rapports E/C de 0,5 et 1, de rugosités R1 et R2 (essai n°4)

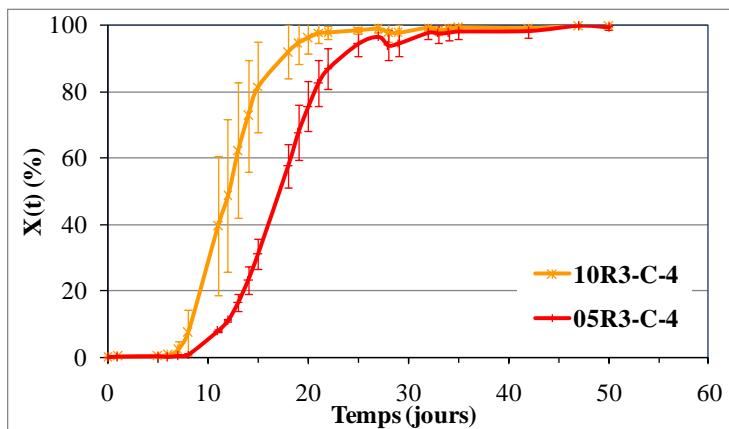


Figure 6.16 Evolution, en fonction du temps, du taux de surface colonisée par les algues des mortiers carbonatés, de rapports E/C de 0,5 et 1, de rugosité R3 (essai n°4)

Pour la rugosité la plus importante (R3), le problème de reproductibilité se pose de nouveau (**figure 6.16**). En effet, la différence de cinétique de colonisation entre les mortiers de porosité 10,6 et 32,1% semble provenir davantage de la variation de la rugosité que de la porosité. La surface des mortiers 10R3-C-4 présente des micro-rugosités absentes sur celle des mortiers 05R3-C-4 (voir *partie 6.1.3.2*). Cependant, les deux mortiers sont totalement colonisés après 25 jours.

L'influence négligeable de la porosité est expliquée par les conditions de l'essai. Comme dans les bancs d'essai contenant des mortiers non carbonatés, l'humidité relative dans les bancs d'essai de mortiers carbonatés est également constamment comprise entre 80 et 100%. Les échantillons contiennent alors une quantité d'eau abondante pendant toute la journée (**figure 6.17**).

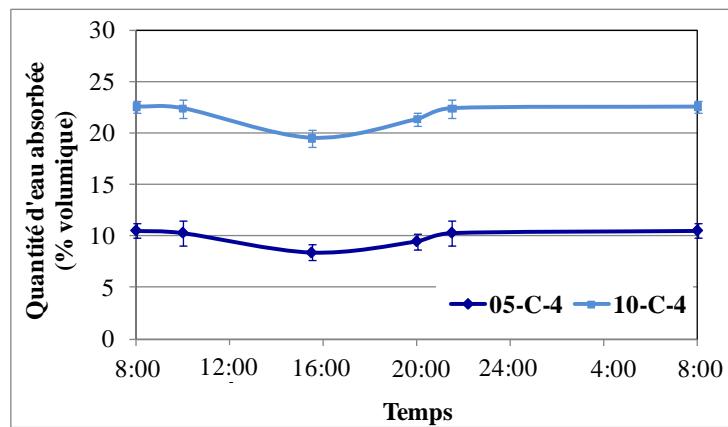


Figure 6.17 Quantité d'eau absorbée par mortiers carbonatés, de rapports E/C de 0,5 et 1 au cours d'un cycle (essai n°4)

La quantité d'eau absorbée par unité de volume de l'échantillon est comprise entre 8 et 10,5% pour les mortiers 05-C et entre 19,5 et 22,4% pour les 10-C. Par conséquent, les premiers contiennent une quantité d'eau (ε) représentant 76 à 100% de leur porosité. Pour les deuxièmes, la quantité d'eau varie entre 61 et 70%. Cette réserve d'eau semble être largement suffisante pour les besoins des algues.

b-Estimation de l'intensité d'encrassement des mortiers par mesure de la perte de réflectance

L'évolution, en fonction du temps, de l'intensité d'encrassement des mortiers carbonatés, pour deux porosités (32,1% avec E/C égal à 1 et 36,2% avec E/C égal à 1,2) et trois rugosités (R1, R2 et R3) est représentée sur la **figure 6.18**.

Nous pouvons constater que cette méthode d'évaluation confirme les résultats obtenus par analyse d'images. Nous n'observons pas de différence nette de colonisation entre les mortiers de porosités différentes.

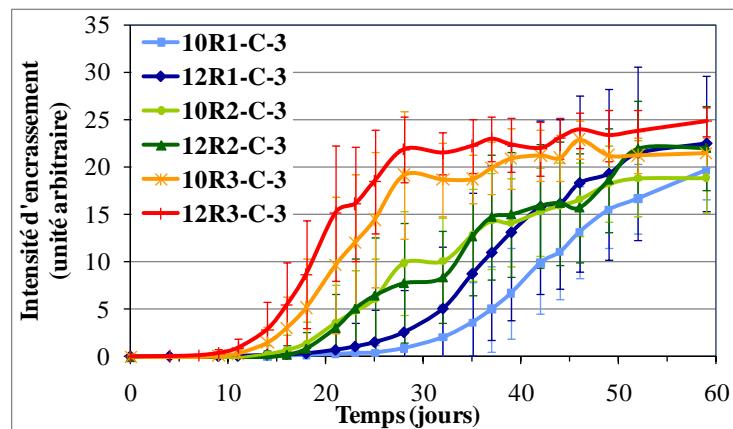


Figure 6.18 Evolution, en fonction du temps, de l'intensité d'encrassement des mortiers carbonatés, de rapports E/C de 1 et 1,2, de rugosités R1, R2 et R3 (essai n°3)

c- Estimation de l'intensité d'encrassement dans l'espace couleur $L^*a^*b^*$

L'évolution, en fonction du temps, de la clarté ΔL^* et des chromaticités Δa^* et Δb^* des échantillons de l'essai n°3 est présentée sur les **figures 6.19, 6.20 et 6.21**.

La surface des échantillons devient de plus en plus sombre, de plus en plus verte et de plus en plus jaune suite à la colonisation par les algues. Comme les deux méthodes d'évaluation précédentes (analyses d'images et intensité d'encrassement par perte de réflectance), cette méthode montre que la porosité des mortiers n'influence pas leur bioréceptivité.

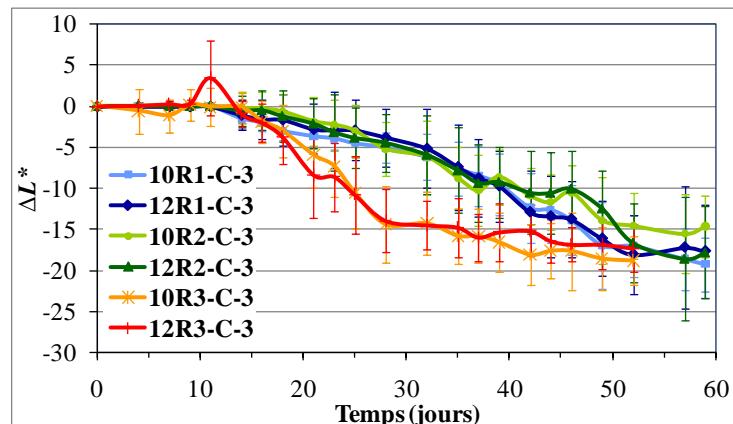


Figure 6.19 Evolution, en fonction du temps, de la clarté ΔL^* de la surface des mortiers carbonatés, de rapports E/C de 1 et 1,2, de rugosités R1, R2, R3 (essai n°3)

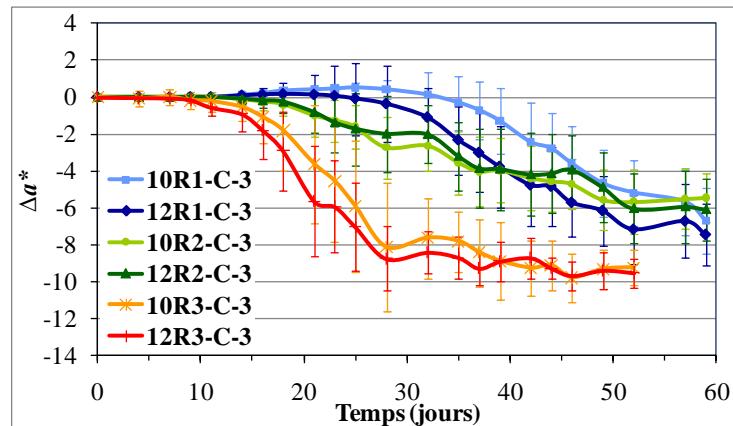


Figure 6.20 Evolution, en fonction du temps, de la chromaticité Δa^* de la surface des mortiers carbonatés, de rapports E/C de 1 et 1,2, de rugosités R1, R2, R3 (essai n°3)

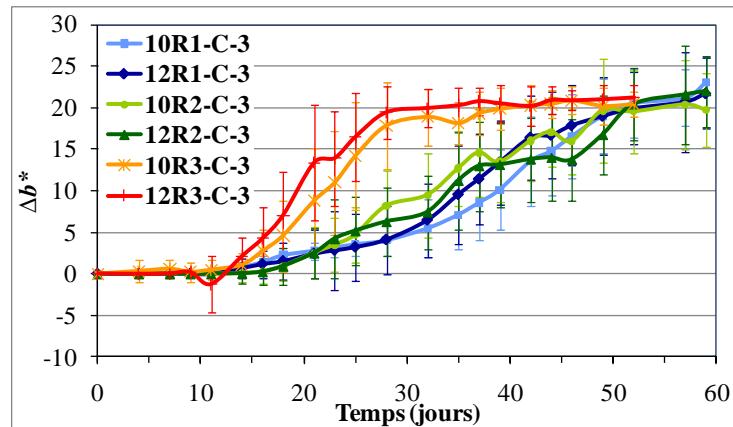


Figure 6.21 Evolution, en fonction du temps, de la chromaticité Δb^* de la surface des mortiers carbonatés, de rapports E/C de 1 et 1,2, de rugosités R1, R2, R3 (essai n°3)

Nous remarquons également que cette méthode d'évaluation est moins sensible que les deux méthodes précédentes. Par analyse d'images et par mesure de perte de réflectance, l'évolution de la colonisation des échantillons de rugosité R1 et R2 est mieux différenciée que par mesure de couleur.

Les courbes de l'intensité d'encrassement et de l'évolution de ΔL^* , Δa^* , Δb^* des mortiers de rapports E/C de 0,5 et 1 étudiés dans l'essai n°4 se trouve en **Annexe 6**. Ces mesures, en accord avec les résultats d'analyse d'images, montrent également un effet négligeable de la porosité.

6.1.2.3 Relation entre la porosité et les différents paramètres caractérisant la vitesse de colonisation

Différents paramètres sont définis, afin de caractériser la vitesse de colonisation biologique (**figure 6.22**). L'effet de la porosité se concrétise à travers ces paramètres.

- *Le temps de latence (t_l)* est défini comme le temps où 0,5% de la surface des échantillons est colonisée.
- *Le temps de demi-colonisation ($t_{1/2}$), le temps final (t_f)* sont respectivement le temps où 50% et 100% de la surface des échantillons est colonisée.
- *Le coefficient de colonisation C* est défini comme l'aire de la surface se trouvant au-dessous de la courbe du taux de recouvrement divisée par le temps d'expérimentation.

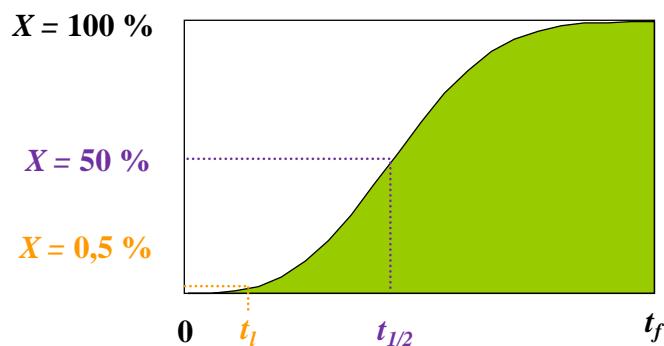


Figure 6.22 Différents paramètres caractérisant la vitesse de colonisation

Les **figures 6.23** et **6.24** représentent la relation entre la porosité ouverte (mesurée par PIM) et les quatre paramètres (cités au-dessus) des mortiers non carbonatés et carbonatés.

Nous ne traitons pas les mortiers ayant une rugosité très dispersée (10R3-NC-1 et 12R3-NC-1, 05R3-C-4 et 10R3-C-4) et les mortiers n'ayant pas été bien colonisés (10R2-NC-2 et 10R2-NC-2).

Le coefficient C et le temps final t_f ne sont pas déterminés pour l'essai n°1 puisque cet essai n'a pas été maintenu jusqu'à l'obtention d'une colonisation totale de tous les échantillons.

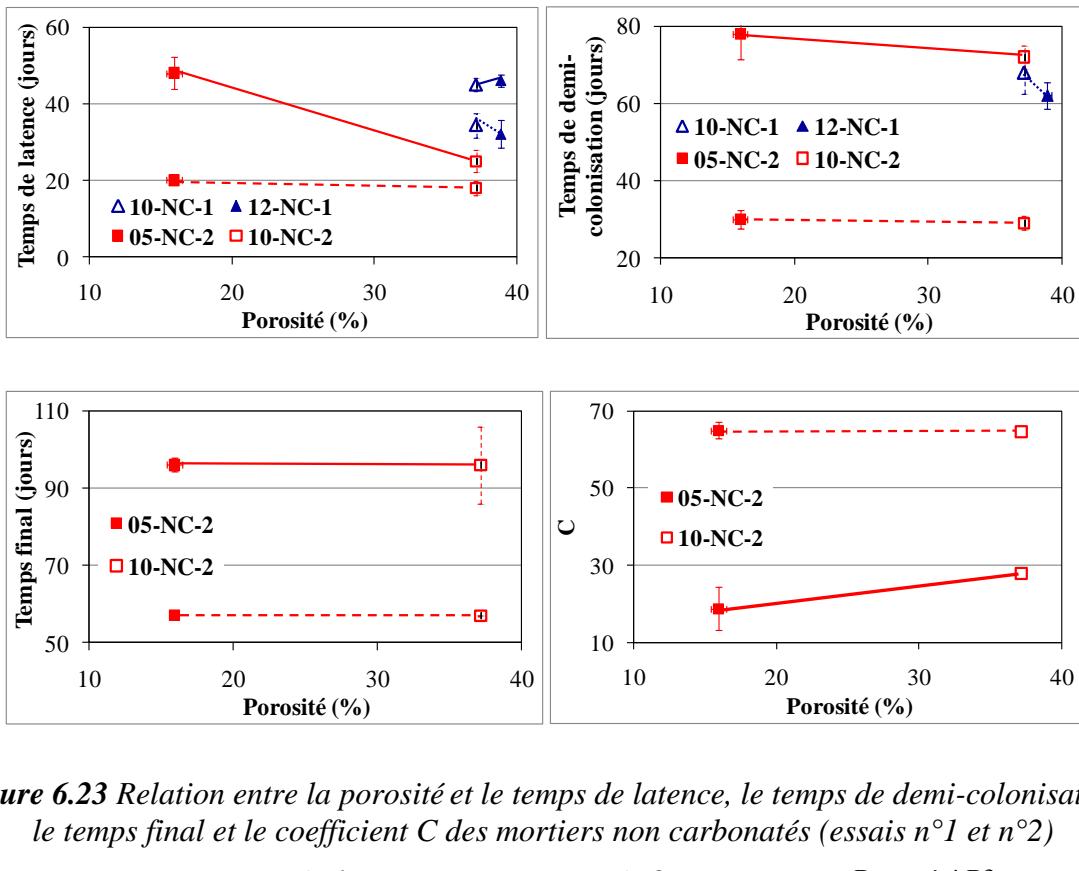


Figure 6.23 Relation entre la porosité et le temps de latence, le temps de demi-colonisation, le temps final et le coefficient C des mortiers non carbonatés (essais n°1 et n°2)

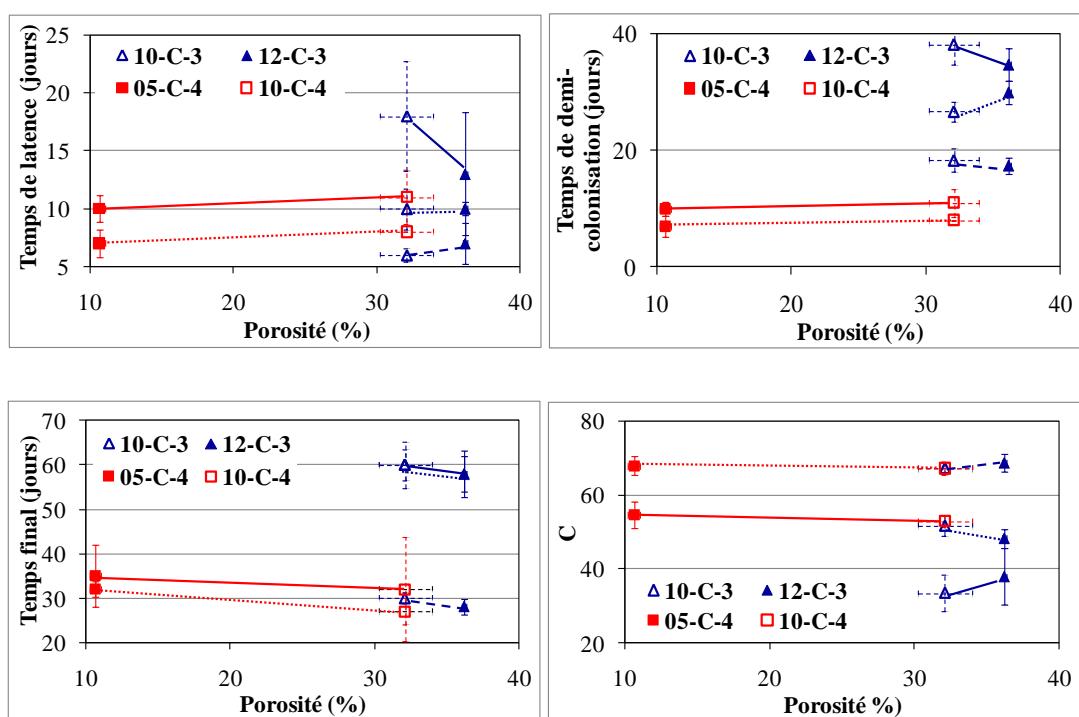


Figure 6.24 Relation entre la porosité et le temps de latence, le temps de demi-colonisation, le temps final et le coefficient C des mortiers carbonatés (essais n°3 et n°4)

— Rugosité RI ······ Rugosité R2 - - - - - Rugosité R3

Ces figures illustrent nos conclusions notées dans les précédentes parties. En effet, les quatre paramètres caractérisant la vitesse de colonisation des mortiers sont identiques quelle que soit leur porosité. Pour les mortiers 05-NC-2 et 10-NC-2 de rugosité R1 (**figure 6.23**), la différence observée au niveau du temps de latence provient des sites privilégiés (trous ou bulles d'air) présents sur les mortiers 10-NC-2 mais inexistant sur les mortiers 05-NC-2. L'effet de la porosité n'a pas été mis en évidence dans nos conditions d'essais.

En résumé, les essais accélérés de laboratoire ne nous permettent pas de mettre en évidence l'effet de la porosité des mortiers sur leur bioréceptivité. Pour les échantillons non carbonatés ou carbonatés, la cinétique de colonisation par les algues est identique quelle que soit leur porosité. Les trois méthodes d'évaluation (analyse d'images, intensité d'encrassement, couleur) confirment ce résultat malgré son désaccord avec la littérature. Nous avons montré que durant la totalité du cycle, l'humidité relative dans le banc d'essai est suffisamment élevée pour maintenir au moins 61% de la porosité remplie d'eau. L'eau disponible semble suffisante à la croissance des algues et ne constitue alors plus un facteur limitant la croissance.

6.1.3 Influence de la rugosité

Dans cette partie, l'influence des trois grades de rugosité sur la colonisation biologique est examinée pour les matériaux non carbonatés et carbonatés. Nous avons vu dans la partie précédente que l'estimation de l'intensité d'encrassement par mesure spectrocolorimétrique reflète la même évolution que l'estimation de la surface colonisée des mortiers par analyse d'images. Dans les parties suivantes, nous analysons donc l'effet de la rugosité uniquement sur la base de l'analyse d'images.

6.1.3.1 Mortiers non carbonatés

La **figure 6.25** montre l'influence de la rugosité pour les mortiers de rapport E/C égal à 1. On constate que plus la surface des mortiers est rugueuse, plus rapide est la colonisation des échantillons. Après 65 jours, seulement 37% de la surface des mortiers de rugosité la plus

faible (R1) est colonisée contre 42% pour les mortiers de rugosité intermédiaire (R2) et 62% pour les mortiers de rugosité la plus importante (R3).

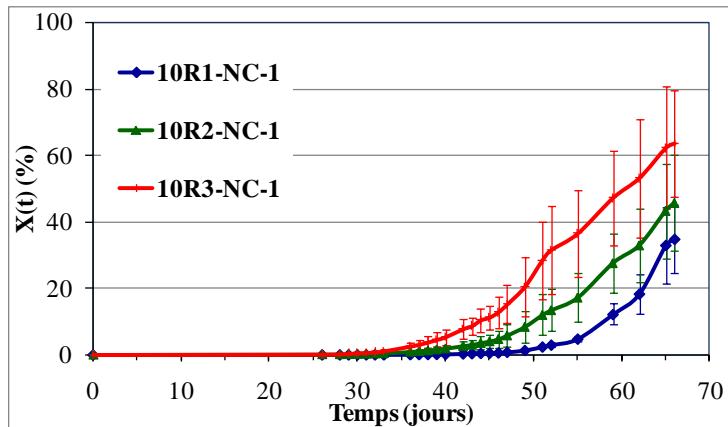


Figure 6.25 Effet de la rugosité sur le taux d'encrassement biologique pour les mortiers non carbonatés de rapport E/C égal à 1 (essai n°1)

Une influence plus nette de la rugosité est à noter pour les échantillons de rapport E/C égal à 1,2 (**figure 6.26**).

La colonisation des mortiers R1 commence vers 50 jours. Le temps de latence est plus court pour les mortiers les plus rugueux : 32 jours pour la rugosité R2 et 27 jours pour la rugosité R3. Après 50 jours d'essai, 23% de la surface des mortiers R2 est colonisée contre 100% pour les mortiers R3.

Nous constatons également que la pente de la courbe, au cours de la phase de croissance exponentielle, évolue dans le même sens que la rugosité. En effet, plus cette dernière est grande, plus la colonisation est rapide.

Globalement, la rugosité a pour effet de réduire le temps de latence et d'accélérer la colonisation.

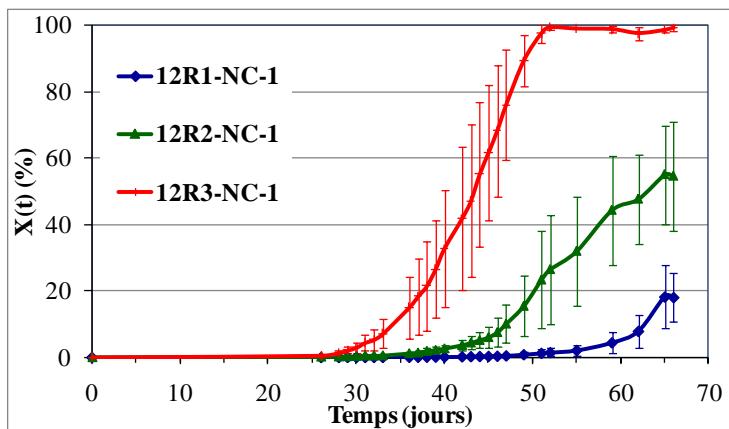


Figure 6.26 Effet de la rugosité sur le taux d'encrassement biologique pour les mortiers non carbonatés de rapport E/C égal à 1,2 (essai n°1)

Comme nous l'avons indiqué dans la partie 6.1.2.1, la différence de comportement entre les mortiers 10R3-NC-1 et 12R3-NC-1 est probablement due à la variation de rugosité et non à la porosité (**figure 6.6**).

L'effet de la rugosité est également observé sur les mortiers de rapport E/C égal à 1 étudiés au cours de l'essai n°2 (**figure 6.27**). La colonisation débute plus tôt sur la surface des échantillons rugueux. Il s'en suit une cinétique de colonisation plus rapide que sur les échantillons lisses. En effet, les algues apparaissent sur la surface des échantillons les plus lisses (R1) après 24 jours alors qu'elles apparaissent après seulement 17 jours sur les échantillons rugueux (R3). Après 50 jours d'essai, la totalité de la surface des mortiers R3 est déjà colonisée contre seulement 8% de la surface des mortiers R1.

Pour les mortiers de rapport E/C égal à 0,5 de l'essai n°2, la rugosité produit le même effet (**figure 6.28**). Après 20 jours, la colonisation commence sur les mortiers de rugosité R3. Sur les mortiers de rugosité R1, elle débute au bout de 50 jours. La totalité de la surface des échantillons R1 est colonisée après 95 jours contre 50 jours pour les mortiers R3.

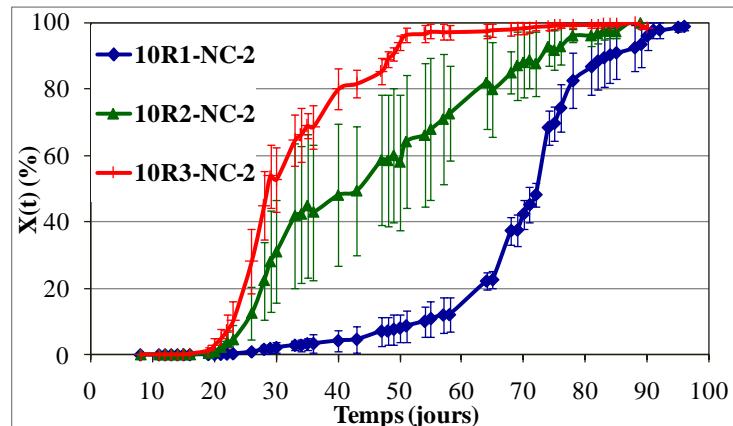


Figure 6.27 Effet de la rugosité sur le taux d'encrassement biologique pour les mortiers non carbonatés de rapport E/C égal à 1 (essai n°2)

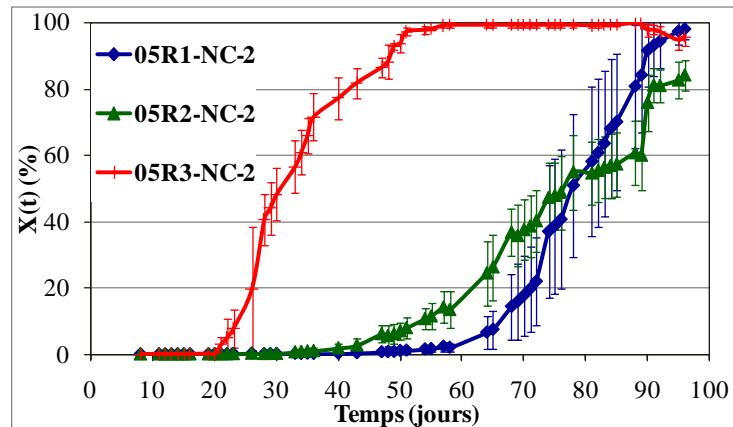


Figure 6.28 Effet de la rugosité sur le taux d'encrassement biologique pour les mortiers non carbonatés de rapport E/C égal à 0,5 (essai n°2)

La cinétique de colonisation des mortiers de rugosité R2 se trouve plus ou moins intermédiaire entre ceux de rugosité R3 et R1. Cependant, leur résultats n'ont pas été analysées puisqu'ils présentent un comportement anormal (voir partie 6.1.2.1).

L'influence de la rugosité sur la colonisation biologique a bien été observée par plusieurs auteurs (**Prieto** et **Silva** 2005, **Miller** et al. 2006, **Barberousse** et al. 2007, **Miller** et al. 2009). En effet, la rugosité fournit de nombreuses aspérités, qui facilitent l'accrochage des algues et augmente donc la colonisation du matériau.

Cet effet est particulièrement marqué pour les algues filamentueuses avec des cellules à paroi fine et lisse comme l’algue étudiée (*K. flaccidum*) (Rindi et al. 2008). Au contraire, pour les algues unicellulaires à paroi épaisse, Guillitte et Dreesen (1995) ont montré une préférence pour des surfaces lisses. Les cellules adhèrent par effet « ventouse ». De plus, l’inoculation des algues sur la surface des échantillons par ruissellement, et non par dépôt, amplifie encore plus l’effet de la rugosité.

6.1.3.2 Mortiers carbonatés

La **figure 6.29** présente l’évolution du taux de recouvrement des mortiers de rapport E/C égal à 1 pour les trois rugosités au cours de l’essai n°3.

La colonisation des mortiers R1 commence après 18 jours contre 9 jours pour les mortiers R2 et 6 jours pour les mortiers R3. De même, le recouvrement total est atteint plus rapidement pour les mortiers les plus rugueux. La pente des courbes (donc la vitesse) est également supérieure pour les mortiers les plus rugueux.

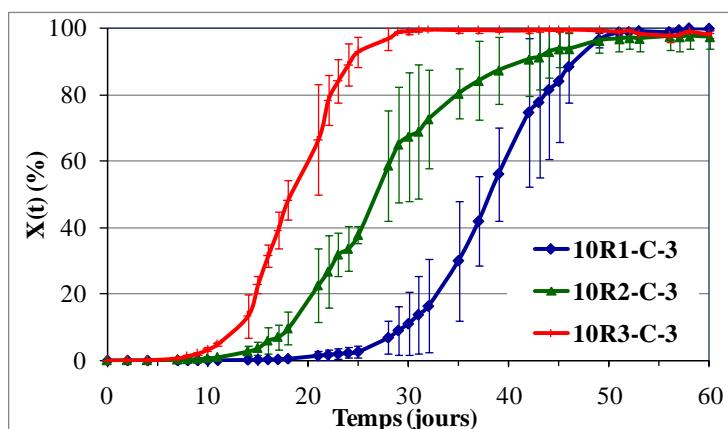


Figure 6.29 Effet de la rugosité sur le taux d’encrassement biologique pour les mortiers carbonatés de rapport E/C égal à 1 (essai n°3)

Pour les mortiers de rapport E/C égal à 1,2, la rugosité entraîne les mêmes effets que ceux observés précédemment. Elle diminue le temps de latence et augmente la vitesse de colonisation (**figure 6.30**).

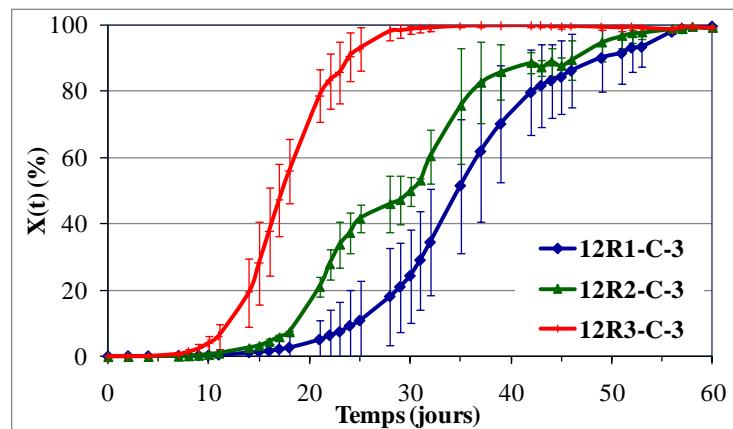


Figure 6.30 Effet de la rugosité sur le taux d'encrassement biologique pour les mortiers carbonatés de rapport E/C égal à 1,2 (essai n°3)

La surface colonisée des mortiers de rapports E/C de 0,5 et 1 dans l'essai n°4 est donnée sur les **figures 6.31** et **6.32**.

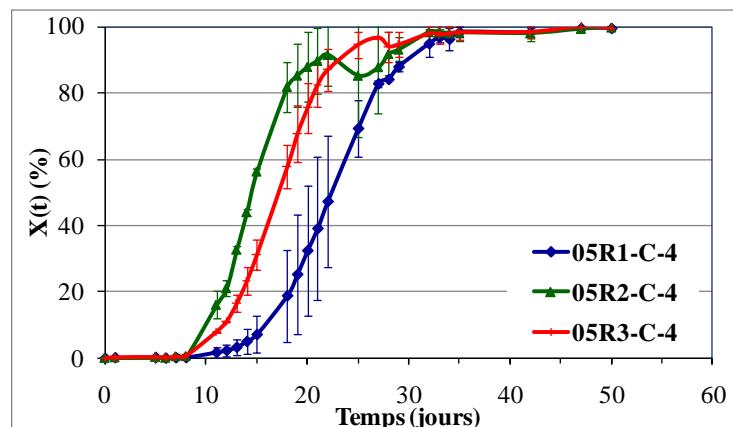


Figure 6.31 Effet de la rugosité sur le taux d'encrassement biologique pour les mortiers carbonatés de rapport E/C égal à 0,5 (essai n°4)

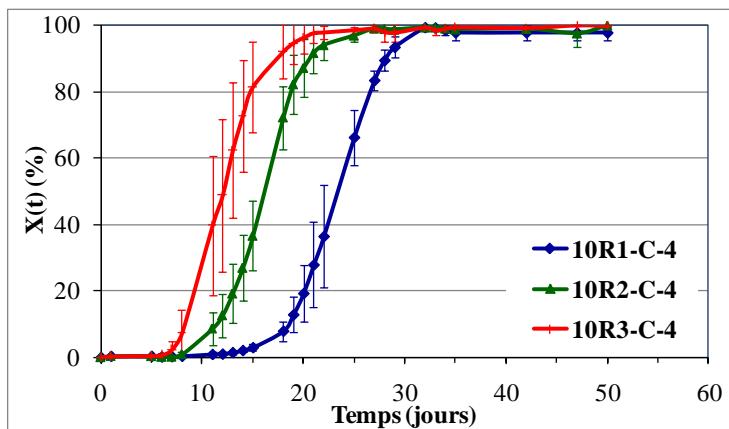


Figure 6.32 Effet de la rugosité sur le taux d'encrassement biologique pour les mortiers carbonatés de rapport E/C égal à 1 (essai n°4)

De manière générale, la colonisation des mortiers les plus lisses débute plus tardivement et le développement des algues sur la surface est moins rapide que pour les mortiers rugueux.

Pour les mortiers de rapport E/C égal à 0,5, une inversion entre les mortiers de rugosités R3 et R2 est constatée puisque la vitesse de colonisation des mortiers R3 est moins importante que celle des mortiers R2. Afin de comprendre cette inversion, nous avons cherché à analyser la surface des échantillons. Nous avons constaté que la rugosité des échantillons 05R3-C-4 présentait bien une rugosité (186 µm) supérieure à celle des échantillons 05R2-C-4 (90 µm). Nous avons également observé que cette rugosité est légèrement supérieure et à celle des échantillons 10R3-C-4 (169 µm).

Cependant, une étude plus approfondie, réalisée à l'aide d'un microscope optique, montre que la surface des mortiers 10R3-C-4 présente une micro-rugosité inexiste pour les échantillons 05R3-C-4 (**figures 6.33 et 6.34**). Cette micro-rugosité semble provenir des grains de sables. La finition des échantillons de ces deux rapports E/C a été réalisée après un certain temps de cure (4 heures pour les 05R3-C-4 et 12 heures pour les 10R3-C-4) dans le but de travailler à un même durcissement. Cet état durci, évalué qualitativement, pourrait être différent au moment de l'application de l'éponge. Il en résulte que malgré une rugosité « macroscopique » supérieure des échantillons 05R3-C-4, l'absence de micro-rugosité empêche l'accrochage des algues et réduit donc la colonisation du mortier.



Figure 6.33 Schéma de la surface des mortiers de rugosité R3 étudiés dans l'essai n°4

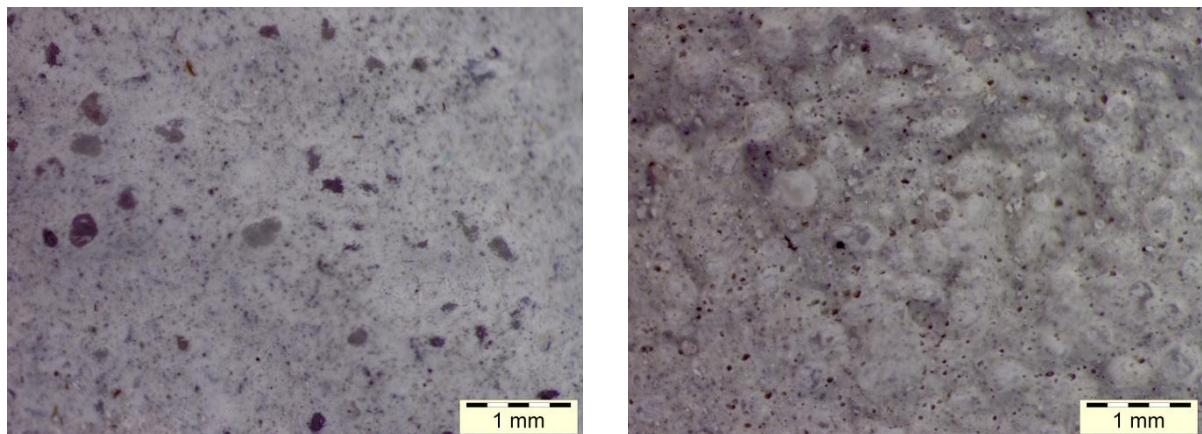


Figure 6.34 Image au microscope optique de la surface des mortiers de rugosité R3 de rapport E/C de 0,5 (à gauche) et 1 (à droite)

6.1.3.3 Relation entre la rugosité et les différents paramètres caractérisant la vitesse de colonisation

Les **figures 6.35** et **6.36** présentent la relation entre la rugosité et le temps de latence, le temps de demi-colonisation, le temps final et le coefficient de colonisation des mortiers non carbonatés et carbonatés.

L'essai n°1 n'ayant pas été maintenu jusqu'à la colonisation totale de tous les échantillons, le temps final et le coefficient C ne peuvent pas être traités. Pour l'essai n°2, les échantillons de rugosité intermédiaire n'ayant pas été bien colonisés, ne sont pas analysés.

Les temps t_l , $t_{1/2}$ et t_f diminuent lorsque la rugosité augmente. En revanche, le coefficient C, augmente. Ce coefficient met clairement en évidence une vitesse de colonisation plus importante pour les mortiers les plus rugueux.

