

# THÈSE DE DOCTORAT

Soutenue à Aix-Marseille Université  
le 12 Juillet 2022 par

## Alexis Boccheciampe

### Etude du transport de particules au travers de fissures contrôlées synthétisées dans un mortier de confinement : apport de la microtomographie RX

**Discipline**

Science de l'environnement

**Spécialité**

Géoscience

**École doctorale**

ED 251 : Science de l'environnement

**Laboratoire/Partenaires de recherche**

CEA Cadarache/ DDSD/DFDE/SECC/LECD  
CEREGE/Environnement durable



**Composition du jury**

**Peter MOONEN**

Rapporteur

Université de Pau et des Pays de l'Adour

**Catherine A. DAVY**

Rapportrice

Ecole Centrale de Lille

**Arnaud Poulesquen**

Examineur

CEA/Marcoule/LCBC

**Barbara D'ANNA**

Examinatrice/Présidente

du jury

LCE Univ. Aix-Marseille

**Jérôme ROSE**

Directeur de thèse

CEREGE/Env Durable

**Ingmar POINTEAU**

Co-directeur de thèse

CEA/Cadarache/LECD

**Invités**

**Perrine CHAURAND**

Co-encadrant de thèse

CEREGE/Env Durable

**Daniel BORSCHNECK**

Co-encadrant de thèse

CEREGE/Env Durable



## Table des matières

<b>Affidavit.....</b>	<b>5</b>
<b>Affidavit.....</b>	<b>6</b>
<b>Liste de publications et participation aux conférences .....</b>	<b>7</b>
<b>Remerciements .....</b>	<b>8</b>
<b>Résumé .....</b>	<b>10</b>
<b>Abstract .....</b>	<b>11</b>
<b>1. Introduction et objectifs de la thèse.....</b>	<b>12</b>
<b>2. Synthèse Bibliographique.....</b>	<b>18</b>
2.1 Les aérosols. ....	18
2.1.1 Définition d'un aérosol. ....	18
2.1.2 Diamètre équivalent. ....	19
2.1.3 Caractérisation du gaz vecteur. ....	21
2.1.4 Mise en suspension. ....	23
2.1.5 Physique et métrologie des aérosols. ....	24
2.2 Les matériaux cimentaires. ....	33
2.2.1 Généralités. ....	33
2.2.2 Propriétés des pâtes de ciment CEM V.....	34
2.2.3 Les origines des phénomènes de fissuration.....	35
2.3 Etudes du transport de particules.....	37
2.4 Tomographie à rayons X (CT).....	41
2.4.1 Généralité.....	41
2.4.2 La tomographie pour les matériaux cimentaires.....	43
2.4.3 Exemples d'études utilisant la tomographie pour la caractérisation des ciments..	45
<b>3. Production et caractérisation par micro-CT de mortiers fissurés.....</b>	<b>48</b>
3.1 Méthodologie de génération reproductible de fissures à géométrie contrôlée. ....	48
3.1.1 Conception et impression des moules de fissures 3D.....	49
3.1.2 Formulation des mortiers fissurés.....	53
3.1.3 Visualisation 3D de la fissure au cœur du barreau de mortier par micro-tomographie RX.	55
3.1.4 Caractérisation de la géométrie des fissures.....	59
3.2 Validité et reproductibilité de la méthodologie proposée.....	66
3.2.1 Contrôle de la dissolution des moules solides de fissures. ....	66

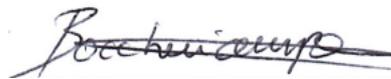
3.2.2	Effet de la segmentation sur la quantification du volume de la fissure. ....	68
3.2.3	Reproductibilité des moules de fissures par impression 3D. ....	69
3.2.4	Transfert des caractéristiques des moules de fissures dans les échantillons de mortier fissuré. ....	71
<b>4.</b>	<b>Etude du transport de particules dans un mortier fissure. ....</b>	<b>79</b>
4.1	Matériels et méthodes. ....	79
4.1.1	Particules modèles : l'oxyde de cérium. ....	79
4.1.2	Dispositif expérimental simulant un transport de particules dans un mortier fissuré. ....	82
4.1.3	Visualisation et caractérisation des profils de particules déposées dans les échantillons de mortiers fissurés. ....	85
4.2	Résultats et discussions. ....	91
4.2.1	Influence du débit sur le transport des particules dans les mortiers fissurés. ....	91
4.2.2	Influences de la géométrie de la fissure sur le transport des particules dans les mortiers fissurés. ....	100
4.2.3	Influences des défauts de surface sur la rétention des particules. ....	111
<b>5.</b>	<b>Conclusion de l'étude et perspectives. ....</b>	<b>113</b>
<b>6.</b>	<b>Bibliographie. ....</b>	<b>116</b>
<b>7.</b>	<b>Annexe. ....</b>	<b>126</b>

# Affidavit

Je soussigné, Alexis BOCCHECIAMPE, déclare par la présente que le travail présenté dans ce manuscrit est mon propre travail, réalisé sous la direction scientifique de Jérôme ROSE, Ingmar POINTEAU, Daniel BORSCHNECK et Perrine CHAURAND dans le respect des principes d'honnêteté, d'intégrité et de responsabilité inhérents à la mission de recherche. Les travaux de recherche et la rédaction de ce manuscrit ont été réalisés dans le respect à la fois de la charte nationale de déontologie des métiers de la recherche et de la charte d'Aix-Marseille Université relative à la lutte contre le plagiat.

Ce travail n'a pas été précédemment soumis en France ou à l'étranger dans une version identique ou similaire à un organisme examinateur.

Fait à Aix en Provence, le 4 mai 2022



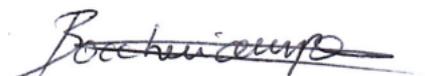
Cette œuvre est mise à disposition selon les termes de la [Licence Creative Commons Attribution - Pas d'Utilisation Commerciale - Pas de Modification 4.0 International](https://creativecommons.org/licenses/by-nc-nd/4.0/).

# Affidavit

I, undersigned, Alexis BOCHECIAMPE, hereby declare that the work presented in this manuscript is my own work, carried out under the scientific direction of Jérôme ROSE, Ingmar POINTEAU, Daniel BORSCHNECK and Perrine CHAURAND, in accordance with the principles of honesty, integrity and responsibility inherent to the research mission. The research work and the writing of this manuscript have been carried out in compliance with both the French national charter for Research Integrity and the Aix-Marseille University charter on the fight against plagiarism.

This work has not been submitted previously either in this country or in another country in the same or in a similar version to any other examination body.

Place Aix en Provence, date 4 mai 2022



Cette œuvre est mise à disposition selon les termes de la [Licence Creative Commons Attribution - Pas d'Utilisation Commerciale - Pas de Modification 4.0 International](https://creativecommons.org/licenses/by-nc-nd/4.0/).

# Liste de publications et participation aux conférences

- 1) Liste des publications réalisées dans le cadre du projet de thèse :
  1. Boccheciampe A, Borschneck D, Chaurand P, Vicente J, Soldati E, Vidal V, Pointeau I, Rose J. *Conception and characterization of cracks with controlled geometry in containment mortar*. Cement and Concrete research. 2022 (En review)
  2. Sebai W, Ahmad S, Belleville Marie-Pierre, Boccheciampe A, Chaurand P, Levard C, et al. *Biocatalytic Elimination of Pharmaceuticals Found in Water With Hierarchical Silica Monoliths in Continuous Flow*. Front Chem Eng 2022;4. <https://doi.org/10.3389/fceng.2022.823877>.
  3. Pointeau I, Borschneck D, Boccheciampe A, Le Cocguen A, Garcia M, Chaurand P, Rose J, Lamotte H, Carré D. (2018). *Controlled artificial cracks generated in mortar*. NUWCEM: 24 – 26 October 2018 Avignon, France. Cement-based Materials for Nuclear Wastes.
- 2) Participation aux conférences et écoles d'été au cours de la période de thèse :
  1. Alexis Boccheciampe, Daniel Borschneck, Perrine Chaurand, Ingmar Pointeau, Vladimir Vidal, et al.. Visualizing aerosol transport through cracks in mortar matrices using x-ray microtomography. *EUROPEAN AEROSOL CONFERENCE EAC 2021*, Aug 2021, Virtual, United Kingdom (**Conférence orale**)
  2. Alexis Boccheciampe, Daniel Borschneck, Perrine Chaurand, V. Vidal, Ingmar Pointeau, et al.. Conception de fissures à géométrie contrôlée dans un mortier de confinement pour étudier les mécanismes de transport de particules : apports de la microtomographie RX.. *Rayons X et Matière*, Nov 2021, Aix-en-Provence, France (**Conférence orale**)
  3. Congrès ED 251, Mai 2022, Institut Méditerranéen d'Océanologie, Aix Marseille Université, Marseille (**Poster**)

# Remerciements

Cette thèse est le fruit d'une collaboration entre le CEA de Cadarache et le CEREGE. Plus précisément entre le Laboratoire d'Expertise et de Caractérisation Destructive (LECD) de l'installation CHICADE et le laboratoire Environnement Durable.

Je souhaite tout d'abord remercier les membres du Jury d'avoir accepté d'évaluer cette étude. Madame Catherine Davy et Monsieur Peter Moonen pour avoir rapporté ce mémoire et pour l'intérêt qu'ils ont porté aux travaux de thèse. Madame Barbara D'Anna, présidente du jury, et Monsieur Arnaud Poulesquen d'avoir accepté d'être examinateurs de ce travail et membres du jury.

Tout au long de ces années, plusieurs points de discussions ont eu lieu avec Monsieur Henri Wortham et Pascal Piluso lors des comités de pilotage. Qu'ils soient ici remerciés pour le temps ainsi passé ; leur expertise et conseils ont toujours été pertinents et d'une grande aide dans mon travail.

Je suis très reconnaissant envers le CEA pour avoir financé cette thèse au travers du projet EXUFU, avec le soutien de Monsieur Pierre Vigneron et Madame Muriel Ferry. J'adresse mes remerciements à Madame Nadine Evenat-Robic, Monsieur Christophe Icard et Monsieur Olivier David pour m'avoir accueilli au sein du DFDE et de l'installation CHICADE.

Je remercie aussi tous les membres du SECC notamment Monsieur Dominique Carré et l'équipe du LEC pour leur bienveillance à mon égard.

Je souhaite remercier plus particulièrement toute l'équipe du LECD (Olivier V, Hervé, Gaëlle, Maxime, Jeanne, Théo, Coralie, Alexandre, Olivier H, Stephen, Sophie, Laure, Sylvie, Ludovic, Elodie et Frédéric) avec qui j'ai partagé ces belles années. Je les remercie pour leurs aides, leurs conseils et leurs expertises. Je souhaite également remercier l'équipe environnement durable de m'avoir toujours bien accueilli lors de mes passages sur le site. Je souhaite remercier plus particulièrement Isabelle et Clément car ils m'ont permis d'élargir mes connaissances dans d'autres domaines.

Je souhaite exprimer toute ma reconnaissance à Jérôme Vicente, Enrico Soldati et Jean-Vincent Daurelle pour leurs assistances concernant le travail de modélisation de cette thèse. Leurs savoirs et compétences ont été d'une aide précieuse.

Je souhaite remercier grandement Jérôme Rose, Ingmar Pointeau, Daniel Borschneck, Perrine Chaurand et Vladimir Vidal pour ces trois années et demie de thèse. Ils m'ont aidé par leur

soutien, conseils et leur bienveillance, à donner le meilleur de moi pour cette thèse. J'ai énormément appris grâce à eux sur le plan technique, expérimental, scientifique et sur le métier de chercheur. Je ne pouvais pas rêver d'une meilleure équipe pour m'accompagner dans cette aventure. Je leur serai éternellement reconnaissant.

Je souhaite aussi remercier les amis. Les anciens copains que je cite dans l'ordre de rencontre pour ne pas faire de jaloux (Chakib, Vincent, Julie, Jonathan, Michael, David, Rony, Tony, Najma, Nicolas, Marion, William et Axel) qui ont su rester présents et m'ont toujours encouragé dans cette épreuve. Mais également les nouveaux amis du bus (Fred.), les collègues de bureau (Océane, Antonin et Camille) avec qui j'ai pu partager de très bon moment ou encore les nombreux doctorants du CEREGE. En espérant que cela continue.

Je souhaite aussi remercier toute ma famille. Tony, Monique, Brigitte, Jean-Luc, Muriel, Cindy, Jessica et Jérémy, Emma, Julia, Julie, Téo ainsi que Léa d'avoir été là dans les bons et les mauvais moments pour me remonter le moral. Je souhaite également remercier ma belle-famille Pascal, Véro et Pauline à qui je dois beaucoup. Je souhaite remercier mes parents et mon petit frère. Une page ne pourrait suffire pour exprimer tout l'amour que le leur porte et aucun mot ne pourrait exprimer toute ma gratitude.

Ce dernier paragraphe est pour ma compagne Laura qui partage ma vie depuis dix ans. Elle a été là à chaque moment pour m'encourager, me féliciter et a toujours trouvé les mots justes pour me booster alors qu'elle-même est dans une période charnière dans ses études. Je la remercie aussi pour toutes les relectures de documents et surtout pour les multiples répétitions de la présentation afin que tout soit parfait le jour J. Si cette thèse a pu arriver jusqu'au bout c'est notamment grâce à elle. Cette période m'a confirmé qu'elle me rendait plus fort et que je ne peux concevoir ma vie sans elle.

*Je dédie cette thèse à Laura, mes parents, mon frère, et à ma grand-mère qui aurait été fière. C'est grâce à eux si j'ai pu aller si loin dans les études et à leur amour si j'ai pu devenir la personne que je suis maintenant.*

# Résumé

Ce travail de thèse s'inscrit dans le contexte du conditionnement des déchets radioactifs bloqués dans un enrobage type mortier. Le réseau nanoporeux de mortier type CEM V constitue un excellent filtre à particules pour contenir la matière radioactive dans les colis. Les études de sûreté doivent toutefois envisager des scénarios conduisant à une rupture du confinement à la suite d'une chute, d'un incendie ou d'un vieillissement extrême... Des fissures pourraient alors apparaître et conduire à un relâchement des particules. Du fait de très faibles débits des gaz produits par les déchets dans les colis, il s'est avéré nécessaire de développer une étude permettant de caractériser le transport de particules directement dans la barrière de mortier. A cette fin, des fissures à géométrie contrôlée ont été créées dans des mortiers par dissolution de moules de fissures en plastique synthétisés par imprimantes 3D et placés dans les échantillons à étudier. Les empreintes laissées, formant alors des fissures contrôlées, ont été caractérisées par microtomographie à rayons X (micro-CT). Le développement d'un protocole complet de traitement et d'analyse d'images 3D (Avizo) et de modélisation (IMorph) a permis de montrer la reproductibilité et la robustesse de la méthodologie de production d'échantillons fissurés. Des particules d'oxyde de cérium (diamètre moyen étudié 40  $\mu\text{m}$ ) ont ensuite été injectées dans les échantillons fissurés en faisant varier le débit d'injection et la forme de la fissure (plate, sinusoïdale et complexe). La micro-CT a permis de visualiser et de caractériser la rétention des particules directement dans la fissure. Grâce à la méthode développée de génération de fissure à géométrie contrôlée, il a été possible pour la première fois d'étudier l'influence du débit de gaz vecteur sur les mécanismes de transfert et de dépôt des particules au sein même des fissures de mortier. Les analyses par micro-CT montrent que les mécanismes principaux d'arrêt permettant de stopper le transport des particules dans la fissure sont l'impaction inertielle et la sédimentation.

# Abstract

This thesis work is in the context of the conditioning of radioactive waste trapped in a mortar-type liner. The nanopore network of CEM V type mortar constitutes an excellent particle filter to contain the radioactive material in the packages. However, safety studies must consider scenarios leading to a rupture of the containment following a fall, a fire or extreme ageing... Cracks could then appear and lead to a release of particles. Due to the very low gas flow rates produced by the waste in the packages, it was necessary to develop a specific experimental study to characterise the transport of particles directly in the solid. To this end, cracks with controlled geometry were created in mortars by dissolving plastic crack moulds synthesised by 3D printers and placed in the samples to be studied. The footprint left, which then form controlled cracks, were characterised by X-ray microtomography (micro-CT). The development of a complete protocol for 3D image processing and analysis (Avizo) and modelling (IMorph) demonstrated the reproducibility and robustness of the methodology for producing cracked samples. Cerium oxide particles (average diameter studied 40  $\mu\text{m}$ ) were then injected into the cracked samples by varying the injection rate and the crack shape (flat, sinusoidal, and complex). Micro-CT allowed the visualization and characterization of the particles retention directly in the crack. Thanks to the developed method of crack generation with controlled geometry, it was possible for the first time to study the influence of the carrier gas flow rate on the mechanisms of particles transfer and deposition within the mortar cracks themselves. Micro-CT analyses show that the main stopping mechanisms for particles transport in the crack are inertial impaction and sedimentation.

## 1. INTRODUCTION ET OBJECTIFS DE LA THESE.

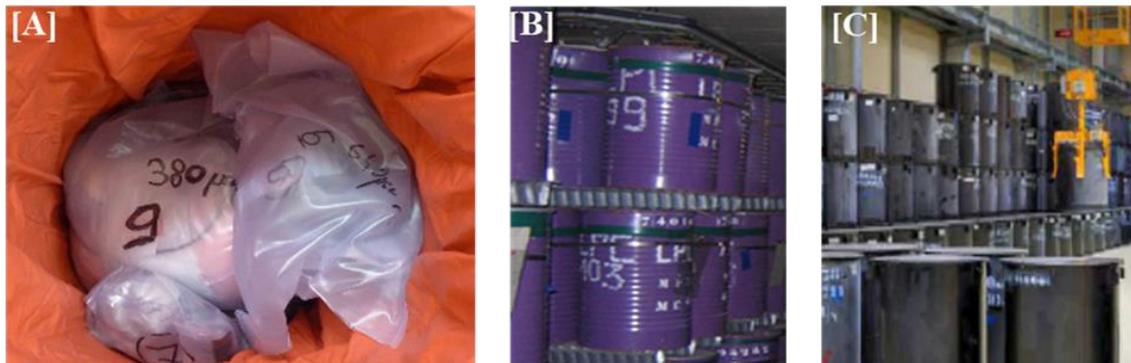
Les activités nucléaires de production, recherche et démantèlement génèrent des déchets radioactifs de différentes catégories qui sont gérés en fonction de leur activité et de leur demi-vie (Figure 1). Les moyens mis en œuvre pour gérer leur conditionnement, transport, entreposage, stockage... dépendent alors de cette catégorisation.

Catégorie	Déchets dits à vie très courte	Déchets dits à vie courte	Déchets dits à vie longue
Très faible activité (TFA)	 Gestion par décroissance radioactive	 Stockage de surface (Centre industriel de regroupement, d'entreposage et de stockage)	
Faible activité (FA)		 Stockage de surface (centres de stockage de l'Aube et de la Manche)	 Stockage à faible profondeur à l'étude
Moyenne activité (MA)			 Stockage géologique profond en projet (projet Cigéo)
Haute activité (HA)	Non applicable		

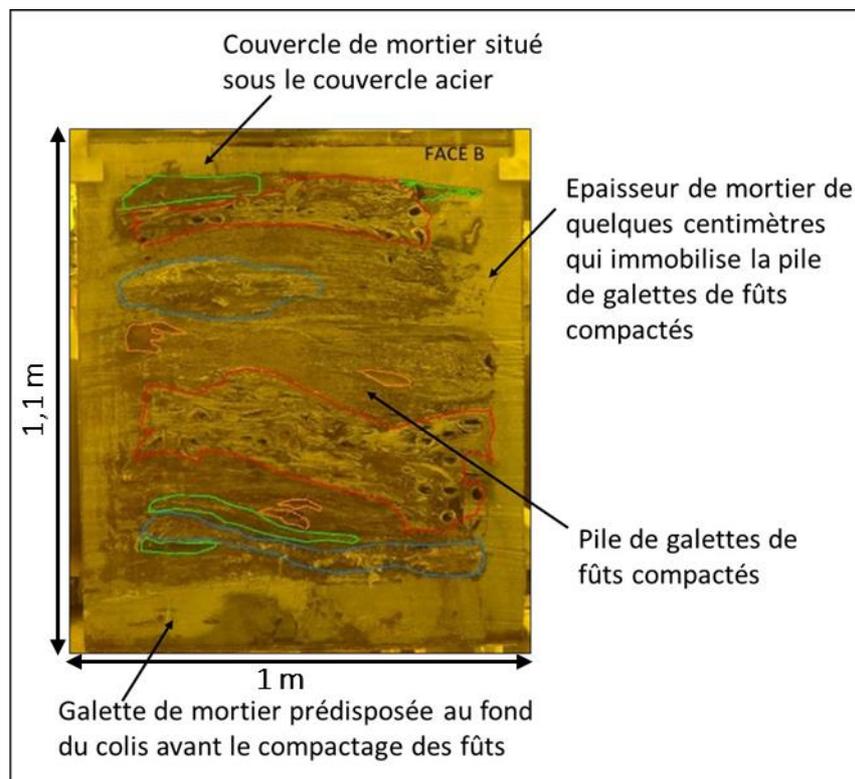
**Figure 1 : Les différents exutoires des déchets radioactifs selon leur catégorisation (Site ANDRA).**

L'objectif du conditionnement des déchets est d'établir un système multi-barrières entre le déchet et l'extérieur afin de garantir l'absence de fuite de matière radioactive pouvant conduire à une contamination de l'environnement. Par exemple, dans le cas des déchets de moyenne activité à vie longue (MA-VL), issus du traitement des effluents, d'équipements d'installations type boîte-à-gants, les matériaux sont de natures physico-chimiques variées (métaux, plastiques, cellulose...) et contiennent de la matière radioactive dans leur corps même ou alors répartie à leur surface. Au CEA (Commissariat à l'Energie Atomique et aux Energies Alternatives), ces déchets MA-VL contaminés en radionucléides (RN) alpha sont conditionnés dans des sacs plastiques (deux ou trois barrières), puis dans des fûts en acier inoxydable (Figure 2). Ces fûts sont ensuite compactés et placés dans un conteneur en acier de volume plus important. Un mortier type CEM V Haute Performance (mélange de clinker, de laitier de haut-fourneaux et de cendres volantes) est alors coulé dans le colis pour bloquer les déchets dans le conteneur en acier. **Les quelques centimètres de ce liant hydraulique répartis tout autour des déchets agissent alors comme une barrière de confinement vis-à-vis du contenu**

**radioactif des déchets.** Une découpe de ce type de colis, réalisée en cellule blindée dans le cadre d'une expertise, est illustrée Figure 3, montrant la pile de fûts compactés entourée de mortier CEM V.



**Figure 2 : Ensemble de photos présentant les étapes de constitution d'un colis et de son entreposage en attente du stockage futur. [A] Paquets de déchets radioactifs, sous doubles enveloppes vinyle soudées, placés dans une sache à l'intérieur d'un fût métallique. [B] Ensemble de fûts Alpha-Pu métalliques en attente de compactage. [C] Entreposage de colis 870 L FI sur l'INB CEDRA au CEA Cadarache.**



**Figure 3 : Photo d'un colis 870 L FI coupé en deux dans la cellule d'expertise de CADECOL sur l'INB CHICADE du CEA Cadarache (Photo issue de Garcia et Perrin, 2021).**

Le mortier CEM V, en plus de ses propriétés mécaniques Hautes Performances, possède un réseau nanoporeux [Gallé, 2001] partiellement saturé en eau. Il présente ainsi des valeurs de perméabilité [Sercombe et al, 2006] qui, même si elles sont faibles, permettent d'assurer la libération des gaz générés au cœur du colis, par la radiolyse<sup>1</sup> des matières plastiques et les réactions de corrosion des métaux (quelques litres par an et par colis). L'accumulation des gaz au sein du colis est donc évitée, ce qui évite les phénomènes de surpression notamment.

Une grande partie des déchets de type MAVL est contaminée par des particules radioactives émettrices alpha de densité élevée (environ  $10 \text{ g.cm}^{-3}$  pour les oxydes d'actinides) **dont la taille des particules varie de 0,12 à 25  $\mu\text{m}$  environ** (pour leur diamètre aérodynamique médian d'activité) [Dorrian, 1995]. **Le diamètre moyen d'accès aux pores du mortier CEM V étant d'environ 0,01  $\mu\text{m}$  (voir mesures de porosimétrie mercure de la littérature 2.2.2), ce matériau constitue un « filtre » très efficace vis-à-vis de la rétention des particules radioactives présentes dans les déchets à l'intérieur du colis.**

Néanmoins, des microfissures et des macrofissures peuvent se former dans la barrière de confinement dans des cas de scénarii extrêmes qui doivent être envisagés dans le cadre des études de sûreté ; par exemple : chutes de colis lors de la manipulation ou du transport (voir essai de chute Figure 4), incendie, cycles de températures extrêmes type gel-dégel, formation de phases secondaires [Ritchet et al, 2004].