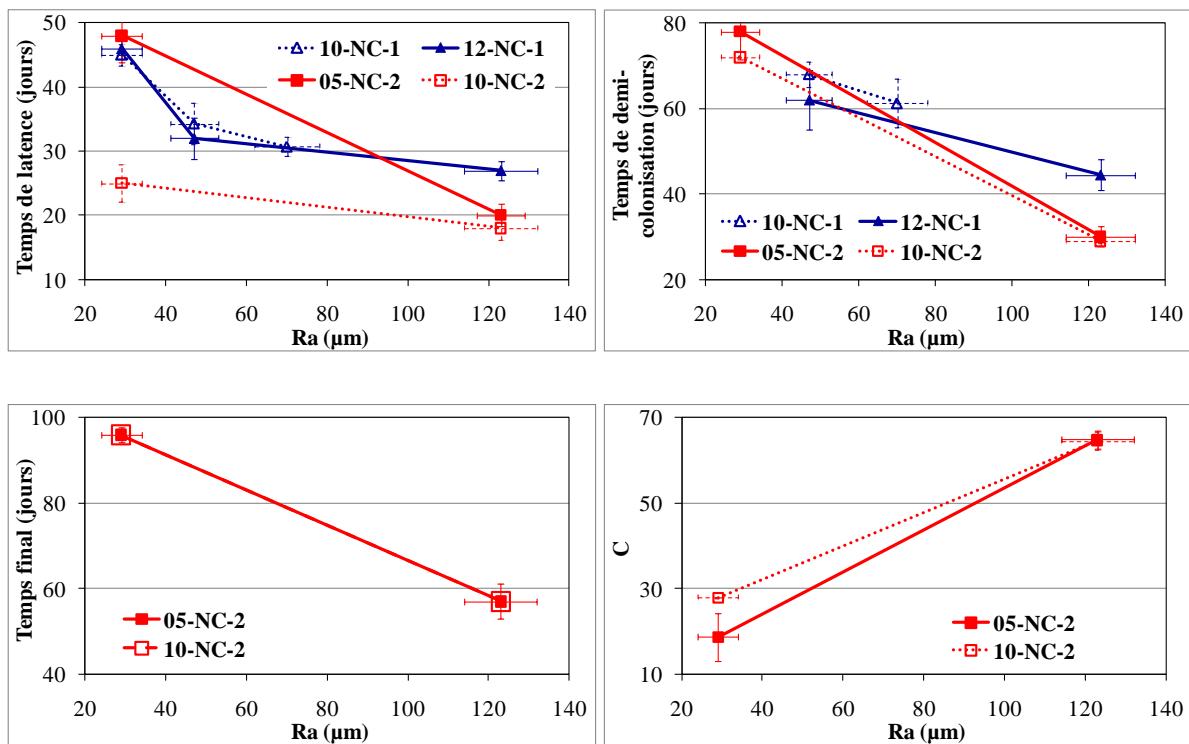


Figure 6.35 Relation entre la valeur R_a et le temps de latence, le temps de demi-colonisation, le temps final, le coefficient de colonisation des mortiers non carbonatés (essai n°1 et n°2)

Les mortiers de rugosité R2 de l'essai n°3 (**figure 6.36**) présentent un temps de latence et un temps de demi-colonisation bien plus faibles que ceux des mortiers de rugosité R1. Or, le temps final de ces deux types de mortier est comparable. Un ralentissement de la vitesse de colonisation à partir de la deuxième moitié de la colonisation est alors enregistré pour les mortiers de rugosité R2.

A l'exception de l'essai n°2 pour lequel la rugosité intermédiaire n'a pas été testée, nous obtenons des relations non linéaires. Une légère augmentation de rugosité sur une surface lisse ($R_1 \rightarrow R_2$) augmente brutalement la bioréceptivité. Ce résultat met en évidence qu'une attention particulière devrait être prise déjà pour une faible gamme de rugosité, afin de limiter la colonisation biologique des façades.

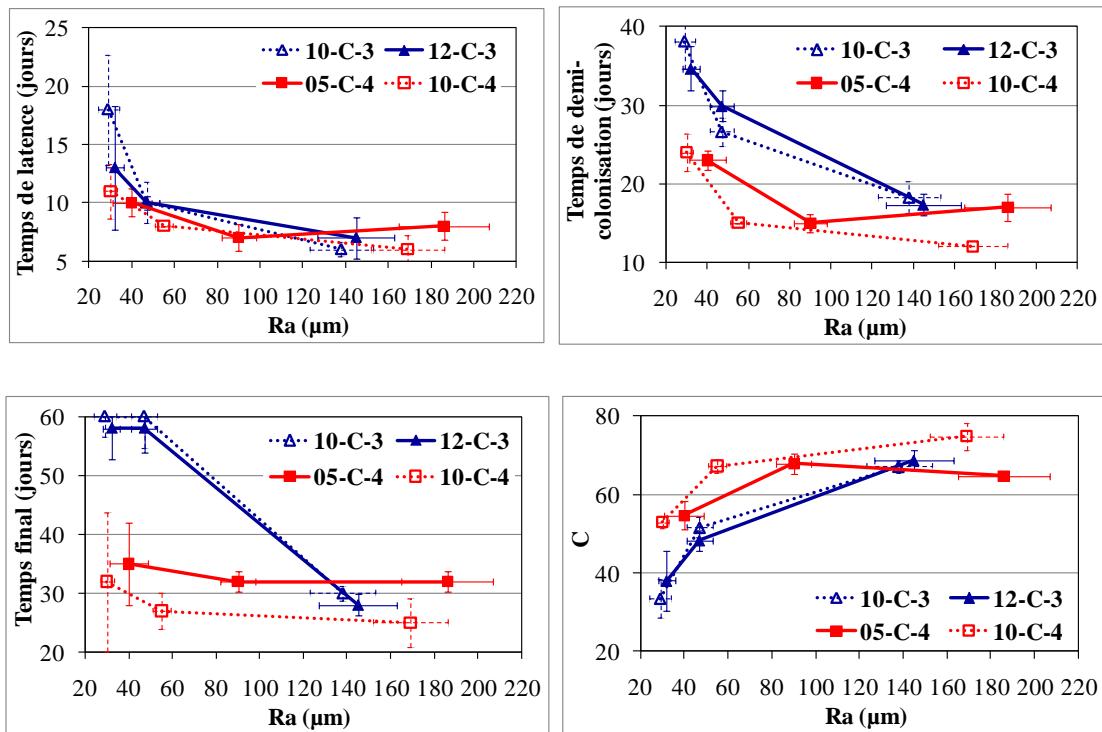


Figure 6.36 Relation entre la valeur R_a et le temps de latence, le temps de demi colonisation, le temps final, le coefficient C des mortiers carbonatés (essai n°3 et n°4)

Afin de comparer les résultats obtenus entre les différents essais et de valider le bon fonctionnement du système, nous avons souhaité mettre dans chaque banc d'essai une référence. Cependant, il a été difficile de se procurer un matériau convenable. Ce matériau doit être à la fois bioréceptif mais également inerte pour ne pas influencer le développement des algues au cours de l'essai. Nous avons essayé des plaques de PVC dont la surface a été striée, afin de créer de la rugosité ou recouverte par différents tissus techniques. Mais, aucune solution n'a fonctionné. Ce type de matériau semble trop dense et ne conserve pas assez d'eau nécessaire au développement des algues. Du sable collé sur un support en bois ou du béton cellulaire pourraient être envisagés en perspective.

Pourtant, chaque essai contient toujours des mortiers de rapport E/C égal à 1. Nous pouvons alors les utiliser comme matériau de référence.

Il semble que le temps de latence et le temps de demi-colonisation des mortiers de l'essai n°1 sont plus importants que ceux de l'essai n°2 (**figure 6.35**). Le problème de reproductibilité

entre ces deux essais est relevé. Il faudrait indiquer que dans ces deux essais, l'origine des algues inoculées est différente. Pour l'essai n°1, les algues ont été commandées puis utilisées directement à partir de la culture de MNHN. Pour l'essai n°2, les algues ont été cultivées dans notre laboratoire selon la procédure présentée dans la *partie 4.1.2*. L'état de vitalité ou de stress des algues était donc différent. En effet, après mise en culture au laboratoire, le temps de latence a fortement diminué, signifiant une meilleure acclimatation de l'algue. Par la suite, seules les algues préalablement cultivées au laboratoire ont été utilisées.

Toutefois, le problème de reproductibilité est encore une fois rencontré en comparant l'essai n°3 et l'essai n°4 (**figure 6.36**). En effet, il est difficile de contrôler l'état des algues introduites dans le banc d'essai même si nous avons essayé de le contrôler au mieux. En revanche, l'effet de la rugosité est toujours valide puisque nous comparons les résultats obtenus dans chaque banc essai séparément.

En résumé, l'influence de la rugosité sur la colonisation biologique est bien mise en évidence par les essais accélérés de laboratoire. Nos trois grades de rugosités sont bien discriminés. Plus les matériaux sont rugueux, plus ils facilitent l'accrochage des algues et donc favorisent leur colonisation. La relation entre la rugosité et la colonisation n'est pas linéaire. Une surface légèrement rugueuse est suffisante pour augmenter remarquablement la bioréceptivité du substrat.

6.1.4 Influence de la carbonatation

L'influence de la carbonatation est étudiée en comparant la colonisation des mortiers non carbonatés et des mortiers carbonatés fabriqués avec le même rapport *E/C* et ayant la même rugosité. Les résultats obtenus de l'essai n°1 sont comparés avec ceux de l'essai n°3 et les résultats de l'essai n°2 sont comparés avec ceux de l'essai n°4 puisque, pour chaque couple d'essais, des échantillons de formulation identique ont été testés.

Comme nous l'avons vu dans la *partie 6.1.2*, le rapport *E/C* des mortiers n'influence pas leur bioréceptivité dans nos conditions d'essai, nous ne présentons alors ici que la comparaison des mortiers de rapport *E/C* égal à 1 des essais n°2 et n°4. Pour les mortiers d'autres rapports *E/C* (0,5 et 1,2) et d'autres essais, les résultats se trouvent en **Annexe 6**.

6.1.4.1 Comparaison des résultats des essais n°2 et n°4

Les **figures 6.37, 6.38** et **6.39** montrent la colonisation par les algues des mortiers carbonatés et non carbonatés de rapport E/C égal à 1, de rugosités R1, R2 et R3, étudiés dans les essais n°2 et n°4.

Nous constatons que les mortiers carbonatés sont colonisés beaucoup plus rapidement que les mortiers non carbonatés. Pour la rugosité R1, le temps de latence est de 11 jours pour les mortiers carbonatés alors qu'il est 2,3 fois plus élevé (25 jours) pour les mortiers non carbonatés. De même, pour la rugosité R2, la colonisation commence à 8 jours pour les mortiers carbonatés contre 20 jours pour les mortiers non carbonatés. Pour la rugosité R3, les matériaux carbonatés sont colonisés 3 fois plus vite que ceux non carbonatés. La carbonatation raccourcit remarquablement le temps de latence.

La pente de la courbe est plus importante pour les mortiers carbonatés que pour les mortiers non carbonatés. La carbonatation a ainsi pour effet d'accélérer la vitesse de colonisation par les algues.

Nos résultats sont totalement en accord avec ceux de la littérature. L'effet inhibiteur du pH sur la colonisation d'algues a été cité par **Grant** (1982). De même, **Dooley et al.** (1999), **Guilbeau et al.** (2003), **Prieto et Silva** (2005) ont également montré que la carbonatation favorise l'accrochage et la croissance des algues lors des essais accélérés de laboratoire.

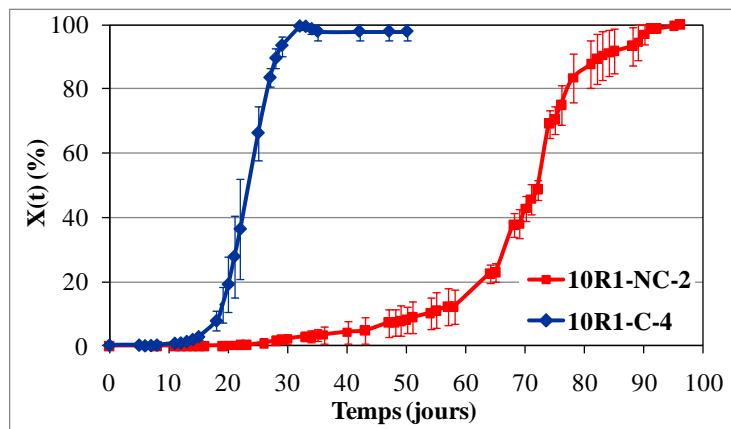


Figure 6.37 Evolution du taux de surface colonisée par les algues des mortiers de rapport E/C égal à 1, de rugosité R1, non carbonatés (essai n°2) et carbonatés (essai n°4)

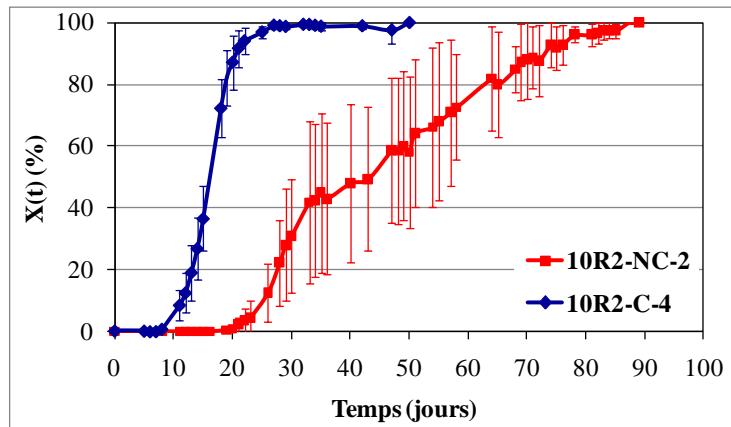


Figure 6.38 Evolution du taux de surface colonisée par les algues des mortiers de rapport E/C égal à 1, de rugosité R2, non carbonatés (essai n°2) et carbonatés (essai n°4)

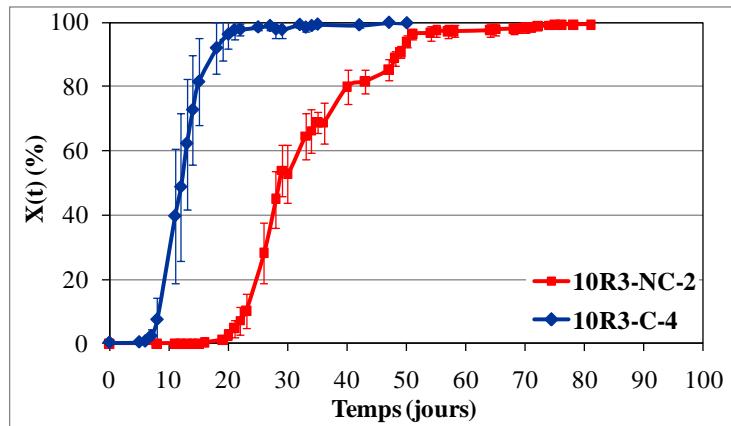


Figure 6.39 Evolution du taux de surface colonisée par les algues des mortiers de rapport E/C égal à 1, de rugosité R3, non carbonatés (essai n°2) et carbonatés (essai n°4)

6.1.4.2 Influence de la carbonatation accélérée sur les différents paramètres caractérisant la vitesse de colonisation

La **figure 6.40** illustre l'effet de la carbonatation des mortiers sur les paramètres caractérisant la vitesse de colonisation par les algues. Ici, nous ne présentons que les mortiers dont la colonisation est satisfaisante et pour lesquels l'aspect de rugosité est identique.

Le temps de latence, le temps de demi-colonisation et le temps final augmentent dans le même sens que le pH de surface initial des mortiers. Le coefficient de colonisation, en revanche, diminue lorsque le pH de surface augmente.

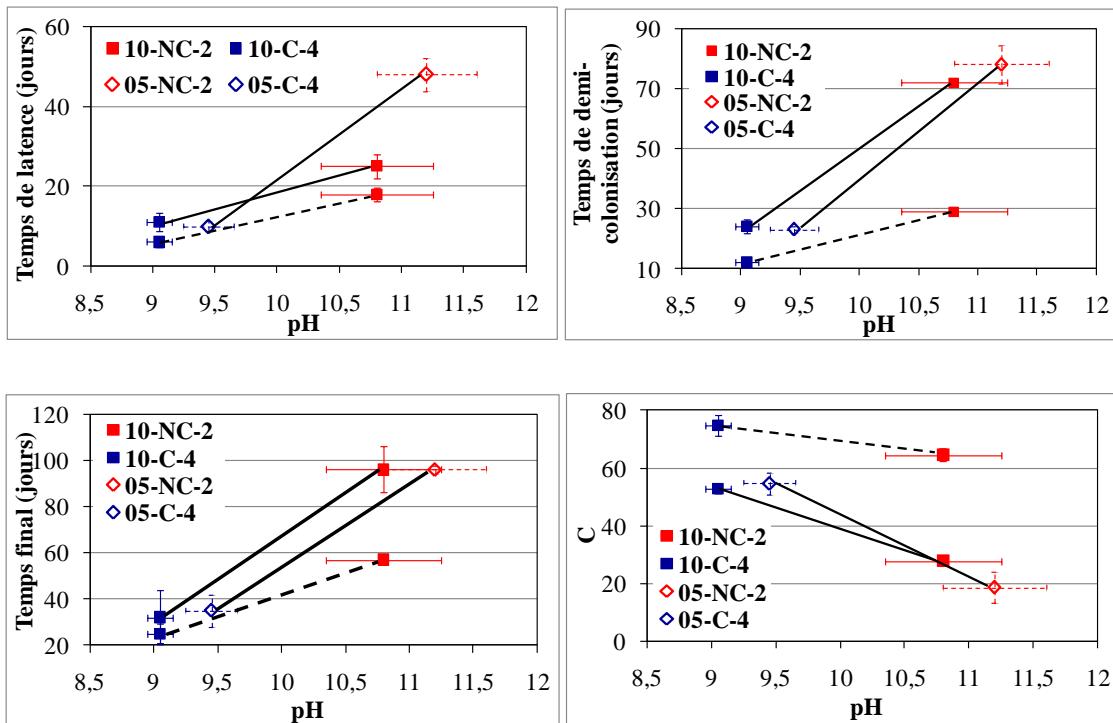


Figure 6.40 Relation entre le pH de surface et le temps de latence, le temps de demi-colonisation, le temps final, le coefficient C des mortiers étudiés dans l'essai n°2 et n°4

— Rugosité R1 - - - Rugosité R3

La **figure 6.41** illustre à la fois l'influence de la rugosité et de la carbonatation sur la colonisation par les algues des mortiers étudiés dans l'essai n°2 et n°4.

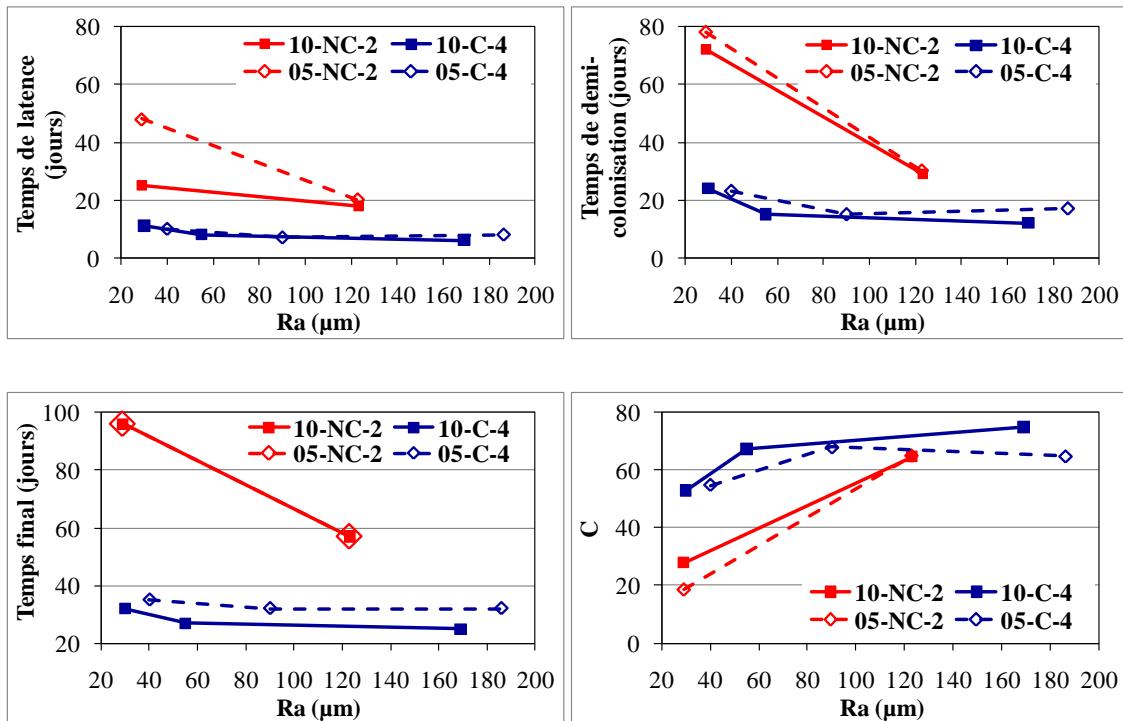


Figure 6.41 Facteur d'accélération de la rugosité et de la carbonatation des mortiers étudiés dans l'essai n°2 (non carbonatés) et l'essai n°4 (carbonatés)

Il est important de noter que l'influence de la rugosité des mortiers carbonatés est fortement atténuée en comparaison aux mortiers non carbonatés.

La carbonatation se révèle être le paramètre le plus important influençant la colonisation des mortiers par les algues dans nos essais accélérés de laboratoire. En prenant les mortiers non carbonatés de rugosité la plus lisse (R1) comme référence, nous constatons que la carbonatation a un effet d'accélération de la colonisation plus important qu'une augmentation de rugosité.

6.1.4.3 pH et composition de la suspension d'algues, et pH de surface des échantillons dans le banc d'essai

L'évolution du pH de la suspension d'algues dans les bancs d'essai est donnée sur la **figure 6.42**. Le pH de la suspension d'algues augmente jusqu'à 8,4 et se stabilise après une semaine d'expérience en présence des mortiers carbonatés. Pour les mortiers non carbonatés, le pH se stabilise vers 9.

L'évolution du pH du milieu sans algues lixiviant des échantillons est identique à celle de la suspension d'algues dans le banc d'essai. L'augmentation du pH de la suspension est alors due à la lixiviation des échantillons et non à l'activité des algues.

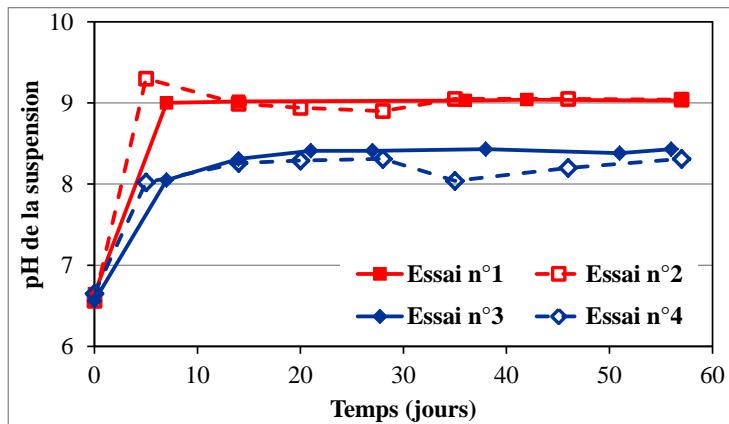


Figure 6.42 Evolution du pH de la suspension d'algues

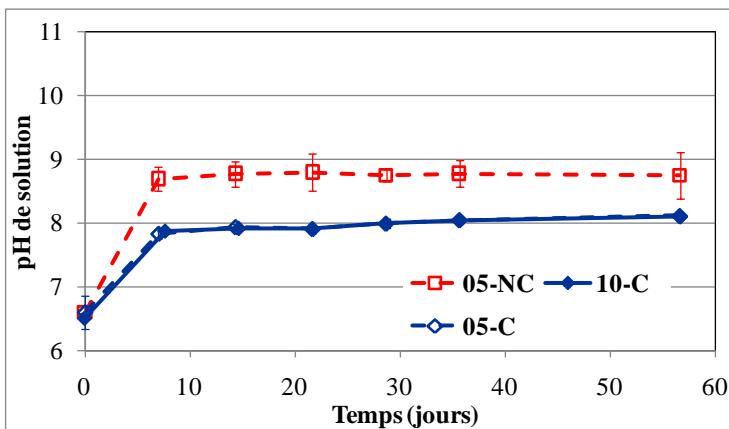


Figure 6.43 Evolution du pH du milieu lixivier de trois échantillons de rapports E/C de 0,5 et 1 (le milieu initial est le milieu de culture Bold de base sans algues)

La composition de la suspension d'algues dans les bancs d'essai et la composition du milieu de culture Bold de base (sans algues) lixiviant les échantillons carbonatés présentent les mêmes évolutions dans le temps (**figure 6.44 et 6.45**).

Dans le banc d'essai, la concentration en nitrate reste globalement inchangée au cours de l'expérience. Dans la culture d'algues (*partie 5.1.4*), nous avions noté une forte baisse de la concentration en ions nitrate, qui entraînait une augmentation du pH, limitant ainsi la

croissance des algues. Au cours de nos essais, la croissance des algues n'est donc pas limitée par le manque des ions nitrate. La concentration en ions phosphate diminue au cours du temps et disparaît en fin d'expérience alors que la concentration de cet ion reste inchangée pendant le suivi de la croissance de la souche d'algue étudiée (*partie 5.1.4*).

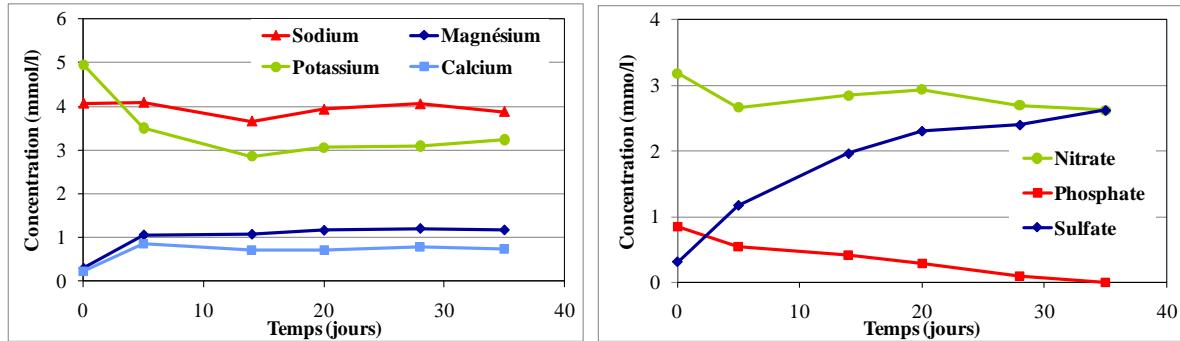


Figure 6.44 Suivi de la composition de la suspension d'algues dans le banc d'essai n°4 (mortiers carbonatés)

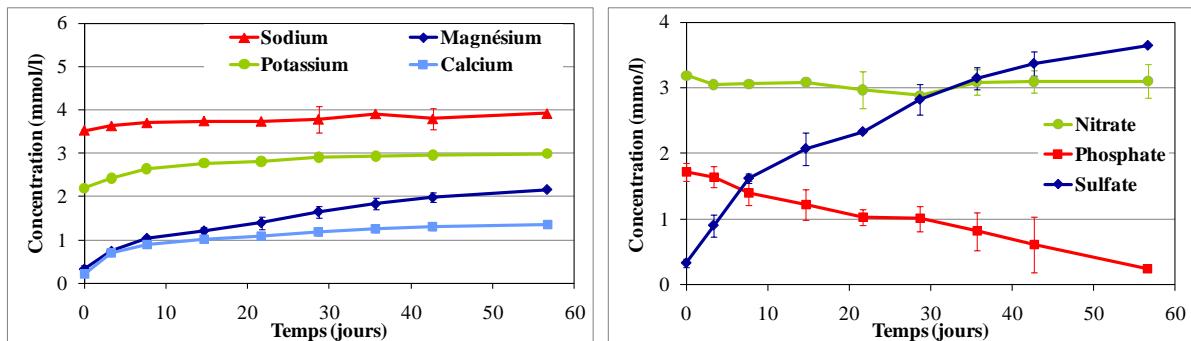


Figure 6.45 Suivi de la composition du milieu lixivié de trois échantillons de mortier carbonaté de rapport E/C égal à 1 (le milieu initial est le milieu de culture Bold de base sans algues)

Dans les essais réalisés avec des échantillons non carbonatés, l'augmentation du pH de la suspension provient de la dissolution des oxydes ou hydroxydes d'alcalin (sodium ou potassium) (**figure 6.46** et **6.47**).

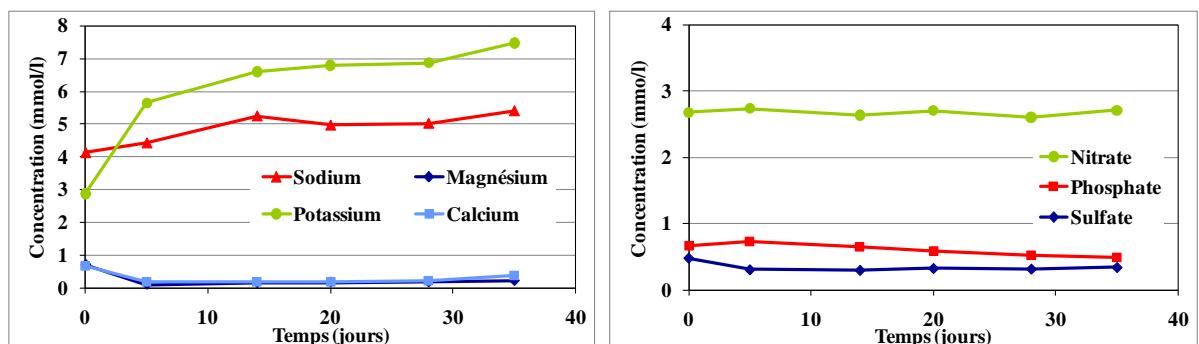


Figure 6.46 Suivi de la composition de la suspension d’algues dans le banc d’essai n°2
(mortiers non carbonatés)

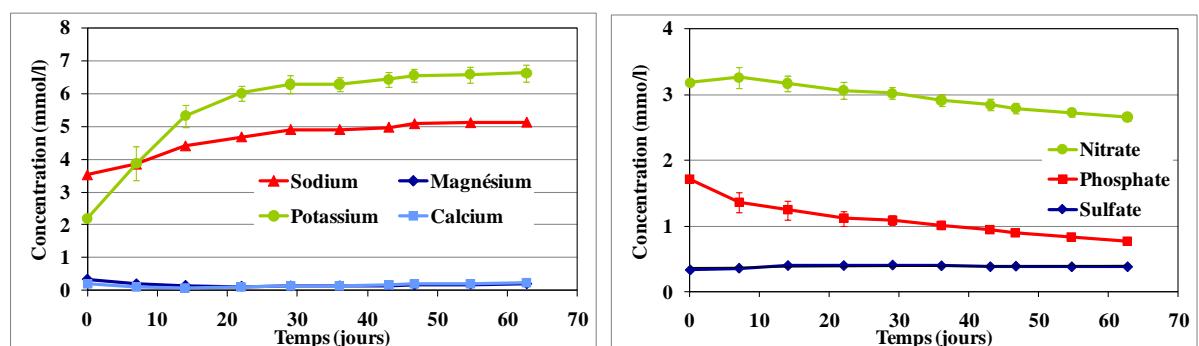


Figure 6.47 Suivi de la composition du milieu lixivié de trois échantillons de mortier non carbonaté de rapport E/C égal à 1 (le milieu initial est le milieu de culture Bold de base sans algues)

L’évolution du pH de surface des échantillons carbonatés et non carbonatés au cours du test accéléré est représentée sur la **figure 6.48**. Le pH de surface des échantillons non carbonatés diminue et se stabilise entre 9 et 9,5, alors que celui des échantillons carbonatés diminue jusqu’à 8. Un équilibre entre le pH de la suspension et le pH des échantillons se produit.

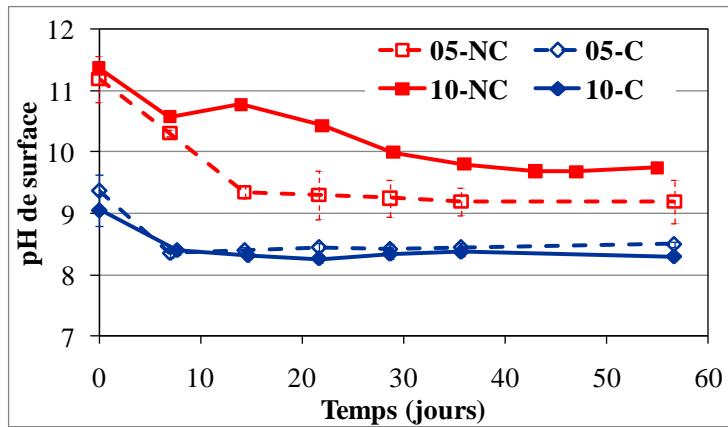


Figure 6.48 Evolution du pH de surface des échantillons de rapports E/C de 0,5 et 1 au cours de l'essai accéléré

6.1.4.4 Concentration d'algues dans les bancs d'essai destinés à étudier les mortiers non carbonatés et les mortiers carbonatés

Nous constatons que les algues présentent une bonne croissance dans les bancs d'essai et beaucoup plus abondamment dans les bancs contenant des échantillons carbonatés que dans les bancs contenant des échantillons non carbonatés. Comme le pH est plus faible pour les mortiers carbonatés, la croissance des algues est plus facile que pour les mortiers non carbonatés pour lesquels le pH est élevé et qui constituent des conditions difficiles pour la croissance des microorganismes.

Cependant, la plupart des algues s'accrochent sur les parois comme la cuve, les pompes, le régulateur thermique et le bâti en acier inoxydable. En conséquence, la concentration des algues se trouvant en suspension est tellement faible qu'il ne nous a pas été possible de la déterminer par la masse sèche ou la densité optique. La quantification de la concentration d'algues dans les bancs a été réalisée par mesure de fluorescence des algues.

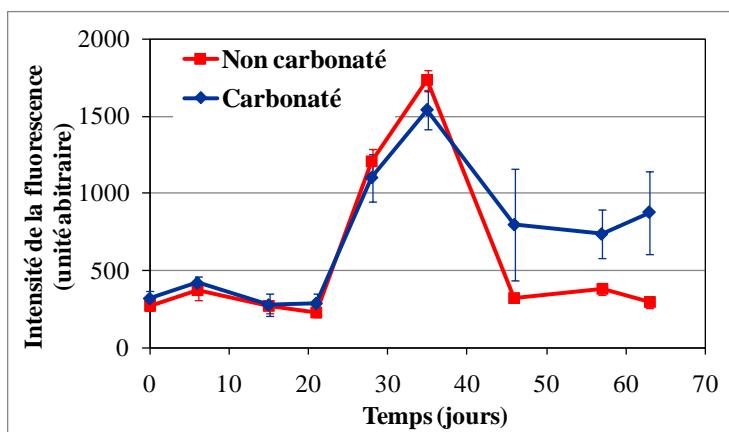


Figure 6.49 Evolution, en fonction du temps, de l'intensité de fluorescence de la suspension d'algues dans le banc d'essai n°2 (mortiers non carbonatés) et n°4 (mortiers carbonatés)

L'intensité de fluorescence de la suspension d'algues du banc contenant les échantillons non carbonatés (essai n°2) et celle du banc contenant les échantillons carbonatés (essai n°4) est du même ordre de grandeur (**figure 6.49**). Ce résultat signifie que la colonisation par les algues, plus rapide dans le cas des échantillons carbonatés, ne provient pas de la concentration de la suspension d'algue.

Contrairement à l'action de la rugosité, qui est purement physique, l'effet de la carbonatation (plutôt chimique) est plus complexe. Le pH de surface des échantillons et le pH de la suspension dans nos bancs d'essai jouent simultanément leur rôle. Škaloud (2006) a montré que dans un milieu trop basique ($\text{pH} > 8,5$), les souches de *K. flaccidum* subissent des changements ultra-structuraux et une proportion élevée de cellules mortes est notée. Ces conditions physico-chimiques pourraient modifier l'adhésion des algues à la surface des échantillons (Miller et al. 2009, Barberousse 2006).

D'après nos résultats, l'effet de la carbonatation sur l'encrassement des mortiers au cours d'un test accéléré est indéniable. Il semble être le paramètre le plus important

parmi ceux testés au cours de ce travail. La carbonatation réduit considérablement le temps de latence et augmente la cinétique de croissance des algues sur les mortiers.

Du fait que le banc d'essai fonctionne en circuit fermé, le pH de surface des échantillons et le pH de la suspension ont tendance à s'équilibrer. Cette valeur d'équilibre dans le cas des échantillons non carbonatés est supérieure à celle dans le cas des échantillons carbonatés. Il en résulte un ralentissement de la colonisation des échantillons non carbonatés. En présence des mortiers carbonatés, les algues s'adaptent mieux à leur environnement et colonisent plus rapidement les échantillons.

En résumé, l'influence des paramètres porosité, rugosité et carbonatation des mortiers sur le développement des algues a été mis en évidence au moyen d'essais accélérés en laboratoire. Ces derniers n'ont cependant pas permis de révéler le rôle de la porosité. En effet, la cinétique de colonisation par les algues était identique quelle que soit la porosité de nos mortiers. Ce résultat est du aux conditions expérimentales qui maintiennent une humidité dans le banc abondante et suffisante pour les algues.

Le rôle de la rugosité a bien été révélé. Les trois grades de rugosité étudiés étaient bien discriminants. Une surface rugueuse facilite l'accrochage des algues et favorise la colonisation du substrat. Le rôle de la carbonatation a également été montré. La carbonatation préalable des mortiers favorise le développement des algues sur leur surface en abaissant leur pH.

Le temps de latence est alors plus court et la cinétique de colonisation plus rapide, pour les mortiers carbonatés que pour les mortiers non carbonatés.

6.2 Essai *in situ*

L'essai accéléré d'encrassement biologique en laboratoire vise à reproduire les phénomènes naturels. Cependant, les conditions de cet essai (inoculation, humidification, conservation et illumination des échantillons) sont largement différentes de celles mises en jeu dans la nature. Dans le but d'extrapoler les résultats obtenus en laboratoire aux cas réels, nous avons effectués des essais *in situ*.

L'exposition des 23 échantillons aux conditions naturelles (*partie 4.3.2*) a débuté le 26 juin 2009.

Le **tableau 6.2** récapitule les caractéristiques des mortiers étudiés dans l'essai *in situ*. Pour chaque type de mortier, 3 échantillons ont été testés (sauf pour le mortier 10R1-C où seuls 2 échantillons ont été exposés).

Tableau 6.2 Caractéristiques des mortiers étudiés dans l'essai *in situ*

Rapport E/C	Carbonatation	Rugosité	Désignation
1	Non carbonatés	R1, R2, R3	10R1-NC, 10R2-NC, 10R3-NC
	Carbonatés	R1, R2, R3	10R1-C, 10R2-C, 10R3-C
1,2	Carbonatés	R2, R3	12R2-C, 12R3-C

L'encrassement biologique des échantillons a été suivi par analyse d'images et mesure de couleurs pendant une année et demie. La première colonisation est apparue après 50 semaines d'exposition sur les mortiers 12R3-C. La **figure 6.50** illustre la surface d'un des trois échantillons de ce mortier en fonction du temps. En observant la couleur verte de l'encrassement, nous estimons que cette colonisation est principalement due à des algues et non à des champignons.

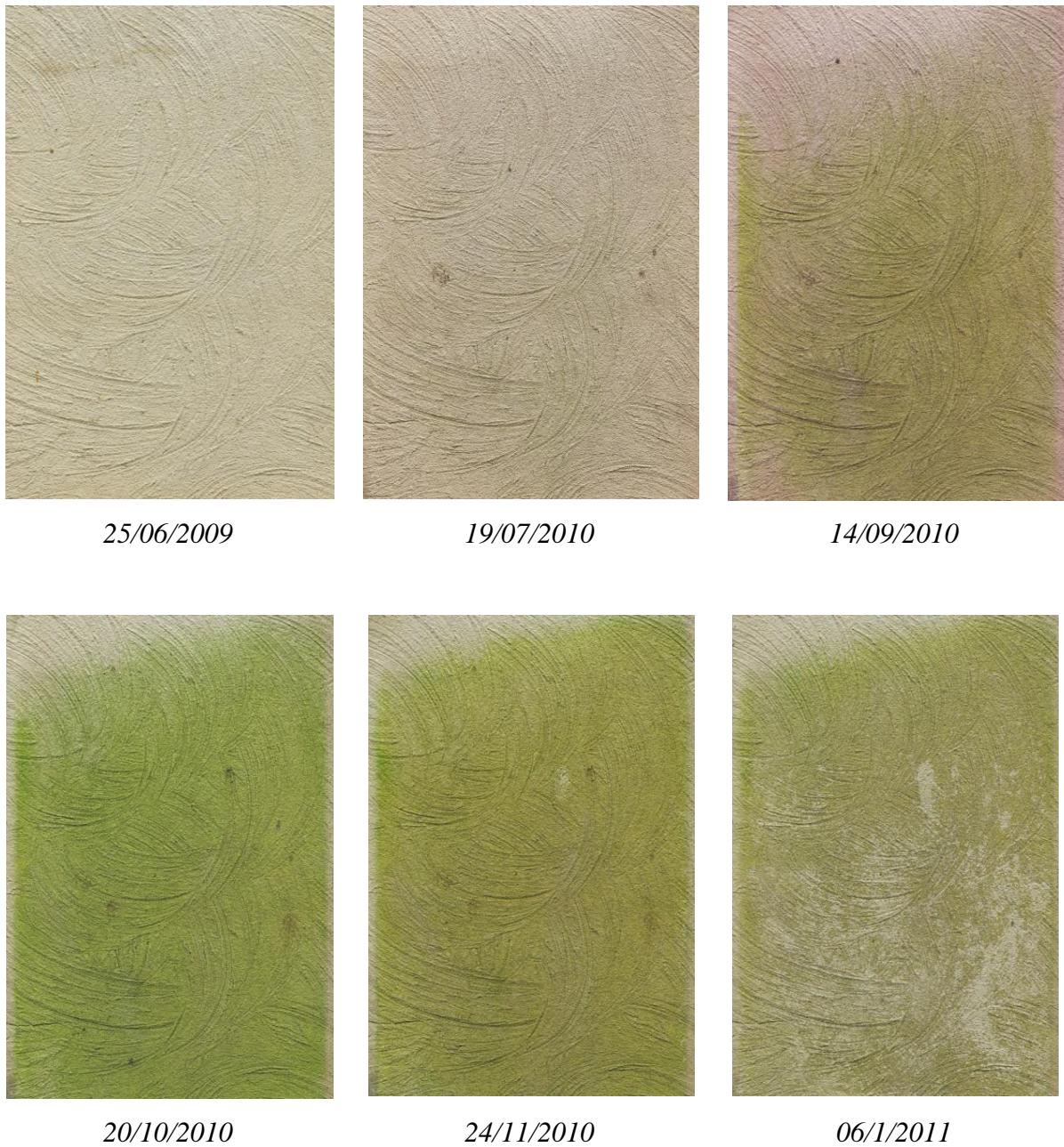


Figure 6.50 Evolution dans le temps de l'aspect de la surface des mortiers carbonatés, de rapport E/C égal à 1,2, de rugosité R3 dans l'essai *in situ*

6.2.1 Influence de la porosité

6.2.1.1 Estimation de la surface colonisée des mortiers par analyse d'images

Les **figures 6.51** et **6.52** montrent l'évolution de la surface colonisée des mortiers de rapports E/C égaux à 1 et 1,2, et respectivement de rugosité R2 et R3.

Nous observons que la colonisation des mortiers 12R3-C débute en premier, après 50 semaines d'exposition. Pour les autres mortiers, elle commence deux mois plus tard. Cette estimation peut être une erreur en raison des échéances de mesure. **Dubosc** (2000) pour des mortiers carbonatés de porosités comprises entre 10 et 22% et **Young** (1997) pour des échantillons en grès ont observées également le début de colonisation après le même temps d'exposition.

La colonisation couvre la totalité de la surface des échantillons en 17 semaines. Il faut noter que la période de colonisation se situe entre le mois de juillet et le mois de novembre 2010. Pendant cette période, des températures accompagnées d'un éclairage et de précipitations abondantes ont favorisé la croissance des algues. **Warscheid** et al. (1993) ont également remarqué qu'en automne, la colonisation biologique d'échantillons en pierre exposés sur différents sites localisés en Allemagne s'amplifiait.

Ensuite, vient la saison hivernale avec des températures basses et un éclairage faible ralentissant la croissance des algues. De plus, de fortes pluies et de la neige ont détaché des algues de la surface des échantillons. Nous voyons sur les **figures 6.51 et 6.52** une diminution du taux de colonisation à partir de début décembre 2010 (73 semaines).

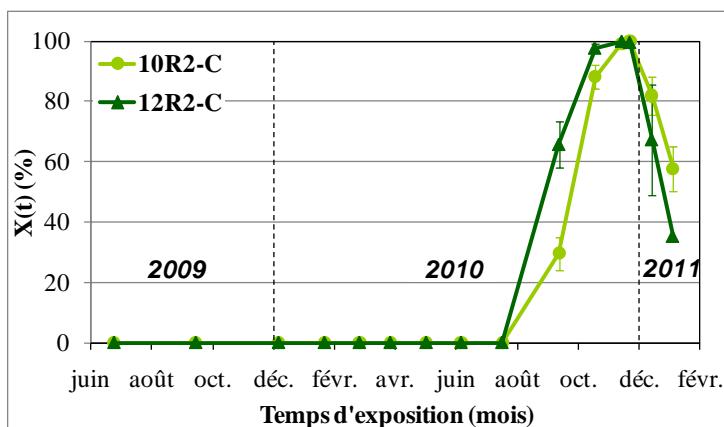


Figure 6.51 Evolution du taux d'encrassement pour les mortiers carbonatés, de rugosité R2 (essai *in situ*)

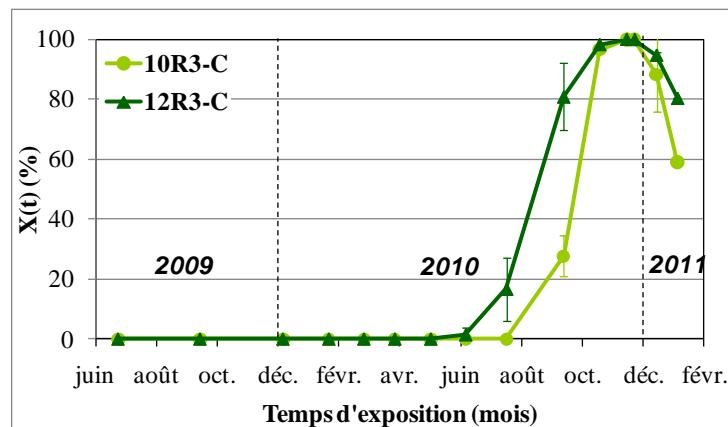


Figure 6.52 Evolution du taux d'encrassement pour les mortiers carbonatés, de rugosité R3 (essai *in situ*)

Il semble que le développement des algues sur les échantillons soit plus rapide pour les mortiers de E/C égal à 1,2 que pour ceux de E/C égal à 1. Cette tendance est observée pour les mortiers de rugosité R3 et moins flagrant pour ceux de rugosité R2. Vu le nombre limité de point d'acquisition, il faudrait cependant être prudent pour conclure à l'influence de la porosité.

La porosité des échantillons de rugosité R3, prélevés en novembre 2010, a été déterminée par PIM. Les résultats montrent que le réseau poreux est élargi par rapport à l'état initial. Ce phénomène est probablement lié à l'action de la lixiviation par la pluie. La porosité totale des mortiers de rapport E/C égal à 1 augmente de 32,1 à 36,3% et celle des mortiers de rapport E/C égal à 1,2 augmente de 36,2 à 38,4%. Il s'agit de valeurs moyennes sur toute l'épaisseur de l'échantillon. Il est également possible qu'en surface le phénomène soit amplifié.

La distribution en taille de pores des deux mortiers est représentée sur la **figure 6.53**.

On constate que l'unique pic caractérisant le diamètre d'entrée des pores se décale vers les plus grands diamètres. En effet, ce diamètre d'entrée, égal à 0,3 μm en début d'expérience, est de 0,5 μm en fin d'expérience pour les mortiers 10-C. Pour les mortiers 12-C, ce diamètre d'entrée passe de 0,75 à 1,6 μm .

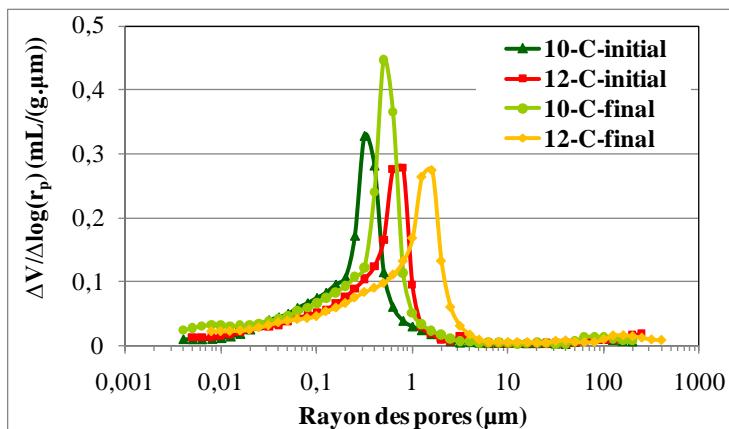


Figure 6.53 Distribution en taille des pores des mortiers carbonatés, de rapports E/C de 1 et 1,2, en début et en fin de l'essai *in situ*

Après plus d'une année d'exposition *in situ*, on peut considérer qu'au moment où la colonisation biologique commence, les mortiers possèdent déjà ces porosités. De plus, les parties 5.2.5.1 et 5.2.5.2 montrent une capacité d'absorption d'eau capillaire et une perméabilité à l'eau liquide des mortiers carbonatés de E/C égal à 1,2 plus importante que celles des mortiers de E/C égal à 1. Cela peut expliquer pourquoi les mortiers de rapports E/C les plus élevés semblent présenter une vitesse de colonisation biologique plus importante. Plusieurs auteurs (**Warcheid et al.** 1993, **Ohshima et al.** 1999, **Crispim et al.** 2003, **Prieto et Silva** 2005, **Miller et al.** 2006, **Miller et al.** 2009) ont également prouvé l'augmentation de la bioréceptivité des matériaux par l'augmentation de la porosité ouverte, du coefficient d'absorption d'eau par capillarité et de la perméabilité à l'eau liquide.

6.2.1.2 Estimation de l'intensité d'encrassement dans l'espace couleur L*a*b*

L'intensité d'encrassement de la surface des échantillons *in situ* de rugosité R3 a été évaluée selon les différentes coordonnées de l'espace couleur L*a*b* (**figures 6.54, 6.55 et 6.56**). L'évolution de la clarté ΔL^* et des chromaticités Δa^* , Δb^* présentent les mêmes tendances que celles obtenues sur les échantillons des essais accélérés de laboratoire. La diminution de ΔL^* et Δa^* et l'augmentation de Δb^* signifient une surface de plus en plus sombre, verte et jaune. Cela confirme la colonisation par les algues.

Les chromaticités Δa^* et Δb^* apparaissent plus sensibles et discriminantes que la clarté ΔL^* . En effet, l'écart entre les deux mortiers est plus nette sur les chromaticités Δa^* et Δb^* que sur la clarté ΔL^* .

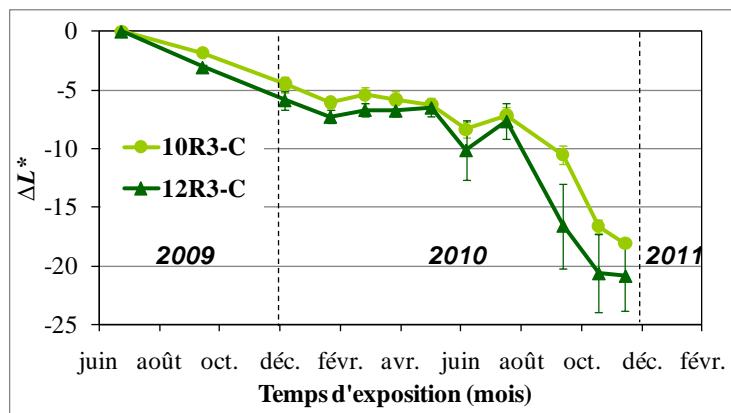


Figure 6.54 Evolution de la clarté ΔL^* pour les mortiers carbonatés, de rugosité R3 (essai in situ)

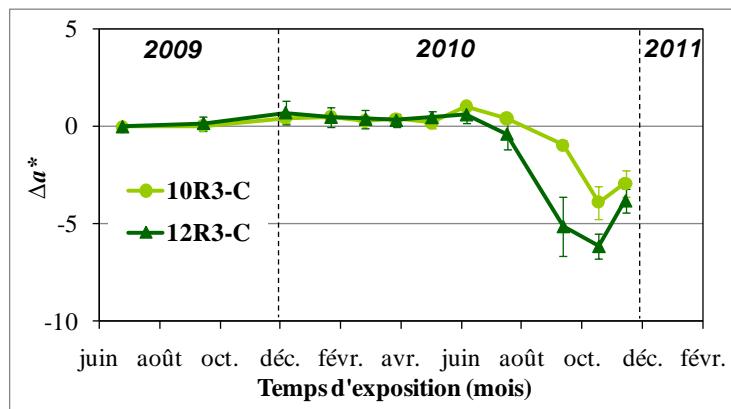


Figure 6.55 Evolution de la chromaticité Δa^* pour les mortiers carbonatés, de rugosité R3 (essai in situ)

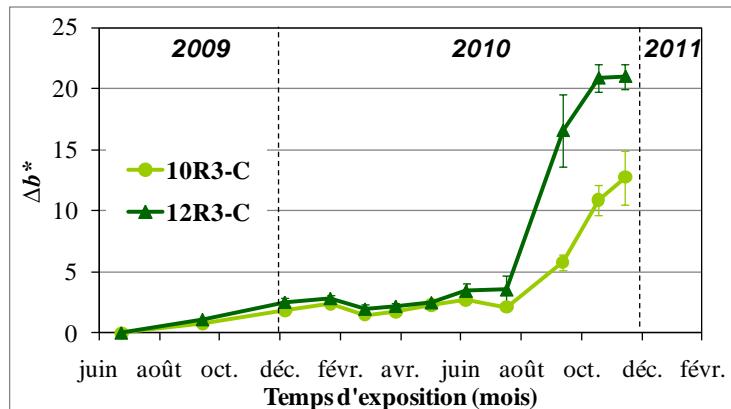


Figure 6.56 Evolution de la chromaticité Δb^* pour les mortiers carbonatés, de rugosité R3 (essai in situ)

La mesure de couleur confirme les résultats obtenus par analyse d'images. En effet, la différence de couleur entre les deux mortiers intervient à partir du mois de juillet 2010 correspondant au temps d'apparition de la colonisation observée par analyse d'images. La couleur des mortiers de E/C égal à 1,2 évolue plus rapidement que celle des mortiers de E/C égal à 1. A même échéance, la surface des premiers est plus sombre, plus verte et plus jaune. La porosité la plus grande favorise donc la colonisation biologique des mortiers.

Les mêmes résultats sont obtenus pour les mortiers de rugosité R2 dont les graphes sont donnés en **Annexe 7**.

6.2.2 Influence de la rugosité

6.2.2.1 Estimation de la surface colonisée des mortiers par analyse d'images

La **figure 6.57** présente l'évolution du taux de recouvrement de la surface des échantillons non carbonatés de rapport E/C égal à 1, de rugosités R1, R2 et R3.

Nous constatons que, quelle que soit la rugosité, la colonisation démarre au même moment, entre juillet et septembre 2010. Ce résultat ne correspond pas à ce que nous attendions. En effet, d'après les résultats obtenus dans le banc d'essai accéléré, les échantillons de rugosité R3 auraient dû être colonisés en premier, suivis des mortiers de rugosité R2 puis ceux de rugosité R1. Cependant, l'effet saisonnier interviendrait et aurait pour effet de masquer celui de la rugosité.

Ici, seule la rugosité la plus faible (R1) semble avoir un impact sur le développement biologique. En effet, la colonisation apparaît légèrement moins rapide pour cette rugosité que pour les deux autres. Le recouvrement total des échantillons de rugosité R2 et R3 est atteint en 73 semaines (novembre 2010). Pour la même échéance, le taux de recouvrement est d'environ 60% pour les mortiers de rugosité R1.

Au-delà du mois de novembre 2010, le taux de recouvrement diminue pour les 3 types d'échantillon. Ce phénomène est probablement dû aux lavages successifs par les précipitations abondantes et des conditions climatiques défavorables au développement biologique.

Il semble alors que la colonisation naturelle soit sensible à d'autres paramètres que la rugosité.

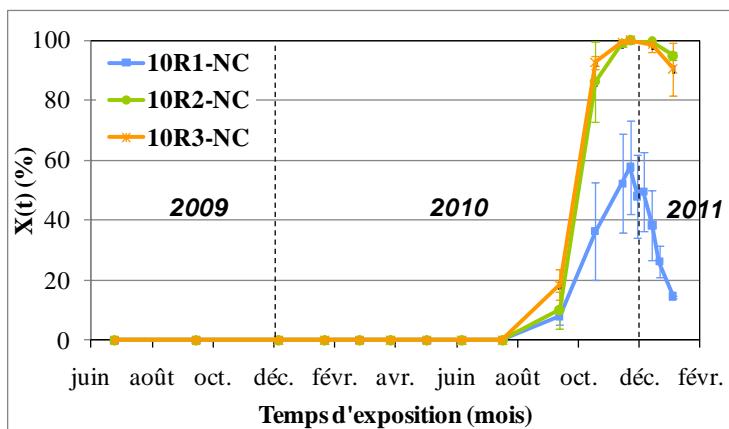


Figure 6.57 Effet de la rugosité sur le taux d'encrassement pour les mortiers non carbonatés de rapport E/C égal à 1 (essai *in situ*)

D'après la bibliographie, la rugosité est un paramètre influençant la colonisation biologique des façades des bâtiments (*partie 1.4.2.3a*). Plus la rugosité de la surface est importante, plus elle favorise l'accrochage des propagules d'algues en fournissant de nombreuses aspérités. De plus, la rugosité augmente le contact de l'eau avec la surface des échantillons et donc pourrait favoriser la rétention d'eau.

Nos résultats obtenus en essais accélérés ont montré sans équivoque l'effet de trois grades de rugosité bien distincts. Dans l'essai *in situ*, nous n'observons que l'effet de deux grades de rugosité : lisse et rugueux. En effet, les mortiers de rugosités bien différentes R2 et R3 ne présentent aucune différence de bioréceptivité. Par contre, un passage d'une surface lisse à une surface rugueuse même faible (de R1 à R2) augmente remarquablement sa bioréceptivité. Ces résultats vont quand même dans le même sens que ceux obtenus par l'essai de laboratoire. Nous avons déjà remarqué une relation non linéaire entre la rugosité et la vitesse de

colonisation biologique (*partie 6.1.3.3*). Une inoculation naturelle beaucoup moins intense que dans les essais accélérés pourrait expliquer la non-différenciation entre les mortiers les plus rugueux (R2, R3).

Ces résultats sont confirmés pour les mortiers carbonatés de rapports E/C égaux à 1 et 1,2 (**figure 6.58 et 6.59**).

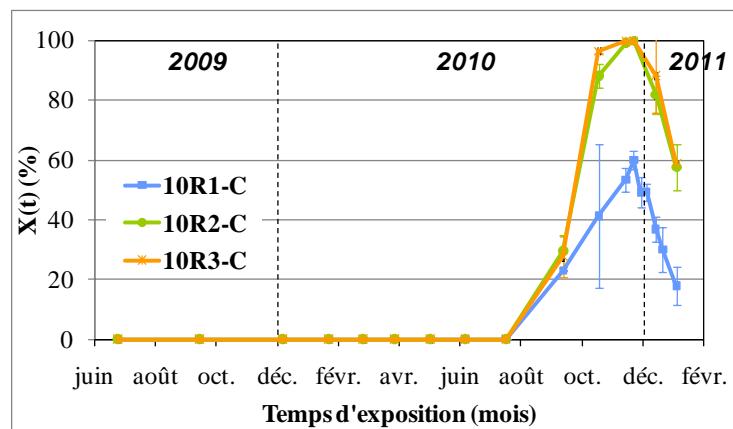


Figure 6.58 Effet de la rugosité sur le taux d'encrassement pour les mortiers carbonatés de rapport E/C égal à 1 (*essai in situ*)

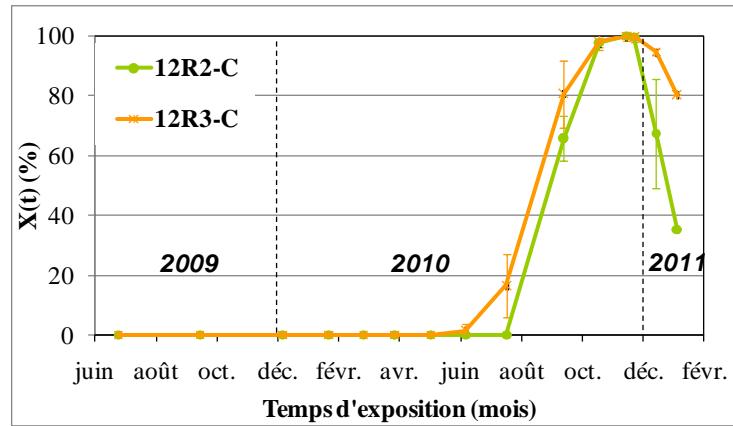


Figure 6.59 Effet de la rugosité sur le taux d'encrassement pour les mortiers carbonatés de rapport E/C égal à 1,2 (*essai in situ*)

6.2.2.2 Estimation de l'intensité d'encrassement dans l'espace couleur $L^*a^*b^*$

La mesure de couleur dans l'espace $L^*a^*b^*$ nous permet de conforter les résultats obtenus par analyse d'images.

Les **figures 6.60, 6.61** et **6.62** présentent l'évolution de la couleur des matériaux non carbonatés, de rapport E/C égal à 1, de trois rugosités.

Une bonne concordance entre l'évolution des coordonnées colorimétriques et l'analyse d'images est obtenue. En effet, on note entre juillet et décembre 2010 une accélération de l'évolution des trois coordonnées de couleur. Plus la surface est colonisé, plus elle est sombre, verte et jaune. L'inversion du sens d'évolution des paramètres colorimétriques observée pour les mortiers de rugosité R1, valide la diminution du taux de recouvrement. Il s'agit du décrochage des microorganismes. La mesure de couleur représente bien la surface colonisée par les microorganismes.

Aucune différence d'évolution de couleur entre les mortiers les plus rugueux (R2 et R3) n'est observée. Par contre, la surface des échantillons des mortiers lisses est beaucoup moins sombre, moins verte et moins jaune que les deux autres justifiant une colonisation moindre. Nous pouvons remarquer également que l'écart-type est modeste pour chaque type de mortier, signifiant une bonne reproductibilité de l'essai.

Pour les mortiers carbonatés, les résultats sont donnés en **Annexe 7**.

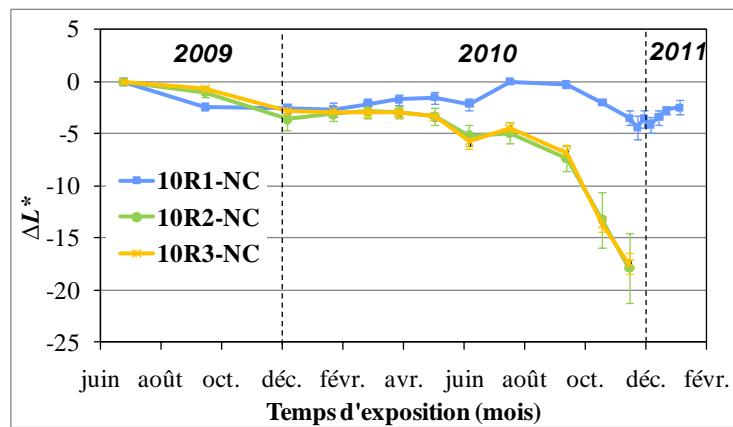


Figure 6.60 Effet de la rugosité sur la clarté ΔL^* pour les mortiers non carbonatés de rapport E/C égal à 1 (essai *in situ*)

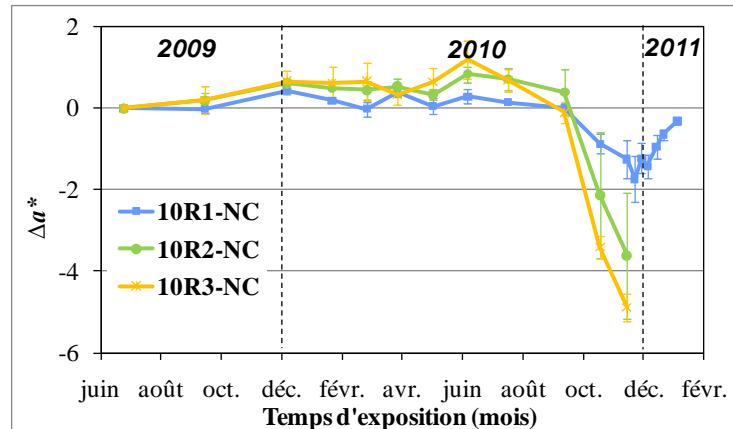


Figure 6.61 Effet de la rugosité sur la chromaticité Δa^* pour les mortiers non carbonatés de rapport E/C égal à 1 (essai *in situ*)

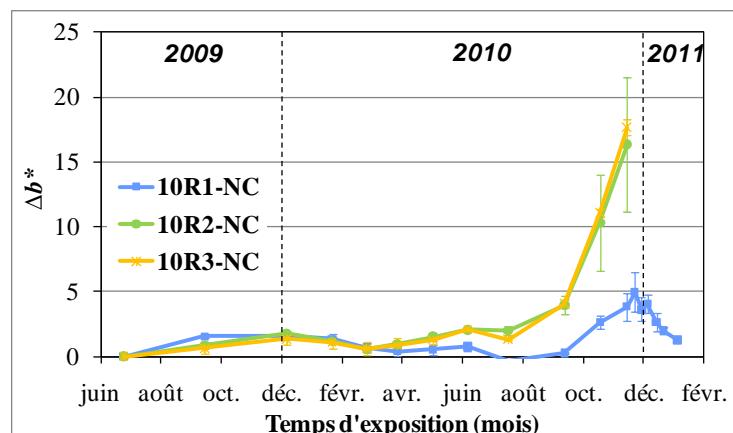


Figure 6.62 Effet de la rugosité sur la chromaticité Δb^* pour les mortiers non carbonatés de rapport E/C égal à 1 (essai *in situ*)

6.2.3 Influence de la carbonatation

6.2.3.1 Estimation de la surface colonisée des mortiers par analyse d'images

La **figure 6.63** présente l'effet de la carbonatation des échantillons de rapport E/C égal à 1 et de rugosité R3 sur le taux de recouvrement. Les deux mortiers sont colonisés à la même période, entre juillet et septembre 2010. La vitesse de colonisation est également très similaire.

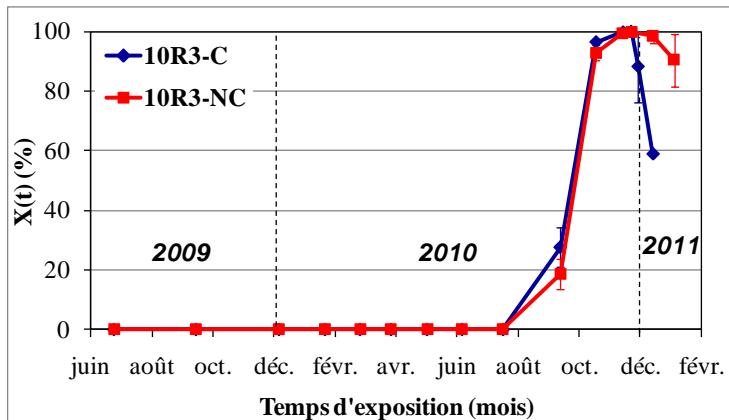


Figure 6.63 Effet de la carbonatation sur le taux d'encrassement pour les mortiers de rapport E/C égal à 1, de rugosité R3 (essai *in situ*)

D'après les résultats du test accéléré, la carbonatation avait un effet favorable au développement des algues. Cependant, pour les essais *in situ*, aucun effet du pH de surface n'est observé. Il est possible que les conditions climatiques et d'inoculation n'aient pas pu être réunies en 2009, ne permettant pas le développement biologique sur les échantillons carbonatés malgré un pH de surface adéquate. L'encrassement biologique intervient environ un an après l'exposition pour les deux types d'échantillon. Pendant cette période, les échantillons ont vieilli par lixiviation et carbonatation. Leur bioréceptivité est alors devenue identique. Une mesure du pH de surface réalisée au mois de novembre 2010 montre que le pH de surface est identique et égal à 8 pour les mortiers carbonatés et non carbonatés. L'effet du pH de surface initial est alors complètement inhibé.

Ce résultat est également observé pour les mortiers de rapport E/C égal à 1 et de rugosités R1 et R2 (**Annexe 7**).

6.2.3.2 Estimation de l'intensité d'encrassement dans l'espace couleur $L^*a^*b^*$

L'évolution de la clarté L^* et des chromaticités a^* et b^* des mortiers de rapport E/C égal à 1 de rugosité R3, carbonatés et non carbonatés est donnée sur les **figures 6.64, 6.65 et 6.66**.

La clarté évolue continuellement dès la mise en place des mortiers en juin 2009. Les mortiers deviennent de plus en plus sombres même si aucune colonisation biologique n'est encore observée par analyse d'images. Cet assombrissement est certainement dû au dépôt de poussières et/ou de fientes de pigeons.

Par contre, les chromaticités n'évoluent presque pas jusqu'en juillet 2010 où la colonisation biologique commence. A partir de ce moment, l'évolution des coordonnées de couleur s'accélère. La surface des échantillons est de plus en plus sombre, verte et jaune.

Les mesures dans cette espace couleur nous fournissent seulement la nature de la couleur de la colonisation et non la densité de l'encrassement. Elles représentent plutôt la surface colonisée des échantillons. Cette mesure confirme les résultats obtenus par analyse d'images.

La carbonatation n'a pas d'influence sur la colonisation biologique des mortiers. En effet, l'essai *in situ* subit plusieurs paramètres naturels incontrôlables comme : la saison, la précipitation, le vent, l'apport des micro-organismes, etc. Les mortiers carbonatés et non carbonatés, sous effet de la lixiviation et de la carbonatation, finissent par avoir le même pH de surface au moment où les conditions favorables à la colonisation sont réunies.

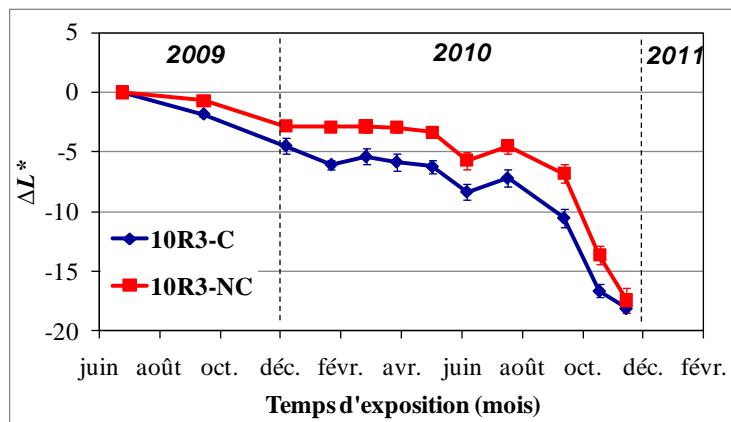


Figure 6.64 Effet de la carbonatation sur la clarté ΔL^* pour les mortiers de rapport E/C égal à 1, de rugosité R3 (essai in situ)

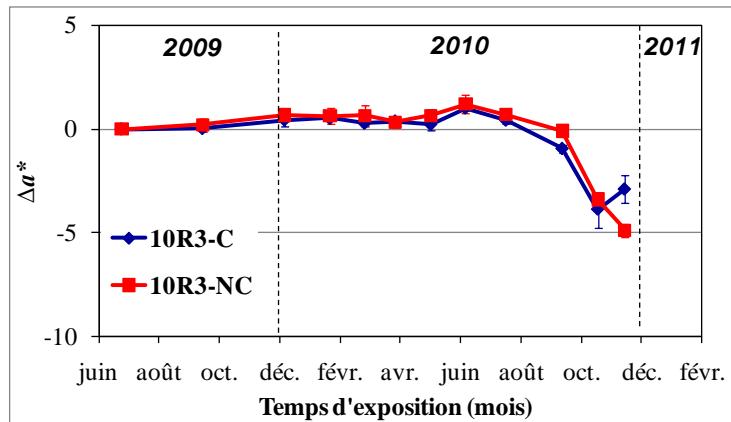


Figure 6.65 Effet de la carbonatation sur la chromaticité Δa^* pour les mortiers de rapport E/C égal à 1, de rugosité R3 (essai in situ)

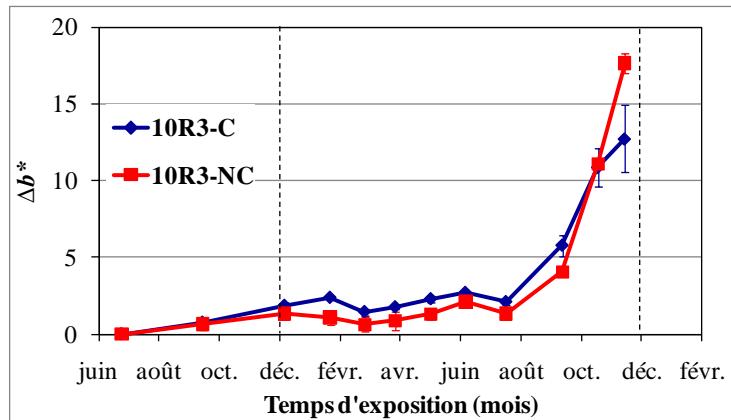


Figure 6.66 Effet de la carbonatation sur la chromaticité Δb^* pour les mortiers de rapport E/C égal à 1, de rugosité R3 (essai in situ)

6.2.4 Différence entre l'essai accéléré en laboratoire et l'essai *in situ*

Il est difficile de corrélérer les résultats obtenus par les essais accélérés avec ceux obtenus *in situ*. En effet, l'effet des paramètres intrinsèques sur l'encrassement biologique est différent dans les deux essais.

Une grande porosité semble favoriser la colonisation biologique dans l'essai *in situ* mais ne présente aucun effet dans l'essai accéléré.

En revanche, la rugosité semble faciliter la colonisation des algues dans les deux essais. Pourtant, la discrimination de leur effet est meilleure dans l'essai accéléré que dans l'essai *in situ*.

Dans l'essai accéléré, la carbonatation joue un rôle clé sur la colonisation des algues alors que dans les essais *in situ*, elle ne semble pas influencer. Aucune différence entre les mortiers carbonatés et non carbonatés n'a été observée pour les tests *in situ*.

Comme nous avons remarqué, dans l'essai *in situ*, non seulement les paramètres intrinsèques du matériau mais aussi de nombreux paramètres environnementaux interviennent sur l'encrassement biologique des mortiers.

L'essai *in situ* nous permet de confirmer que les algues sont les colonisateurs primaires responsables de l'encrassement des façades. La mesure colorimétrique fournit des informations concernant la nature de la couleur d'encrassement et peut représenter également le taux de surface colonisée. En raison du faible nombre de points de mesure, l'influence de la porosité reste indécise. L'influence de la rugosité est mise en évidence. Plus le matériau est rugueux, plus il favorise sa colonisation biologique. En revanche, la carbonatation préalable des échantillons n'a pas eu d'effet sur l'encrassement biologique.

En résumé, nous avons discuté, dans ce présent chapitre, l'influence des paramètres intrinsèques (la porosité, la rugosité et la carbonatation) des mortiers sur son encrassement biologique. L'étude a été menée, pour la première fois, à la fois par un essai accéléré en laboratoire et par une exposition aux conditions naturelles. La porosité n'avait pas d'influence dans l'essai accéléré. *In situ*, son influence a été observée mais pas de manière certaine par manque de mesures expérimentales. L'effet d'accélération de la carbonatation est mis en évidence en laboratoire mais non lors des essais *in situ*. Cependant, les deux essais nous permettent de confirmer l'influence de la rugosité. Il est à noter que les conditions de ces essais sont différentes. L'essai accéléré constitue un circuit fermé avec une inoculation intense. L'essai *in situ*, quant à lui, subit plusieurs paramètres naturels incontrôlables.

Dans le chapitre suivant, nous allons simuler les courbes relatives au taux de recouvrement des mortiers obtenus en essai accéléré. Nous nous inspirerons de la loi d'Avrami pour expliquer le processus de colonisation par les algues.

Chapitre 7 MODELISATION

Aucune étude à ce jour ne s'est intéressée à la modélisation de l'encrassement biologique des façades, qui constitue pourtant un problème économique autant qu'esthétique.

Nos résultats expérimentaux, obtenus en laboratoire et présentés dans le **chapitre 6**, montrent que la cinétique de colonisation des surfaces par les algues vertes suit une courbe de type sigmoïde. Des résultats similaires ont été obtenus pour une large gamme d'espèces d'algues et de matériaux par **Ruot** et **Barberousse** (2007), qui ont remarqué que la cinétique de colonisation peut être simulée par l'équation suivante :

$$X(t) = I - \exp(-Kt^n) \quad (7.1)$$

Dans notre étude, nous avons cherché à modéliser l'encrassement des mortiers dû à la colonisation par les algues vertes. Pour cela, nous nous sommes inspirés des travaux de **Ruot** et **Barberousse** (2007), de manière à établir, par l'utilisation des matériaux de même composition, des relations entre les coefficients K et n et les caractéristiques intrinsèques du matériau.

7.1 Modèle de Kolmogorov, Johnson, Mehl et Avrami (KJMA)

L'équation (7.1) est connue comme exprimant la loi d'Avrami. A l'origine, l'équation Avrami a été établie pour modéliser la cinétique des transformations allotropiques dans les solides (**Avrami** 1939, 1940, 1941).

Ce modèle est basé sur les processus de formation (germination) et de croissance des germes de la nouvelle phase. Ce modèle n'est cependant valable sans quatre hypothèses :

- le volume de la phase initiale est illimité,

- les germes doivent être répartis au hasard dans le volume du solide,
- la forme et la croissance de tous les germes sont les mêmes,
- la vitesse de croissance est indépendante de l'instant d'apparition du germe.

La puissance n est un nombre entier compris entre 1 et 4 et dépend de la température. Cette puissance représente l'ordre cinétique de germination et la dimensionnalité de croissance des germes (monodimensionnel, bidimensionnel ou tridimensionnel suivant qu'une, deux ou trois dimensions de germe sont variables). La constante K dépend de la température, de la concentration et de la pression. Elle dépend de la constante de germination, de la vitesse de croissance et du facteur de forme des germes.

La constante de germination représente la dépendance de la fréquence de germination (nombre de germes apparaissant par unité de temps et unité de surface ou de volume) avec les paramètres de réaction, en particulier, concentration et température.

La constante de vitesse de croissance caractérise l'augmentation de la taille du germe en fonction du temps selon une direction quelconque choisie (voir *partie 7.2.2*).

Le facteur de forme dépend de la géométrie des germes (aiguille, disque, sphère,...).

7.2 Application de la loi d'Avrami

D'après l'allure en sigmoïde des courbes représentant le taux de recouvrement des mortiers par les algues en fonction du temps, il serait possible de corrélérer les résultats expérimentaux à un modèle de type KJMA. Pour cela, le processus de colonisation doit être décrit comme un processus de type « germination »-croissance. Pour cela, nous allons nous intéresser à l'accrochage des algues sur la surface du mortier (« germination ») et à la croissance des « germes » formés pour atteindre un recouvrement total de la surface du substrat.

Nous souhaitons modéliser la colonisation de la surface d'échantillons par les algues. Le modèle d'Avrami sera donc appliqué en 2D.

Nos conditions expérimentales font que les hypothèses de la loi d'Avrami sont vérifiées :

- La taille des « germes » (cellules d'algues) est tellement petite par rapport à la surface des échantillons que l'on peut considérer la surface comme illimitée
- Les « germes » apparaissent au hasard sur la surface.

L'indépendance de la vitesse de croissance des « germes » avec le temps sera justifiée dans les parties suivantes (7.3.1.2 et 7.3.2.2).

Afin d'appliquer cette loi, la forme et la croissance de tous les « germes » sont considérées comme identiques.

7.2.1 Accrochage

Cette étape s'apparente au phénomène de « germination » de la théorie d'Avrami. Les algues sont apportées sur la surface des échantillons par le ruissellement périodique d'une suspension contenant des algues. Au bout d'un certain temps (période de latence), apparaissent sur cette surface des premiers îlots formés par des algues et que nous appelleront « germes ».