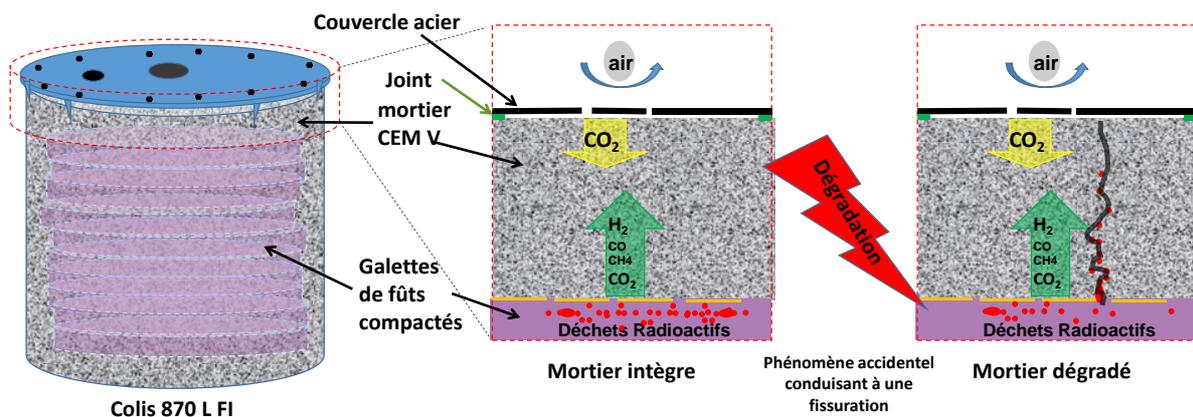
---

<sup>1</sup> La radiolyse est la dissociation des molécules par des radiations ionisantes ( $\alpha$ ,  $\beta$ ,  $\gamma$ ), créant des espèces radicalaires qui peuvent ensuite se recombiner et conduire à la production de gaz ( $\text{H}_2$ ,  $\text{CO}$ ,  $\text{CO}_2$ ,  $\text{CH}_4$ ...) [Reichmanis et O'Donnel, 1989] [Burton, 1958] et, dans le colis de déchets, des interactions peuvent se produire entre la matière radioactive et les matériaux organiques (polymères, cellulose).



**Figure 4 : Conteneur B2.1 inactif après un essai de chute (photo issue des conditionnements actuels pour les déchets de MAVL, [CEA, Bigot et al, 2008].**

Lors de ces phénomènes, si un chemin était formé par des fissures interconnectées entre les déchets et la surface externe du mortier, des particules radioactives pourraient migrer au travers de ce passage et les études de sûreté doivent quantifier le potentiel de relâchement de particules, voir Figure 5.



**Figure 5. Schéma d'un colis 870 L FI et zoom sur l'interface mortier supérieure du colis.**

Or, comme il est mentionné dans [Morewitz, 1982] [Mitrakos et al, 2008] [Morandi et al, 2008] les études de sûreté utilisent fréquemment comme taux de relâchement des aérosols, un taux équivalent à celui des gaz. Ces calculs sont donc très pénalisants car l'interaction des aérosols avec les fissures constitue un potentiel de freinage non négligeable dans leur transport. Dans l'étude de [Morandi et al, 2012], en particulier, l'expérience COLIMA montre que les aérosols sont freinés sur les tous premiers centimètres de la fissure, même avec des gradients de pression élevés. Ainsi, il est montré dans la littérature [Gélain, 2012] [Tian et al, 2017] que la migration des particules au travers de fissures est influencée par de nombreux facteurs, comme :

- Les caractéristiques du gaz vecteur : flux/vitesse, taux humidité relative...
- Les caractéristiques des fissures : longueur, largeur, épaisseur, tortuosité, rugosité, charge de surface...
- Les caractéristiques des particules : taille, densité, forme, charge de surface...

D'autres études, comme le développement d'un modèle de morphologie de fissure basé sur les fractales pour simuler la fuite d'aérosol à travers le béton fissuré [Bishnoi et Vedula, 2013], ont également mis en évidence l'importance de la morphologie du réseau de fissures (épaisseur, tortuosité, rugosité, taille de la gorge, ...) dans le transfert de particules.

De nombreuses études menées dans différents domaines scientifiques (santé, sûreté nucléaire, matériaux de construction, génie civil) se sont intéressées au transfert d'aérosols par des voies de « fuites » dépendant de ces paramètres [Sutter et al. 1981] [Lewis, 1995] [Thatcher, 1995] [Powers, 2009] [Gélain, 2012] [Lai et al, 2012] [Li et al, 2017] [Narayanam et al, 2020].

Parmi celles-ci, la fuite d'aérosols peut être étudiée à travers un chemin préférentiel modèle tel qu'un capillaire ou une fente [Lewis, 1995] [Morton et Mitchell, 1995] [Lai et al., 2012] [Lieb-Lappen et al, 2017] [Narayanam, 2020]. La géométrie du chemin est alors volontairement simplifiée (tortuosité, rugosité...) pour restreindre le domaine d'étude à une configuration de transport des particules et de leur immobilisation (exemple capillaire en forme de coude pour étudier l'impaction due à l'énergie cinétique de la particule). **La maîtrise de la géométrie du conduit de fuite se fait alors au détriment d'une géométrie de fissure « réelle ».**

Une autre approche consiste à créer un véritable réseau de fissures dans des échantillons à base de ciment (par exemple du béton) par compression ou flexion d'éprouvettes de différentes formes [Gélain et al, 2008] [Herranz et al, 2010] [Gélain, 2012] [Parozzi et al, 2013]. Les fissures ainsi générées sont alors représentatives des fissures réelles en termes de géométrie et de rugosité, mais présentent des cheminements et géométries non maîtrisées et non reproductibles. Les dimensions géométriques des fissures doivent alors être déterminées indirectement par des mesures aérauliques [Gélain et al, 2008] [Gélain, 2012] ou par des mesures directes [Parozzi et al, 2013] [Herranz et al, 2010] conduisant à la dégradation des échantillons [Gélain et al, 2008] [Herranz et al, 2010] [Gélain, 2012] [Parozzi et al, 2013] [Jourdain et al, 2016], **ce qui peut limiter le champ d'étude.** De plus, il est difficile d'étudier le rôle d'un paramètre tel que le débit de gaz sur des échantillons dont le réseau de fissures varie d'un cas à l'autre.

Au travers de cet état des lieux, il est apparu important de développer une méthode permettant de générer des fissures à géométrie contrôlée dans les matériaux cimentaires avec une capacité

à pouvoir les reproduire à l'identique et faire varier les autres paramètres portant sur le gaz vecteur et les aérosols. **Le premier objectif de la thèse consiste ainsi à réaliser des fissures les plus réalistes possible dans les mortiers tout en ayant des géométries maîtrisées et reproductibles.** A cette fin, nous avons utilisé l'impression 3D pour produire des moules de fissures plastiques 3D avec une précision spatiale de 60  $\mu\text{m}$  et une géométrie complexe pour se rapprocher de la géométrie réelle des fissures. L'empreinte des moules à fissures, intégrée dans le mortier puis dissoute, crée une fissure à géométrie contrôlée à travers le mortier.

**Pour valider ce premier objectif, une étape de caractérisation des fissures générées doit être réalisée afin de vérifier la pertinence de la méthode de synthèse de fissures.** La microtomographie à rayon X sera utilisée pour caractériser in situ à haute résolution spatiale la géométrie 3D des fissures résultantes dans le mortier. Ces dernières années, cette technique non destructive, développée à l'origine pour des applications médicales [Brisard et al., 2020] a, en effet, été largement utilisée dans les matériaux à base de ciment, notamment pour étudier la structure interne des pores, leur taille et leur connectivité [Yang et al., 2014] [Bossa et al., 2015] [Lu et al., 2017] [Du Plessis et Boshoff, 2019] [Withers, 2021], ou pour étudier le processus de fissuration pendant une charge incrémentielle [Promentilla et al., 2010] [Akhavan et al., 2012] [Darma et al., 2013] [Shields et al., 2018] [Hong et al., 2019] [Sokhansefat et al., 2020] [Suzuki et al., 2020]. Ces objectifs sont abordés dans la partie 3 à la suite de la synthèse bibliographique.

**Le deuxième objectif de la thèse consiste à étudier le transport de particules au travers des fissures précédemment créées dans des conditions propres à celle des colis de déchets :** c'est-à-dire par l'utilisation de débits faibles ( $10^{-1}$  mL/min) cohérents avec des valeurs de dégazage de colis et des particules denses, proches de celles rencontrées dans la réalité, comme il l'a été mis en évidence dans l'expérience COLIMA. Cette contrainte forte de débit faible est à comparer aux débits utilisés dans les études portant sur le transport de particules dans les fissures [Gélain et al., 2008] [Herranz et al., 2010] [Gélain, 2012] [Parozzi et al., 2013], où des débits de l'ordre de 400 L/min sont utilisés par exemple dans l'expérience COLIMA. Dans des conditions aérauliques réalistes représentatives de celles des colis de déchets, il est possible que peu de particules, voire qu'aucune particule, ne passent au travers des fissures rendant difficile l'utilisation de compteurs de particules pour mesurer la concentration volumique de particules en aval de la fissure. C'est pourquoi nous avons décidé de mesurer directement dans le solide le profil de dépôt de particules dans les fissures. La micro-tomographie RX, qui donne accès à la structure interne des matériaux à haute résolution spatiale, nous permettra de caractériser ces dépôts et d'appréhender les différents mécanismes qui en sont à l'origine.

## 2. SYNTHESE BIBLIOGRAPHIQUE.

### 2.1 LES AEROSOLS.

#### 2.1.1 Définition d'un aérosol.

Un aérosol se définit comme un ensemble de particules solides ou liquides en suspension dans un gaz et qui possèdent une vitesse de chute négligeable [Renoux et Boulaud, 1998] [Jacquelin, 2008] [Laborde, 2005]. Ils interviennent dans de nombreux domaines : environnemental (formation de nuages et précipitations...) et industriels (filtration, salles à empoussièremement contrôlé) et sont considérés comme un des principaux vecteurs de la pollution et de la radioactivité atmosphérique.

La taille des aérosols est généralement inférieure à 100  $\mu\text{m}$  [Renoux et Boulaud, 2003]. La mise en suspension des aérosols survient très souvent quand les particules sont soumises à une contrainte qui peut être mécanique (chute, vibration ...) [Jacquelin, 2008] [Rondeau, 2015] et aéraulique (mise en suspension à l'aide d'un flux de gaz) [Alloul-Marmor, 2002].

Comme le montre le tableau récapitulatif de la Figure 6, les aérosols sont très présents dans l'environnement et ont des origines diverses et variées allant d'aérosols naturels (tempêtes de sables, éruption volcanique) aux aérosols industriels (particules issues de procédés thermiques...).

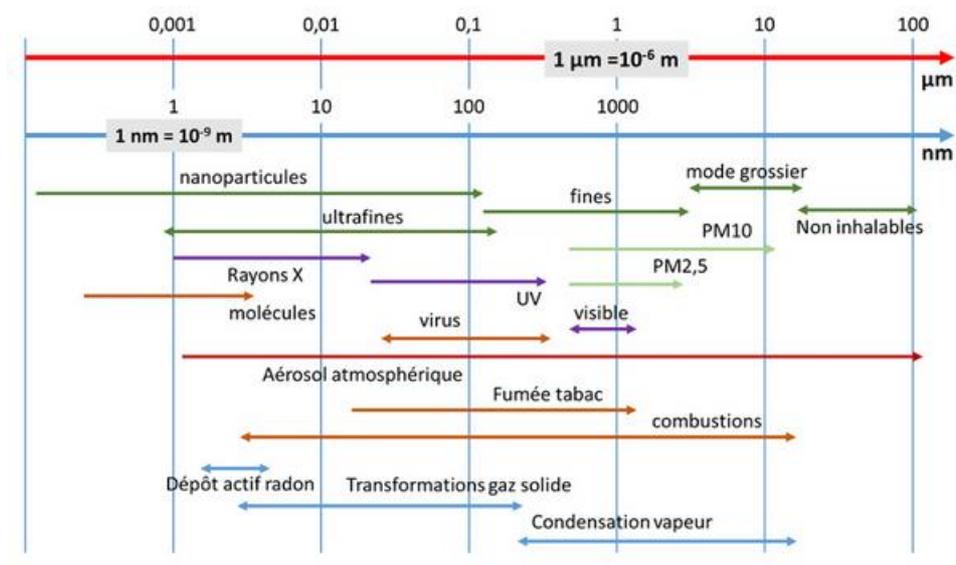
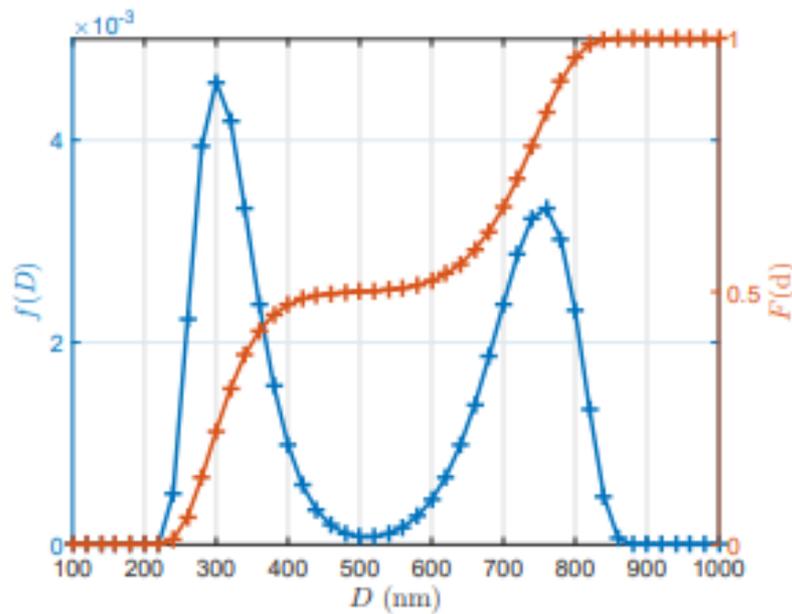


Figure 6: Tableau récapitulatif des tailles de particules existantes dans le domaine des aérosols (<https://www.encyclopedie-environnement.org/air/particules-polluantes-air/>).