L'accrochage des algues sur la surface du substrat est gouverné par des interactions métaboliques adaptatives entre la surface des algues et du substrat (**Fattom** et **Shilo** 1984, **Finlay** et *al.* 2002, **Barberousse** 2006). Les polysaccharides exocellulaires des algues peuvent jouer le rôle de colle (**Robins** et *al.* 1986, **Gantar** et *al.* 1995, **Barberousse** 2006). Ces polymères interviennent lors du contact initial entre la cellule et la surface, et agissent au cours du temps (**Barberousse** 2006). En effet, ils existent en permanence sur la paroi cellulaire et s'adsorbent sur la surface en contact.

Ces métabolites sont constitués d'hexoses (glucose, galactose, mannose), de 6-désoxyhexoses (rhamnose, fucose) et de pentoses (xylose, arabinose) dont le constituant principal dépend de l'espèce d'algue considérée et du support reconnu. Ainsi, pour l'espèce *Klebsormidium flaccidum*, le mannose et le rhamnose ont été identifié comme étant le composant majoritaire (**Barberousse** 2006).

7.2.1.1 Paramètres susceptibles d'influencer l'accrochage des cellules d'algues

Ici, les paramètres susceptibles d'intervenir sur le processus d'accrochage des algues sont répertoriés.

a-La rugosité du substrat (R)

La rugosité, d'une part, traduit l'existence de nombreuses aspérités où les algues peuvent se déposer. D'autre part, elle a pour effet de modifier les conditions de ruissellement créant ainsi des variations locales de vitesse et d'orientation de l'écoulement, susceptibles de favoriser l'accrochage des algues sur le substrat. Pour toutes ces raisons, la rugosité augmente la probabilité d'accrochage des microorganismes. En effet, **Sekar et al.** (2004) ont montré que les algues qui s'accrochent sont plus nombreuses sur une surface rugueuse que sur une surface lisse. Ils ont remarqué également que la quantité d'algues accrochées sur une surface donnée augmente avec le temps de contact. L'influence de la rugosité sur le temps de latence et la vitesse de colonisation des mortiers par les algues a bien été observée au cours de nos essais accélérés et *in situ* (**chapitre 6**).

b-La porosité du substrat (p)

A priori, la porosité du substrat ne devrait pas influencer la vitesse de « germination ». Cependant, d'après **Barberousse et al.** (2007), l'absorption d'eau dans les pores débouchant à la surface des échantillons pourraient provoquer des forces d'attraction sur les cellules d'algues. Ce phénomène pourrait alors favoriser l'accrochage des algues à la surface de nos mortiers.

c-Le pH de surface initial du substrat (pH)

Le pH influence la « germination » puisqu'il agit sur la morphologie des algues (*partie 2.4.3 et 2.5.6*), sur la quantité et sur la masse moléculaire des polymères excrétés par les microorganismes (**Shu et Lung** 2004).

d-La nature de substrat

La nature du substrat conditionne la mouillabilité de la surface et donc influence l'accrochage des algues (**Sekar et al.** 2004, **Barberousse** 2006). En général, l'adhésion des algues est plus forte sur les surfaces hydrophobes que sur les surfaces hydrophiles. Pour les surfaces hydrophiles, la présence d'exopolysaccharides est nécessaire à l'adhésion. Le lessivage du substrat par la suspension peut aussi modifier les concentrations ioniques dans la suspension et changer ainsi la composition du milieu de culture.

e-La nature des algues

Les algues peuvent être unicellulaires ou filamenteuses. Les algues filamenteuses préfèrent les surfaces rugueuses alors que les algues unicellulaires préfèrent les surfaces lisses. De plus, la nature des polymères excrétés dépend de l'espèce d'algues considérée. Les capsulaires polysaccharides sont alors plus ou moins hydrophobes et anioniques selon la souche et pourraient donc favoriser des interactions hydrophobes et ioniques avec des surfaces de même nature (**Barberousse** 2006).

Dans nos essais, nous avons utilisé une seule algue (*K. flaccidum*), par conséquent, ce paramètre n'intervient pas dans notre modèle.

f- L'état des algues

L'âge de la culture influence l'accrochage des algues sur la surface du substrat. **Zaidi et Tosteson** (1972), **Sekar et al.** (2004) ont montré que les algues dans leur phase de croissance exponentielle s'accrochent d'une manière significativement plus importante que lorsqu'elles sont dans la phase stationnaire. Par ailleurs, **Barberousse** (2006) a remarqué une force d'adhésion plus importante pour les algues jeunes que pour les algues vieilles. Afin de s'affranchir de ce paramètre, nous avons essayé de contrôler l'état initial des algues introduites dans le banc.

g-La concentration en cellules (C)

La quantité d'algues accrochées est proportionnelle à la concentration des algues dans la suspension, comme le montrent les essais de **Sekar et al.** (2004). Afin de comparer les résultats, la concentration initiale des algues dans le banc d'essai a été contrôlée. La mesure de l'intensité de fluorescence indique que la concentration des algues au cours de nos essais varie en fonction du temps (6.1.4.1). Cependant, cette évolution est identique pour tous nos essais (que les échantillons soient carbonatés ou non).

h-Les conditions expérimentales

Parmi les conditions expérimentales, on liste ici la lumière (L), la température (T), l'inclinaison du substrat (θ) et le débit de ruissellement (Q).

Les deux premiers paramètres agissent d'une façon indirecte de la « germination ». En effet, la croissance des algues et donc la concentration des algues dans la suspension dépend de ces deux paramètres (*partie 2.3*).

Les deux derniers influencent la vitesse d'écoulement et par conséquent la probabilité d'accrochage des algues.

Au cours de nos essais, ces paramètres ont toujours été fixés.

7.2.1.2 Période de latence (t_l)

Le temps de latence correspond à une période où le taux d'accrochage et de croissance des algues est nul sur la surface des échantillons. La durée de cette phase dépend de l'âge du microorganisme et de la composition du milieu ou du matériau en contact. C'est le temps nécessaire au microorganisme pour synthétiser les enzymes adaptés au nouveau milieu.

Dans notre cas, la période de latence peut être due aux raisons suivantes :

- Les algues sont transférées d'un milieu favorable à un milieu défavorable. Les échantillons, suivant leur pH de surface, rendent le milieu dans le banc d'essai plus ou moins basique. Il est certain que les algues ont besoin de temps pour s'adapter à ce nouveau milieu.

- Les algues sont déjà présentes sur la surface des échantillons mais leur taille est trop petite pour que l'analyse d'images permette de les détecter.

7.2.1.3 « Germination » de probabilité uniforme

Dans le but de simplifier la modélisation, nous supposerons que l'apparition d'un germe se produit avec une probabilité uniforme, c'est à dire avec une probabilité identique en n'importe quel point de la surface des échantillons.

Désignons par G le nombre de germes réels présents, à un instant t donné, sur la surface des échantillons.

On définit la vitesse de « germination » par $\frac{dG}{dt}$. La vitesse de « germination » dépend des paramètres cités dans la partie 7.2.1.1 et de l'étendue du domaine que le phénomène peut affecter, c'est-à-dire de la surface totale initiale des échantillons S_0 .

Compte tenu de ces remarques, on peut symboliser l'influence des divers paramètres sur la vitesse de « germination » par l'expression suivante :

$$\frac{dG}{dt} = S_0 \times g(R, p, pH, substrat, algues, C, L, T, \theta, Q, t) \quad (7.2)$$

Excluons les paramètres fixés pour nos essais qui n'interviennent alors pas dans le modèle.
Nous avons :

$$\frac{dG}{dt} = S_0 \times g(R, p, pH, t) \quad (7.3)$$

Afin de faire abstraction de la surface totale initiale des échantillons, nous introduisons la concentration surfacique des germes γ .

$$\gamma = \frac{G}{S_0} \quad (7.4)$$

Considérant que la surface accessible est constante et égale à S_0 , la vitesse spécifique de « germination » s'écrit alors :

$$\frac{d\gamma}{dt} = g(R, p, pH, t) \quad (7.5)$$

Cette vitesse représente le nombre de germes apparaissant par unité de temps et par unité de surface.

En supposant que la variable t et l'ensemble des autres variables sont séparables, on exprime alors la fonction g comme le produit d'une fonction g' qui dépend uniquement du temps t et d'une fonction k_g qui dépend uniquement des autres paramètres.

$$\frac{d\gamma}{dt} = k_g(R, p, pH) \times g'(t) \quad (7.6)$$

La fonction k_g est appelée constante spécifique de « germination » et est rapportée à l'unité de surface des échantillons.

On suppose que la porosité et la rugosité ne changent pas au cours du temps. Le pH initial de surface des échantillons ainsi que le pH de la suspension d'algues dans le banc ne varient que pendant la première semaine, puis se stabilisent. Compte tenu de la durée des expériences, l'hypothèse que le pH ne varie pas dans le processus de « germination » est donc acceptable.

Il est à noter que les germes peuvent avoir des surfaces différentes. Celles-ci dépendent de la taille et de l'état d'agglomération des algues sur la surface, de l'intervalle de temps de mesure.

Les lois formelles citées dans la littérature et décrivant l'apparition de germes chimiques seront présentées dans la suite (**Delmon** 1969).

a-« Germination » instantanée

La « germination » se produit de manière instantanée au moment où les conditions expérimentales convenables sont établies.

$$\text{Pour } t < 0 \quad \gamma = 0 \quad (7.7)$$

$$\text{Pour } t \geq 0 \quad \gamma = \gamma_0 \quad (7.8)$$

b-« Germination » à vitesse constante

Dans ce cas, la fonction $g'(t)$ est indépendante du temps.

$$\frac{d\gamma}{dt} = k_g \quad (7.9)$$

Le constant k_g représente la probabilité pour qu'un germe apparaisse pendant l'unité de temps sur l'unité de surface.

c-« Germination » suivant une loi puissance

La fonction $g'(t)$ est une puissance de la variable temps :

$$\frac{d\gamma}{dt} = k_g t^{q_g} \quad (7.10)$$

Dans le cas où q_g est nul, l'expression (7.9) est retrouvée. La « germination » à vitesse constante est un cas particulier de la « germination » suivant une loi puissance.

d-« Germination » répondant à un ordre

Dans ce cas, l'apparition des germes est due à l'intervention d'une espèce chimique présente dans le solide en concentration initiale C_0 . Cette espèce s'épuiserait progressivement pour former des germes.

$$C = C_0 - \gamma \quad (7.11)$$

Dans ces conditions, la « germination » pourrait répondre à un ordre n_g :

$$\frac{d\gamma}{dt} = k_g(C_0 - \gamma)^{n_g} \quad (7.12)$$

Dans le cas où $n_g = 1$, l'intégration de l'équation (7.12) nous donne la relation suivante :

$$\frac{d\gamma}{dt} = k_g C_0 e^{-k_g t} \quad (7.13)$$

Dans le cas où $n_g = 2$, en intégrant l'équation (7.12) nous obtenons la concentration des germes et la fréquence de « germination » comme suit :

$$\gamma = \frac{k_g C_0 t}{1 + k_g C_0 t} \quad (7.14)$$

$$\frac{d\gamma}{dt} = \frac{k_g C_0^2}{(1 + k_g C_0 t)^2} \quad (7.15)$$

Parmi les lois citées, la « germination » instantanée ne représente pas notre cas. En effet, les algues viennent s'accrocher sur la surface au fur et à mesure du temps.

Egalement, la « germination » répondant à un ordre ne semble pas adaptée à notre cas. Certes, les algues venant s'accrocher à la surface des échantillons ont pour effet de diminuer leur concentration dans la suspension. Cependant, ce phénomène est largement compensé par la multiplication des algues.

Nous adoptons, pour décrire la « germination », une loi puissance. Ce choix sera justifié expérimentalement dans la partie (7.3). L'équation (7.6) s'écrit alors comme suit :

$$\frac{dy}{dt} = k_g(R, p, pH) \times t^q \quad (7.16)$$

La période de latence n'est pas prise en compte dans les formules ci-dessus. Celle-ci peut être prise en compte par changement de l'origine des temps.

La loi que l'on décrit ici est une loi idéale car la surface « saine » et donc disponible à la « germination » est considérée constante. En réalité, elle diminue progressivement suite à l'étendue de la colonisation. Cette loi ne représente la réalité, avec une bonne approximation, tant que la surface colonisée par la croissance des germes est négligeable.

7.2.2 Croissance des germes

7.2.2.1 Paramètres susceptibles d'influencer la vitesse de croissance

Les paramètres pouvant intervenir dans le processus de croissance sont :

a-La porosité du substrat (p)

La porosité du substrat est susceptible d'influencer la vitesse de croissance au travers de l'effet qu'elle possède sur la quantité d'eau disponible pour les algues.

b-Le pH de surface du substrat (pH)

Dans les parties 2.3.3 et 2.4.6, nous avons indiqué que le *pH* du milieu influence la croissance des algues ainsi que leur morphologie. Or, le *pH* de surface des échantillons influe sur le *pH* final de la suspension contenant les algues. Ainsi, le *pH* du substrat agit directement sur la croissance des algues, mais, également, de manière indirecte en modifiant le *pH* de la suspension.

c-La nature des algues

Chaque type d'algues possède une vitesse de croissance spécifique. En effet, pour des conditions expérimentales identiques, **Dubosc** (2000) a obtenu une croissance plus ou moins rapide suivant l'espèce d'algue étudiée.

d-L'état des algues

En effet, la croissance des algues varie selon la phase dans laquelle elles se retrouvent. Le *paragraphe 5.1.1* montrent bien trois phases différentes dans le cycle de vie de nos algues. La croissance est maximale dans la phase exponentielle. Dans la phase de latence ou dans la phase stationnaire, le nombre de cellules d'algues est constant. La phase de mortalité cellulaire (jamais obtenue dans nos cultures) se caractérise par la diminution du nombre de cellules d'algues vivantes.

e-Les conditions expérimentales

La lumière (L) et la température (T) sont citées comme un facteur important influençant la croissance des algues (*partie 2.4*). **Eppeley** (1972) a noté, à partir de nombreuses données expérimentales de cultures batch d'algues d'eau douce et d'algues marines, que la vitesse de doublement est une fonction à la puissance de la température.

Parmi tous les paramètres susceptibles d'agir sur la vitesse de croissance des algues, l'effet de la nature des algues, de l'éclairement et de la température sont exclus du modèle puisqu'ils sont conservés constants.

L'effet de la porosité est négligé compte tenu du fait que la quantité d'eau présente à la surface des échantillons est toujours suffisante pour répondre aux besoins des algues.

Seul le *pH* de surface des échantillons doit être retenu dans le cadre de notre étude.

7.2.2.2 Vitesse de croissance

Pour simplifier le modèle, nous faisons l'hypothèse que la croissance des algues dans un essai est constante au cours du temps et indépendante de l'état d'algues. Ces hypothèses seront justifiées par la suite (*partie 7.3*). Supposons que tous les germes sont de même forme et croissent de la même manière. Les dimensions des germes augmentent linéairement avec le temps.

Dans le cas général, un germe né à l'instant θ croît selon les trois dimensions :

$$x_g = k_x(t - \theta) \quad (7.17)$$

$$y_g = k_y(t - \theta) \quad (7.18)$$

$$z_g = k_z(t - \theta)$$

Le volume du germe peut être écrit de la façon suivante :

$$s_g(t, \theta) = \varphi_f k_x k_y k_z (t - \theta)^3 \quad (7.19)$$

La constante φ_f dans cette équation correspond à un facteur de forme des germes.

L'équation (7.19) peut se simplifier comme suit:

$$s_g(t, \theta) = k_c^3 (t - \theta)^3 \quad (7.20)$$

k_c : constante de vitesse de croissance des germes. Cette constante k_c dépend des constantes k_x , k_y , k_z et de la forme des germes représentée par φ_f .

Dans notre étude, nous ne nous intéressons qu'à l'étendue de colonisation surfacique. La croissance des germes est ainsi bidimensionnelle (axes x et y).

L'équation (7.20) peut se simplifier comme suit :

$$s_g(t, \theta) = k_c^2(t - \theta)^2 \quad (7.21)$$

La croissance des germes peut avoir différentes origines :

- L'accrochage de nouvelles cellules d'algues sur un germe existant ;
- La croissance des algues contenues dans les germes.

Dans notre étude expérimentale, nous ne pouvons pas distinguer ces deux phénomènes. Nous avons considéré que seule la croissance des algues contenues dans les germes était à l'origine de leur développement.

7.2.3 Evolution de la surface colonisée dans les premiers instants

Nous nous proposons de calculer l'aire des échantillons $S(t)$ colonisée au bout d'un temps t .

Les germes apparaissent selon la loi suivante :

$$\left(\frac{dG}{dt}\right)_\theta = 0 \quad \text{pour } \theta < t_l \quad (7.22)$$

$$\left(\frac{dG}{dt}\right)_\theta = S_0 \times k_g \times (\theta - t_l)^q \quad \text{pour } \theta \geq t_l \quad (7.23)$$

La surface totale $S(t)$ des germes à l'instant t sera donnée par l'expression :

$$S(t) = \int_{t_l}^t \left(\frac{dG}{dt}\right)_\theta s_g(t, \theta) d\theta \quad (7.24)$$

Dans l'équation (7.24), le terme $\left(\frac{dG}{dt}\right)_\theta s_g(t, \theta) d\theta$ représente la somme des aires des germes nés entre l'instant θ et l'instant $\theta + d\theta$; $S(t)$ est la somme de toutes ces quantités pour θ variant entre t_l et t .

En remplaçant $\left(\frac{dG}{dt}\right)_\theta$ et $s_g(t, \theta)$ par leurs formules développées (7.21) et (7.23), nous obtenons :

$$S(t) = \int_{t_l}^t S_0 \times k_g (\theta - t_l)^q k_c^2 (t - \theta)^2 d\theta \quad (7.25)$$

Le degré d'avancement de la colonisation ou le taux de recouvrement $X(t)$ est défini comme dans le *paragraphe 4.3.3.1* :

$$X(t) = \frac{S(t)}{S_0} \quad (7.26)$$

Nous avons alors :

$$X(t) = \int_{t_l}^t k_g (\theta - t_l)^q k_c^2 (t - \theta)^2 d\theta \quad (7.27)$$

La formule (7.27) reste valable aussi longtemps que les germes ne se chevauchent pas mutuellement pendant leur croissance (**figure 7.1**).

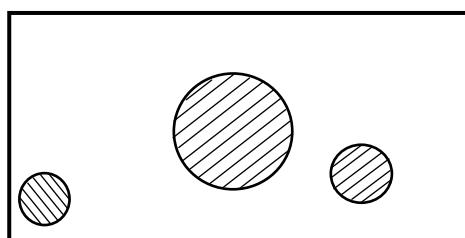


Figure 7.1 Croissance des germes dans les stades initiaux

Cependant, dès que les germes se touchent et que, par conséquent, leur croissance est interrompue au niveau de l'interface (**figure 7.2**), l'accroissement de leur superficie devient inférieur à la valeur calculée par les formules précédentes.

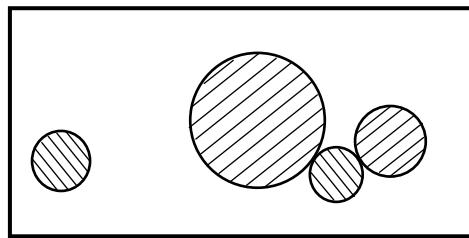


Figure 7.2 Croissance des germes dans les stades ultérieurs

La croissance des germes peut également être arrêtée lorsque ces derniers atteignent le bord de l'échantillon. Les calculs négligent cet effet. Cette hypothèse peut être justifiée si la surface échantillonnée est suffisamment large.

Par ailleurs, la croissance des germes existants conduit à la disparition de sites potentiels de « germination », ce qui a pour effet de réduire la vitesse effective de « germination ».

7.2.4 Evolution de la surface colonisée dans les stades ultérieurs

7.2.4.1 Définition du degré d'avancement fictif

Un artifice de calcul permettant de relier le déroulement du phénomène réel et celui du cas idéal présenté au-dessus a été imaginé par **Johnson** et **Mehl** (1939) et **Avrami** (1939, 1940, 1941). Nous en présentons ci-dessous le principe.

a-Germe fictif

L'ingestion des sites potentiels due à la croissance des germes a été prise en compte dans le modèle KJMA en introduisant le concept de « germes fantômes ». Nous pouvons alors différencier deux types de germes :

- Les germes réels (germe 2 de la **figure 7.3a)** qui apparaissent sur les zones encore intactes du matériau.
- Les germes fantômes (germe 6 de la **figure 7.3b)** qui sont des germes qui seraient apparus en certains points si la croissance d'autres germes (germe 1 sur cet exemple) n'avait pas recouvert la surface où ils devraient naître.

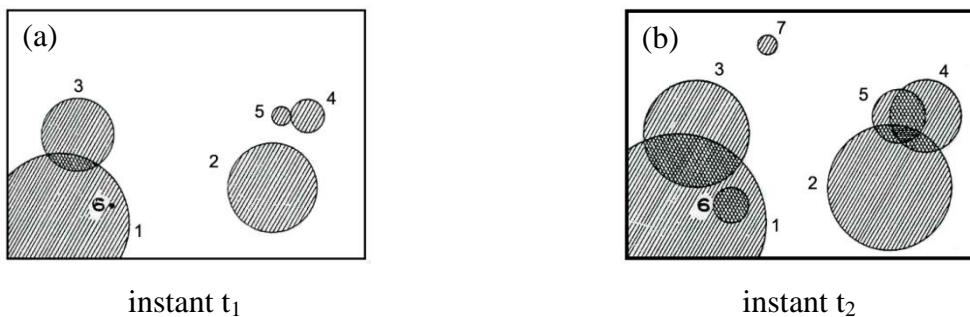


Figure 7.3 Germes réels et germes fantômes

La somme totale représente un nombre fictif de germes G_f . Nous adoptons pour la suite la concentration surfacique fictive γ_f .

Les formules de la *partie 7.2.1.3* sont donc utilisées tout au long de la colonisation pour décrire la formation des germes fictifs.

b-Surface fictive

Pour faire abstraction de l'arrêt de croissance aux points où les germes entrent en contact, nous attribuons à chaque germe une surface fictive $s_{gf}(t, \theta)$. Cette surface est calculée par la

formule (7.21) dans le cas où la surface des échantillons est suffisamment importante pour que très peu de germes puissent être arrêtés par le bord.

c-Surface fictive totale S_f

La surface fictive totale correspond à la somme de toutes les surfaces fictives des germes réels et fantômes. Dans ce cas, cette surface ne tient pas compte du recouvrement des germes et sont donc comptés plusieurs fois.

d-Degré d'avancement de colonisation fictif

Le degré d'avancement de colonisation fictif est défini comme suit :

$$X_f(t) = \frac{S_f(t)}{S_0} \quad (7.28)$$

La surface fictive totale $S_f(t)$ des germes à l'instant t est calculée à partir des quantités fictives : vitesse de « germination » fictive et surface fictive des germes. De la même manière que la surface réelle (7.24), nous avons :

$$S_f(t) = \int_{t_l}^t \left(\frac{dG_f}{dt} \right)_\theta s_{gf}(t, \theta) d\theta \quad (7.29)$$

En remplaçant l'équation (7.29) dans l'équation (7.28) et utilisant γ_f , le degré d'avancement de colonisation fictif est calculé comme suit :

$$X_f(t) = \frac{S_f(t)}{S_0} = \int_{t_l}^t \left(\frac{d\gamma_f}{dt} \right)_\theta s_{gf}(t, \theta) d\theta \quad (7.30)$$

7.2.4.2 Relation entre le degré d'avancement de colonisation réel et fictif

Nous utilisons les notations suivantes :

dS : aire de la surface réelle nouvellement colonisée pendant la durée dt . Elle est représentée par les éléments de surface noircis (**figure 7.4**).

dS_f : aire de la surface fictive nouvellement colonisée pendant la durée dt . Elle est représentée par la somme des aires comprises entre les cercles concentriques (**figure 7.4**).

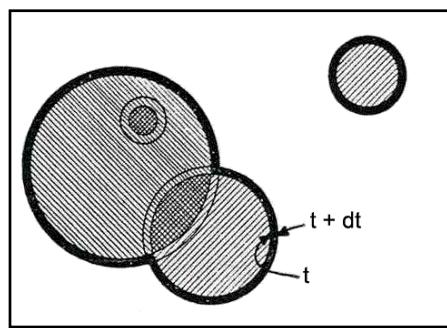


Figure 7.4 Surface colonisée réelle et fictive

Le rapport dS/dS_f représente la fraction de surface fictive des germes dont la croissance se produit dans des régions n'étant pas encore colonisée. Cette fraction correspond à la probabilité pour que l'accroissement du germe se produise sur la partie non colonisée. En supposant que les germes soient répartis au hasard sur une surface suffisamment importante, cette probabilité est égale à la fraction non encore transformée $1-X(t)$.

$$\frac{dS}{dS_f} = 1 - X(t) \quad (7.31)$$

$$\frac{dS}{dS_f} = \frac{dX}{dX_f} = 1 - X(t) \quad (7.32)$$

L'intégration de cette équation entre les instants t_l ($X = X_f = 0$) et t donne la relation recherchée :

$$X_f = -\ln(1 - X) \quad (7.33)$$

La formule (7.33) est appliquée sans regard à la forme et au mode de croissance des germes. Pourtant, elle n'est valable que dans les conditions suivantes :

- Les germes sont répartis au hasard sur la surface des échantillons.
- La surface des échantillons doit être suffisamment grande.

A partir de la formule (7.33), nous pouvons estimer l'erreur commise si l'on ne tient pas compte de l'ingestion des sites potentiels et le recouvrement des germes. Lorsque le degré d'avancement atteint 8%, l'écart entre la valeur de l'avancement fictif X_f et celle de l'avancement réel X est de 4,2%. Nous négligerons les effets perturbateurs tant que 8% de la surface ne sont pas colonisées.

Utilisons les lois idéales pour calculer le taux d'avancement fictif $X_f(t)$ de l'équation (7.33), nous obtenons :

$$-\ln(1 - X) = k_c^2 k_g \int_{t_l}^t (\theta - t_l)^q (t - \theta)^2 d\theta \quad (7.34)$$

L'intégration de la partie de droite nous donne :

$$-\ln(1 - X) = \frac{2k_g k_c^2}{(q + 1)(q + 2)(q + 3)} (t - t_l)^{q+3} \quad (7.35)$$

On définit alors comme suit les constantes A , K et n pour simplifier les formules mathématiques :

$$A = \frac{2}{(q + 1)(q + 2)(q + 3)} \quad (7.36)$$

$$K = Ak_g k_c^2 \quad (7.37)$$

$$n = q + 3 \quad (7.38)$$

A ne dépend que de l'ordre de la loi de puissance représentant la « germination ». K dépend des constantes des processus de « germination » et de croissance. Et n représente l'ordre de la loi de « germination ».

L'équation (7.35) s'écrit alors :

$$\ln(1 - X) = -K(t - t_l)^n \quad (7.39)$$

Nous avons enfin la relation permettant de calculer le taux de recouvrement en fonction du temps t :

$$X = 1 - e^{-K(t - t_l)^n} \quad (7.40)$$

7.3 Simulation numérique de la colonisation par les algues des mortiers étudiés dans les essais accélérés

7.3.1 Matériaux carbonatés

7.3.1.1 Détermination expérimentale de la « germination »

Par analyse d'images, nous pouvons déterminer, pour chaque intervalle de temps de mesure, le nombre de nouveaux germes apparus (**Annexe 8**). Le germe le plus petit que l'on arrive à détecter est d'environ $7200 \mu\text{m}^2$ soit 5 pixels. Cette surface représente uniquement $4,5 \cdot 10^{-5}\%$ de la surface de l'échantillon, justifiant l'hypothèse de la surface infinie de l'échantillon par rapport au germe. De là, nous pouvons déduire la fréquence de « germination » pour chaque matériau.

Les courbes représentées sur la **figure 7.5** illustrent l'évolution au cours de temps du nombre de nouveaux germes apparus par unité de surface et par unité de temps sur les mortiers de rapports E/C égaux à 1 et 1,2 de l'essai n°3. L'évolution de la vitesse spécifique de « germination » est représentée uniquement dans les premiers stades de la colonisation où le taux de colonisation des mortiers $X(t)$ est inférieur à 8%. Une colonisation plus avancée peut perturber l'accrochage des nouvelles cellules d'algues.

Malgré une forte incertitude expérimentale sur les mesures, nous pouvons constater une influence significative de la rugosité sur la vitesse de « germination ». Les germes apparaissent plus tôt sur la surface des mortiers rugueux et la vitesse de « germination » maximale atteinte est supérieure pour ces mêmes mortiers. La vitesse de « germination » maximale obtenue pour les matériaux les plus rugueux est environ sept fois plus importante que celle déterminée pour les échantillons les plus lisses.

L'influence du rapport E/C sur la vitesse de « germination » n'est pas observable compte tenu des incertitudes.

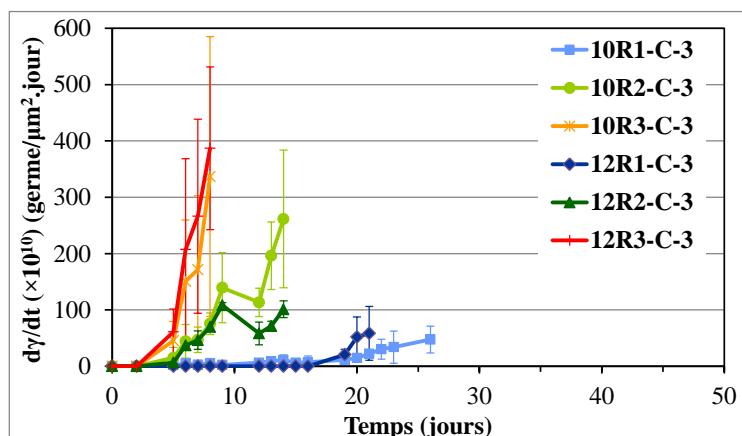


Figure 7.5 Evolution temporelle de la vitesse spécifique de « germination » des mortiers carbonatés, de rapports E/C égaux à 1 et 1,2, étudiés dans l'essai n°3

Les courbes de la **figure 7.6** représentent l'évolution de la vitesse spécifique de « germination » sur les mortiers de rapport E/C égaux à 0,5 et 1 de l'essai n°4. La fréquence de « germination » maximale augmente également avec la rugosité, à l'exception des échantillons de rapport E/C égal à 0,5 et de rugosités R2 et R3.

Comme cela a déjà été mentionné dans le chapitre précédent, l'inversion entre les échantillons de rapport E/C égal à 0,5 de rugosité R2 et R3 est due à l'état de surface (*partie 6.1.3.2*). Nous constatons ici que cette inversion est également observée pour la fréquence de « germination ».

Pour les rugosités R1 et R2, vue l'incertitude, le rapport E/C n'a pas d'effet significatif sur la « germination ». Nous pouvons exclure l'influence de la porosité p sur la constante spécifique de germination. k_g ne dépend que de la rugosité R et du pH de surface initial des échantillons.

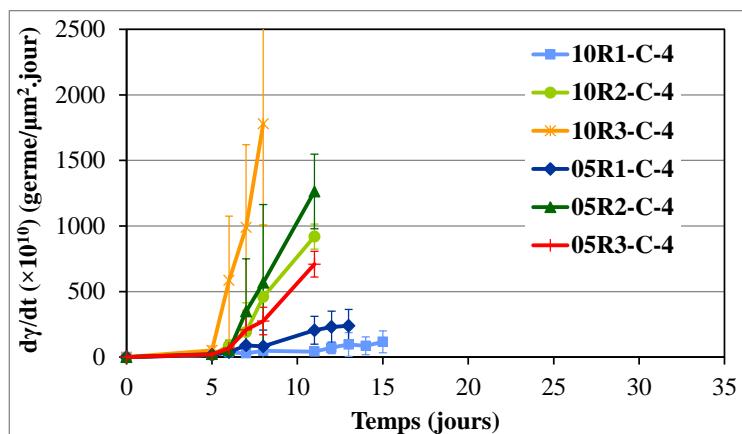


Figure 7.6 Evolution temporelle de la vitesse spécifique de « germination » des mortiers carbonatés, de rapports E/C égaux à 0,5 et 1, étudiés dans l'essai n°4

Dans les deux essais carbonatés, nous constatons que la fréquence de germination augmente en fonction du temps. Ce résultat justifie notre choix de la loi de germination. Ni la germination instantanée, ni la germination à vitesse constante ou suivant un ordre (dont la fréquence diminue avec le temps) n'est correcte.

D'après les **figures 7.5** et **7.6**, il semble que la vitesse de « germination » augmente linéairement avec le temps. Cela signifie que la puissance q est égale à 1.

La constante spécifique de « germination » k_g peut alors être déterminée par régression linéaire à partir des courbes d'évolution de la vitesse de « germination » avec le temps, à partir du temps de latence t_l (**figure 7.7**). Ce dernier est défini comme noté dans la *partie 6.1.2.3*.

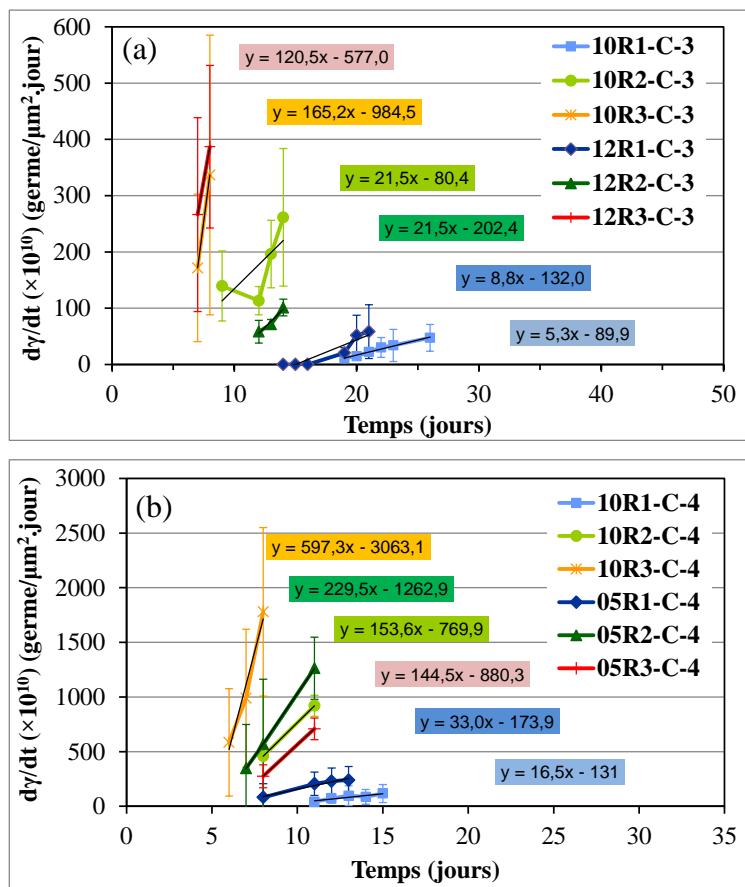


Figure 7.7 Détermination de la constante spécifique de « germination » des mortiers carbonatés étudiés dans l'essai n°3 (a) et n°4 (b)

Le **tableau 7.1** récapitule les temps de latence et les valeurs k_g obtenus pour les mortiers étudiés dans les essais n°3 et 4.

Comme nous avons remarqué, le temps de latence diminue lorsque la rugosité augmente. En revanche, la constante de « germination » augmente, sauf dans le cas des mortiers 05R3-C-4.

Tableau 7.1 Constante spécifique de « germination » des mortiers carbonatés étudiés dans l'essai n°3 et 4

Essai	Mortiers	Rugosité R_a (μm)	Temps latence t_l (jour)	$k_g (\times 10^{10})$ (germe/ $\mu\text{m}^2 \cdot \text{jour}^2$)
n°3	10R1-C-3	29 ± 5	18 ± 5	$5,3 \pm 4,4$
	10R2-C-3	47 ± 6	10 ± 2	$21,5 \pm 9,6$
	10R3-C-3	138 ± 15	7 ± 1	$165,2 \pm 114,1$
	12R1-C-3	32 ± 4	14 ± 5	$8,8 \pm 2,8$
	12R2-C-3	47 ± 6	10 ± 1	$21,5 \pm 17,6$
	12R3-C-3	145 ± 18	7 ± 2	$120,5 \pm 19,2$
n°4	10R1-C-4	30 ± 3	11 ± 2	$16,5 \pm 18,7$
	10R2-C-4	55 ± 4	8 ± 1	$153,6 \pm 63,0$
	10R3-C-4	169 ± 17	6 ± 1	$597,3 \pm 151,3$
	05R1-C-4	40 ± 9	10 ± 1	$33 \pm 34,7$
	05R2-C-4	90 ± 8	7 ± 1	$229,5 \pm 85,8$
	05R3-C-4	186 ± 21	8 ± 1	$144,5 \pm 49,7$

En comparant la fréquence de « germination » déterminée pour les essais n°3 et 4, nous remarquons que le processus de « germination » commence plus tôt et que la vitesse de « germination » est légèrement plus importante pour les échantillons de l'essai n°4 que pour ceux de l'essai n°3. Nous pouvons illustrer ce phénomène par les résultats obtenus sur les mortiers 10R1-C étudiés dans les deux essais et dont la rugosité est identique (**figure 7.8**).

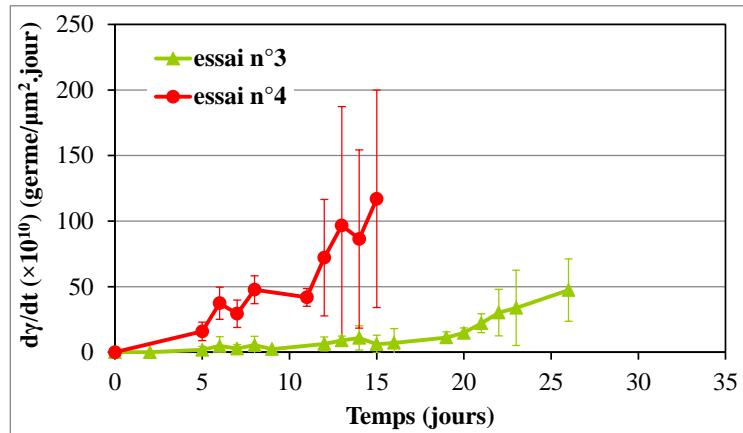


Figure 7.8 Evolution temporelle de la vitesse spécifique de « germination » pour les mortiers carbonatés, de rapport E/C égal à 1, de rugosité R1, étudiés dans les essais n°3 et 4.

Au bout de 5 jours, les premiers « germes » apparaissent sur la surface des échantillons de l'essai n°4. A cette échéance, aucun germe n'est observé sur celle des échantillons de l'essai n°3. L'augmentation de la fréquence de « germination » dans l'essai n°4 est plus importante que dans l'essai n°3. Il est probable que l'activité des algues dans les deux essais était différente. Ceci serait à l'origine d'une colonisation plus précoce et plus rapide des mortiers étudiés lors de l'essai n°4.

7.3.1.2 Caractérisation de la croissance des « germes »

L'analyse d'image nous permet de localiser et de suivre l'évolution au cours du temps de l'aire de chaque germe présent sur la surface des échantillons (**figure 7.9**). Nous pouvons alors calculer l'évolution de la vitesse moyenne de croissance des germes en fonction du temps.

La constante de vitesse de croissance k_c est calculée comme suit :

$$k_c = \frac{\sqrt{S_{i+1}} - \sqrt{S_i}}{(t_{i+1} - t_i)} \quad (7.41)$$

Où :

S_i : aire d'un germe à l'instant t_i (μm^2)

S_{i+1} : aire d'un germe à l'instant t_{i+1} (μm^2)

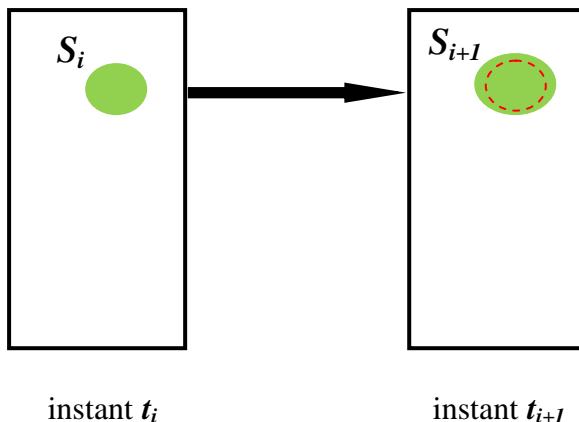


Figure 7.9 Croissance d'un germe entre les instants t_i et t_{i+1}

Les courbes des **figures 7.10a** et **7.10b** représentent les valeurs de k_c calculées aux différentes échéances pour les échantillons de rapport E/C égaux à 1 et 1,2 de l'essai n°3. Elles sont déterminées jusqu'à un taux de recouvrement de 50%. Au-delà, le nombre de germes qui peuvent être isolés pour suivre leur croissance est trop faible.

Nous remarquons que les incertitudes sont importantes. Les sources d'erreur peuvent être le détachement des anciennes cellules ou l'accrochage de nouvelles cellules à un germe existant sous l'effet du ruissellement périodique. L'évolution de la surface du germe n'est donc plus uniquement liée à sa croissance.

La valeur de k_c ne semble pas varier de manière significative au cours du temps. Ce résultat justifie l'hypothèse faite au *paragraphe 7.2.2.2* qui consistait à considérer la vitesse de croissance des germes comme constante.

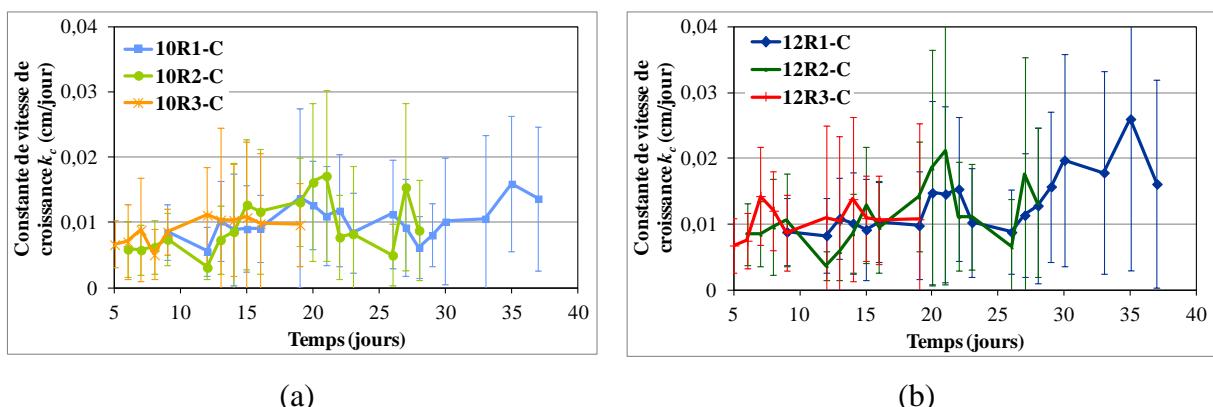


Figure 7.10 Constante de vitesse de croissance des germes (k_c) calculée aux différentes échéances pour les mortiers carbonatés, de rapports E/C égaux à 1 et 1,2, étudiés dans l'essai n°3

Les **figures 7.11 et 7.12** représentent la valeur moyenne de k_c pour tous les mortiers étudiés dans les essais n°3 et n°4.

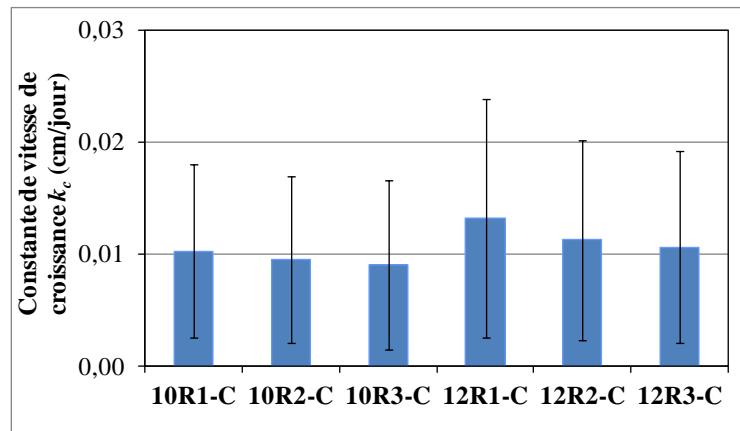


Figure 7.11 Valeur moyenne de la constante de vitesse de croissance des germes (k_c) sur la surface des mortiers carbonatés, de rapports E/C égaux à 1 et 1,2, étudiés dans l'essai n°3

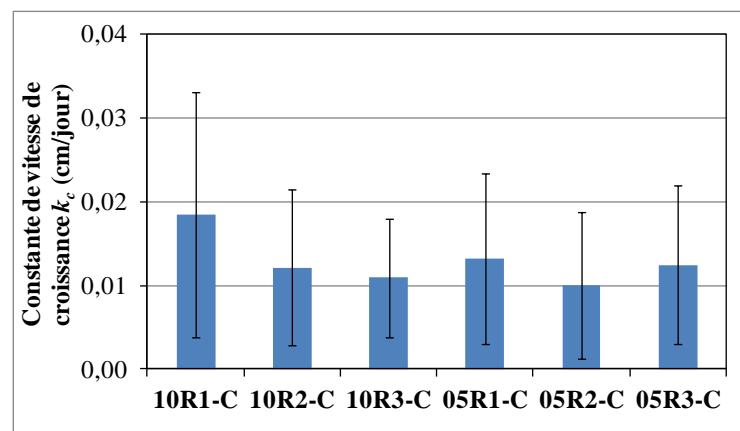


Figure 7.12 Valeur moyenne de la constante de vitesse de croissance des germes (k_c) sur la surface des mortiers carbonatés, de rapports E/C égaux à 1 et 0,5, étudiés dans l'essai n°4

Les erreurs expérimentales sont très importantes et il est par conséquent difficile de conclure sur les valeurs obtenues.

Il apparaît cependant que la différence d'activité des algues dans les deux essais peut être observée au travers de la constante moyenne de vitesse de croissance des mortiers de E/C égal à 1 (en particulier 10R1-C). De par des valeurs de k_c légèrement supérieures, les algues de l'essai n°4 semblent légèrement plus vivaces que dans l'essai n°3.

Dans les parties suivantes, du fait que l'activité des algues est différente, nous ne ferons pas de moyenne sur les valeurs de n et de K .

La **figure 7.13** représente l'évolution en fonction du temps de la fréquence de « germination » et du taux de recouvrement des mortiers de l'essai n°3 et 4. Nous remarquons que la vitesse de « germination » et le taux de colonisation des échantillons sont classés dans le même ordre en fonction de la rugosité. Sur les échantillons les plus rugueux, la « germination » et la colonisation démarrent plus tôt et, à un instant donné, leur vitesse est considérablement plus élevée que pour les échantillons moins rugueux.

D'ailleurs, nous avons vu que la vitesse de croissance des mortiers d'un même essai est peu différente.

Il apparaît que la « germination » joue un rôle décisif pour la vitesse de colonisation globale des échantillons.

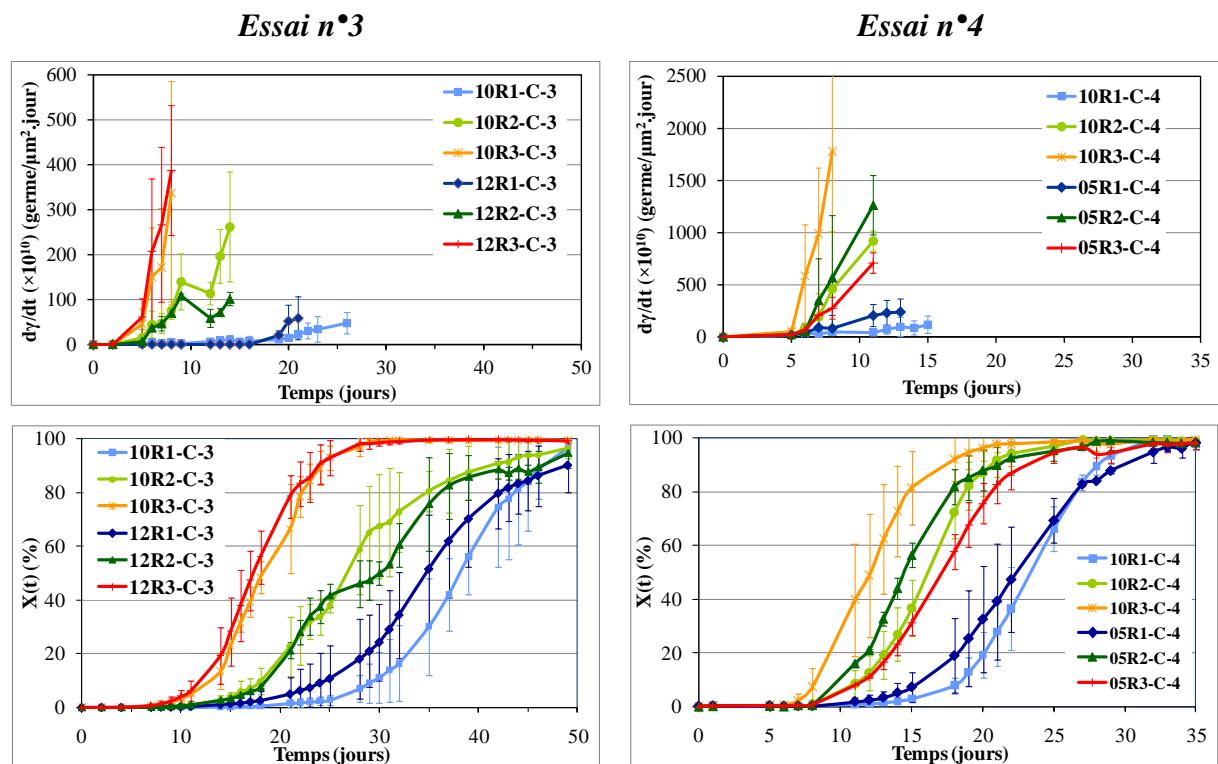


Figure 7.13 Evolution temporelle de la vitesse spécifique de germination et du taux de colonisation des mortiers carbonatés étudiés dans les essais n°3 et 4

7.3.1.3 Simulation de la colonisation des mortiers carbonatés étudiés dans l'essai n°3

Le temps de latence t_l des mortiers de l'essai n°3 est donné dans le **tableau 7.1**. La valeur expérimentale de q étant égale à 1, le paramètre cinétique n , égale à $q+3$, vaut donc 4. Le paramètre K est ajusté à partir de l'équation 7.40 par la méthode des moindres carrés (K choisi pour que E soit minimal).

$$E = \sqrt{\sum_{i=1}^m (X_{si} - X_{ei})^2} \quad (7.42)$$

Où :

X_{si} : taux de recouvrement simulé du matériau à l'instant i

X_{ei} : taux de recouvrement expérimental du matériau à l'instant i

A partir des valeurs k_g déterminées par analyse d'images, nous calculons la constante de vitesse de croissance $k_{c\text{-calculé}}$:

$$k_{c\text{-calculé}} = \sqrt{\frac{K}{Ak_g}} \quad (7.43)$$

Le **tableau 7.2** regroupe les différents paramètres cinétiques obtenus pour les mortiers étudiés dans l'essai n°3.

Tableau 7.2 Paramètres cinétiques et erreur de simulation de la colonisation par les algues des mortiers carbonatés étudiés dans l'essai n°3

Mortiers	Rugosité R_a (μm)	t_l (jour)	K ($\times 10^6$) (germe/jour 4)	k_g ($\times 10^{10}$) (germe/ $\mu m^2.jour^2$)	$k_{c\text{-calculé}}$ (cm/jour)	$k_{c\text{-expérimentale}}$ (cm/jour)	E (%)
10R1-C-3	29 ± 5	18 ± 5	$5,9 \pm 5,3$	$5,3 \pm 4,4$	$0,036 \pm 0,010$	$0,010 \pm 0,008$	5,1
10R2-C-3	47 ± 6	10 ± 2	$10,3 \pm 3,9$	$21,5 \pm 9,6$	$0,024 \pm 0,005$	$0,010 \pm 0,008$	23,8
10R3-C-3	138 ± 15	7 ± 1	$45,2 \pm 11,2$	$165,2 \pm 114,1$	$0,018 \pm 0,010$	$0,009 \pm 0,008$	6,3
12R1-C-3	32 ± 4	14 ± 5	$3,2 \pm 1,7$	$8,8 \pm 2,8$	$0,021 \pm 0,011$	$0,013 \pm 0,011$	10,2
12R2-C-3	47 ± 6	10 ± 1	$4,9 \pm 0,1$	$21,5 \pm 17,6$	$0,017 \pm 0,009$	$0,011 \pm 0,009$	30,6
12R3-C-3	145 ± 18	7 ± 2	$55,4 \pm 16,0$	$120,5 \pm 19,2$	$0,024 \pm 0,008$	$0,011 \pm 0,009$	7,0

Le temps de latence t_l augmente lorsque la rugosité diminue. Inversement, les paramètres K et k_g augmentent avec la rugosité. La **figure 7.14** illustre ces relations, qui ne suivent pas de loi linéaire.

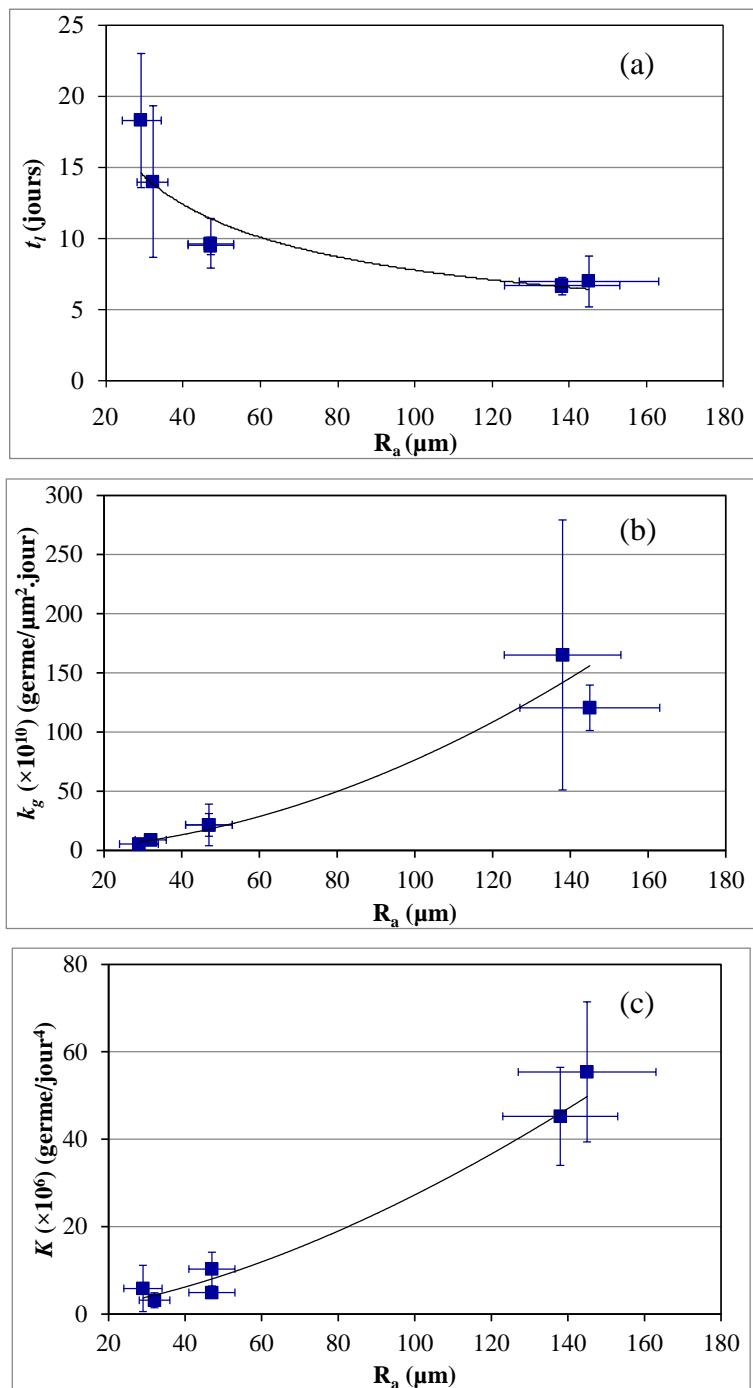


Figure 7.14 Evolution du temps de latence t_l (a), de la constante de germination k_g (b) et du paramètre cinétique K (c) des mortiers carbonatés étudiés dans l'essai n°3 en fonction de la rugosité R_a

La constante de croissance des germes $k_{c\text{-calculé}}$ est comparée avec celle déterminée par analyse d'images (*partie 7.3.1.2*). Les valeurs calculées sont toujours plus élevées (**figure 7.15**). Cependant, compte tenu des incertitudes, elles sont quand même dans le même ordre de grandeur.

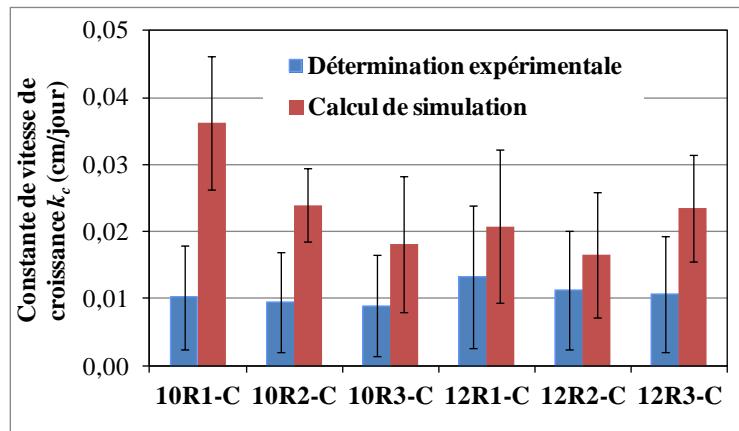


Figure 7.15 Comparaison entre les constantes de vitesse de croissance des germes calculées par simulation et déterminées expérimentalement pour les mortiers carbonatés étudiés dans l'essai n°3

La **figure 7.16** montre l'évolution avec le temps du taux de recouvrement simulé des mortiers de l'essai n°3 avec les valeurs t_l , n et K déterminées précédemment.

Pour tous les mortiers, les courbes simulées sont relativement proches des valeurs expérimentales.

En connaissant le temps de latence (t_l) et les paramètres cinétiques (n , K), l'équation Avrami pourrait alors nous aider à prévoir l'évolution du taux de recouvrement avec le temps.

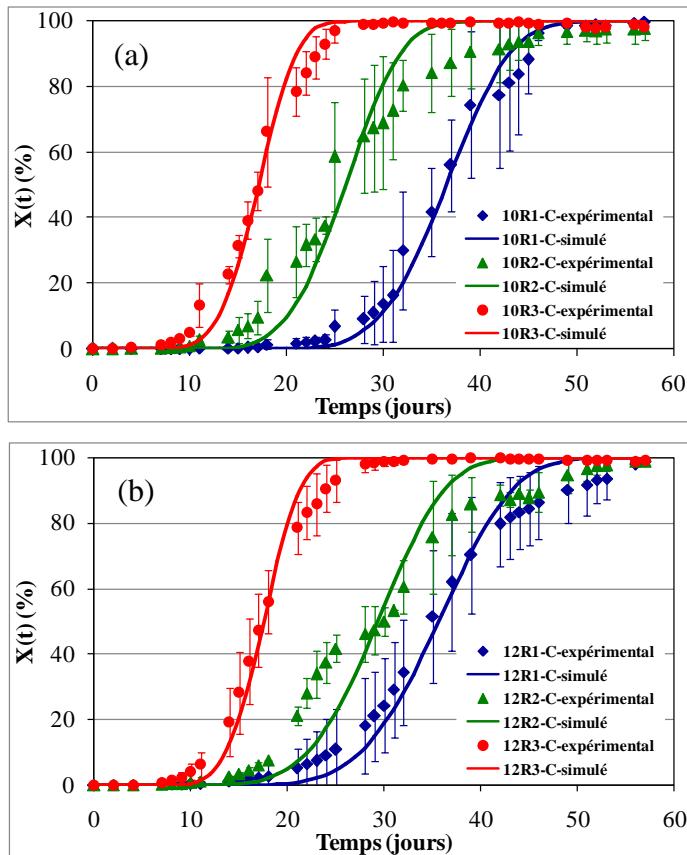


Figure 7.16 Evolution avec le temps du taux de recouvrement simulé des mortiers carbonatés, de rapports E/C égaux à 1 (a) et 1,2 (b) étudiés dans l'essai n°3

7.3.1.4 Simulation de la colonisation des mortiers carbonatés étudiés dans l'essai n°4

Avec le temps de latence t_l (tableau 7.1) et le paramètre cinétique $n = 4$, K est déterminé par la méthode des moindres carrés comme pour les mortiers de l'essai n°3.

Tableau 7.3 Paramètres cinétiques et erreur de simulation de la colonisation par les algues des mortiers carbonatés étudiés dans l'essai n°4

Mortiers	Rugosité R_a (μm)	t_l (jour)	$K \times 10^6$ (germe/jour 4)	$k_g \times 10^{10}$ (germe/ μm^2 .jour 2)	k_c -calculé (cm/jour)	k_c -expérimentale (cm/jour)	E (%)
10R1-C-4	30 ± 3	11 ± 2	$29,2 \pm 5,1$	$16,5 \pm 18,7$	$0,046 \pm 0,032$	$0,018 \pm 0,015$	0,6
10R2-C-4	55 ± 4	8 ± 1	$144,3 \pm 41,0$	$153,6 \pm 63,0$	$0,034 \pm 0,007$	$0,012 \pm 0,009$	6,1
10R3-C-4	169 ± 17	6 ± 1	$421,4 \pm 76,9$	$597,3 \pm 151,3$	$0,029 \pm 0,002$	$0,011 \pm 0,007$	7,4
05R1-C-4	40 ± 9	10 ± 1	$28,1 \pm 11,0$	$33 \pm 34,7$	$0,032 \pm 0,010$	$0,013 \pm 0,010$	6,6
05R2-C-4	90 ± 8	7 ± 1	$224 \pm 186,1$	$229,5 \pm 85,8$	$0,034 \pm 0,009$	$0,010 \pm 0,009$	10
05R3-C-4	186 ± 21	8 ± 1	$80,2 \pm 21,1$	$144,5 \pm 49,7$	$0,026 \pm 0,004$	$0,012 \pm 0,010$	9,3

La **figure 7.17** illustre la relation entre le temps de latence t_l , la constante de « germination » k_g et le paramètre cinétique K avec la rugosité des mortiers de l'essai n°4. Nous n'avons pas de relation linéaire dans tous les cas.

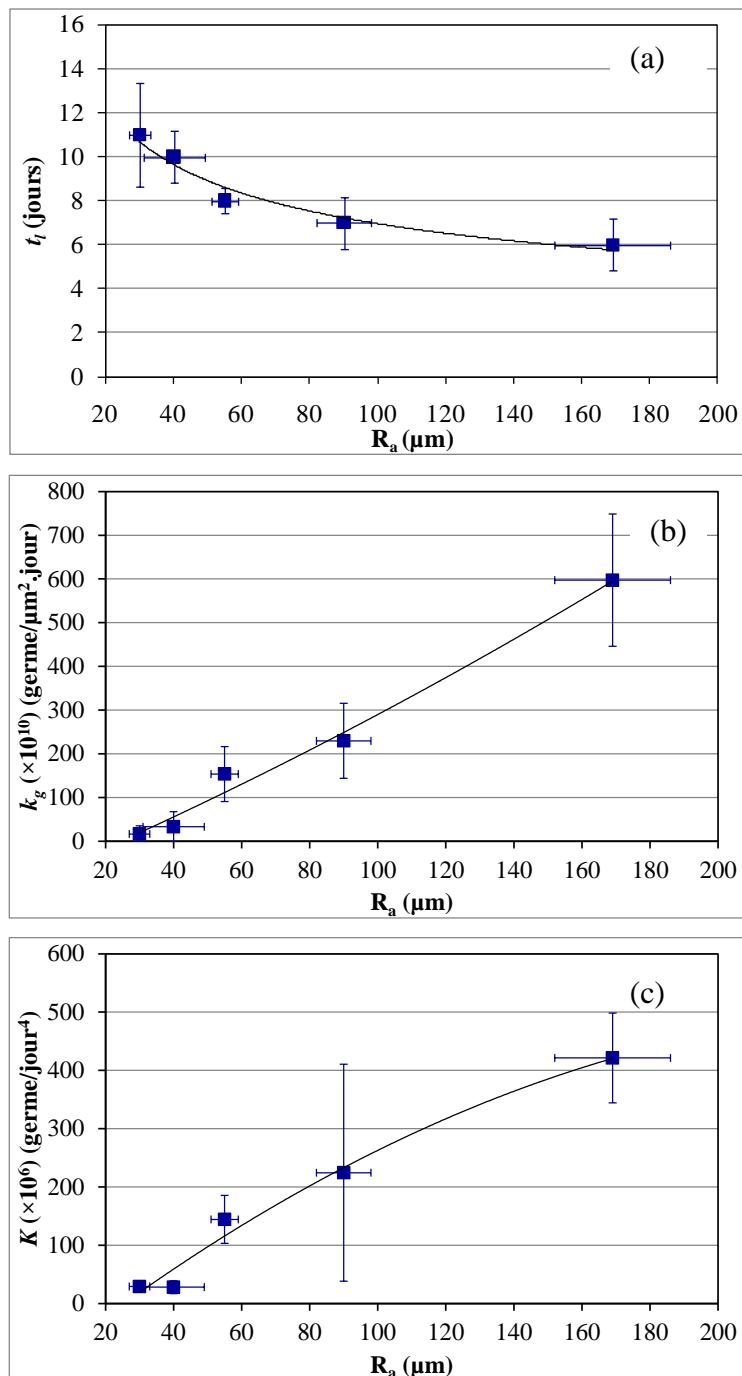


Figure 7.17 Evolution du temps de latence t_l (a), de la constante de germination k_g (b) et du paramètre cinétique K (c) des mortiers carbonatés étudiés dans l'essai n°4 en fonction de la rugosité R_a

La constante de vitesse de croissance des germes est calculée selon la formule (7.43). Comme dans le cas de l'essai n°3, les valeurs $k_{c\text{-calculé}}$ sont plus grandes que celles déterminées expérimentalement (**figure 7.18**). Vu les incertitudes, elles ne sont pas très éloignées. Ce résultat confirme quand même la validité de notre modèle.

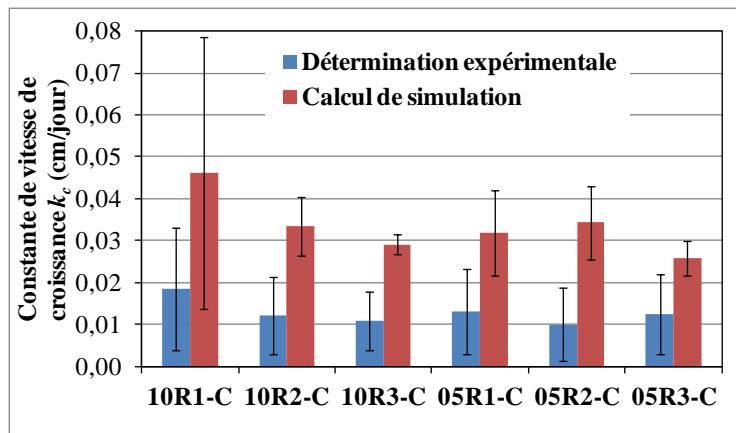


Figure 7.18 Comparaison entre les constantes de vitesse de croissance des germes calculées par simulation et déterminées expérimentalement pour les mortiers carbonatés étudiés dans l'essai n°4

Les courbes simulées décrivant l'évolution du taux de recouvrement des mortiers de l'essai n°4, avec les paramètres cinétiques donnés dans le **tableau 7.3**, sont représentées sur la **figure 7.19**. Nous obtenons une bonne simulation pour tous les mortiers testés.

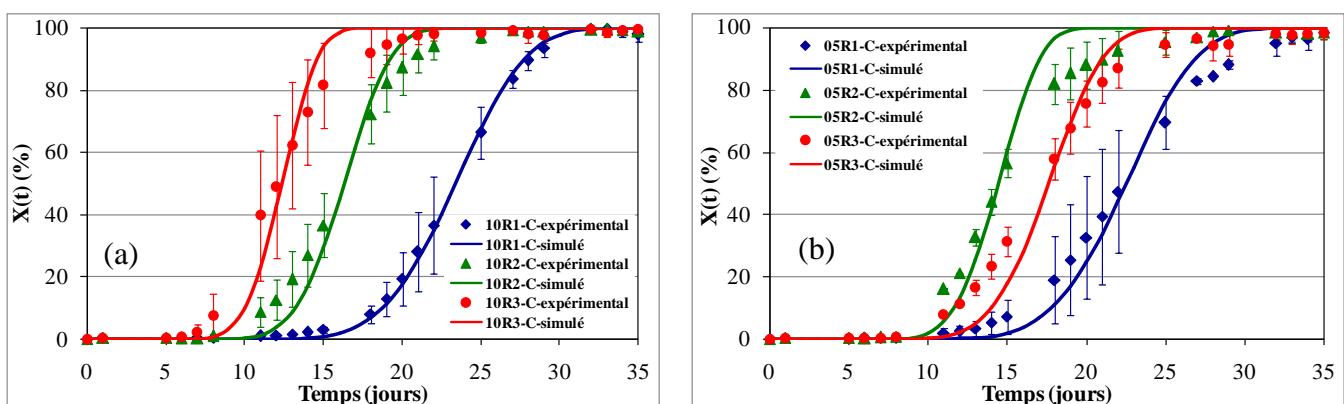


Figure 7.19 Evolution du taux de recouvrement simulé des mortiers carbonatés, de rapports E/C égaux à 1 (a) et 0,5 (b) étudiés dans l'essai n°4

Dans ce paragraphe, nous montrons que la loi d'Avrami est performante pour décrire le processus de colonisation de la surface d'échantillons à base de ciment carbonaté par les algues. Le processus de colonisation a été considéré comme étant composé de deux phases : attachement (« germination ») et croissance des cellules d'algues (« germe »).

Par analyse d'images, nous avons mis en évidence le rôle de la rugosité sur l'accrochage des « germes ». La vitesse de « germination » (ou d'accrochage) augmente avec la rugosité. En revanche, il est difficile de conclure sur la vitesse de croissance. Compte tenu des incertitudes, la vitesse de croissance semble similaire pour tous les échantillons. La vitesse de « germination » influe sur la vitesse de colonisation globale des échantillons par les algues.

7.3.2 Matériaux non carbonatés

7.3.2.1 Détermination expérimentale de la « germination »

Comme pour les mortiers carbonatés, la rugosité des mortiers non carbonatés influence nettement la vitesse d'accrochage des algues. La « germination » est d'autant plus rapide et précoce que la rugosité est importante (**figure 7.20**).

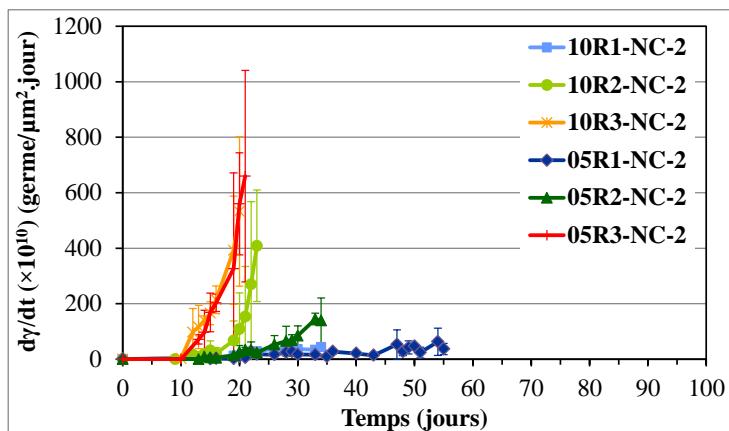


Figure 7.20 Evolution temporelle de la vitesse spécifique de « germination » des mortiers non carbonatés, de rapports E/C égaux à 1 et 1,2, étudiés dans l'essai n°2

La constante spécifique de « germination » est déterminée par régression linéaire comme précédemment (**figure 7.21**).

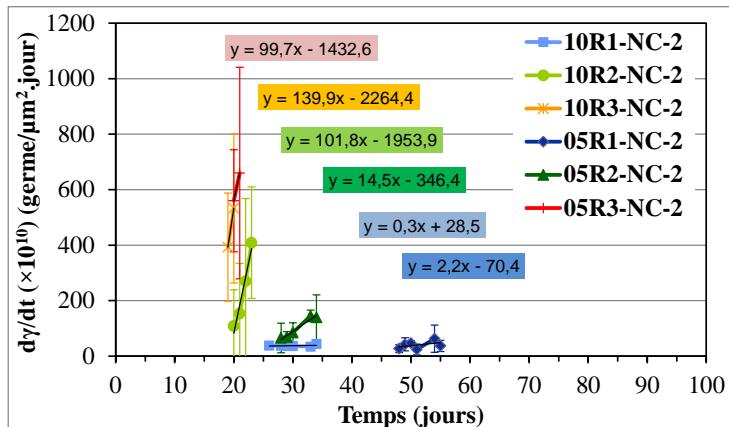


Figure 7.21 Détermination de la constante spécifique de « germination » des mortiers non carbonatés étudiés dans l'essai n°2

Le temps de latence t_l et la valeur k_g des mortiers non carbonatés de l'essai n°2 sont donnés dans le **tableau 7.4**.

Tableau 7.4 Constante spécifique de « germination » des mortiers non carbonatés étudiés dans l'essai n°2

Essai	Mortiers	Rugosité R_a (μm)	Temps latence t_l (jour)	$k_g (\times 10^{10})$ (germe/ $\mu\text{m}^2.\text{jour}^2$)
n°2	10R1-NC-2	29 ± 5	25 ± 2	$0,3 \pm 0,6$
	10R2-NC-2	55 ± 6	20 ± 3	$101,8 \pm 37,2$
	10R3-NC-2	123 ± 9	18 ± 2	$139,9 \pm 73,2$
	05R1-NC-2	29 ± 5	48 ± 4	$2,2 \pm 1,6$
	05R2-NC-2	47 ± 6	27 ± 2	$14,5 \pm 2,7$
	05R3-NC-2	123 ± 9	20 ± 0	$99,7 \pm 18,1$

Nous avons toujours le même effet de la rugosité. En effet, le temps t_l est plus faible et la constante k_g est plus importante pour une surface rugueuse donnée. Une grande différence de k_g est observée entre les mortiers 10R2-NC et 05R2-NC.

7.3.2.2 Caractérisation de la croissance des « germes »

Les valeurs moyennes de la constante de vitesse de croissance des germes existants sur la surface des mortiers sont illustrées sur la **figure 7.22**. L'erreur expérimentale est ici encore très importante et ne permet pas de conclure sur les valeurs obtenues.

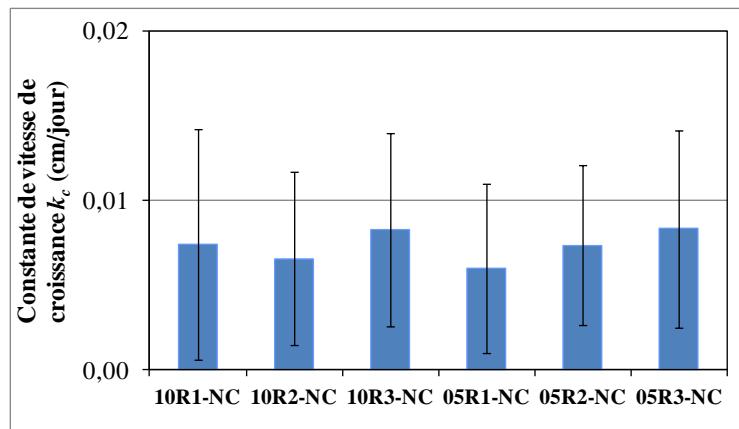


Figure 7.22 Valeur moyenne de la constante de vitesse de croissance des germes (k_c) sur la surface des mortiers non carbonatés, de rapports E/C égaux à 1 et 1,2, étudiés dans l'essai n°2

Cependant, quels que soient les mortiers, la vitesse de croissance des germes est assez similaire.

Par ailleurs, l'évolution temporelle de la vitesse de « germination » des mortiers en fonction de la rugosité présente le même ordre que le taux de colonisation (**figure 7.23**). Comme pour les mortiers carbonatés, il semble que la vitesse de « germination » conditionne la vitesse de colonisation globale des mortiers.

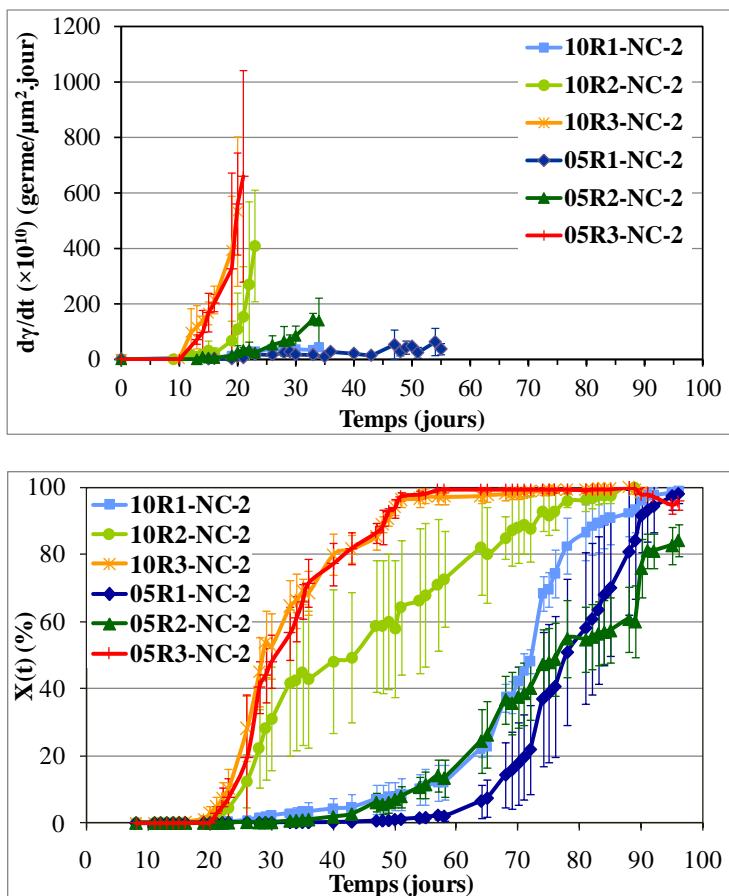


Figure 7.23 Evolution temporelle de la vitesse spécifique de germination et du taux de colonisation des mortiers non carbonatés étudiés dans l'essai n°2

7.3.2.3 Simulation de la colonisation des mortiers non carbonatés étudiés dans l'essai n°2

Le paramètre cinétique K est déterminé de la même manière que pour les mortiers carbonatés. La constante de vitesse de croissance des germes $k_{c\text{-calculé}}$ est calculée à partir de K et de la constante de vitesse de « germination » k_g selon la formule (7.43).

Le **tableau 7.5** récapitule les valeurs de t_l , K , $k_{c\text{-calculé}}$ ainsi que l'erreur de simulation E obtenues pour les mortiers non carbonatés.

Tableau 7.5 Paramètres cinétiques et erreurs de simulation de la colonisation par les algues des mortiers étudiés dans l'essai n°2

Mortiers	Rugosité R_a (μm)	t_l (jour)	$K \times 10^6$ (germe/jour ⁴)	$k_g \times 10^{10}$ (germe/ $\mu\text{m}^2 \cdot \text{jour}^2$)	$k_c\text{-calculé}$ (cm/jour)	$k_c\text{-expérimentale}$ (cm/jour)	E (%)
10R1-NC-2	29 ± 5	25 ± 2	$0,8 \pm 0$	$0,3 \pm 0,6$	$0,056 \pm 0,005$	$0,007 \pm 0,007$	7,7
10R2-NC-2	55 ± 6	20 ± 3	$1,3 \pm 4,9$	$101,8 \pm 37,2$	$0,004 \pm 0,006$	$0,007 \pm 0,005$	123,9
10R3-NC-2	123 ± 9	18 ± 2	$24,3 \pm 6,4$	$139,9 \pm 73,2$	$0,014 \pm 0,006$	$0,008 \pm 0,006$	16,7
05R1-NC-2	29 ± 5	48 ± 4	$0,5 \pm 0,3$	$2,2 \pm 1,6$	$0,017 \pm 0,008$	$0,006 \pm 0,005$	1,6
05R2-NC-2	47 ± 6	27 ± 2	$1,0 \pm 1,5$	$14,5 \pm 2,7$	$0,009 \pm 0,010$	$0,007 \pm 0,005$	138,5
05R3-NC-2	123 ± 9	20 ± 0	$20,1 \pm 5$	$99,7 \pm 18,1$	$0,016 \pm 0,005$	$0,008 \pm 0,006$	12,1

Nous obtenons les mêmes tendances que pour les mortiers carbonatés. Le temps de latence t_l diminue avec la rugosité alors que le paramètre K et k_g augmentent.