De plus, les aérosols sont des entités polydispersées, c'est-à-dire qu'au sein d'une même population les aérosols peuvent avoir des formes, des structures et des tailles variables. Ainsi, pour caractériser cette polydispersité on fait appel à la notion de distribution granulométrique ou de taille de particules (voir exemple Figure 7). Cette distribution granulométrique représentée par la courbe bleue (Figure 7) correspond donc à la répartition des particules par classes de tailles. Il est également possible de représenter [Boualem, 2016] la distribution cumulative (courbe orange).



**Figure 7 : Représentation graphique de la distribution granulométrique en fonction de la taille des particules [Boualem, 2016].**

### 2.1.2 Diamètre équivalent.

La notion de diamètre équivalent est importante dans l'étude des aérosols [Allen, 1990] [Hinds 1999] [Baron et Willeke, 2001] car les aérosols ne sont pas forcément des particules parfaitement sphériques et lisses. Ainsi, plusieurs descriptions existent pour définir un diamètre de particules, avec quelques exemples décrits ci-après.

Plus précisément, le diamètre de sphère équivalente, correspond au diamètre d'une sphère dont une des propriétés physiques spécifique possède la même valeur que celle de la particule considérée [Dodds et Baluais, 1993] [Jacquelin, 2008], comme le volume, la vitesse de sédimentation... Il existe ainsi plusieurs définitions de diamètres équivalents [Hinds, 1999] [Baron et Willeke, 2001].

### Diamètre équivalent en volume ( $De_v$ )

Le diamètre équivalent en volume ( $De_v$ ) d'une particule correspond au diamètre d'une particule sphérique possédant le même volume  $V_p$  que la particule considérée :

$$De_v = \left( \frac{6}{\pi} V_p \right)^{1/3}$$

### Diamètre de Stokes ( $d_{St}$ )

Le diamètre de Stokes ( $d_{St}$ ) correspond au diamètre d'une sphère possédant la même vitesse de sédimentation ( $V_S$ ). Ainsi quand le Reynolds particulaire, permettant de caractériser le régime d'écoulement du fluide, est inférieur à 0,2 on est dans le régime de Stokes. Il est possible d'écrire :

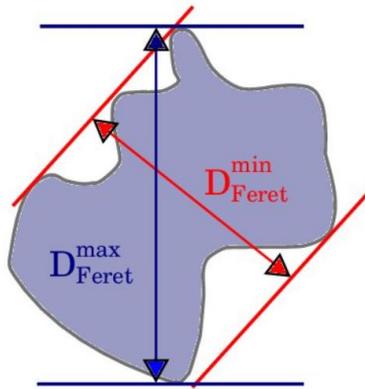
$$d_{St} = \sqrt{\frac{18\mu_f V_S}{\rho_p Cu(d_{St})g}}$$

Avec :

- $V_S$  = vitesse de sédimentation ;
- $\mu_f$  : masse volumique du fluide ;
- $\rho_p$  : masse volumique de la particule considérée ;
- $Cu(d_{St})$  : facteur de Cunningham au diamètre  $d_{St}$  ;
- $g$  : accélération due à la pesanteur.

### Diamètre de Feret ( $d_F$ )

Le diamètre de Feret ( $d_F$ ), représenté dans la Figure 8, correspond à la distance entre deux tangentes sur des côtés opposés de la particule. On note  $D_{Fmin}$  la plus petite distance et  $D_{Fmax}$  la plus grande distance entre les tangentes parallèles.



**Figure 8 : Représentation des diamètres de F eret minimal et maximal d’une particule. [Figure extraite de Hosdez, 2017].**

### Diam tre a rodynamique ( $d_a$ )

Le diam tre a rodynamique ( $d_a$ ) correspond au diam tre d’une sph re de densit  de  $1000 \text{ kg/m}^3$  ayant la m me vitesse de s dimentation que la particule consid r e.

Cette donn e est un param tre essentiel intervenant dans les processus de d p t des particules car il d crit le comportement a raulique d’une particule et tient compte de sa forme [Laborde, 2005].

$d_a$  est donn  par la formule suivante :

$$d_a = De_v * \left( \frac{\rho_p}{1000 * \chi} \right)^{\frac{1}{2}}$$

- $\chi$  : facteur de forme dynamique ;
- $De_v$  : diam tre  quivalent en volume ;
- $\rho_p$  : masse volumique de la particule.

### **2.1.3 Caract risation du gaz vecteur.**

La continuit  du milieu dans lequel les a rosols  voluent [Laborde, 2005] [Guichard, 2013], les m canismes de transfert (chaleurs...) et les transferts de masse [Baron et Willeke, 2001] entre le fluide et le support sont caract ris s par le nombre de Knudsen. Il se d finit comme  tant le rapport entre le libre parcours moyen des mol cules du gaz porteur not   $\lambda_f$  et le diam tre caract ristique  $d_p$  des a rosols [Baron et Willeke, 2001] [Thomas et al, 2019]

$$Kn = \frac{2\lambda_f}{d_p}$$

Où  $\lambda_f$  est égal à  $6,65 \cdot 10^{-2} \mu\text{m}$  (pour l'air à  $20^\circ\text{C}$  et 1 atm, pour un fluide assimilable à un gaz) et  $d_p$  en  $\mu\text{m}$ .

Ainsi, le nombre de Knudsen permet de distinguer dans quel domaine de continuité évoluent les aérosols, domaines définis ci-après. Dans ces domaines, les mécanismes régissant l'évolution des aérosols seront différents les uns des autres. Les aérosols de diamètre supérieur à  $1 \mu\text{m}$  seront soumis à la pesanteur et donc à la sédimentation, tandis que pour des diamètres inférieurs la diffusion jouera un rôle plus important [Renoux et Boulaud, 1998] :

- Quand  $\text{Kn} \ll 1$  : le milieu est considéré comme continu [Renoux et Boulaud, 1998], cela signifie que la distance moyenne parcourue par une molécule entre deux collisions est très inférieure à la taille des aérosols (de l'ordre du  $\mu\text{m}$ ). Le fluide vecteur peut être considéré comme homogène par rapport aux dimensions des aérosols et la résistance du milieu au mouvement des aérosols peut s'exprimer en fonction des paramètres macroscopiques du milieu (masse volumique, viscosité dynamique) [Thomas et al., 2019]
- Quand  $\text{Kn} \gg 1$  : le milieu n'est plus considéré comme continu (milieu moléculaire) car les collisions entre les molécules de gaz sont plus rares par rapport aux collisions gaz-aérosols qui entraînent un mouvement aléatoire des aérosols. Les dimensions des aérosols (du nm à la dizaine de nm) sont nettement inférieures aux dimensions du fluide et les aérosols sont soumis à la diffusion Brownienne. La résistance du milieu au mouvement des aérosols sera donc dépendant de l'agitation thermique, de la masse et de la concentration en molécule de gaz.
- Quand  $\text{Kn} = 1$  : le domaine est appelé domaine mixte ou transitoire, cela signifie que la taille des aérosols (dans l'air dans des conditions standard : la taille du domaine est de  $0,1 \mu\text{m}$  et  $1 \mu\text{m}$ ) est du même ordre de grandeur que les vides intermoléculaires [Laborde, 2005]. Le milieu ne peut plus être considéré comme continu car il y a l'apparition de discontinuités interfaciales qui provoquent une diminution des forces de frottement (forces de traînée) qui agissent sur les aérosols [Rouspard, 2013]. Cette réduction peut être imaginée par un effet de glissement des molécules de gaz sur la surface des particules au lieu de rentrer en collision. Pour corriger cet effet, un coefficient correcteur est appliqué : le coefficient de Cunningham (facteur de glissement) qui dépend directement du diamètre des aérosols.

#### 2.1.4 Mise en suspension.

La mise en suspension de particules et son étude est un sujet large qui apparaît dans de nombreux domaines allant de l'agroalimentaire aux procédés pharmaceutiques en passant par le domaine de la sûreté nucléaire [Ansoborlo, 1997] [Witschger, 1999] [Xu et al, 2010].

Il existe plusieurs façons de mettre des particules en suspension : sous l'action d'un fluide vecteur, lors d'une chute d'un tas de poudre pulvérulente, sous l'effet d'une vibration, [Sutter et al, 1983] [Benabed, 2017] ou encore suite à une explosion pour les scénarii les plus pénalisants [Eckhoff, 1997] [Eckhoff, 2006].

Une fois en suspension, les particules parcourront des distances plus ou moins longues en fonction de leur taille, densité... Elles sont susceptibles de transporter des contaminants qui leur sont associés et ainsi représenter un risque important pour l'homme (ingestion ou inhalation).

Il existe trois principaux modes mise en suspension de particules qui dépendent de la taille des particules [Nickling, 1994], voir Figure 9.

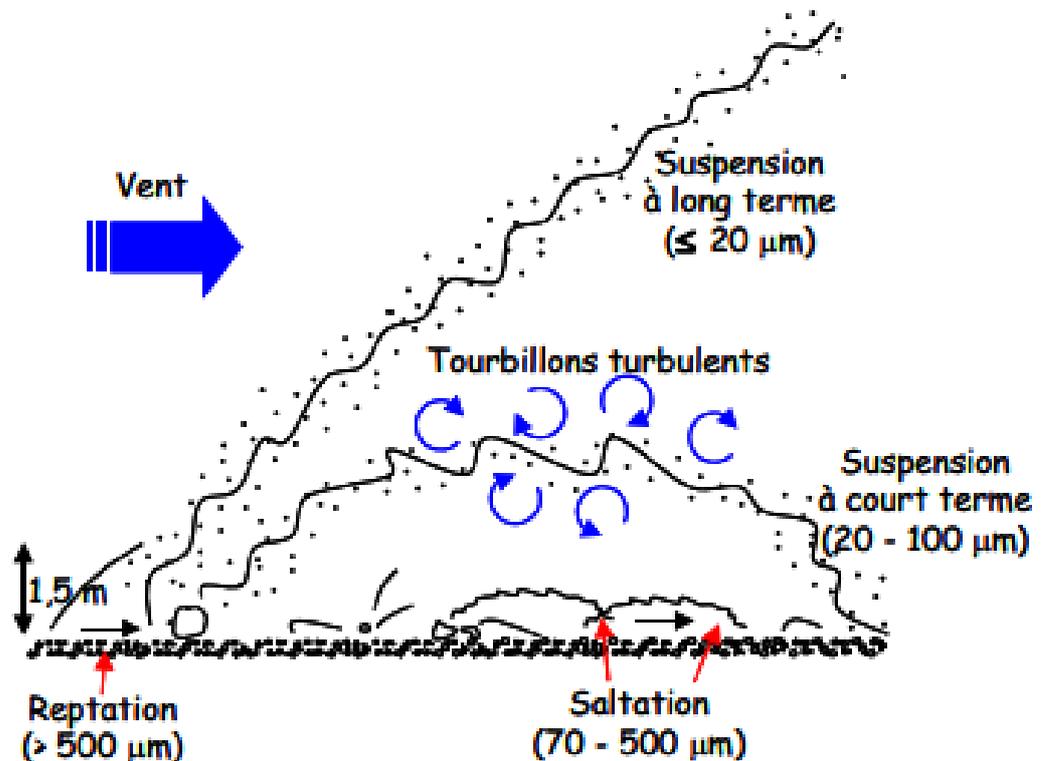


Figure 9 : Différents types de transport de particules, figure extraite de [Alloul-Marmor, 2002] d'après [Nickling, 1994].

- La reptation concerne les particules les plus grosses (sup à 500  $\mu\text{m}$ ) qui ne peuvent être soulevées par le flux de gaz. Elle correspond aux particules poussées par l'impact des grains en saltation et qui roulent le long de la surface.
- La saltation concerne les particules dont la taille dépasse la centaine de  $\mu\text{m}$  de diamètre. Elle est définie comme un déplacement par bonds successifs des particules.
- La suspension concerne les particules de tailles inférieures à 100  $\mu\text{m}$  (taille limite des aérosols [Renoux et Boulaud, 1998]). Les particules sont transportées en suspension et maintenues dans l'air et parcourent des distances plus ou moins longues avant de se déposer sur une surface.

Pour caractériser au mieux la mise en suspension de particules (dans le cas des poudres notamment), on peut utiliser des coefficients dits de mise en suspension [Alloul-Marmor, 2002] :

Fraction mise en suspension ( $Fms$ ), qui se définit par le rapport entre la quantité totale de poudre en suspension ( $\Delta m$  soit  $m_i - m_f$ ) et la quantité initiale de cette même poudre ( $m_i$ ).

$$Fms = \frac{\Delta m}{m_i}$$

Ce coefficient est principalement utilisé lorsque la mise en suspension évolue peu dans le temps ou sur une période définie.

Le taux de mise en suspension ( $T_R$ ) correspond à une quantité de poudre mise en suspension ( $\Delta m$ ) par unité de temps ( $\Delta t$ ) sur la quantité initiale ( $m_i$ ) de la poudre. Il exprime donc la fréquence avec laquelle la matière est mise en suspension.