La **figure 7.24** compare la constante de vitesse de croissance des germes $k_{c\text{-calculé}}$ et celle déterminée par analyse d'images. Sauf pour les mortiers 10R1-NC, $k_{c\text{-calculé}}$ est comparable avec la valeur k_c obtenue expérimentalement. Un tel écart entre k_c et $k_{c\text{-calculé}}$ pourrait provenir du fait que la valeur de k_g déterminée expérimentalement est très faible.

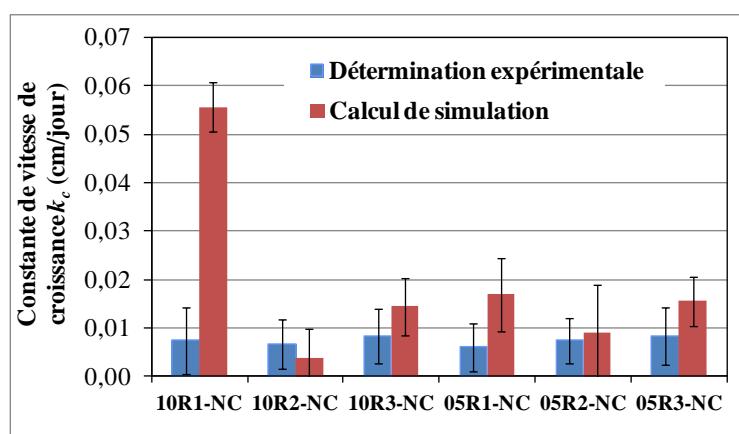


Figure 7.24 Comparaison entre les constantes de vitesse de croissance des germes calculées par simulation et déterminées expérimentalement pour les mortiers non carbonatés de l'essai n°2

La **figure 7.25** illustre la relation entre les paramètres t_l , k_g , K et la rugosité des mortiers non carbonatés.

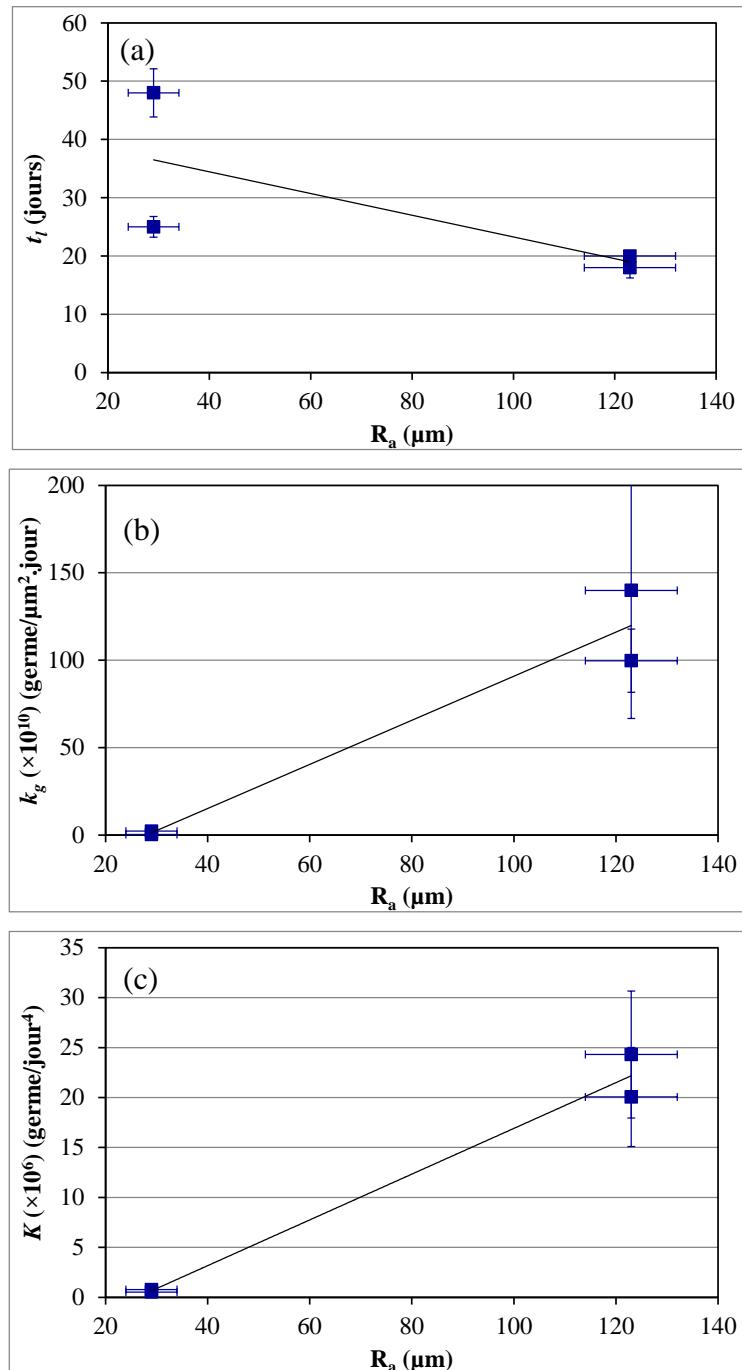


Figure 7.25 Evolution du temps de latence t_l (a), de la constante de germination k_g (b) et du paramètre cinétique K (c) des mortiers non carbonatés étudiés dans l'essai n°2 en fonction de la rugosité R_a

La **figure 7.26** représente les courbes simulées avec les paramètres du **tableau 7.5**. A l’exception des mortiers de rugosité R2 qui ne sont pas colonisés correctement, nous remarquons une bonne corrélation avec les points expérimentaux.

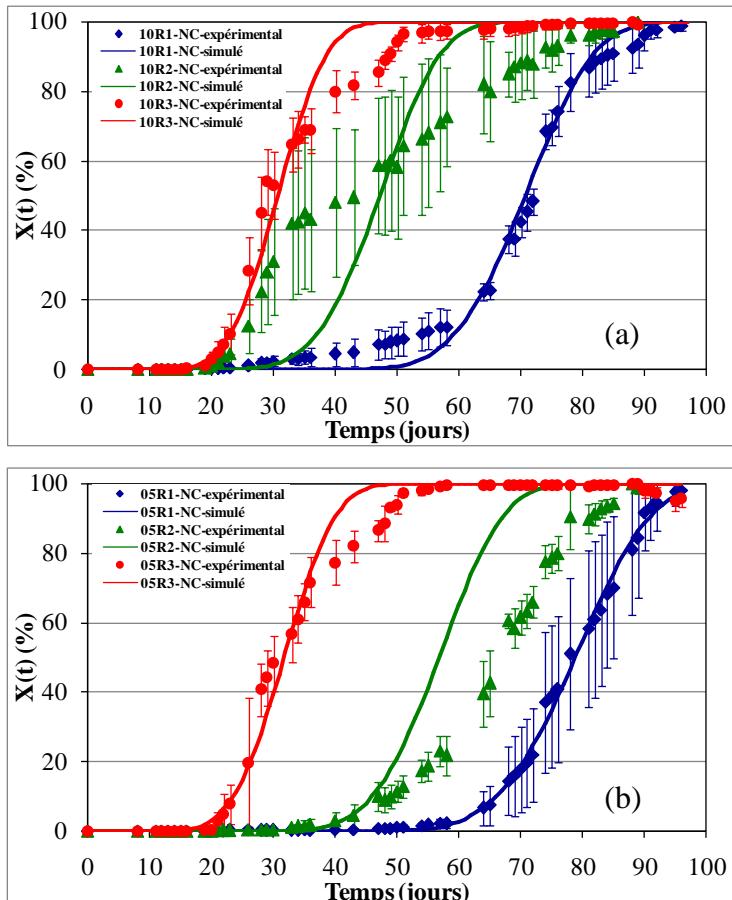


Figure 7.26 Evolution du taux de recouvrement simulé des mortiers non carbonatés, de rapports E/C égaux à 1 (a) et 0,5 (b) étudiés dans l’essai n°2

7.3.2.4 Influence de la carbonatation sur la « germination » et la croissance

Pour évaluer l’influence de la carbonatation, nous comparons la vitesse de « germination » et de croissance des germes obtenus pour les essais n°2 et n°4. La comparaison est faite pour les mortiers de même rapport E/C et de même rugosité. Il s’agit des échantillons 10R1 et des 10R2.

La « germination » démarre beaucoup plus tard pour les matériaux non carbonatés (essai n°2) que pour les carbonatés (essai n°4), ce qui se traduit par un temps de latence de 25 jours pour les matériaux 10R1-NC-2 contre 11 jours pour les matériaux 10R1-C-4 (**figure 7.27**).

Pour la rugosité R2, les germes apparaissent vers 8 jours dans le cas des carbonatés (10R2-C-4) contre une vingtaine jours dans le cas des mortiers non carbonatés (10R2-NC-2).

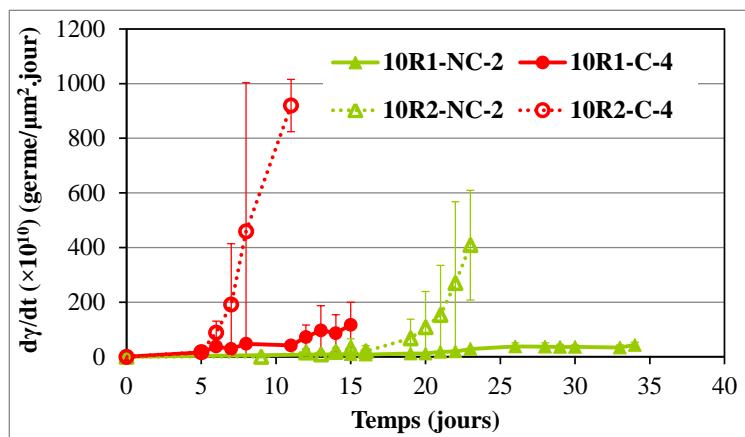


Figure 7.27 Evolution temporelle de la vitesse spécifique de « germination » des mortiers de rapport E/C égal à 1, de rugosités R1 et R2 étudiés dans les essais n°2 et 4

En général, la carbonatation favorise la « germination » : démarrage plus tôt et phénomène plus rapide. En conséquent, les mortiers carbonatés sont colonisés par les algues plus tôt et plus rapidement par rapport aux mortiers non carbonatés.

La **figure 7.28** montre l'influence de la carbonatation sur la vitesse de croissance des germes sur les mortiers 10R1 et 10R2 étudiés dans les deux essais n°2 et 4. Pour les deux rugosités, il est difficile de conclure sur l'influence du *pH* des échantillons sur la vitesse de croissance en raison de fortes barres d'erreur.

Il semble que le *pH* influence davantage l'accrochage que la croissance des « germes ». Ceci pourrait provenir de l'effet important du *pH* sur l'étape d'adhésion des algues à la surface du matériau. Il est possible qu'un *pH* alcalin du milieu de culture et de la surface des échantillons modifie l'excrétion des polysaccharides nécessaire à l'adhésion des algues sur un substrat.

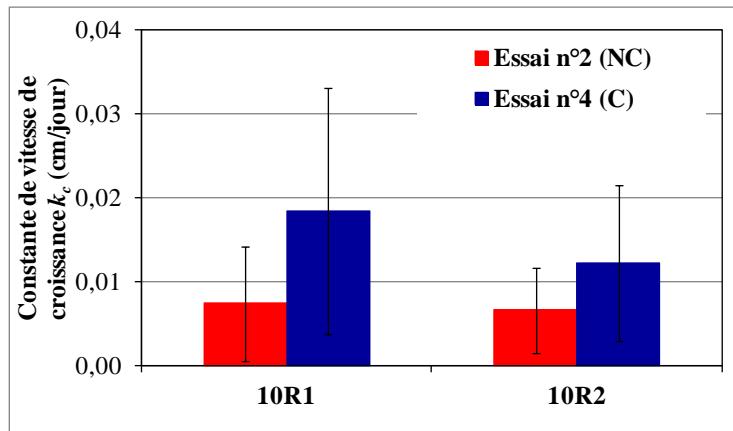


Figure 7.28 Valeur moyenne de la constante de vitesse de croissance des germes (k_c) déterminée expérimentalement sur la surface des mortiers de rapport E/C égal à 1, de rugosités R1 et R2, étudiés dans les essais n°2 et 4

Pour les mortiers non carbonatés, l'équation Avrami est également adaptée pour simuler leur colonisation par les algues. Par analyse d'images, nous avons montré que la germination démarre plus tôt et que la vitesse de germination est plus élevée lorsque la rugosité augmente.

Dans ce chapitre nous avons démontré qu'il est possible de modéliser la colonisation par les algues des échantillons de mortiers en adaptant la loi d'Avrami. Ce processus de colonisation est constitué de deux phases : une phase « d'accrochage » et une phase de croissance des « germes ». L'influence de la rugosité et du *pH* de surface sur la fréquence de « germination » a été mise en évidence. La porosité, en revanche, n'a pas eu d'effet dans nos essais. Le choix d'une germination suivant une loi de puissance avec une puissance de 1 se révèle raisonnable. En raison de fortes incertitudes, nous ne pouvons pas tirer de conclusion précise sur la vitesse de croissance de germes. Nous avons considéré qu'elle était globalement identique quel que soit le paramètre étudié. Parmi les deux phases, la « germination » semble jouer un rôle décisif dans la colonisation des algues.

La différence d'activité des algues entre les essais nous empêchent de généraliser les résultats. De ce fait, l'équation générale décrivant la relation entre les paramètres cinétiques (t_i , k_g , K) et les paramètres intrinsèques du matériau ne peut être établie.

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES 3

- Avrami M.** (1939). *Kinetics of phase change I - General Theory*. Journal of Chemical Physics, 7, 1103-1112.
- Avrami M.** (1940). *Kinetics of phase change II - Transformation-Time Relations for Random Distribution Nuclei*. Journal of Chemical Physics, 8, 212-224.
- Avrami M.** (1941). *Granulation, phase change, and microstructure - Kinetics of phase change III*. Journal of Chemical Physics, 9, 177-185.
- Barberousse H.** (2006). *Etude de la diversité des algues et des cyanobactéries colonisant les revêtements de façade en France et recherche des facteurs favorisant leur implantation*. Thèse de doctorat, Muséum National d'Histoire Naturelle de Paris.
- Barberousse H., Ruot B., Yéprémian C. & Boulon G.** (2007). *An assessment of façade coatings against colonisation by aerial algae and cyanobacteria*. Building and Environment 42, 2555-2561.
- Crispim C.A., Gaylarde P.M. & Gaylarde C.C.** (2003). *Algal and cyanobacterial biofilms on calcareous historic buildings*. Current Microbiology, 46, 79-82.
- Delmon B.** (1969). *Introduction à la cinétique hétérogène*. Ed. Technip, Paris.
- Dooley K.M., Knopf F.C. & Gambrell R.P.** (1999). *pH-neutral concrete for attached microalgae and enhanced carbon dioxide fixation – Phase I*. Technical report. http://www.osti.gov/energycitations/product.biblio.jsp?osti_id=778919.
- Dubosc A.** (2000). *Etude du développement de salissures biologiques sur les parements en béton: Mise au point d'essais accélérés de vieillissement*. Thèse de doctorat, Institut National des Sciences Appliquées de Toulouse.
- Eppley R.W.** (1972). *Temperature and phytoplankton growth in the sea*. Fish. Bull, 70, 1063-1085.

- Escadeillas G., Bertron A., Ringot E., Blanc P.J. & Dubosc A.** (2009). *Accelerated testing of biological stain growth on external concrete walls. Part 2: Quantification of growths.* Materials and Structures 42, 937-945.
- Fattom A. & Shilo M.** (1984). *Hydrophobicity as an adhesion mechanism of benthic cyanobacteria.* Appl. Environ. Microbiol., 47, 135-143.
- Finlay J.A., Callow M.E., Ista L.K., Lopez G.P. & Callow J.A.** (2002). *The Influence of Surface Wettability on the Adhesion Strength of Settled Spores of the Green Alga Enteromorpha and the Diatom Amphora.* Integr. Comp. Biol., 42, 1116-1122.
- Guilbeau B.P., Harry F.P., Gambrell R.P., Knopf F.C. & Dooley K.M** (2003). *Algae attachment on carbonated cements in fresh and brackish waters-preliminary results.* Ecological Engineering, 20, 309-319.
- Guillitte O. & Dreesen R.** (1995). *Laboratory chamber studies and petrographical analysis as bioreceptivity assessment tools of building materials.* Science of the Total Environment 167, 365-374.
- Johnson W.A. & Mehl R.F.** (1939). *Reaction Kinetics in Processes of Nucleation and Growth.* Trans. Amer. Inst. Min. Metall., 135, 416-458.
- Miller A., Dionísio A. & Macedo M.F.** (2006). *Primary bioreceptivity: A comparative study of different Portuguese lithotypes.* International Biodeterioration and Biodegradation 57, 136-142.
- Miller A.Z., Dionísio A., Laiz L., Macedo M.F. & Saiz-Jimenez C.** (2009). *The influence of inherent properties of building limestones on their bioreceptivity to phototrophic microorganisms.* Annals of Microbiology 59, 705-713.
- Ohshima A., Matsui I., Yuasa N. & Henmi Y.** (1999). *A study on growth of fungus and algae on mortar.* Transactions of the Japan Concrete Institute 21, 173-178.
- Prieto B. & Silva B.** (2005). *Estimation of the potential bioreceptivity of granitic rocks from their intrinsic properties.* International Biodeterioration and Biodegradation 56, 206-215.

- Rindi F., Guiry M.D. & López-Bautista J.M.** (2008). *Distribution, morphology, and phylogeny of Klebsormidium (Klebsormidiales, Charophyceae) in urban environments in Europe*. Journal of Phycology 44, 1529-1540.
- Robins R.J., Hall D.O., Shi D.J., Turner R.J. & Rhodes M.J.C** (1986). *Mucilage acts to adhere cyanobacteria and cultured plant cells to biological and inert surfaces*. FEMS Microbiol. Lett., 34, 155-160.
- Ruot B. & Barberousse H.** (2007). *Quantification and kinetic modeling of the colonisation of façade rendering mortars by algae*. VII SBTA, Recife, Brazil, 1-12.
- Sekar R., Venugopalan V.P., Satpathy K.K., Nair K.V.K. & Rao V.N.R.** (2004). *Laboratory studies on adhesion of microalgae to hard substrates*. Hydrobiologia, 512, 109-116.
- Shu C.H. & Lung M.Y.** (2004). *Effect of pH on the production and molecular weight distribution of exopolysaccharide by Antrodia camphorata in batch cultures*. Process Biochemistry, 39, 931-937
- Škaloud P.** (2006). *Variation and taxonomic significance of some morphological features in european strains of Klebsormidium (Klebsormidiophyceae, Streptophyta)*. Nova Hedwigia 83, 533-550.
- Tomaselli L., Lamenti G., Bosco M. & Tiano P.** (2000). *Biodiversity of photosynthetic micro-organisms dwelling on stone monuments*. International Biodeterioration and Biodegradation 46, 251-258.
- Warscheid T., Becker T., Braams J., Bruggerhoff S., Gehrmann C., Krumbein W.E. & Petersen K.** (1993). *Studies on the temporal development of microbial infection of different types of sedimentary rocks and its effect on the alteration of the physico-chemical properties in building materials*. In *Conservation of stone and other materials*, M. Thiel (Ed.), E & FN Spon, London, 303-310.
- Zaidi B.R. & Tosteson T.R.** (1972). *The differential adhesion of Chlorella cells during the life cycle*. Proc. Int. Seaweed Symp., 7, 323-328.

Conclusion générale

CONCLUSION GENERALE

La colonisation biologique des façades des bâtiments constitue un problème esthétique mais aussi un problème économique. Maîtriser les caractéristiques intrinsèques du matériau de façade permettrait aux fabricants de formuler des matériaux plus résistants à cet encrassement.

L'objectif de ce travail était de mieux comprendre l'influence de la porosité, de la rugosité et de la carbonatation du mortier sur le développement des algues. Un modèle a également été élaboré, afin de simuler et de prévoir ce développement biologique.

Pour réaliser ce sujet pluridisciplinaire, un essai accéléré de laboratoire a été utilisé. Une algue verte représentative de la réalité, *Klebsormidium flaccidum*, a été choisie. La mise en culture de cette souche au laboratoire nous a permis de toujours disposer d'une culture d'algue fraîche, afin que celle-ci soit toujours dans le même état de croissance au moment de son introduction dans le banc d'essai.

Afin de s'affranchir de l'influence de la composition chimique, nous avons essayé de garder la même formulation pour tous les mortiers de l'étude. Par variation du rapport *E/C*, trois porosités ont été obtenues. Par le biais de trois méthodes de finition de la surface des échantillons, nous avons obtenu trois rugosités distinctes. Enfin, le troisième paramètre testé était le *pH* de surface des mortiers. Un *pH* de surface naturel et un *pH* de surface moins alcalin obtenu par carbonatation totale accélérée ont été testés.

L'essai d'encrassement accéléré de laboratoire ne nous a pas permis de mettre en évidence l'influence de la porosité sur le développement des algues. Quelle que soit les porosités testées, les mortiers ont été colonisés par les algues à la même vitesse. Ce résultat apparaît contradictoire par rapport à la bibliographie. Ceci peut s'expliquer par le fait que dans les conditions de notre essai, les échantillons étaient toujours dans un état presque saturé en eau. L'eau disponible et nécessaire à la croissance des algues était donc suffisante quelles que soient les porosités testées, inhibant ainsi l'effet de la porosité sur le développement biologique.

La rugosité, en revanche, constitue un paramètre important influençant la colonisation des matériaux de construction par les algues. En fournissant de nombreuses aspérités, une surface rugueuse facilite l'accrochage des cellules d'algues. Il en résulte une réduction du temps de latence et une colonisation plus rapide sur la surface des mortiers rugueux. Par ailleurs, nous avons remarqué que cette relation n'était pas linéaire ; c'est-à-dire, le passage d'une surface lisse à une surface légèrement rugueuse suffisait à augmenter significativement la bioréceptivité du matériau.

D'après nos résultats expérimentaux, le *pH* de surface est le paramètre le plus important influant sur l'encrassement biologique. Par rapport à l'influence purement physique de la rugosité sur l'accrochage des cellules d'algues, le *pH* joue sur l'aspect biochimique. Nous avons montré que le *pH* de surface des échantillons diminuait avec le temps et que celui de la suspension d'algues augmentait. Le *pH* des échantillons non carbonatés étant supérieur à celui des mortiers carbonatés, le *pH* d'équilibre entre la suspension d'algues et la surface des échantillons est donc supérieur dans le cas des mortiers non carbonatés. Il en résulte que le *pH* de surface des échantillons non carbonatés est défavorable à la croissance des micro-organismes et que le milieu de culture contenant les algues devient également moins favorable au développement biologique. Ces deux effets conduisent à une vitesse de colonisation plus faible pour les mortiers non carbonatés que pour les mortiers carbonatés.

Dans le but d'extrapoler les résultats obtenus au laboratoire à ce qui se passe réellement sur le terrain, l'influence des trois paramètres préalablement testés dans le banc d'essai ont été étudiées sur des échantillons de mortiers exposés en extérieur. Après environ 13 mois d'exposition, l'encrassement biologique des échantillons a démarré en automne avec un développement rapide pendant les 4 mois suivants. Toutefois, les paramètres intrinsèques du matériau n'ont pas eu la même influence que dans l'essai accéléré. *In situ*, le *pH* de surface n'a eu aucune influence sur le développement biologique. Sur les échantillons carbonatés ou non carbonatés, la colonisation biologique avait la même vitesse. La raison serait l'intervention mutuelle de multiples facteurs, tels que le vieillissement naturel du matériau, l'apport des propagules, la saison... Egalement, le rôle de la porosité n'a pas été mis en évidence de manière affirmative. Seule, la rugosité a été le paramètre dont le comportement était comparable dans les deux essais : la vitesse de colonisation augmentant avec la rugosité. Cette augmentation ne suit pas une loi linéaire en fonction de la rugosité. Cependant, les rugosités testées étaient plus discriminantes dans l'essai de laboratoire que dans l'essai *in situ*.

Un modèle s'inspirant de la loi d'Avrami a été élaboré, afin de reproduire la cinétique d'évolution du taux de recouvrement par les algues des échantillons étudiés au laboratoire. De bonnes simulations ont été obtenues. Ce modèle rend compte de la colonisation biologique selon deux processus : « accrochage » et « croissance » des cellules d'algues (ou « germes »). Au moyen de l'analyse d'images, nous avons montré que la rugosité et la carbonatation favorisaient l'accrochage en augmentant la valeur de la constante de vitesse de « germination ». Une germination suivant une loi de puissance d'ordre 1 semble être raisonnable.

En raison de fortes incertitudes, il a été difficile de conclure sur la vitesse de croissance des cellules d'algues. Cependant, l'hypothèse d'une vitesse de croissance des « germes » constante apparaît acceptable.

Une généralisation des résultats entre les différents essais ne peut être possible en raison de la différence d'activité des algues. Cela nous empêche également d'établir des relations décrivant la corrélation entre les paramètres cinétiques du modèle et les paramètres intrinsèques du matériau (en particulier la rugosité R et le pH).

Perspectives

Ces résultats permettent de dégager plusieurs perspectives, quant à la suite de ce travail. L'influence du réseau poreux des échantillons sur la croissance des algues pourrait être étudiée au laboratoire en faisant varier la méthodologie. Pour cela, les échantillons devraient être séchés en dehors du banc d'essai en atmosphère contrôlée. L'eau disponible pour les algues pourrait devenir alors un facteur limitant la croissance des algues en fonction de la porosité testée.

Afin d'étudier le rôle de la carbonatation pour l'essai *in situ*, l'exposition des échantillons à plusieurs moments de l'année serait à envisager.

Différents pH de surface des mortiers pourrait être testés, afin d'affiner son influence. La carbonatation partielle à différentes échéances nous permettrait de les obtenir.

L'influence de l'éther de cellulose sur la croissance des algues serait également un point intéressant à élucider.

La modélisation serait à améliorer en complétant l'hypothèse de « germination ». À part une germination de probabilité uniforme, il existe des sites dit « potentiels », qui semblent la favoriser. La modélisation pourrait en tenir compte, en particulier pour les mortiers présentant en surface des trous dus à des bulles d'air. Pour confirmer la relation entre la rugosité et les paramètres cinétiques de colonisation, d'autres rugosités devraient être étudiées.

La grande difficulté rencontrée dans la réalisation des essais de laboratoire était d'avoir la même activité biologique entre deux essais. Pour le résoudre, il faudrait mieux contrôler l'activité des cellules d'algues afin d'introduire dans le banc d'essai un inoculum toujours dans le même état de croissance. Également, afin de contrôler l'activité des algues, il serait intéressant de disposer d'un matériau servant de référence et permettant de suivre l'encrassement biologique de chaque essai.

Annexes

ANNEXE I**Principe du pycnomètre à hélium**

Le principe du pycnomètre repose sur la loi de Mariotte. Un échantillon de volume V_s est placé dans une cellule de mesure de volume V_1 connu.

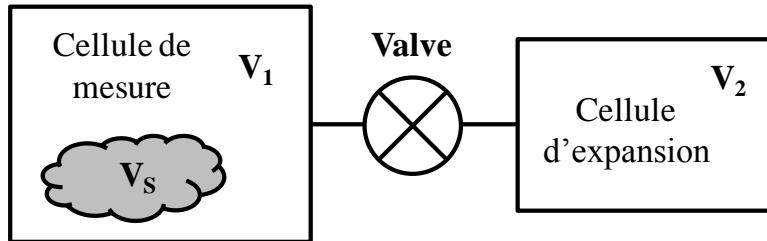


Figure A1.1 Schéma simplifié du pycnomètre

Après avoir purgé l'air de cette cellule, elle est remplie de gaz (ici de d'hélium). Lorsque la pression est stabilisée à la valeur P_1 , on opère alors une détente par ouverture d'une vanne, dans une deuxième cellule de volume V_2 initialement vide. Lorsque l'équilibre est atteint, on mesure la nouvelle valeur P_2 de la pression. En considérant le gaz comme un gaz parfait, le volume V_s du solide que l'on a introduit dans la cellule est donné par la relation :

$$V_s = V_1 - \frac{V_2 P_2}{P_1 - P_2}$$

ANNEXE 2**Principe de l'imagerie confocale chromatique du capteur optique CHR**

Un objectif chromatique L projette l'image d'un point source W selon un continuum d'images monochromatiques localisées sur l'axe optique (« codage chromatique »).

Un échantillon placé dans cette zone de codage chromatique voit sa surface diffuser le pinceau de lumière incidente. La lumière rétrodiffusée traverse l'objectif chromatique L dans le sens inverse et arrive sur un trou de filtrage P. Ce trou filtre toutes les longueurs d'onde sauf celle réfléchie par le point M (λ_M). La lumière collectée est analysée par un spectromètre S. La position de l'échantillon est en relation directe avec la longueur d'onde détectée λ_M .

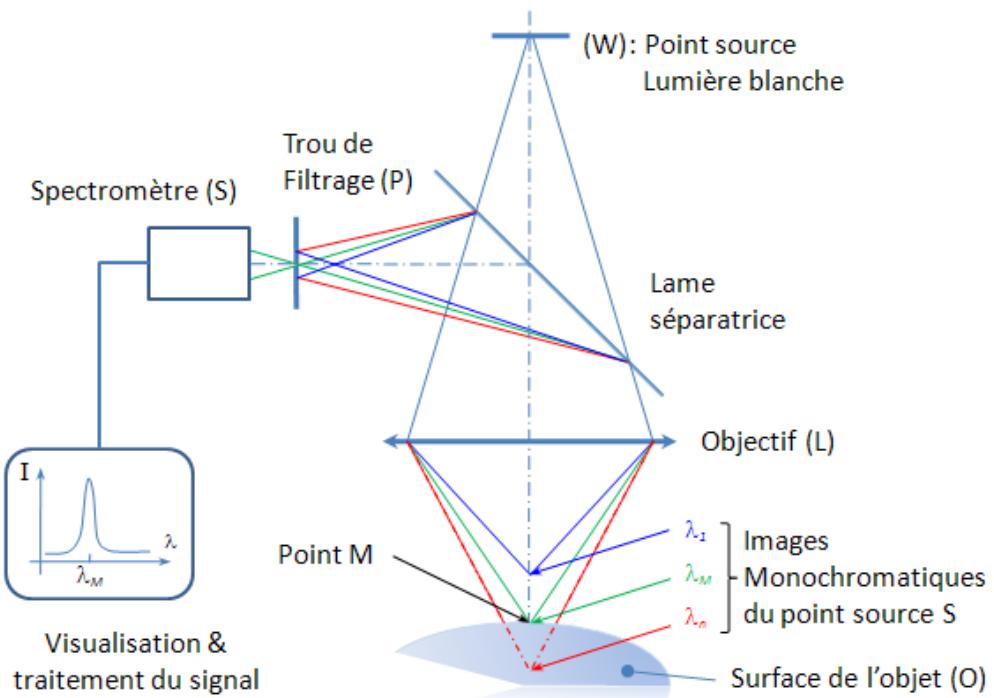


Figure A2.1 Principe de l'imagerie confocale chromatique

ANNEXE 3

Espace couleur CIELAB

L'espace couleur $L^*a^*b^*$ (appelé aussi CIELAB) est actuellement l'un des plus utilisés pour mesurer la couleur des objets dans pratiquement tous les domaines. C'est l'un des espaces couleur uniformes définis par la CIE (Commission Internationale de l'Eclairage) en 1976. Dans cette espace couleur, L^* indique la clarté sur une échelle de 0 % (noir) à 100 % (blanc) et a^* et b^* sont les coordonnées de chromaticité, qui intègrent à la fois la «teinte» et la «saturation».

La teinte est le terme utilisé dans le domaine de la couleur pour classer le rouge, le bleu, le jaune, etc. La saturation correspond au degré de pureté de la teinte. Dès qu'une couleur est mélangée avec un gris de même clarté, elle devient non saturée. Elle est alors dite « terne ». a^* varie sur une échelle de -60 (vert) à +60 (rouge) et b^* sur une échelle de -60 (bleu) et +60 (jaune). Le centre du diagramme est achromatique. Au fur et à mesure que les valeurs a^* et b^* augmentent, et que l'on s'éloigne du centre, la saturation augmente.

La **figure A3.1b** représente une coupe horizontale du solide des couleurs présentées en figure A3.1a. Une coupe verticale du solide des couleurs passant par le centre permet d'obtenir une représentation de la chromaticité par rapport à la clarté (**figure A3.2**).

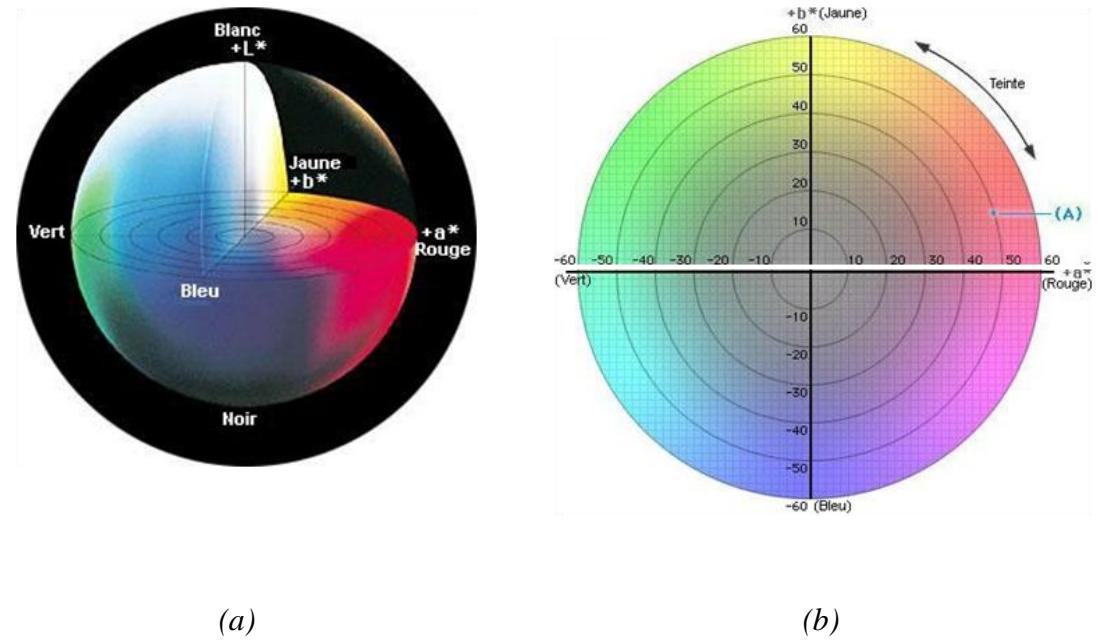


Figure A3.1 (a) Représentation du solide des couleurs pour l'espace couleur $L^*a^*b^*$

(a) Diagramme de chromaticité a^*b^* (**Ana 2008**)

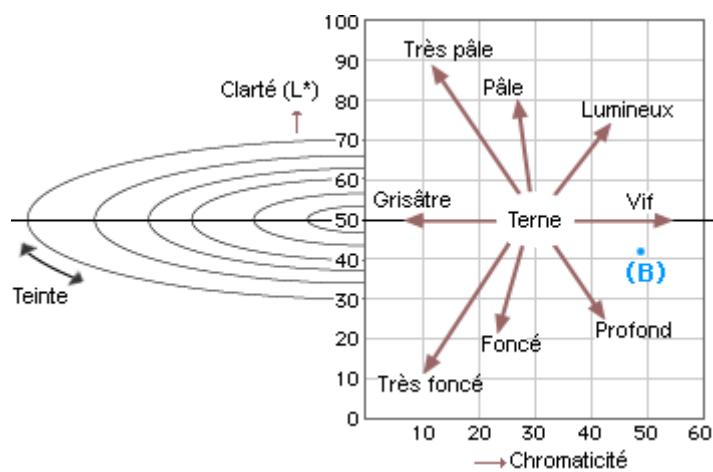


Figure A3.2 Chromaticité et clarté (**Ana 2008**)

ANNEXE 4

Caractérisation des matières premières utilisées dans la formulation des mortiers

Ciment anhydre

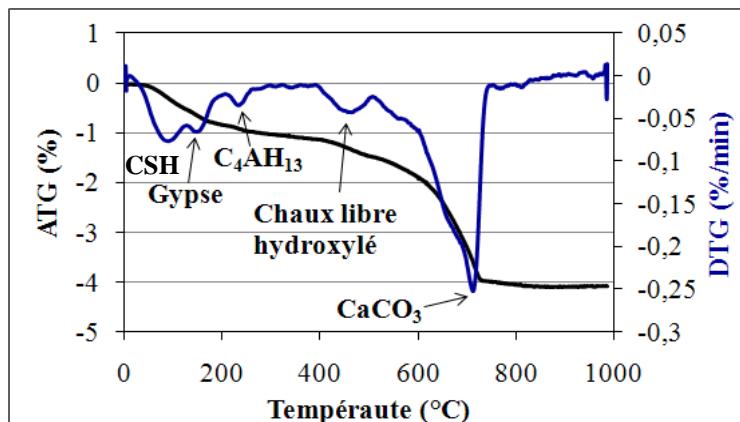


Figure A4.1 Courbe ATG du ciment

Trois pertes de masse caractéristiques du ciment anhydre sont observées vers 147°C, 460°C et entre 600 et 750°C. Celles-ci correspondent respectivement à la déshydratation du gypse, à la déshydroxylation de la chaux et à la décarbonatation du carbonate de calcium. Par ailleurs, deux autres pertes de masse sont également apparues, vers 87°C et 234°C. La première est attribuée à la décomposition de CSH, issu de l'hydratation des phases silicates et la deuxième attribuée à la décomposition de la phase hexagonale C₄AH₁₃ issue de l'hydratation du C₃A. Notre ciment est alors légèrement hydraté.

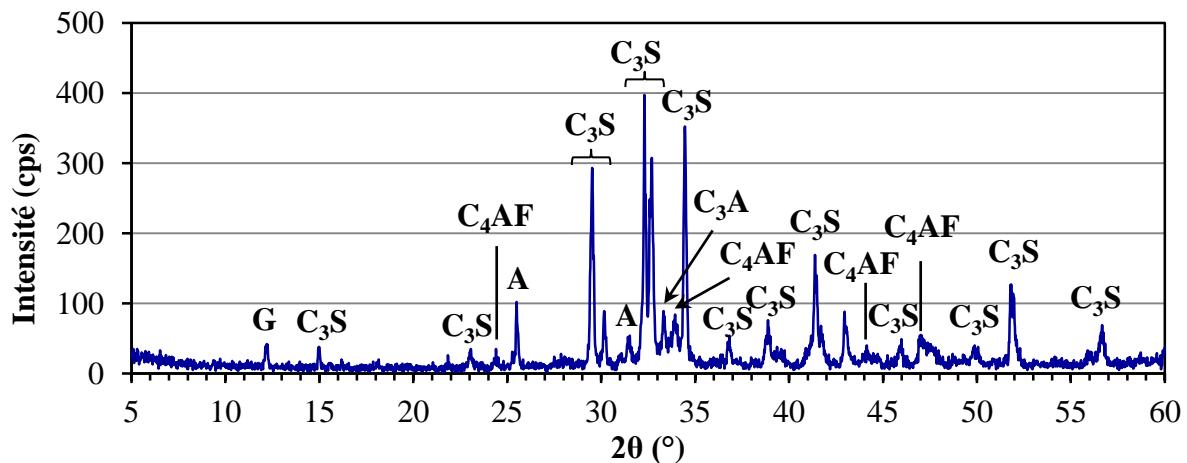


Figure A4.2 Diffractogramme du ciment anhydre (G = Gypse, A = Anhydrite)

Les quatre phases du ciment (alite, bélite, aluminate tricalcique, alumino-ferrite tetracalcique) sont observées par DRX, dont la phase principale est l'alite. Le gypse et l'anhydrite apparaissent également.