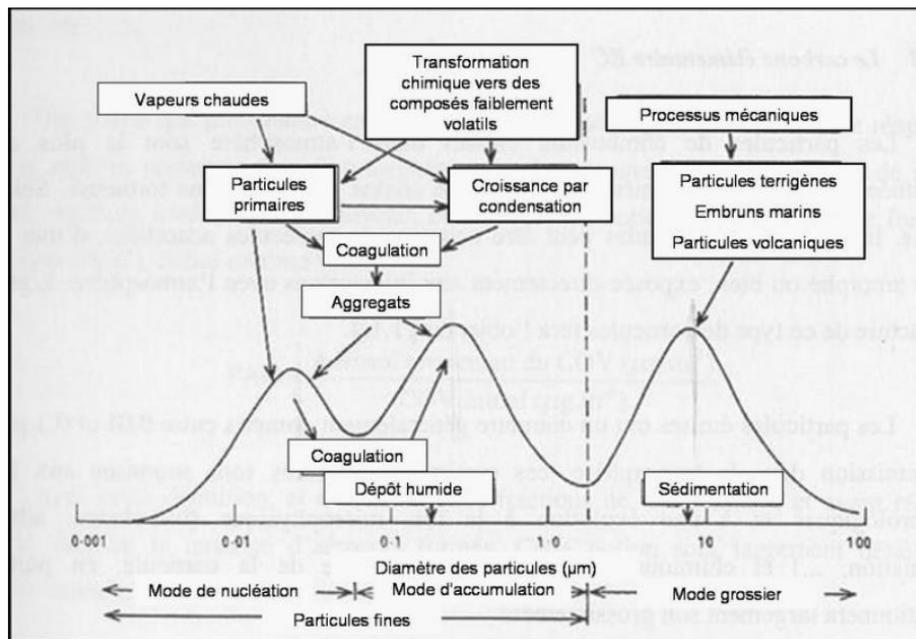
$$T_R = \frac{\Delta m}{m_i \Delta t}$$

### 2.1.5 Physique et métrologie des aérosols.

La mise en suspension des particules résulte d'une compétition entre des forces d'adhérence et des forces aérodynamiques sur les aérosols. Cette compétition met en jeu un ensemble de paramètres (surface de dépôt, physique des aérosols, fluide vecteur...) qui sera étudié dans les parties suivantes.

### Mécanismes d'évolution des aérosols

Les aérosols ne sont pas des entités stables dans le temps. En effet, leur évolution est provoquée par un certain nombre de mécanismes intra-particulaires (coagulation...) et de mécanismes d'interaction entre l'aérosol et la surface (sédimentation, impaction, inertie...) [Bémer et al, 2006] [Narayanam, 2020] [Darquenne, 2020]. Ces mécanismes sont représentés dans la Figure 10 où on peut voir la répartition des tailles des particules selon les mécanismes.



**Figure 10 : Terminologie pour une population d'aérosols et processus régissant l'évolution d'une population d'aérosols. <https://omer7a.obs-mip.fr/mallete/fiches/Physique-des-ae-rosols.html>.**

### Mécanismes inter-particulaires

Comme on peut le voir dans la Figure 10, il existe plusieurs processus inter-particulaires responsables de l'évolution des aérosols modifiant la quantité de particules ainsi que leur taille :

- La nucléation : ce phénomène permet la création de nouveaux aérosols au sein de la population. Ce phénomène est principalement présent pour les aérosols très fins (inférieurs à  $1 \text{ µm}$ ), et il correspond à une transformation d'une phase vers une autre, par exemple liquide vers solide.
- La coagulation : ce phénomène très courant est par définition l'agglomération de particules avec une ou plusieurs autres particules [Ranade, 1987], ce qui entraîne une diminution de la concentration en aérosols dans le milieu et une augmentation des diamètres moyens.

- La condensation : ce phénomène se traduit par la fixation d'une espèce gazeuse sur les particules et a pour conséquence de modifier la taille des particules (grossissement) sans modifier leur concentration.
- L'adsorption et désorption : l'adsorption, phénomène de surface durant lequel des molécules de gaz ou de liquide se fixent sur des surfaces solides adsorbantes. Le phénomène inverse est donc la désorption. Ces derniers induisent des modifications sur les formes des aérosols sans pour autant modifier leur concentration.

### Mécanismes particules-surface

En plus des mécanismes inter-particules, il existe des mécanismes particules-surface responsables de l'arrêt des particules lors de leur déplacement. Ils peuvent correspondre à un dépôt sec ou humide qui entrainera une diminution de la concentration en particules dans le milieu. Les aérosols les plus proches d'une surface se déposeront sous les effets conjugués de plusieurs mécanismes comme : la diffusion brownienne, l'effet d'une force (sédimentation gravitationnelle, thermophorèse...) ou lors de la rencontre avec un obstacle (l'interception et l'impaction inertielle) [Ranade, 1987] [Renoux et Boulaud, 1998] [Narayanam, 2020] [Darquenne, 2020]. Ces mécanismes de dépôt auront une importance différente principalement selon la taille et la masse volumique des particules ainsi que les propriétés physiques du gaz vecteur. [Darquenne, 2020] précise que les principaux mécanismes responsables de l'arrêt des particules sont la diffusion brownienne, l'impaction et la sédimentation sous l'effet de la gravitation.

### Diffusion Brownienne

Pour un  $Kn \gg 1$  correspondant au domaine moléculaire, les aérosols sont animés de déplacements aléatoires résultants de l'agitation moléculaire conduisant au déplacement des particules.

Le coefficient de diffusion  $D_F$  donné par l'expression suivante définit la capacité des particules à se déplacer sous l'effet de la diffusion.

$$D_F = \frac{k_B T C u}{3\pi\mu_f d_p}$$

- $k_B$  : constante de Boltzmann ( $1,381 \cdot 10^{-23} \text{ J.K}^{-1}$ ).
- $\mu_f$  : viscosité dynamique du gaz (Pa.s).
- $T$  : température du gaz (K).
- $d_p$  : taille des aérosols (m).
- $C_u$  : coefficient de Cunningham.

Comme il est indiqué dans l'expression,  $D_F$  est inversement proportionnel à la taille des particules. Cela veut donc dire que  $D_F$  est d'autant plus grand que la taille des particules est faible. Le Tableau 1 présente des coefficients de diffusion  $D_F$  calculés à partir de l'équation précédente pour certaines tailles de particules dans des conditions ambiantes ( $T = 20^\circ\text{C}$ ) et dans l'air.

**Tableau 1 : Exemple de coefficients de diffusion calculés à partir de l'équation précédente.**

$D_p$ ( $\mu\text{m}$ )	0,1	1	10	40	100
$D_F$ ( $\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ )	$6,96 \cdot 10^{-10}$	$2,78 \cdot 10^{-11}$	$2,32 \cdot 10^{-12}$	$5,80 \cdot 10^{-13}$	$2,30 \cdot 10^{-13}$

Il est également possible de déterminer l'importance de la diffusion par rapport aux autres mécanismes de dépôt par l'utilisation du nombre de Peclet (Pe). [Renoux et Boulaud, 1998] [Ranade, 1987] [Maro, 2011]. Il correspond au produit du nombre de Reynolds et du nombre de Schmidt et s'écrit de la façon suivante:

$$Pe = ReSc = \frac{U_e L}{2D_f}$$

- $Re$  : Nombre de Reynolds donné par l'expression  $Re = \frac{U_e L}{2\nu_f}$
- $Sc$  : Nombre de Schmidt donné par l'expression  $Sc = \frac{\nu_f}{D_f}$

Où

- $U_e$  correspond à la vitesse relative de l'écoulement par rapport à l'obstacle ( $\text{m.s}^{-1}$ )
- $L$  correspond à la longueur caractéristique de l'obstacle (m)
- $\nu_f$  correspond à la viscosité cinématique du fluide

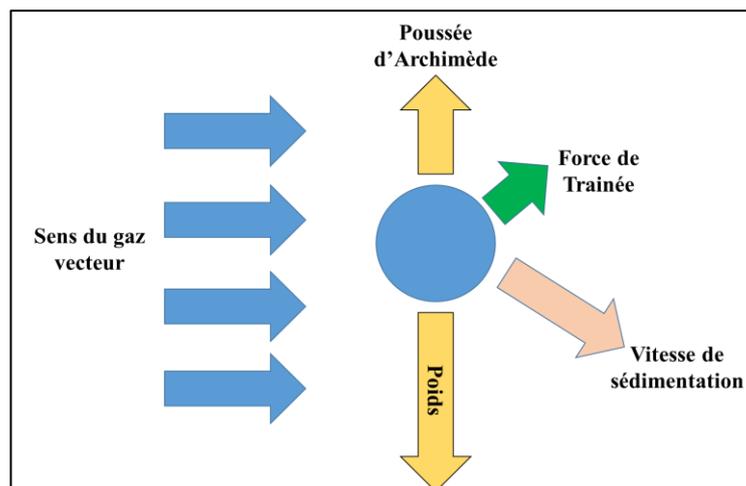
Ainsi plus le nombre de Peclet sera petit plus le mécanisme de dépôt par diffusion prédominera.

### La sédimentation gravitationnelle

Pour un  $Kn \ll 1$  (particules de taille inférieure à  $0,1 \mu\text{m}$  [Thomas et al., 2019]), correspondant au domaine continu, les particules ont des tailles plus importantes et les mécanismes de diffusion et de coagulation sont négligeables face aux forces extérieures (gravité, différence de charges électriques ou température) [Hinds 1999].

La sédimentation correspond au dépôt horizontal des particules sous l'action de la gravité, plus précisément sous l'effet de la force de pesanteur. Lors de leur chute, les aérosols atteindront une vitesse de chute limite appelée vitesse de sédimentation, atteinte lors de l'équilibre des forces de pesanteur et des forces de trainées (opposées aux forces de pesanteur).

De plus, dans ce domaine, le fluide est considéré comme continu et supposé en régime laminaire (dans le cas où la vitesse des aérosols est faible). Il est possible d'établir le bilan de force présenté dans la Figure 11 :



**Figure 11 : Bilan schématique des forces s'appliquant sur une particule durant son transport dans un gaz.**

Dans le cas de vitesses de particules faibles ( $<1 \text{ m/s}$ ), et pour un écoulement laminaire [Maro, 2011], la force de trainée  $F$  qui correspond à la résistance du milieu au mouvement des aérosols est donnée par l'équation de Stokes :

$$F = 3\pi d_p \mu_f V_s$$

- $\mu_f$  : viscosité dynamique du milieu.
- $d_p$  : diamètre des particules.
- $V_s$  : vitesse de sédimentation.

En s'appuyant sur la formule précédente, la force de trainée sera d'autant plus importante que la taille  $d_p$  et la vitesse des aérosols  $V_s$  est grande.

Par ailleurs, en considérant un aérosol sans vitesse initiale et tombant sous l'effet de son poids, celui-ci subira une force de pesanteur P, résultant de la force de gravité et de la poussée d'Archimède :

$$P = \frac{4}{3} \pi r_p^3 \cdot (\rho_p - \rho_f) \cdot g$$

- $\rho_p$  : masse volumique de la particule.
- $\rho_f$  : masse volumique du fluide.

A l'équilibre entre les forces de trainée (F) et de pesanteur (P), les aérosols atteindront la vitesse limite de chute, appelée vitesse de sédimentation ( $V_s$ ), dont l'expression, tirée des deux équations précédentes, est la suivante :

$$V_s = \frac{d_p^2 (\rho_p - \rho_f)}{18 \mu_f} \cdot g$$

Cette vitesse de chute peut également être appelée vitesse de Stokes car dans ce cas précis  $\rho_p \gg \rho_f$ . L'expression de la vitesse de sédimentation montre la forte influence du diamètre des particules (la vitesse est proportionnelle au carré du diamètre des aérosols). Des exemples de calculs de vitesse de sédimentation pour deux types de particules (PuO<sub>2</sub> et fluorescéine) sont présentés dans le Tableau 2.

**Tableau 2 : Calculs des vitesses de sédimentation pour des particules d'oxyde de Plutonium ( $\rho_p$  de 11.5 g/cm<sup>3</sup>) et de fluorescéine ( $\rho_p$  de 0,78 g/cm<sup>3</sup>) de diamètre ( $d_p$ ) différent.**

$d_p$ (μm)	0,1	1	10	40	100
$V_s$ Fluo (m/s)	2,29*10 <sup>-07</sup>	2,29*10 <sup>-05</sup>	2,29*10 <sup>-03</sup>	3,67*10 <sup>-02</sup>	2,29*10 <sup>-01</sup>
$V_s$ PuO <sub>2</sub> (m/s)	3,39*10 <sup>-06</sup>	3,39*10 <sup>-04</sup>	3,39*10 <sup>-02</sup>	5,42*10 <sup>-01</sup>	3,39

Les calculs de vitesse de sédimentation du Tableau 2 ont été effectués avec comme valeurs :  $\rho_f$  pour l'air à 1,204 kg.m<sup>-3</sup> ;  $\mu_f$  pour l'air à 1,85.10<sup>-5</sup> kg.m<sup>-1</sup>.s<sup>-1</sup>.