Sable

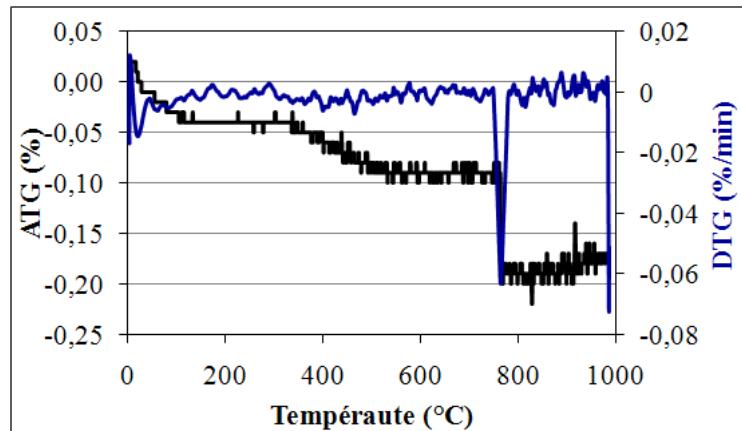


Figure A4.3 Courbe ATG du sable

Pour le sable, un très modeste pic de décomposition est observé vers 762°C. Il y aurait peut-être des traces de carbonate de calcium.

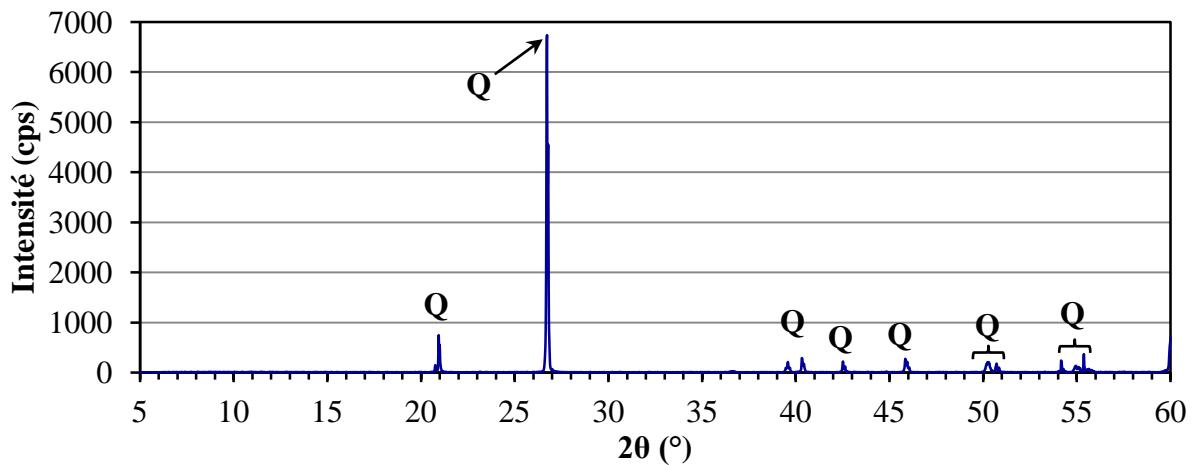


Figure A4.4 Diffractogramme du sable (Q = quartz)

Par la DRX, nous observons la composition du sable qui est essentiellement constitué de silice sous forme de quartz.

Filler Calcaire

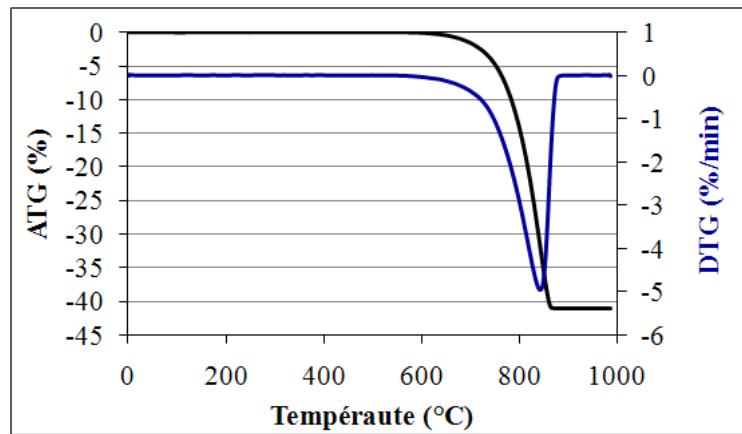


Figure A4.5 Courbe ATG du filler calcaire

La décomposition thermique du filler calcaire se produit entre 670 et 875°C. La perte de masse est d'environ 40 % ; ce qui est conforme avec la décarbonatation du carbonate de calcium.



$$Q_{\%CO_2} = \frac{M_{C_2O}}{M_{CaCO_3}} = 44(\%)$$

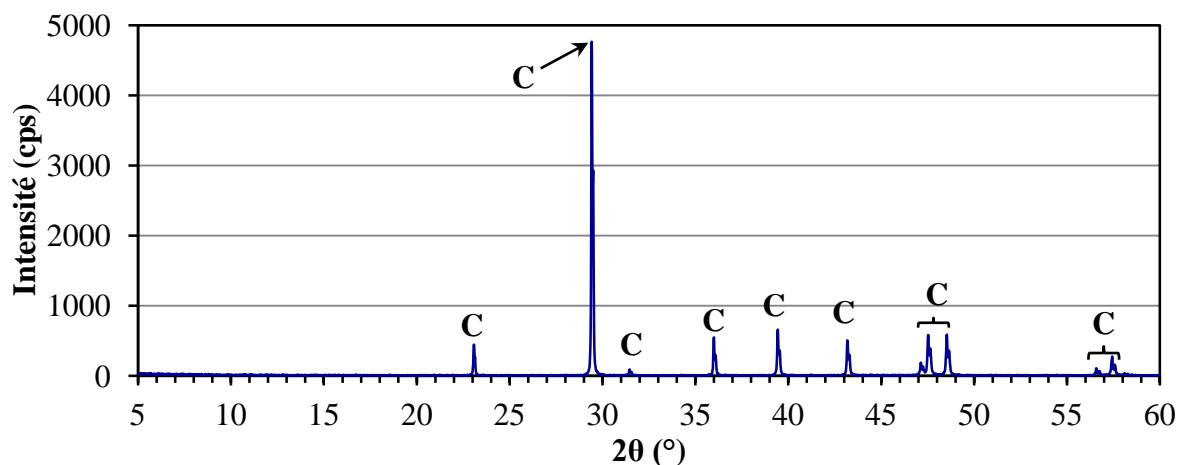


Figure A4.6 Diffractogramme du filler calcaire (C = Calcite)

Par DRX, la phase cristalline du filler de calcaire utilisé, la calcite, est mise en évidence.

Ether de cellulose

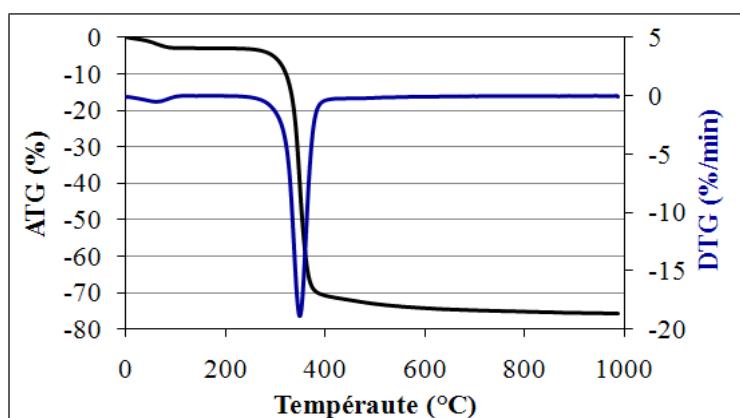


Figure A4.7 Courbe ATG de l'éther de cellulose

L'éther de cellulose se décompose entre 270 et 395°C avec une très grande perte de masse égale à 67 %.

ANNEXE 5

Diffractogramme des mortiers adjuvantés ($E/C = 1$) et non adjuvantés ($E/C = 0,5$), non carbonatés et carbonatés

Mortier E/C = 1

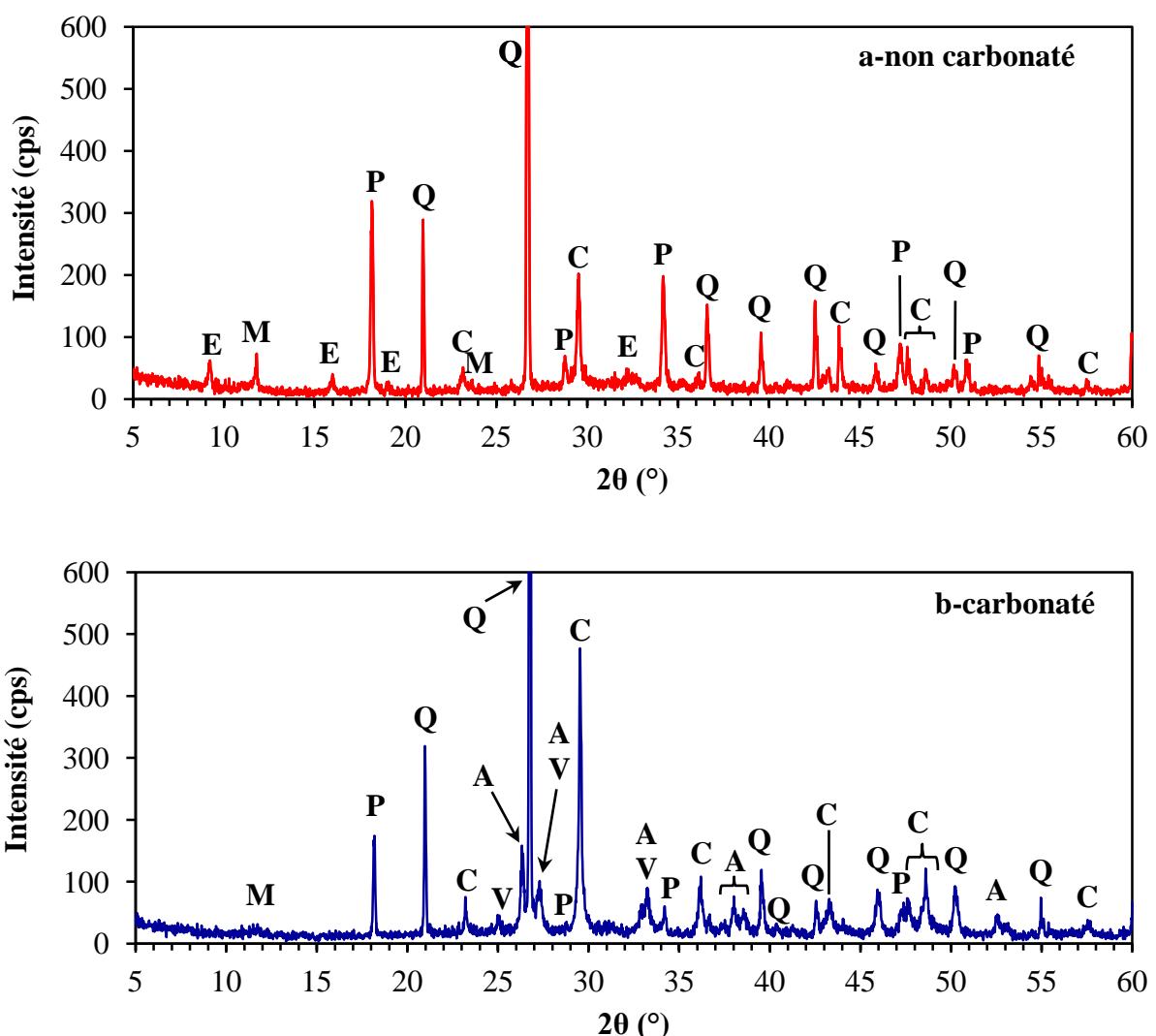


Figure A5.1 Diffractogramme du mortier adjuanté, E/C égal à 1, (a) non carbonaté et (b) carbonaté, (A = Aragonite, C = Calcite, E = Etringite, M = Monocarboaluminate, P = Portlandite, Q = Quartz, V = Vaterite)

Sur le diffractogramme présenté en **figure A5.1a**, il est possible d'identifier les phases cristallines correspondant au monocarboaluminate, à la portlandite, à l'ettringite et à la calcite. Ce résultat confirme ceux obtenus en thermogravimétrie. Le pic prépondérant correspond au quartz, provenant du sable, très bien cristallisé (**figure A4.4**).

Sur le diffractogramme du mortier carbonaté (**figure A5.1b**), l'intensité des pics associés à la portlandite diminue considérablement, alors que les pics de la calcite augmentent. Les pics de l'ettringite diminuent ; ce qui indique sa carbonatation. L'apparition des phases aragonite et vatérite sur le diffractogramme confirme les résultats d'analyse thermique et l'apparition du mode II de la décomposition de CaCO_3 .

Mortier E/C = 0,5

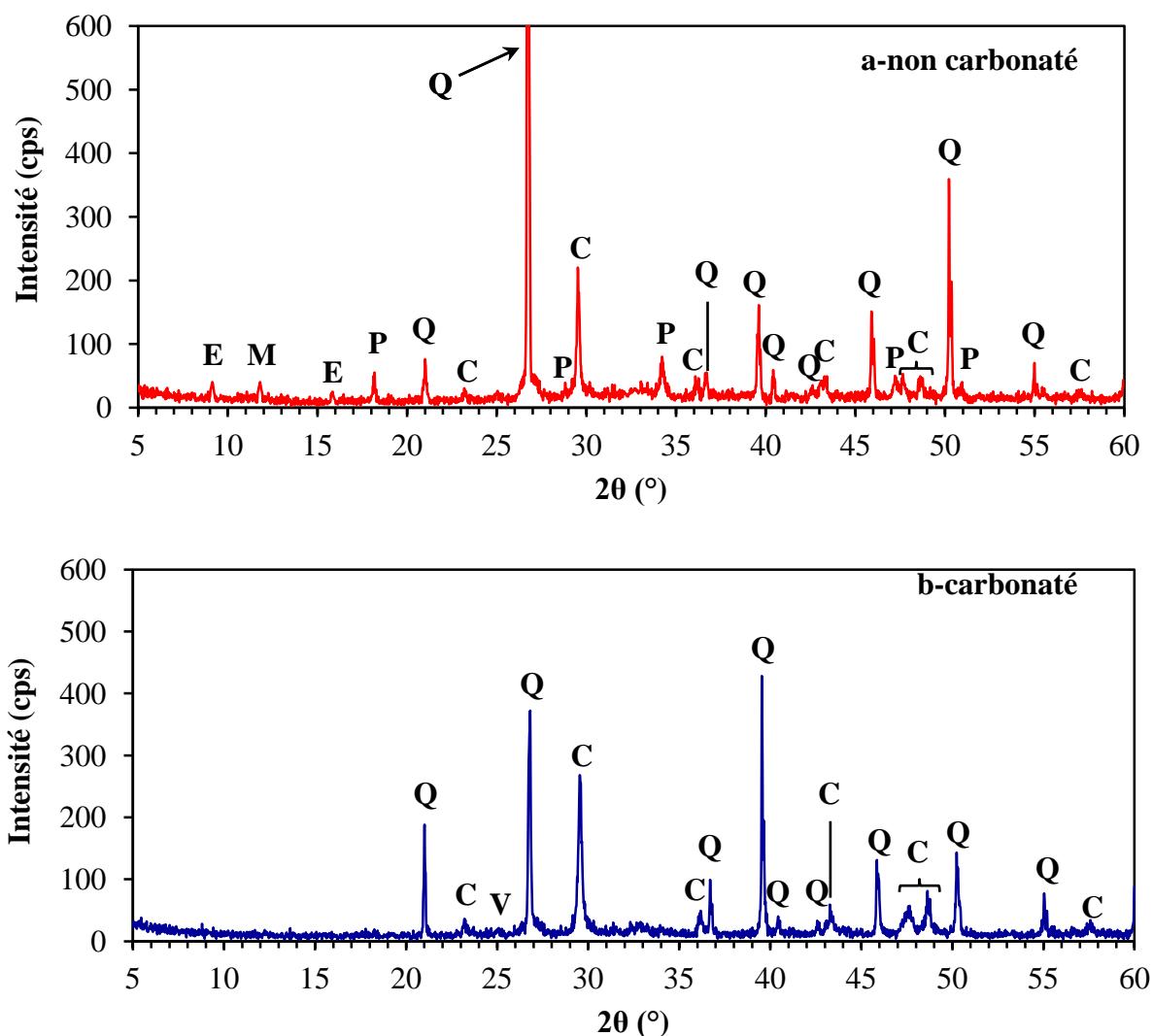


Figure A5.2 Diffractogramme du mortier non adjuvanté, E/C égal à 0,5, (a) non carbonaté et (b) carbonaté, (E = Ettringite, P = Portlandite, Q = Quartz, C = Calcite)

Sur le diffractogramme présenté en **figure A5.2a**, les phases cristallines correspondant à la portlandite, à l’ettringite et à la calcite sont détectées. Ce résultat confirme ceux en thermogravimétrie. La phase du quartz est prépondérante.

Sur le diffractogramme du mortier carbonaté (**figure A5.2b**), les pics des phases aragonite et vatérite ne sont pas détectés. Leur quantité serait faible. L’analyse thermique (*partie 5.2.6*) montre que leur perte de masse dans le mortier non adjuvanté est plus faible que dans le mortier adjuvanté.

ANNEXE 6**Résultats expérimentaux obtenus en essai accéléré de laboratoire****A6.1 Etude de l'influence de la porosité sur l'encrassement biologique****A6.1.1 Estimation de l'intensité d'encrassement par mesure de la perte de réflectance**

L'intensité d'encrassement des mortiers carbonatés de rapports E/C de 0,5 et 1, de rugosité R1 et R2 est donnée sur la **figure A6.1**. Pour la rugosité R1, l'effet du E/C est négligeable. Pour la rugosité R2, les deux courbes sont écartées. Pourtant, tenant compte des écart-types, nous ne pouvons pas conclure sur l'influence de la porosité des mortiers.

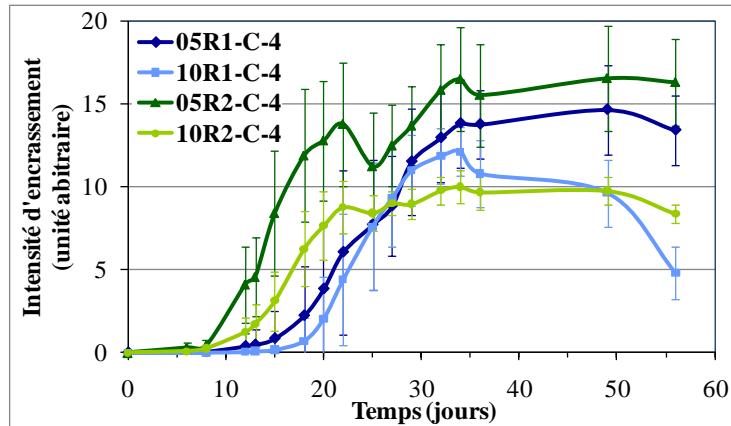


Figure A6.1 Evolution, en fonction du temps, de l'intensité d'encrassement biologique des mortiers carbonatés, de rapports E/C de 0,5 et 1, de rugosités R1 et R2 (essai n°4)

En raison de la différence de rugosité, l'intensité d'encrassement biologique des mortiers carbonatés de rugosité R3 de rapports E/C égaux à 0,5 et 1 sont différentes.

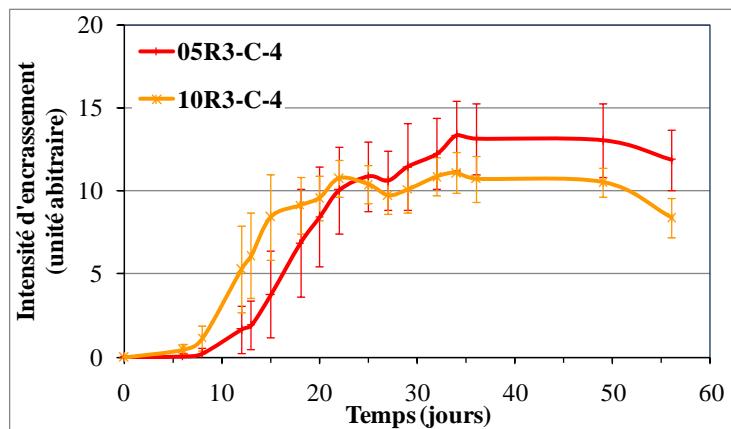


Figure A6.2 Evolution, en fonction du temps, de l'intensité d'encrassement biologique des mortiers carbonatés, de rapports E/C de 0,5 et 1, de rugosité R3 (essai n°4)

A6.1.2 Estimation de l'intensité d'encrassement dans l'espace couleur $L^*a^*b^*$

Les **figures A6.3, A6.4** et **A6.5** présentent l'évolution des coordonnées de l'espace couleur $L^*a^*b^*$ des mortiers carbonatés de rugosité R1 et R2. Nous n'observons pas de nette différence entre les mortiers de rapports E/C égaux à 0,5 et 1. L'influence de la porosité n'est alors pas discernée.

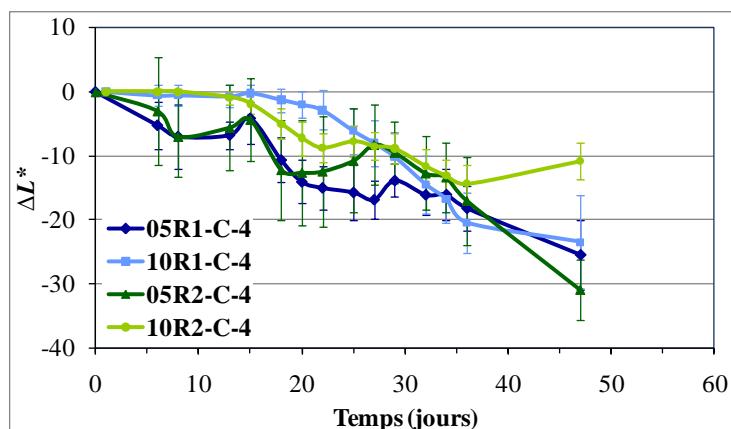


Figure A6.3 Evolution, en fonction du temps, de la clarté ΔL^* de la surface des mortiers carbonatés, de rapports E/C de 0,5 et 1, de rugosités R1 et R2 (essai n°4)

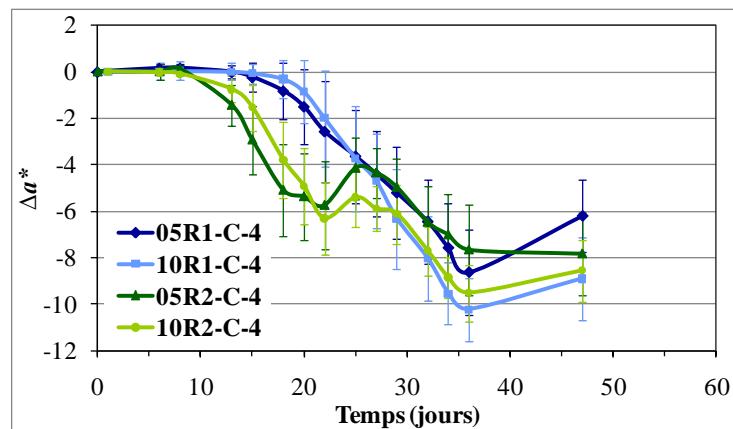


Figure A6.4 Evolution, en fonction du temps, de la chromaticité Δa^* de la surface des mortiers carbonatés, de rapports E/C de 0,5 et 1, de rugosités R1 et R2 (essai n°4)

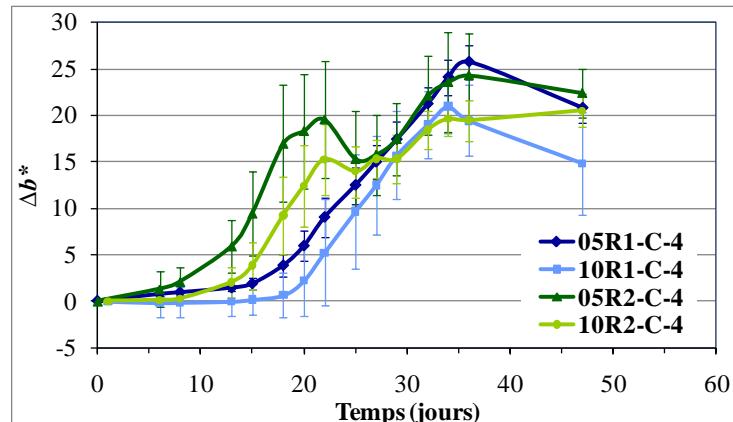


Figure A6.5 Evolution, en fonction du temps, de la chromaticité Δb^* de la surface des mortiers carbonatés, de rapports E/C de 0,5 et 1, de rugosités R1 et R2 (essai n°4)

L'évolution de clarté ΔL^* , de chromaticités Δa^* , Δb^* des mortiers carbonatés de rugosité R3 est donnée sur les **figures A6.6, A6.7 et A6.8**. Une différence de cinétique de colonisation de ces mortiers est observée.

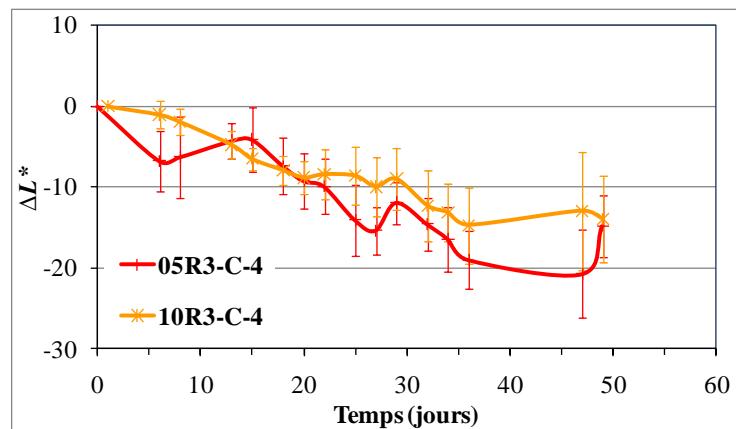


Figure A6.6 Evolution, en fonction du temps, de la clarté ΔL^* de la surface des mortiers carbonatés, de rapports E/C de 0,5 et 1, de rugosité R3 (essai n°4)

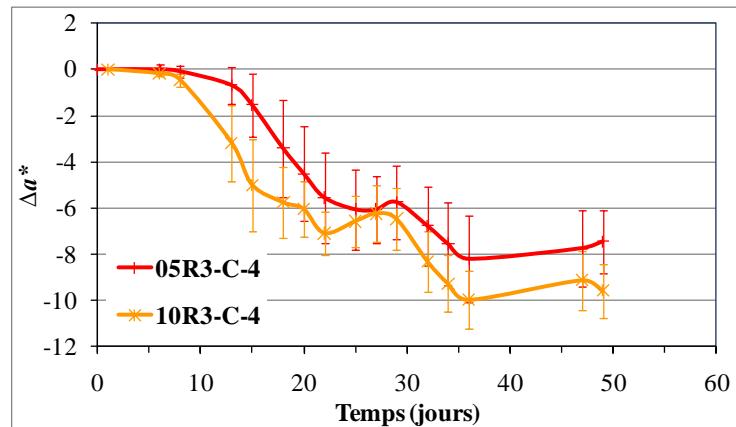


Figure A6.7 Evolution, en fonction du temps, de la chromaticité Δa^* de la surface des mortiers carbonatés, de rapports E/C de 0,5 et 1, de rugosité R3 (essai n°4)

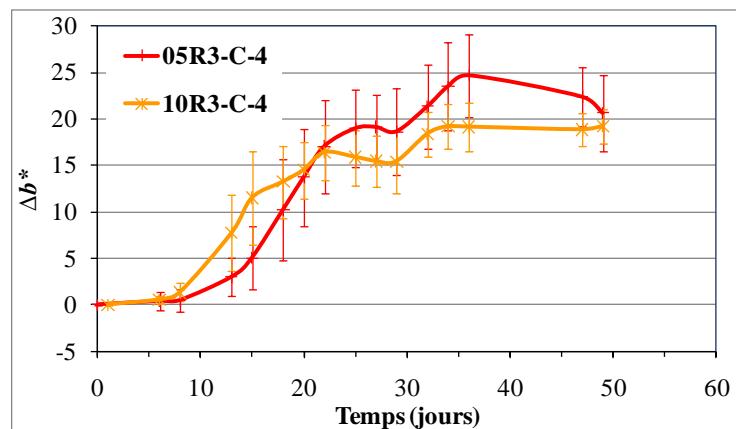


Figure A6.8 Evolution, en fonction du temps, de la chromaticité Δb^* de la surface colonisée des mortiers carbonatés, de rapports E/C de 0,5 et 1, de rugosité R3 (essai n°4)

A6.2 Etude de l'influence de la carbonatation sur l'encrassement biologique

Estimation de la surface colonisée des mortiers par analyse d'images

L'influence de la carbonatation est mise en évidence au travers les courbes du taux de recouvrement des mortiers de rapports E/C égaux à 1 et 1,2 de rugosités R1, R2 et R3 (de **figure A6.9 à A6.14**) et des mortiers de rapport E/C égal à 0,5 de rugosités R1 et R3 (**figures A6.15 et A6.16**).

Les mêmes effets sont observés : les mortiers carbonatés sont colonisés plus tôt et plus rapidement que les mortiers non carbonatés. Ces effets sont dus à l'action du pH de la suspension dans le banc d'essai et du pH de surface des échantillons.

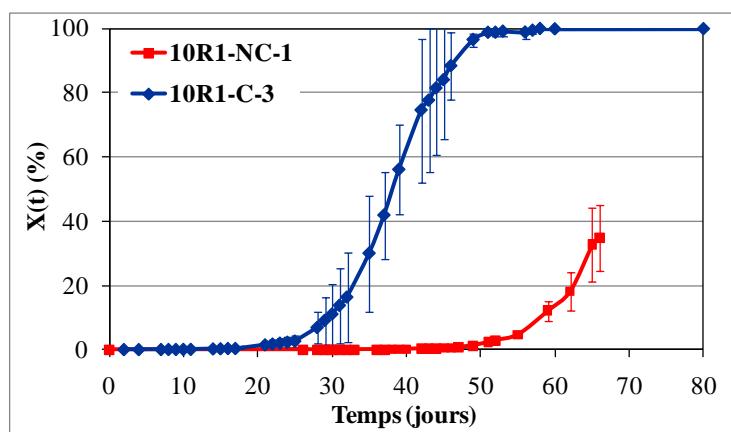


Figure A6.9 Evolution de la surface colonisée par les algues des mortiers de rapport E/C égal à 1, de rugosité R1, non carbonatés (essai n°1) et carbonatés (essai n°3)

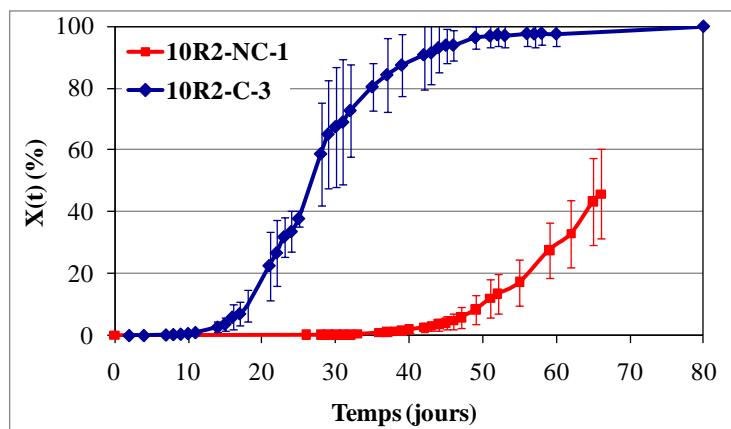


Figure A6.10 Evolution de la surface colonisée par les algues des mortiers de rapport E/C égal à 1, de rugosité R2, non carbonatés (essai n°1) et carbonatés (essai n°3)

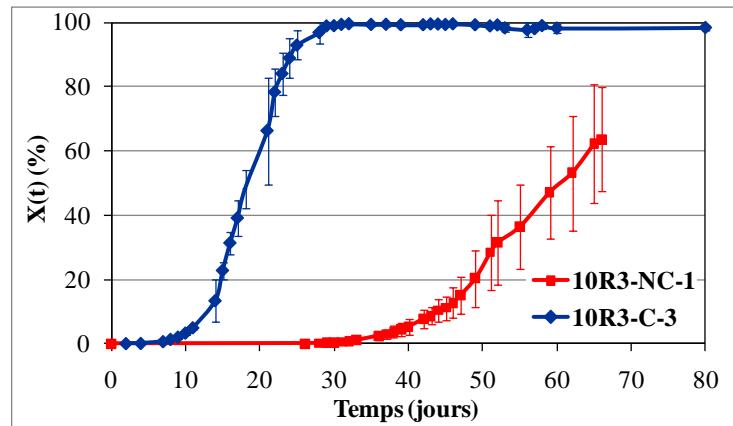


Figure A6.11 Evolution de la surface colonisée par les algues des mortiers de rapport E/C égal à 1, de rugosité R3, non carbonatés (essai n°1) et carbonatés (essai n°3)

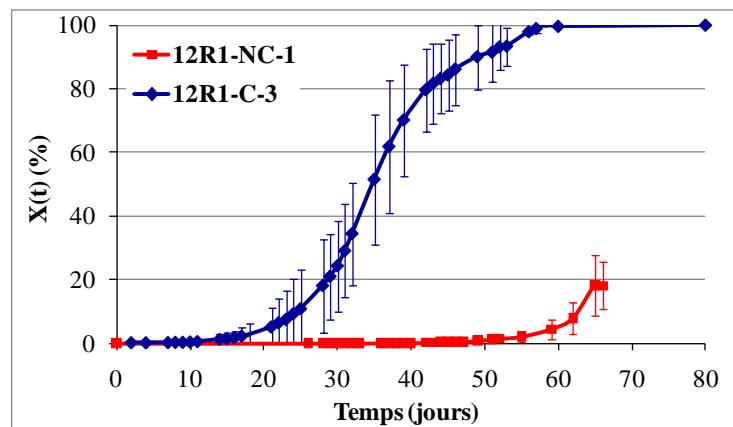


Figure A6.12 Evolution de la surface colonisée par les algues des mortiers de rapport E/C égal à 1,2, de rugosité R1, non carbonatés (essai n°1) et carbonatés (essai n°3)

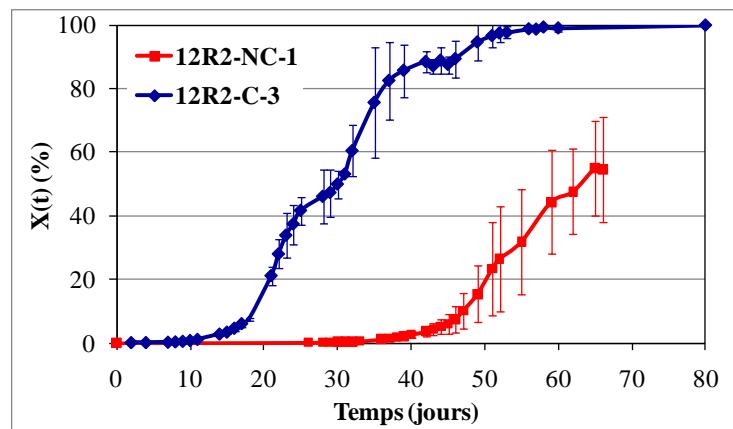


Figure A6.13 Evolution de la surface colonisée par les algues des mortiers de rapport E/C égal à 1,2, de rugosité R2, non carbonatés (essai n°1) et carbonatés (essai n°3)

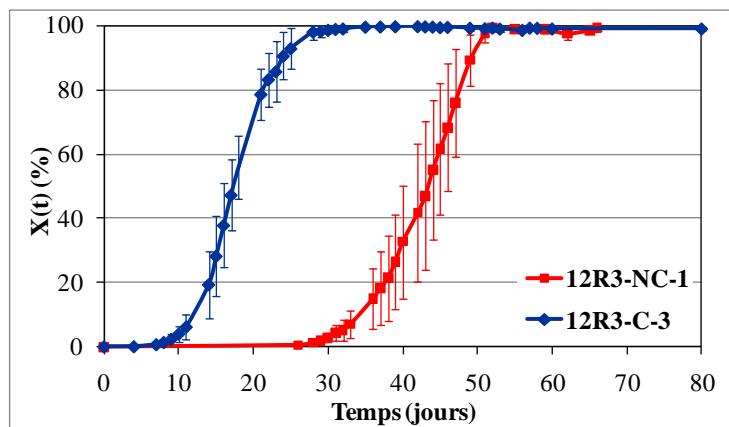


Figure A6.14 Evolution de la surface colonisée par les algues des mortiers de rapport E/C égal à 1,2, de rugosité R3, non carbonatés (essai n°1) et carbonatés (essai n°3)

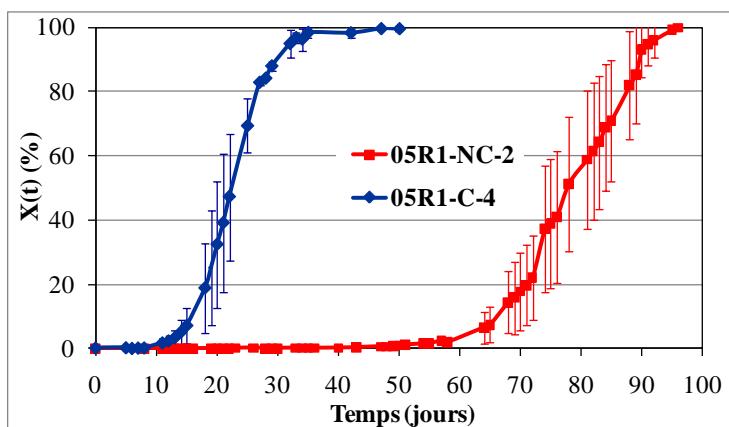


Figure A6.15 Evolution de la surface colonisée par les algues des mortiers de rapport E/C égal à 0,5, de rugosité R1, non carbonatés (essai n°2) et carbonatés (essai n°4)

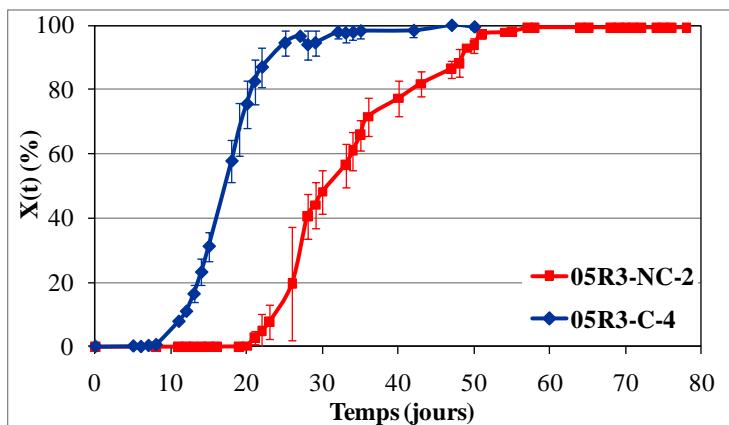


Figure A6.16 Evolution de la surface colonisée par les algues des mortiers de rapport E/C égal à 0,5, de rugosité R3, non carbonatés (essai n°2) et carbonatés (essai n°4)

ANNEXE 7**Résultats expérimentaux obtenus pour les essais *in situ*****A7.1 Etude de l'influence de la porosité sur l'encrassement biologique*****Estimation de l'intensité d'encrassement dans l'espace couleur L*a*b****

L'évolution de couleur des mortiers carbonatés 10R2 et 12R2 est donnée sur les **figures A7.1, A7.2 et A7.3**). Nous constatons qu'entre juillet et septembre 2010, le mortier de E/C égal à 1,2 devient sombre, verte et jaune plus rapidement que les mortiers de E/C égal à 1. C'est le moment où l'encrassement biologique apparaît sur la surface des échantillons. Le mortier possédant une porosité plus grande semble favoriser la colonisation des microorganismes.