Il est ainsi déduit que dans un même fluide, les particules possédant les diamètres et les masses volumiques les plus importants auront tendance à être déposées en premier par rapport aux

particules de plus petites tailles et de masse volumique plus faibles qui parcourront de plus grandes distances en supposant uniquement un dépôt par sédimentation.

### L'impaction inertielle

Inversement à l'interception, les aérosols possédant une inertie importante seront plus sensibles aux changements de direction. C'est-à-dire que les aérosols ne suivront pas la direction de l'écoulement et continueront leur chemin selon leur inertie imposée par le fluide. Ainsi, à l'approche d'un obstacle, les aérosols pourront s'impacter et cette inertie sera d'autant plus importante que la taille des aérosols est grande [Darquenne, 2020]. Ce mécanisme est principalement prépondérant pour les particules supérieures à  $1\mu\text{m}$  [Thomas et al., 2019].

Comme pour le mécanisme d'interception, il est possible de caractériser l'impaction grâce au nombre de Stokes donné par l'expression suivante [Maro, 2011] :

$$St = \frac{d_p^2 \rho_p U_f C_u}{18 \mu_f L}$$

- $U_F$  : vitesse du fluide
- $L$  : longueur caractéristique de l'obstacle

Ce nombre permet donc de préciser si un aérosol va avoir tendance à suivre les lignes de courant du fluide ou à s'impacter sur l'obstacle. Plus le nombre de Stokes est grand, plus le transport inertiel est efficace et donc plus les particules sont susceptibles d'être déposées par impaction inertielle.

### L'interception

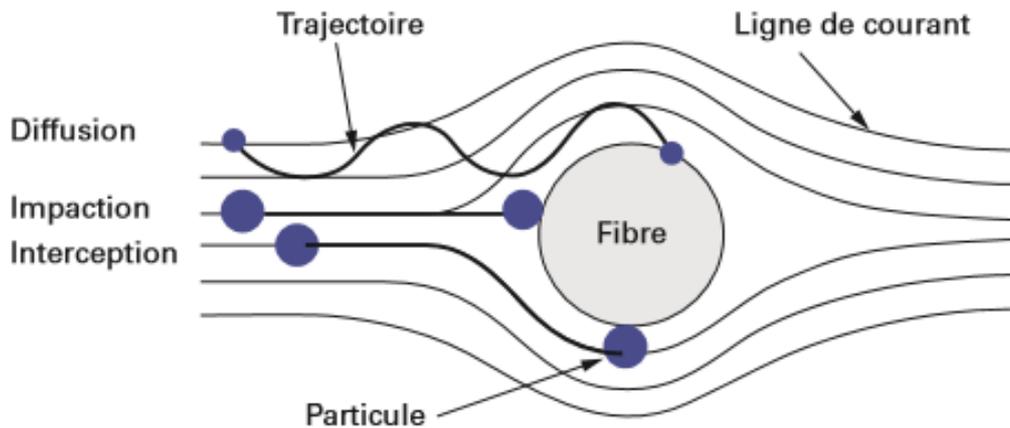
Lorsque les particules transportées par le fluide vecteur ont une faible inertie, elles auront tendance à suivre les lignes de courant imposées par ce dernier. Ainsi, quand les particules passeront près d'un obstacle à une distance inférieure au diamètre des aérosols, ces derniers se heurteront à l'obstacle et seront retenus [Darquenne, 2020]. Ce mécanisme d'arrêt concerne les particules de taille supérieure à  $0,1\mu\text{m}$  [Thomas et al., 2019] et est donc impacté par le diamètre des particules et par les dimensions des obstacles. Le nombre d'interception ( $K$ ) donné par [Maro, 2011] permet de caractériser le mécanisme d'interception :

$$K = \frac{d_p}{D_0}$$

Où  $D_0$  correspond au diamètre de l'obstacle.

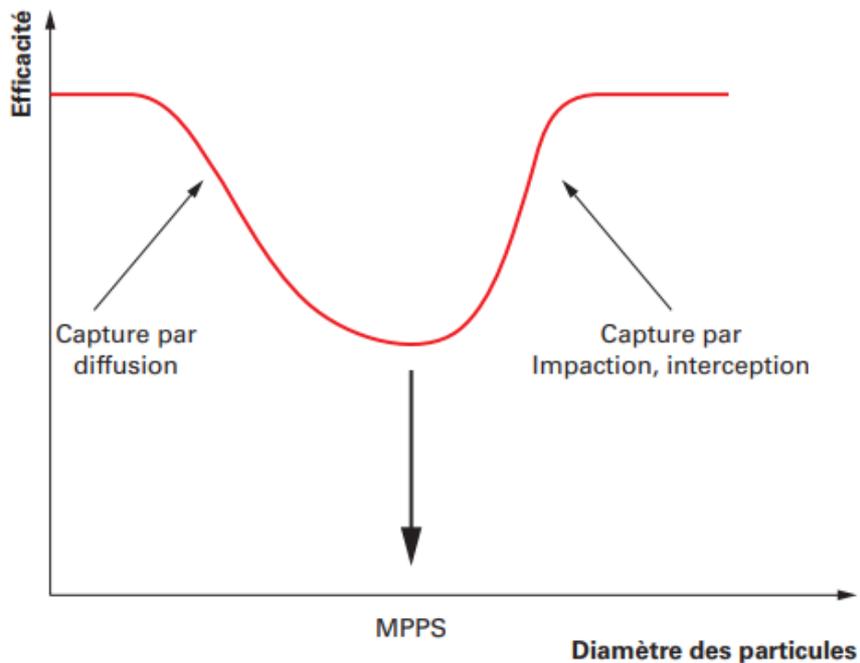
Pour des dimensions d'obstacles fixe, le nombre d'interception augmente avec le diamètre ( $d_p$ ) des aérosols.

Les trois mécanismes de dépôt précédemment présentés sont rappelés dans la Figure 12 dans le cas d'un dépôt sur un filtre.



**Figure 12 : Schématisation de l'interception, l'impaction et de la diffusion sur une fibre d'un filtre [Thomas et al., 2019]**

La représentation graphique du rendement de collecte (dans le cas d'un filtre par exemple) en fonction du diamètre des particules, (Figure 13), illustre une courbe caractéristique appelée courbe en V.



**Figure 13 : Evolution type de l'efficacité fractionnelle du rendement de collecte d'un filtre à fibre. Courbe en V traduisant le comportement des aérosols [Thomas et al., 2019]**

Cela s'explique par une zone de transition pour des particules de 0,1  $\mu\text{m}$  et 1  $\mu\text{m}$  environ où le rendement de collecte (dépôt) est le plus faible car à cette taille de particule aucun mécanisme de diffusion ou d'interception n'est prépondérant [Thomas et al., 2019]. Cette gamme de taille de particules est ainsi appelée « taille de la particule la plus pénétrante » ou « MPPS » (Most Penetrating Particle size). Cependant, ce même rendement de collecte augmente quand la taille des particules diminue (à partir de 0,1  $\mu\text{m}$ ) car le mécanisme de dépôt par diffusion devient prépondérant. Quand la taille des particules augmente, à partir de 1  $\mu\text{m}$ , le rendement de collecte augmente car les mécanismes de dépôt par impaction inertielle et par interception deviennent prépondérants.

Quels que soient les obstacles rencontrés par les aérosols (filtre, arbre respiratoire...), la représentation graphique de n'importe quelle grandeur décrivant le dépôt des aérosols (déplacement par unité de temps, rendement de collecte...) en fonction du diamètre des particules donnera cette même courbe caractéristique en V.

#### Autres mécanismes

D'autres mécanismes peuvent être responsables de l'arrêt de particules : thermophorèse, électrostatiques, forces d'adhésion... Leur description n'est pas plus développée dans cette synthèse en raison d'une première attention focalisée sur les mécanismes principaux décrits ci-dessus.

## 2.2 LES MATERIAUX CIMENTAIRES.

### 2.2.1 Généralités.

La pâte cimentaire est un liant hydraulique. Il s'agit d'une matière inorganique broyée qui, lorsqu'elle est mélangée avec de l'eau, donne une pâte qui durcit grâce à des réactions d'hydratation et qui conserve sa résistance et sa stabilité sous l'eau. Les pâtes cimentaires ont une composition minéralogique complexe, présentée dans la Figure 14, qui évolue notamment selon la composition du ciment et du temps d'hydratation (voir Figure 15).

Phases	Composition
Ettringite (AFt)	$3\text{CaO} \cdot \text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 3\text{CaSO}_4 \cdot 32\text{H}_2\text{O}$
Monosulphate (Afm)	$3\text{CaO} \cdot \text{Al}_2\text{O}_3 \cdot \text{CaSO}_4 \cdot 12\text{H}_2\text{O}$
Hydrogrenat (s.s)*	$3\text{CaO} \cdot \text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O} - 3\text{CaO} \cdot \text{Fe}_2\text{O}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$
Portlandite (CH)	$\text{Ca}(\text{OH})_2$
Hydrotalcite (HT)	$4\text{MgO} \cdot \text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 10 \text{H}_2\text{O}$
Brucite (MH)	$\text{Mg}(\text{OH})_2$
CSH	$(0.9-1.7)\text{CaO} \cdot \text{SiO}_2 \cdot x\text{H}_2\text{O}$

\*s.s. = solution solide

Figure 14 : Principales phases cimentaires existantes.

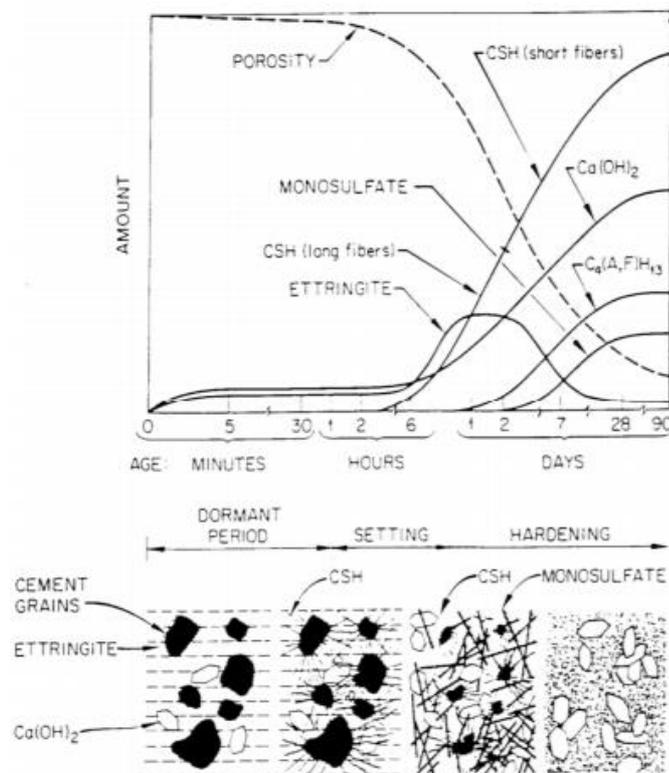
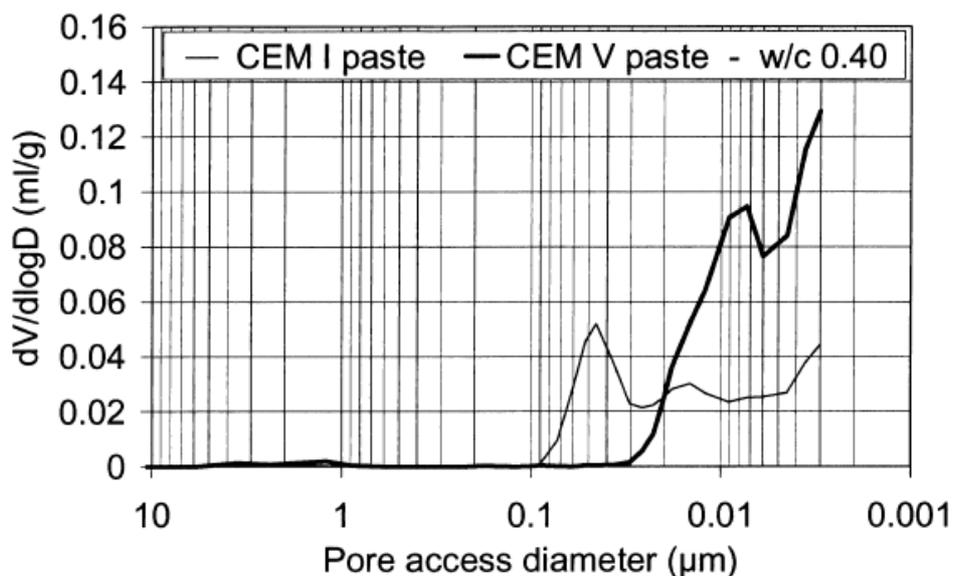


Figure 15 : Evolution des phases du ciment au cours de son hydratation [Neilson, 1985].