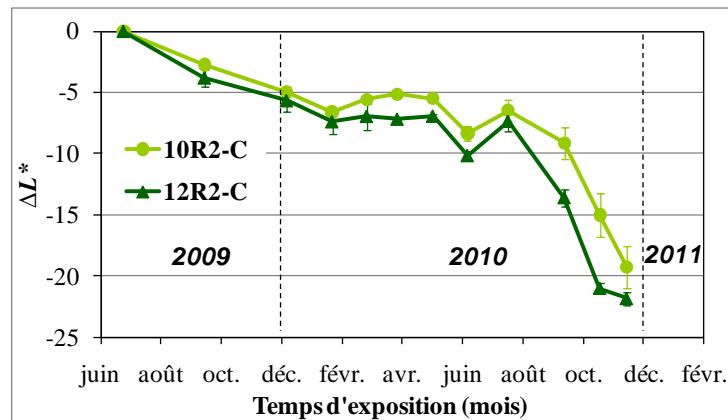


Figure A7.1 Evolution de la clarté ΔL^* pour les mortiers carbonatés, de rugosité R2 (essai *in situ*)

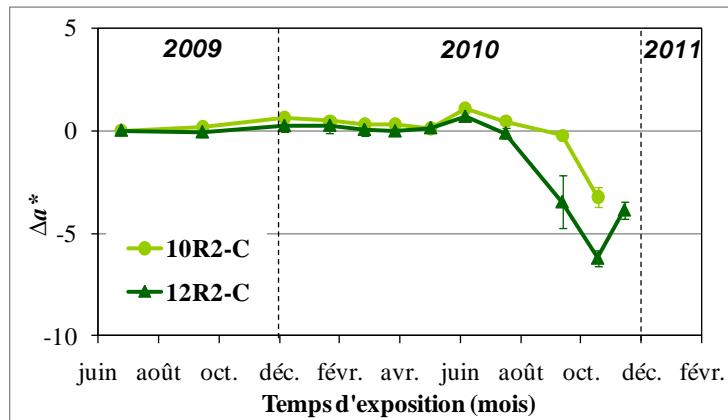


Figure A7.2 Evolution de la chromaticité Δa^* pour les mortiers carbonatés, de rugosité R2 (essai in situ)

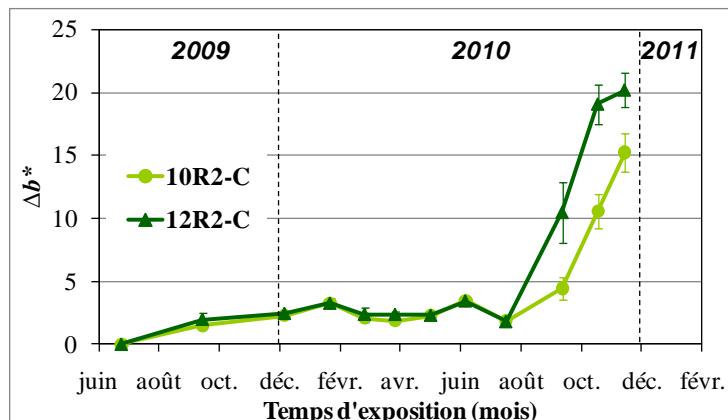


Figure A7.3 Evolution de la chromaticité Δb^* pour les mortiers carbonatés, de rugosité R2 (essai in situ)

A7.2 Etude de l'influence de la rugosité sur l'encrassement biologique

Estimation de l'intensité d'encrassement dans l'espace couleur $L^*a^*b^*$

Les **figures A7.4, A7.5 et A7.6** présentent l'évolution de couleurs dans l'espace $L^*a^*b^*$ de la surface des mortiers 10R1-C, 10R2-C et 10R3-C.

A partir du mois de juillet, la couleur des échantillons changent rapidement due à la colonisation par les microorganismes. Elle devient de plus en plus sombre, verte et jaune. Les deux mortiers de rugosité nettement différente (R2 et R3) ne présentent pas de différence sur L^* , a^* et b^* .

Nous concluons que les mortiers rugueux sont colonisés plus vite que les mortiers lisses. Pourtant, au-dessus d'une valeur, la différence de rugosité n'influence plus la vitesse de colonisation biologique dans notre essai *in situ*.

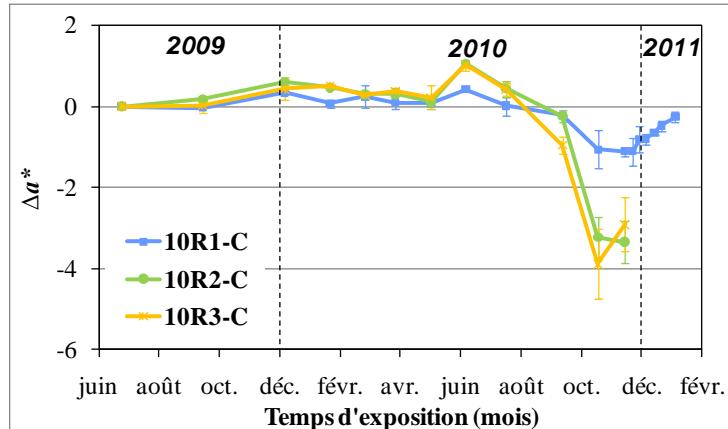


Figure A7.4 Effet de la rugosité sur la clarté ΔL^* pour les mortiers carbonatés, de rapport E/C égal à 1 (essai *in situ*)

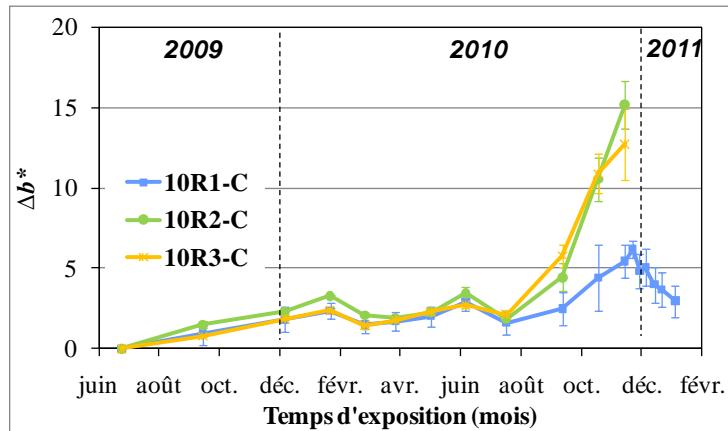


Figure A7.5 Effet de la rugosité sur la chromatricité Δa^* pour les mortiers carbonatés, de rapport E/C égal à 1 (essai *in situ*)

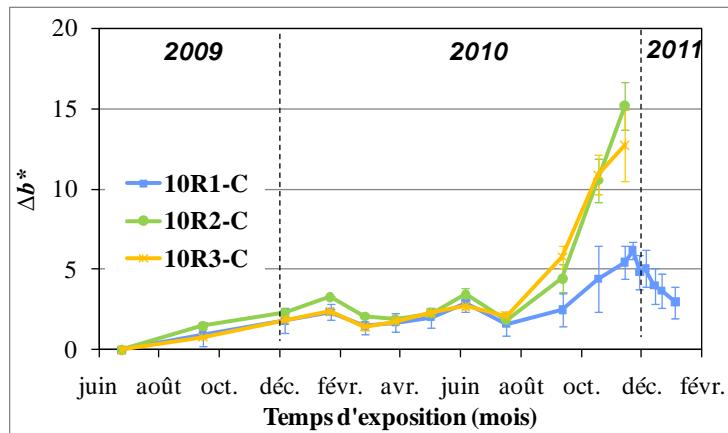


Figure A7.6 Effet de la rugosité sur la chromaticité Δb^* pour les mortiers carbonatés, de rapport E/C égal à 1 (essai *in situ*)

Les **figures A7.7, A7.8 et A7.9** présentent l'évolution de couleur dans l'espace $L^*a^*b^*$ de la surface des mortiers 12R2-C, 12R3-C. Les résultats sont en accord pour les trois coordonnées. En effet, aucune différence est observée entre les mortiers de rugosité R2 et R3. Ces deux gammes de rugosité, même si différentes, ne sont pas discriminantes dans l'essai *in situ*.

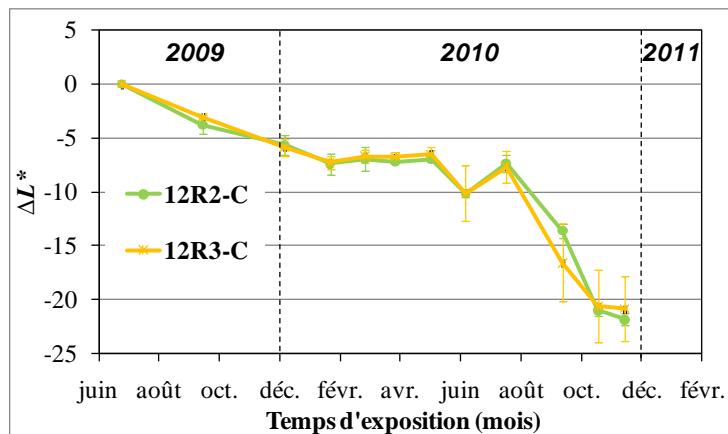


Figure A7.7 Effet de la rugosité sur la clarté ΔL^* pour les mortiers carbonatés, de rapport E/C égal à 1,2 (essai *in situ*)

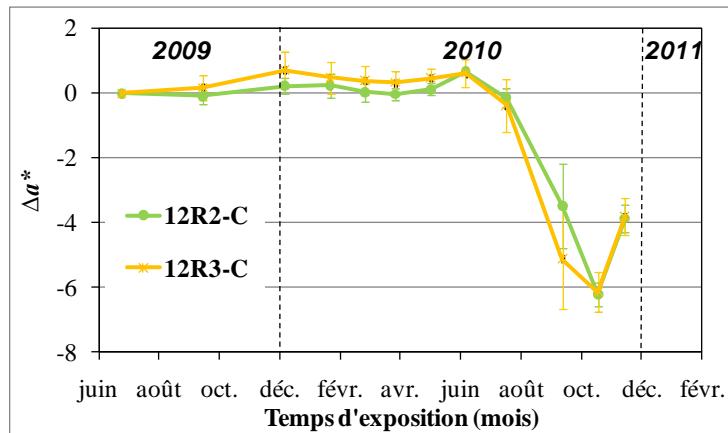


Figure A7.8 Effet de la rugosité sur la chromatricité Δa^* pour les mortiers carbonatés, de rapport E/C égal à 1,2 (essai *in situ*)

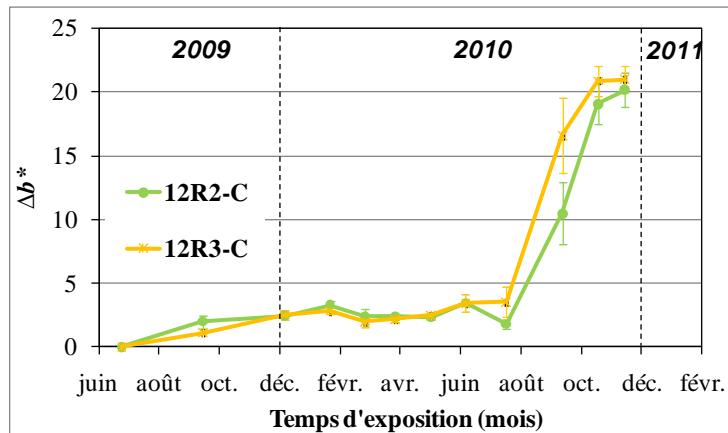


Figure A7.9 Effet de la rugosité sur la chromatricité Δb^* pour les mortiers carbonatés, de rapport E/C égal à 1,2 (essai *in situ*)

A7.3 Etude de l'influence de la carbonatation sur l'encrassement biologique

Estimation de la surface colonisée des mortiers par analyse d'images

Les **figures A7.10 et A7.11** montrent que, quelle que soit la rugosité (R1 ou R2) des mortiers de rapport E/C égal à 1, la carbonatation au cours de l'essai *in situ* n'a pas entraîné d'accélération de la colonisation. Les courbes d'évolution du taux de recouvrement des mortiers carbonatés coïncident avec celles des mortiers non carbonatés. La colonisation démarre après la même échéance et leur vitesse de colonisation est similaire.

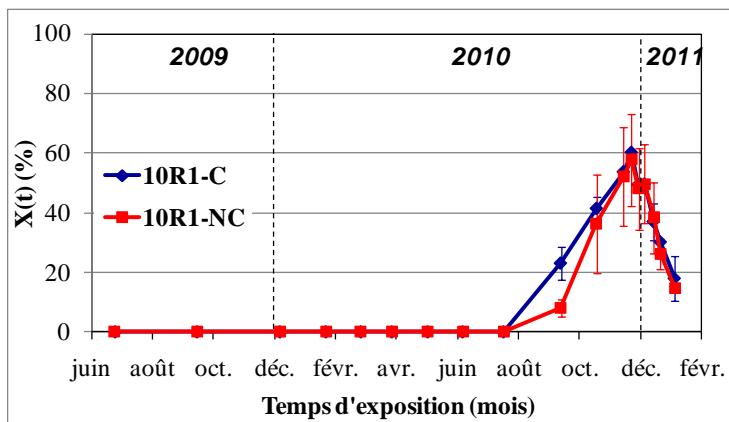


Figure A7.10 Effet de la carbonatation sur le taux d'encrassement pour les mortiers de rapport E/C égal à 1, de rugosité R1 (essai *in situ*)

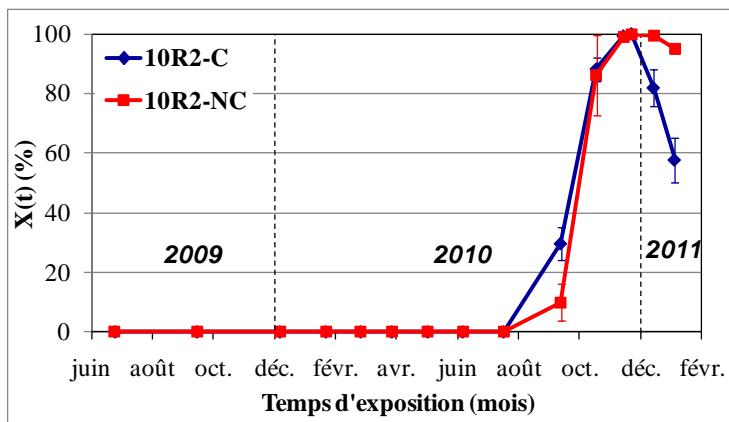


Figure A7.11 Effet de la carbonatation sur le taux d'encrassement pour les mortiers de rapport E/C égal à 1, de rugosité R2 (essai *in situ*)

Estimation de l'intensité d'encrassement dans l'espace couleur $L^*a^*b^*$

L'évolution de la couleur, dans l'espace couleur $L^*a^*b^*$, des mortiers de rapport E/C égal à 1, de rugosité R1 et R2 sont données dans les **figures de 7.12 à 7.17**. Les courbes sont comparables sur les trois coordonnées pour les mortiers carbonatés ou non carbonatés. L'influence d'une carbonatation préalable des échantillons n'est alors pas observée.

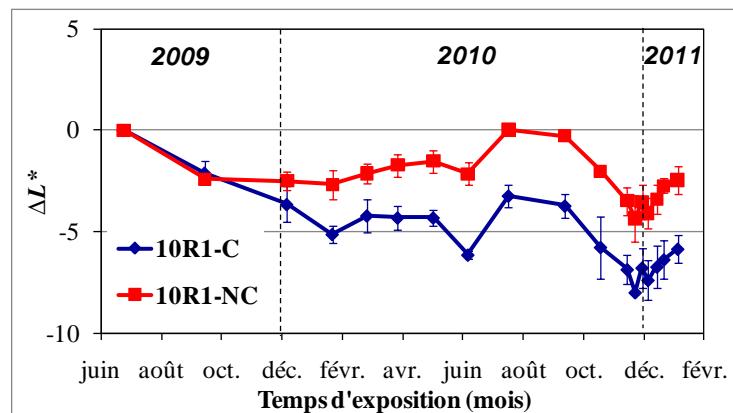


Figure A7.12 Effet de la carbonatation sur la clarté ΔL^* pour les mortiers de rapport E/C égal à 1, de rugosité RI (essai in situ)

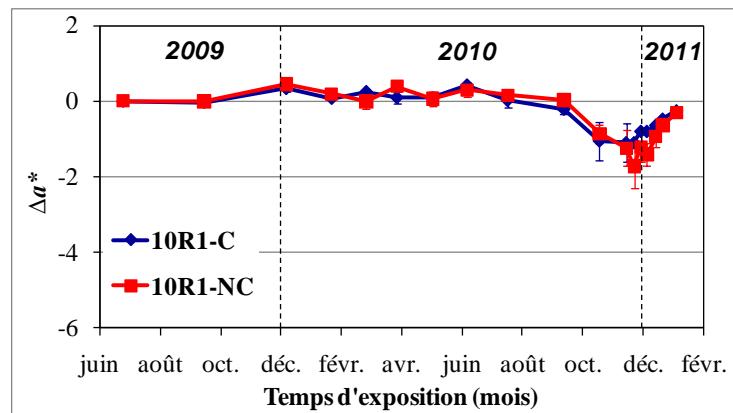


Figure A7.13 Effet de la carbonatation sur la chromaticité Δa^* pour les mortiers de rapport E/C égal à 1, de rugosité RI (essai in situ)

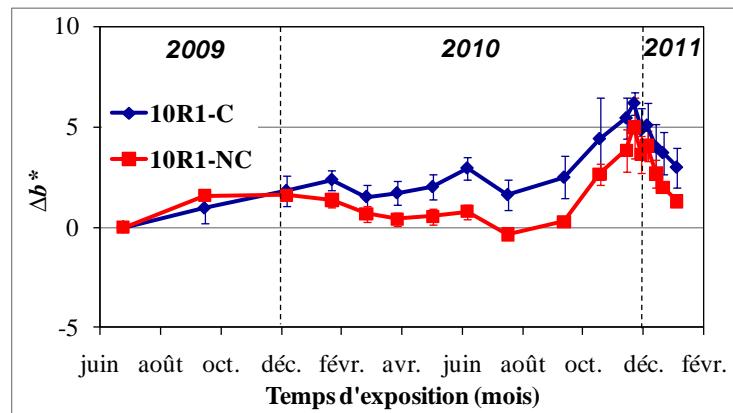


Figure A7.14 Effet de la carbonatation sur la chromaticité Δb^* pour les mortiers de rapport E/C égal à 1, de rugosité RI (essai in situ)

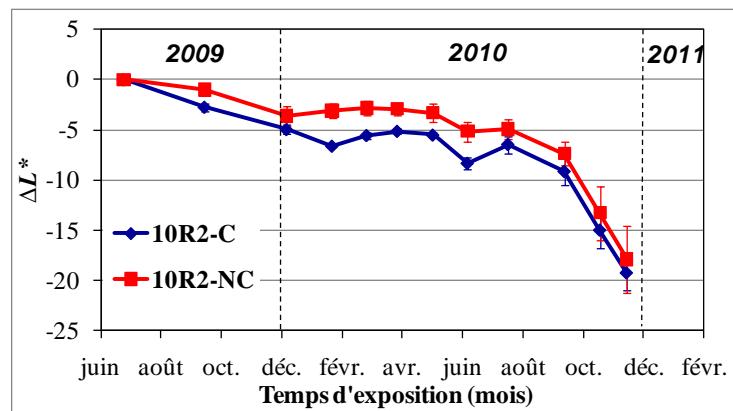


Figure A7.15 Effet de la carbonatation sur la clarté ΔL^* pour les mortiers de rapport E/C égal à 1, de rugosité R2 (essai *in situ*)

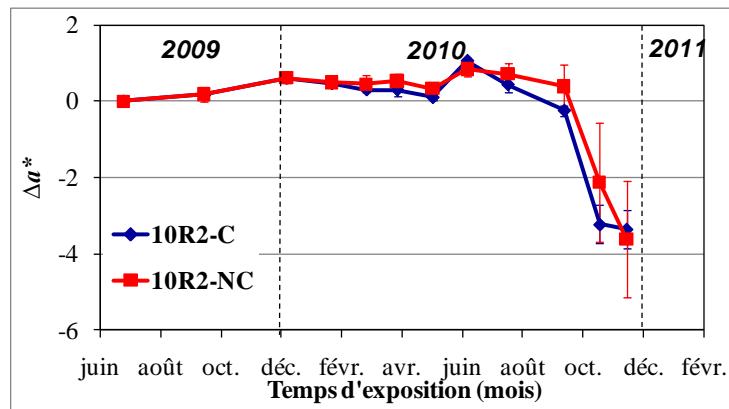


Figure A7.16 Effet de la carbonatation sur la chromatricité Δa^* pour les mortiers de rapport E/C égal à 1, de rugosité R2 (essai *in situ*)

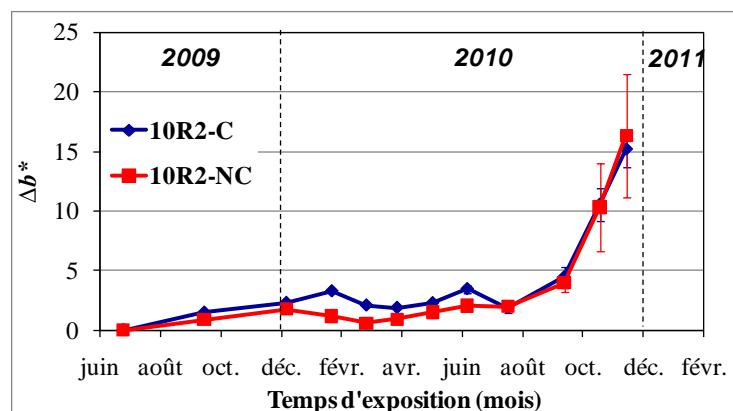
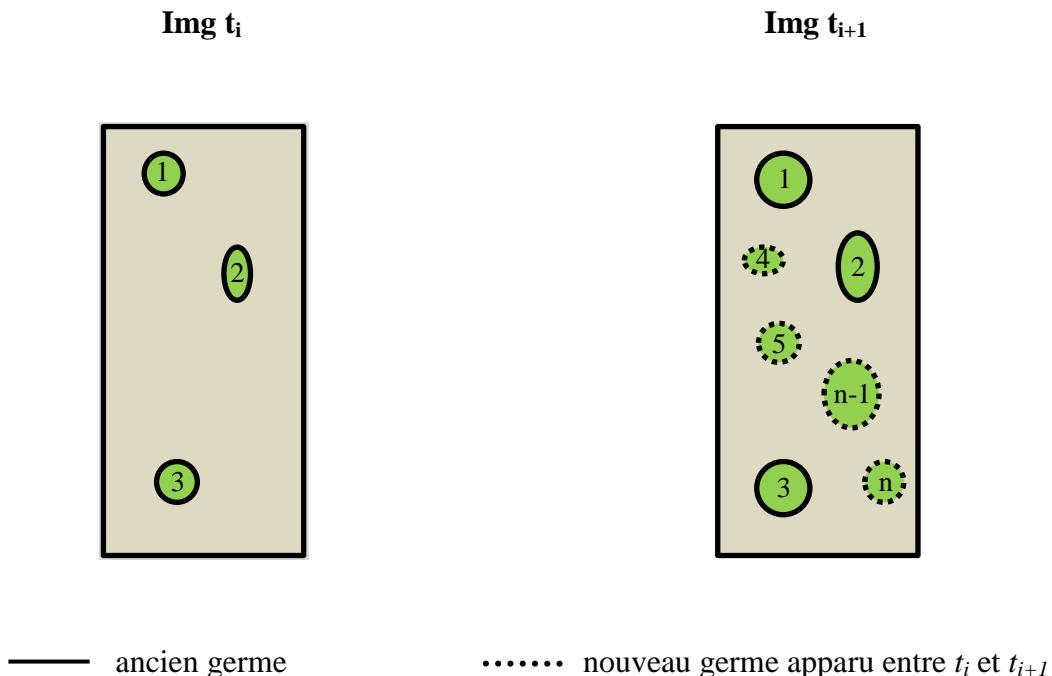


Figure A7.17 Effet de la carbonatation sur la chromatricité Δb^* pour les mortiers de rapport E/C égal à 1, de rugosité R2 (essai *in situ*)

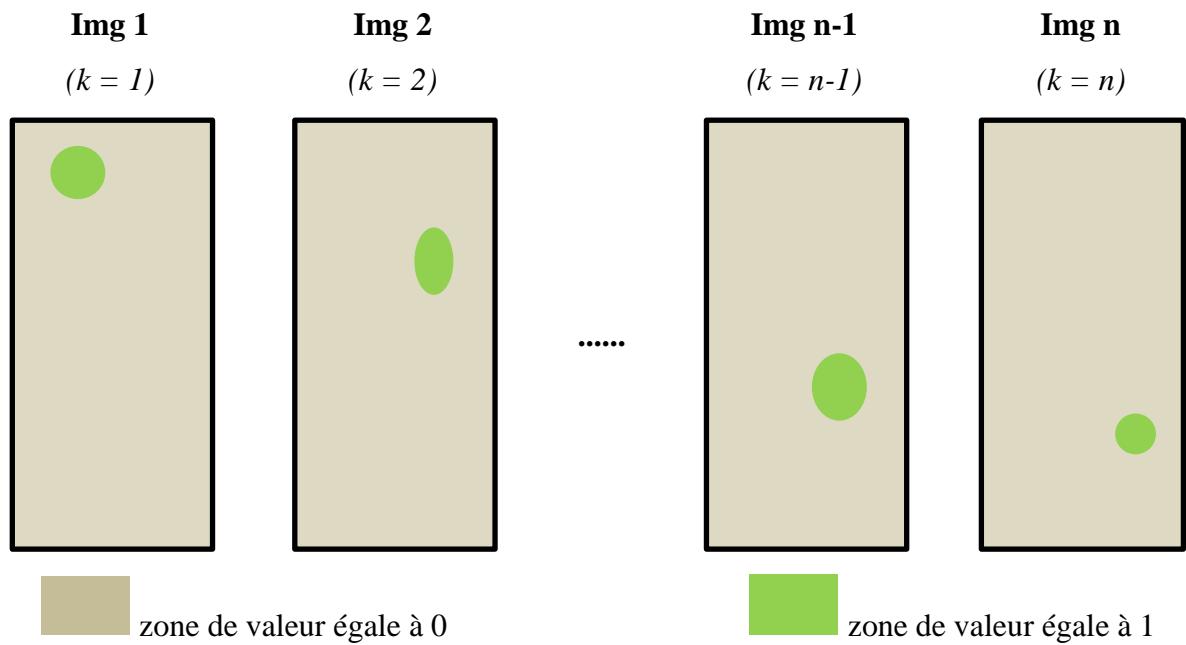
ANNEXE 8**Procédure pour déterminer le nombre de nouveaux germes**

Par analyse d'images, les zones colonisées par les algues sont distinguées des zones saines de la surface d'échantillon sur le canal Q (*partie 4.3.3.1*). L'image est ensuite labellisée, c'est à dire, à chaque îlot d'algues et à chaque pixel de cet îlot est attribué un chiffre (ou label ici compris entre 1 et n)).

Img t_i et **Img t_{i+1}** sont respectivement les images labellisées d'un échantillon à deux instants successifs t_i et t_{i+1} .



L'image **Img t_{i+1}** est ensuite segmentée selon une valeur k variant de 1 à n . Nous obtenons ainsi n images binaires avec chacune un spot associé. Image binaire est constituée uniquement de zéro et de un. Les pixels d'intensité égale à 1 correspondent aux taches d'algues.



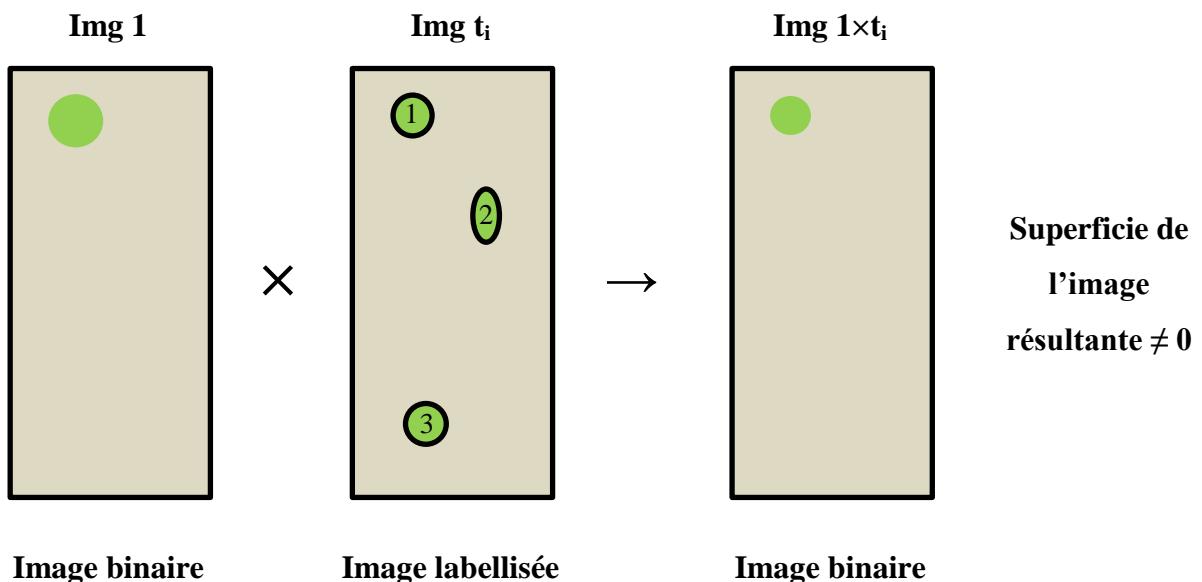
Chacune de ces n images est multipliée par l'image **Img t_i** .

La multiplication est réalisée pixel par pixel. Cela signifie que l'on multiple les pixels de même position sur les deux images. L'image résultante est une image binaire constituée de pixels dont la valeur est définie comme suit :

$$\begin{bmatrix} 0 \times 0 = 0 \\ 0 \times (1 \text{ à } n) = 0 \\ 1 \times 0 = 0 \\ 1 \times (1 \text{ à } n) = 1 \end{bmatrix}$$

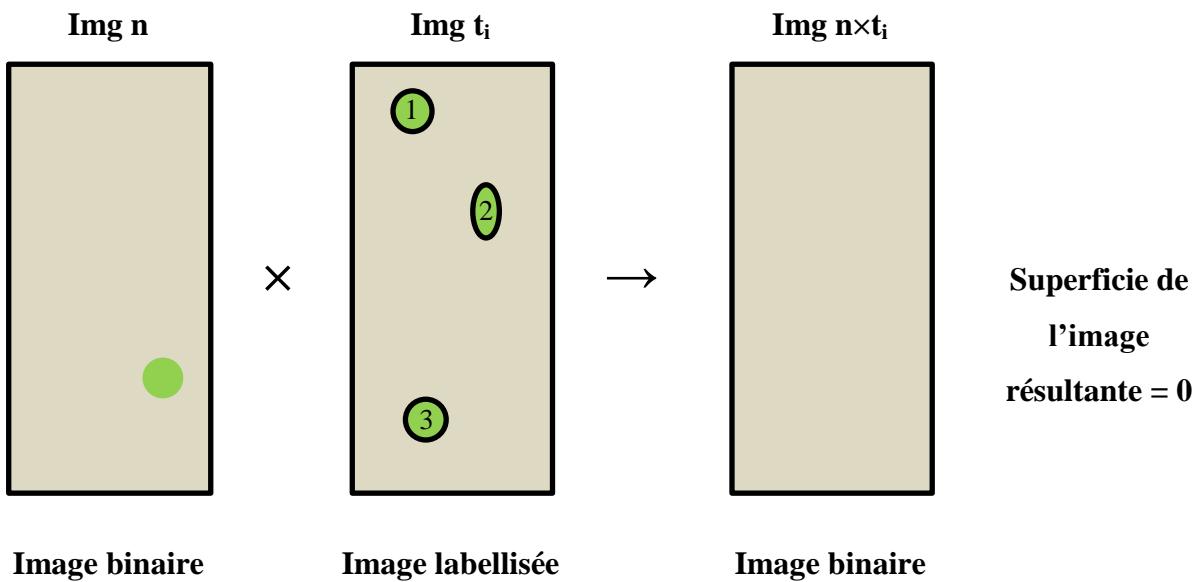
La superficie de l'image résultante (somme des valeurs de tous les pixels de l'image) est déterminée. Deux cas peuvent se produire.

Cas 1 : Présence d'un ancien germe (par exemple $k = 1$)



Si la « superficie » de l'image résultante est non nulle, le spot de l'image **Img 1** est un ancien germe.

Cas 2 : Apparition d'un nouveau germe entre l'instant t_i et t_{i+1} (par exemple $k = n$)



Si la « superficie » de l'image résultante est nulle, alors le spot de l'image **Img n** est un nouveau germe apparu entre t_i et t_{i+1} .

L'algorithme pour dénombrer les nouveaux germes apparus sur l'échantillon 10R-C-002 de l'essai n°3 entre t_i (27/05/2010) et t_{i+1} (28/05/2010) est donné ci-dessous.

Sub main

'-----

Dim Excel As Object

Dim WkBook as Object

Dim Sheet As Object

Dim c As Object

Dim Cell As Object

Dim indexes0() as long

Dim indexes1() as long

Dim result() as double

Set Excel = CreateObject("excel.application")

Set WkBook = Excel.Workbooks

WkBook.Add

Set Sheet = Excel.ActiveSheet

Set c = Sheet.Cells

Objet1 = AphObjNew("1")

'-----

inImg = AphImgNew("ti")

AphSetImageDirectory "D:\Documents and Settings\thtran\Mes documents\These\Resultats expérimentaux\banc essai n°3\scan\100527"

AphImgRead inImg, "10R-C-002.bmp"

AphImgRGBToYIQ inImg, AphImgNew("Image 1")

AphImgColorToRGB AphImg("Image 1"), AphImgNew("Image 2"), AphImgNew("Image 3"),

AphImgNew("Image 4")

AphImgThreshold AphImg("Image 4"), AphImgNew("Image 5"), AphThreshold(-47.78,-12.66)

AphImgErodeReconsOpen AphImg("Image 5"), AphImgNew("Image 6"),

AphNamedSElement("Disk",1), AphNamedNgbGraph("2D 8-connected")

AphImgDilateReconsClose AphImg("Image 6"), AphImgNew("Image 7"),

AphNamedSElement("Disk",1), AphNamedNgbGraph("2D 8-connected")

AphImgClustersToLabels AphImg("Image 7"), AphImgNew("Image 8-0"), AphNamedNgbGraph("2D 8-connected")

'-----

```
inImg = AphImgNew("ti1")
AphSetImageDirectory "D:\Documents and Settings\thtran\Mes documents\These\Results
expérimentaux\banc essai n° 3\scan\100528"
AphImgRead inImg, "10R-C-002.bmp"
AphImgRGBToYIQ inImg, AphImgNew("Image 1")
AphImgColorToRGB AphImg("Image 1"), AphImgNew("Image 2"), AphImgNew("Image 3"),
AphImgNew("Image 4")
AphImgThreshold AphImg("Image 4"), AphImgNew("Image 5"), AphThreshold(-47.78,-12.66)
AphImgErodeReconsOpen AphImg("Image 5"), AphImgNew("Image 6"),
AphNamedSElement("Disk",1), AphNamedNgbGraph("2D 8-connected")
AphImgDilateReconsClose AphImg("Image 6"), AphImgNew("Image 7"),
AphNamedSElement("Disk",1), AphNamedNgbGraph("2D 8-connected")
AphImgClustersToLabels AphImg("Image 7"), AphImgNew("Image 8-1"), AphNamedNgbGraph("2D 8-
connected")
AphImgLabelsObj AphImg("Image 8-1"), Objet1
'-----
AphObjGetIndexList Objet1, indexes1
n = Ubound(indexes1)
a = 1
'-----
for k=1 to n+1

AphImgThreshold AphImg("Image 8-1"), AphImgNew("Image 9"), AphThreshold(i,i)
AphImgMultiply AphImg("Image 9"), AphImg("Image 8-0"), AphImgNew("Image 10")
AphImgArea AphImg("Image 10"), result

If result(0) = 0 then
a = a+1
b = AphObjGetAttributed(Objet1, k, "pixel_count")
Set cell = c.Item(a,1)
cell.value = k
Set cell = c.Item(a,2)
cell.value = b
end if
next k
'-----
```

Excel.Quit
End Sub

ÉCOLE NATIONALE SUPÉRIEURE DES MINES DE SAINT ÉTIENNE

NNT : 2011 EMSE 0626

NAME : **Thu Hien TRAN**

TITLE : **Influence of the intrinsic characteristics of a mortar on its ability to resist to the biofouling**

SPECIALITY : **Process Engineering**

KEYWORDS : biofouling, algae, mortar, porosity, roughness, carbonation, model

ABSTRACT :

Biofouling of wall coatings is an aesthetic and economic problem. Among microorganisms involved, the algae are the most involved. This work aimed to study experimentally the influence of intrinsic parameters (porosity, roughness and carbonation) of a cement-based mortar on its bioreceptivity and to model the development of algae.

To study the algal biodegradation, an accelerated laboratory test was developed. This work was carried out with the green alga *Klebsormidium flaccidum* frequently identified in samples taken on colonized facades. The results show that an increase in roughness and a decrease in surface pH by carbonation of mortars promote fouling by algae.

A model based on Avrami's law was used to simulate the algal colonization. Two processes involved in the mechanism of colonization: the attachment (or "germination") and the growth of algae. The kinetic parameters representing these processes have been determined and reveal the importance of the roughness and the carbonation on the constant rate of "germination".

Exposure of samples in nature was also carried out. The results obtained allow recovering partially the behavior of materials in the laboratory test even if the start of colonization seems to be affected by weather conditions.

ÉCOLE NATIONALE SUPÉRIEURE DES MINES DE SAINT ÉTIENNE

NNT : 2011 EMSE 0626

NOM : **Thu Hien TRAN**

TITRE : **Influence des caractéristiques intrinsèques d'un mortier sur son encrassement biologique**

SPÉCIALITÉ : **Génie des Procédés**

MOTS CLEFS : encrassement biologique, algues, mortiers, porosité, rugosité, carbonatation, modélisation

RÉSUMÉ :

L'encrassement biologique des revêtements de façade constitue un problème esthétique et économique. Parmi les microorganismes impliqués, les algues sont les plus répandues. Ce travail avait pour but d'étudier expérimentalement l'influence des paramètres intrinsèques (porosité, rugosité et carbonatation) de mortiers à base de ciment sur leur bioréceptivité et de modéliser le développement du biofilm d'algues.

Pour étudier l'effet de ces paramètres sur la biodéterioration des mortiers, un essai accéléré de laboratoire a été développé. Les travaux ont été réalisés avec l'algue verte *Klebsormidium flaccidum* fréquemment identifiée dans les prélèvements réalisés sur des façades colonisées. Les résultats montrent qu'une augmentation de rugosité et une diminution du pH de surface par carbonatation favorisent l'encrassement des mortiers par les algues.

Un modèle inspiré de la loi d'Avrami a permis de modéliser le phénomène de colonisation par les algues. Deux processus interviennent dans le mécanisme de colonisation : l'accrochage (ou « germination ») et la croissance des algues. Les paramètres cinétiques représentant ces processus ont été déterminés et révèlent l'importance de la rugosité et de la carbonatation sur la constante de vitesse de « germination ».

L'exposition d'échantillons en extérieur a été également réalisée. Les résultats obtenus permettent de retrouver partiellement le comportement des matériaux en laboratoire même si le démarrage de la colonisation semble être affecté par les conditions climatiques.