Le ciment Portland est le liant hydraulique le plus communément utilisé. C'est une poudre anhydre composée essentiellement de clinker avec ajout de sulfate de calcium (95%). Le clinker est obtenu par cuisson à 1450°C à partir d'un mélange d'argile et de calcaire. Il est possible de réduire la part de clinker dans le ciment par l'ajout de fumée de silice, de cendres volantes, de pouzzolanes ou de laitier de haut fourneau. Ces ajouts vont modifier les propriétés du matériau en fonction de leur nature et de leur concentration. Il en découle une catégorisation des ciments en 5 classes [Taylor, 1997]. Parmi ceux-ci, les ciments CEM V sont des ciments de très haute performance (THP) qui correspondent à des ciments composés. Ils contiennent du clinker Portland (40 à 64%), du laitier de haut fourneau (18 à 30%), des cendres volantes ou pouzzolanes naturelles (18 à 30%) et d'autres constituants (0 à 5%). C'est ce type de ciment qui est utilisé pour l'enrobage des déchets type MAVL et dans notre étude.

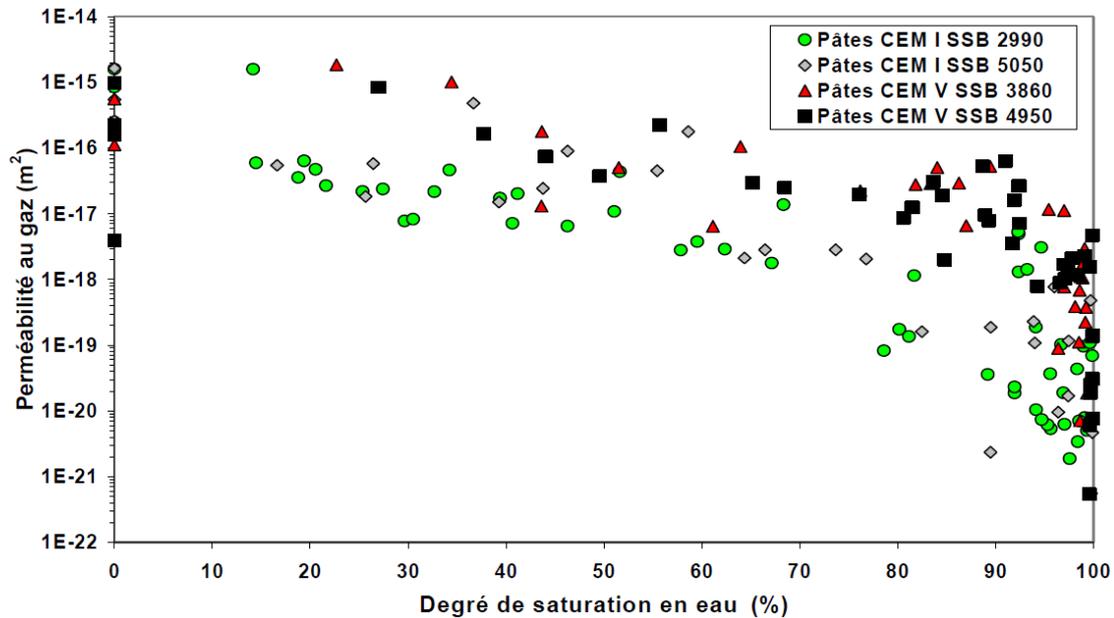
### 2.2.2 Propriétés des pâtes de ciment CEM V.

Les mesures au porosimètre à mercure permettent de déterminer les diamètres d'accès moyen aux pores, ainsi que la porosité globale alors accessible via ces passages. Des mesures réalisées sur des pâtes cimentaires pour des ciments type CEM I et CEM V, voir [Gallé, 2001], sont reportées dans la Figure 16. Ainsi, pour la pâte CEM V, la porosité est accessible au travers de diamètres d'accès aux pores inférieurs à 30 nm, avec une part importante des valeurs inférieures à 6 nm. (Figure 16). Au vu de ces valeurs, il est compréhensible que le mortier à base de ciment CEM V constitue un filtre efficace pour prévenir du relâchement de particules.



**Figure 16 : Courbe représentant la taille des pores présents dans les mortiers selon le ciment utilisé [Gallé, 2001].**

Des mesures de perméabilité réalisées sur le même type de pâte cimentaire, (Figure 17), montrent une grande disparité dans les valeurs, du fait qu'elles sont très faibles surtout lorsque le taux de saturation du mortier est encore élevé (supérieur à 90 %). Ces valeurs sont faibles, principalement du fait que le réseau poral est nanométrique.



**Figure 17 : Evolution de la perméabilité au gaz apparente de pâtes de ciment CEM I et CEM V en fonction de la saturation en eau. Figure issue de Ritchet et al. [2004].**

### 2.2.3 Les origines des phénomènes de fissuration.

#### Origines mécaniques

Les fissures d'origines mécaniques sont produites par des effets de compression, traction, d'un choc ou sous l'effet du poids d'un chargement sur le matériau. Dans le cadre des colis de déchets, le mortier CEM V THP permet justement leur empilement avec un niveau défini à l'avance. Les origines mécaniques potentielles de création de fissures étudiées dans les études de sûreté sont celles d'un choc produit lors d'une chute (voir essai de chute réalisé sur un conteneur inactif B2.1, Figure 4)

#### Origines physico-chimiques

Plusieurs mécanismes physico-chimiques peuvent être responsables de la fissuration d'un mortier et sont largement documentés dans la littérature. Les dosages des constituants du mortier (rapport eau/ciment, quantité et nature du sable, adjuvant, retardateur...) ainsi que les

déchets autorisés ou non dans les colis, sont dimensionnés pour les prévenir. Ces mécanismes sont détaillés ci-dessous.

- Le retrait : phénomène de variations dimensionnelles provoqué par des phénomènes physiques pouvant conduire à la fissuration du mortier [Monge, 2007]. Quatre formes de retrait existent et peuvent être évitées par une étude préalable de la préparation du mortier :
  - Le retrait de séchage, encore appelé retrait de dessiccation. Il correspond à l'évaporation de l'eau résiduelle contenue dans les pores du mortier à partir de la surface en contact avec de l'air ambiant qui a une humidité moins importante [Aïtcin et al, 1998] [Belhamri et Remache, 2008].
  - Le retrait plastique, le premier à se manifester [Monge, 2007]. Il correspond à l'évaporation d'eau de gâchage alors que le mortier est encore dans son état plastique [Souche, 2015]. Le retrait plastique est à l'origine de fissures peu profondes en surface [Monge, 2007] qui dépendent entre autres de l'humidité ambiante ou d'un excès d'eau dans le mortier.
  - Le retrait endogène, aussi appelé retrait par auto-dessiccation. Il se produit au cours de l'étape d'hydratation où le volume des hydrates formés est plus petit que le volume de l'eau et des phases anhydres (contraction Le Chatelier) [Ismeil,2006]. Le retrait endogène est notamment influencé par le rapport Eau/Ciment [Monge, 2007] mais aussi par la température [Mounanga, 2003].
  - Le retrait thermique ou concentration thermique est causé par l'augmentation de la température du mortier lors de la réaction d'hydratation (réaction exothermique). Ce retrait concerne uniquement les pièces massives (bloc de fondation par exemple) [Monge, 2007]
- Le ressuage correspond à un relâchement de l'eau contenue dans le mortier quand celui-ci est encore à l'état frais. Sous l'effet de la gravité, les grains de mortier s'enfoncent et se tassent faisant remonter l'eau à la surface du mortier. Le ressuage dépend directement de la quantité d'eau utilisée pour la formulation du mortier. Ce phénomène entraîne le tassement du mortier et donc la formation de fissures. Comme pour le retrait, une étude préalable de la préparation du mortier peut éviter que ce mécanisme se produise.
- Le cycle gel-dégel agit sur l'eau résiduelle contenue dans le mortier dans son état solide final. Les températures basses peuvent provoquer un gel de cette eau résiduelle et entraîner un accroissement du volume (passage de l'état liquide à solide). Des conditions d'entreposage et de stockage permettent de prévenir de ce type de dégradation.

- Phénomènes d'expansion par réactions chimiques : corrosion des éléments métalliques (exemple avec l'aluminium [Lahalle, 2016]) ou apport d'ions par des eaux de contact (sulfates entraînant la formation d'ettringite secondaire par exemple). La limitation des quantités de métaux réactifs dans les colis ainsi qu'un entreposage en hangar permettent de prévenir de ce type de dégradation.

### 2.3 ETUDES DU TRANSPORT DE PARTICULES.

Deux études spécifiques ont été menées pour quantifier le transport de particules au travers de fissures générées directement dans un échantillon de mortier. La première, voir [Gélain et al, 2008] et [Gélain, 2012], a porté sur la capacité de rétention d'une plaque de béton armé fissurée suite à des contraintes de type compression vis-à-vis de particules de fluorescéine, en fonction du diamètre des particules et de la vitesse du gaz vecteur.

Le montage expérimental est décrit dans la Figure 18. Les échantillons utilisés ici sont des plaques de béton fissurées de (130x77x10 cm) avec une longueur de fissure moyenne de 11,8 m. Sachant que la fissure est générée par compression, les autres paramètres géométriques tels que l'épaisseur sont inconnus. Pour cette raison, [Gélain et al, 2008] [Gélain, 2012] réalisent des études aérauliques avant les tests de transports de particules pour caler les paramètres géométriques moyen du réseau de fissures, avec notamment une estimation d'épaisseur moyenne de fissure de 67  $\mu\text{m}$ . Le montage se compose de trois parties : la première partie correspond à la chambre de production de particules de fluorescéine à concentration et taille connues. La partie centrale correspond à la paroi béton contenue entre deux boites inox pour étanchéifier le montage. Enfin, la troisième partie est composée d'un filtre THE qui récoltera les particules qui seront passées au travers de la fissure. Comme précédemment une pompe générera une dépression qui sera responsable du déplacement des particules. Les débits étudiés varient de  $10^{-4}$  à  $6.10^{-4}$   $\text{m}^3/\text{s}$ , soit de 6 à 36 L/min.

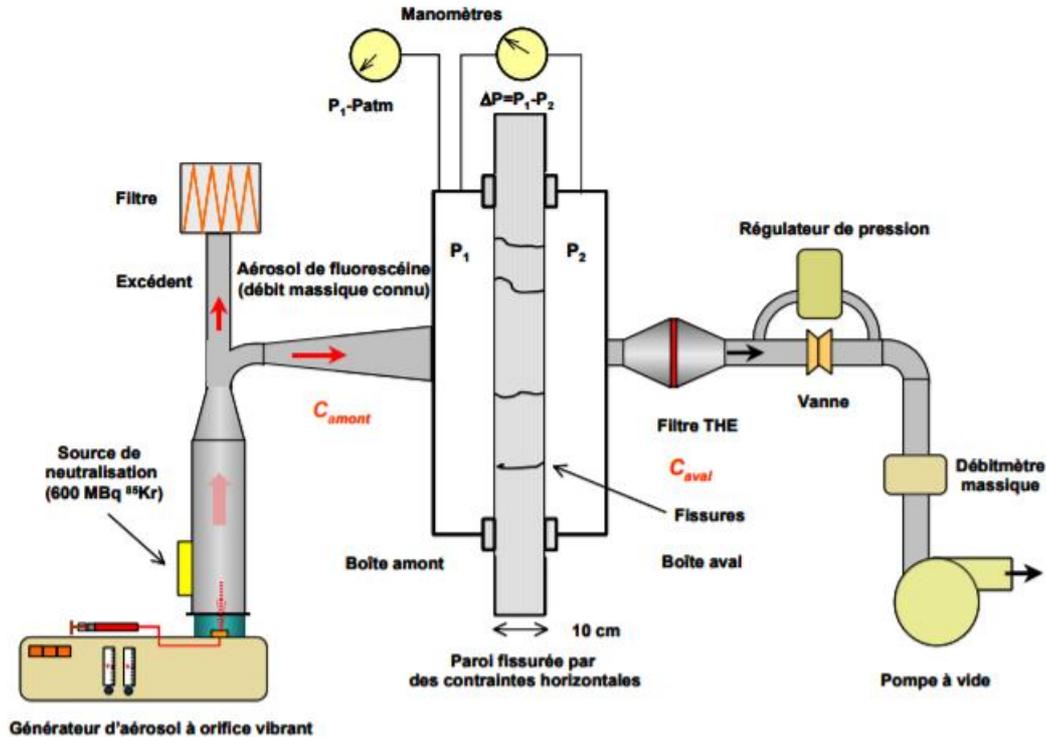
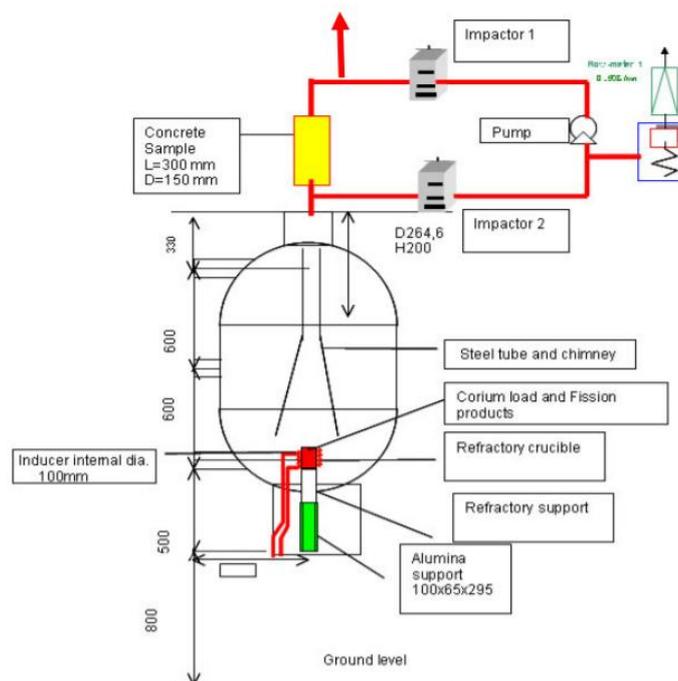


Figure 18 : Montage expérimental pour la rétention des aérosols [Gélain, 2012].

[Gélain et al, 2008] [Gélain, 2012] montrent que pour des particules de  $1 \mu\text{m}$  et pour des vitesses faibles ( $0,2 \text{ m/s}$ ) la rétention des particules est gérée par le mécanisme de sédimentation. Lorsque le débit du gaz et la taille des particules augmentent, il est constaté que la rétention des particules augmente (entre 90% et 100% pour les particules de  $2 \mu\text{m}$ ). Ce phénomène pourrait s'expliquer par une augmentation des mécanismes d'impaction à l'entrée de la fissure notamment, mais aussi à l'intérieur de celle-ci. Le modèle d'arrêt des particules finalement proposé par [Gélain, 2012] prend en compte trois types de dépôt : diffusion, sédimentation et impaction pour des écoulements laminaires.

La deuxième étude concerne le projet COLIMA, voir [Parozzi et al, 2013]. Cette étude consiste à étudier le transport de particules au travers d'une fissure de béton d'enceinte de confinement. Dans cette expérience, les aérosols sont simulés au travers d'une fonte de corium. Les conditions expérimentales sont ici très spécifiques à ce type de scénario : températures très élevées ( $3000^\circ\text{C}$ ) et une pression relative de  $+0,3 \text{ MPa}$ . Le montage expérimental est présenté dans la Figure 19.



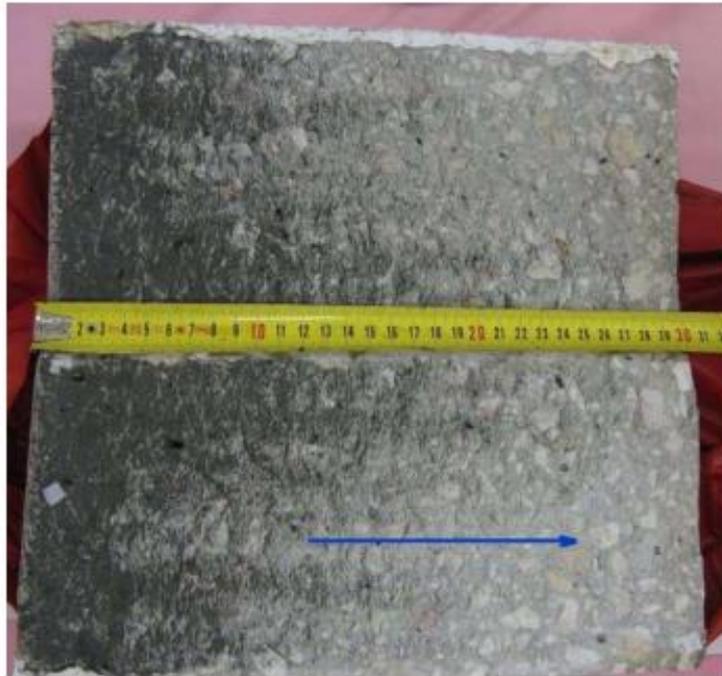
**Figure 19: Schéma du test COLIMA sur des échantillons de béton fissurés [Parozzi et al, 2013].**

Pour cette étude, l'échantillon se présente comme une carotte de mortier cylindrique de 0,13 m de diamètre et de 0,3 m de long. La carotte est fissurée par compression en deux blocs qui sont espacés en ajoutant des cales entre eux afin d'obtenir une épaisseur de fissure de 500  $\mu\text{m}$ , voir Figure 20.



**Figure 20 : (Gauche) photo montrant un échantillon se scindant en eux. (Droite) Photo de l'échantillon fissuré positionné et scellé dans le support en inox. [Parozzi et al, 2013].**

Les particules générées par la fission du corium ont un diamètre moyen de 1  $\mu\text{m}$ . Les particules sont injectées dans la fissure avec un débit de 400 NL/min. Une fois l'étape d'injection terminée, l'échantillon est détaché de son support et le dépôt de particules est observé visuellement à la surface de l'échantillon et sur les surfaces internes de la fissure, voir Figure 21.



**Figure 21 : Vue post-test des deux côtés de l'échantillon de fissure de béton. La flèche indique la direction de l'écoulement. [Parozzi et al, 2013].**

Les auteurs constatent tout d'abord que 95% des particules ont été retenues dans la fissure, principalement dans les 10 premiers centimètres. Ils constatent aussi que la rétention dépend des espèces chimiques et de leur diamètre : uniquement les plus petites particules inférieures à 0,7  $\mu\text{m}$  de diamètre aérodynamique. Plus précisément, la majeure partie des dépôts se trouve dans les 5 premiers cm de la fissure avec la présence de chemins préférentiels. Au-delà de 20 cm, les dépôts sont considérés comme négligeables. Suite à ces résultats expérimentaux, le code ECART a été utilisé pour modéliser et prédire la rétention des particules dans la fissure [Morandi et al., 2012]. [Morandi et al., 2012] obtiennent des résultats simulés en bonne cohérence avec les résultats expérimentaux. La différence la plus notable consiste en une surestimation de la quantité de particules déposées dans les 5 premiers centimètres. [Morandi et al., 2012] estiment que ces divergences sont dues aux simplifications servant à l'élaboration du modèle : les paramètres (concentration, tailles, forme et densité) des particules étant considérés comme constants dans le temps.

## 2.4 TOMOGRAPHIE A RAYONS X (CT).

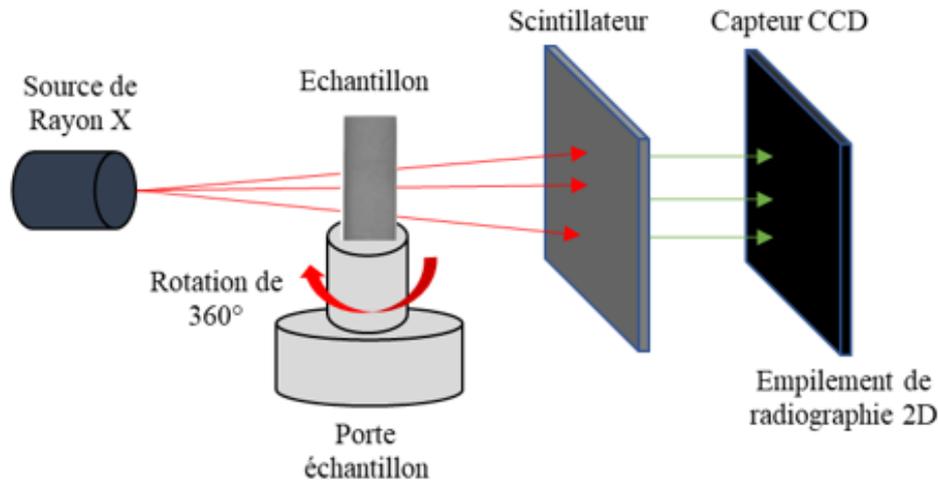
### 2.4.1 Généralité.

La tomographie RX (CT) est une technique d'imagerie non destructive utilisant les rayons X pour obtenir des descriptions 3D de la structure interne d'objets à haute résolution spatiale. La CT repose sur le même principe que la radiographie : un faisceau de rayons X est envoyé sur un objet et les rayons X transmis sont enregistrés au cours de la rotation à 360° de l'objet. Le contraste observé sur une projection correspond aux variations d'absorption des rayons X par les matériaux qui composent les objets selon leurs densités [Withers, 2021] [Brisard et al., 2020]. Ainsi plus un élément est dense plus l'absorption des rayons X sera grande.

Différents types de tomographies RX peuvent être distingués : La tomographie avec une taille de voxel ( $V_x$ )  $\geq 100 \mu\text{m}$ , la micro-tomographie RX (micro-CT)  $V_x \geq 0,1 \mu\text{m}$  et la nano-tomographie RX (nano-CT),  $V_x \sim 10 \text{ nm}$ . Comme pour les images 2D qui sont composées de pixels, les images 3D sont constituées de cubes appelés Voxels ( $V_x$ ). Les voxels sont donc l'unité de base d'une représentation numérique tridimensionnelle d'un objet.

De manière générale une CT est composée de trois parties (Figure 22). Elle est composée :

- D'une source permettant la production des rayons X. Cette source produit en général en laboratoire un rayonnement polychromatique (rayon contenant des photons avec une large gamme d'énergie) [Brisard et al, 2020].
- D'un support d'échantillon localisé entre la source et le détecteur qui peut faire une rotation de 360°.
- D'un ensemble scintillateur/capteur CCD (Charged Coupled Device). Les photons X traversant l'échantillon sont convertis en photons visibles par le scintillateur. Le capteur CCD analyse les photons transmis par le scintillateur et produit les piles d'images 2D.



**Figure 22 : Principe de la microtomographie à Rayons X [Figure inspirée de [Hong et al, 2019]**

Durant une acquisition micro-CT, des projections 2D (entre 500 et 4000 [Du Plessis et Boshoff, 2017]) sont prises pendant la rotation à 360° de l'échantillon.

Un scan de micro-CT dépend de plusieurs paramètres comme :

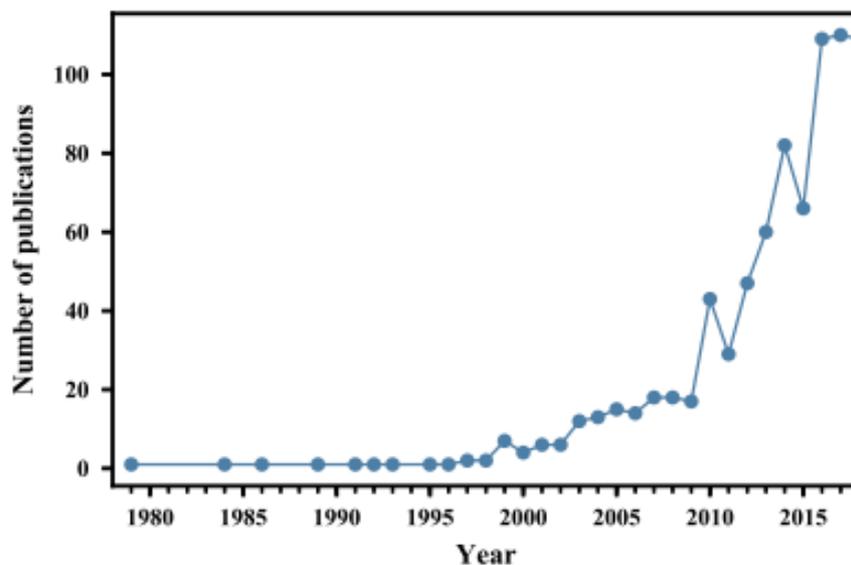
- Le temps d'acquisition qui correspond au temps nécessaire pour l'acquisition des projections 2D. Il dépend du nombre de projections et du temps d'exposition de l'échantillon au rayon X pour une projection.
- L'intensité du rayonnement X.
- La taille du voxel est définie par le rapport de la taille d'un pixel du détecteur par l'agrandissement [Brisard et al, 2020] et dicte les dimensions du champ de vision (FOV). En général, l'agrandissement de l'échantillon sur le capteur est géométrique  $\left(\frac{\text{Distance source-échantillon}}{\text{Distance détecteur-échantillon}}\right)$  mais il existe également des systèmes ajoutant un agrandissement optique grâce à l'utilisation d'objectifs de microscope optique placés en amont du capteur. On peut noter que lorsque la taille des voxels diminue, le champ de vision (FOV) diminue et le temps d'acquisition augmente.

Une fois l'acquisition terminée, les images 2D sont regroupées afin d'obtenir le volume 3D de l'échantillon : on parle de reconstruction de l'image. Cette étape de reconstruction est basée sur l'algorithme de « Feldkamp back-projection » [Du Plessis et Boshoff, 2019] et est réalisée par un logiciel constructeur souvent associé à l'appareil. On obtient donc des images 3D composées de voxels répartis sur une échelle de niveaux de gris. Cette échelle de gris traduisant l'intensité des voxels dans l'image dépend directement de la densité des éléments composant l'échantillon.

A ce stade une analyse purement visuelle est réalisable mais grâce à un logiciel de traitement d'image il est possible de réaliser des analyses quantitatives volumétriques de régions d'intérêt à l'intérieur de l'échantillon. Très souvent les procédures de traitement d'images sont spécifiques aux cas étudiés ; cependant il existe un certain nombre de modules récurrents comme la segmentation (étape la plus importante car les résultats sont conditionnés par cette étape), l'érosion/dilatation et la labélisation. Tous ces modules seront présentés plus en détail dans la partie 4.1 3.1.4

## 2.4.2 La tomographie pour les matériaux cimentaires.

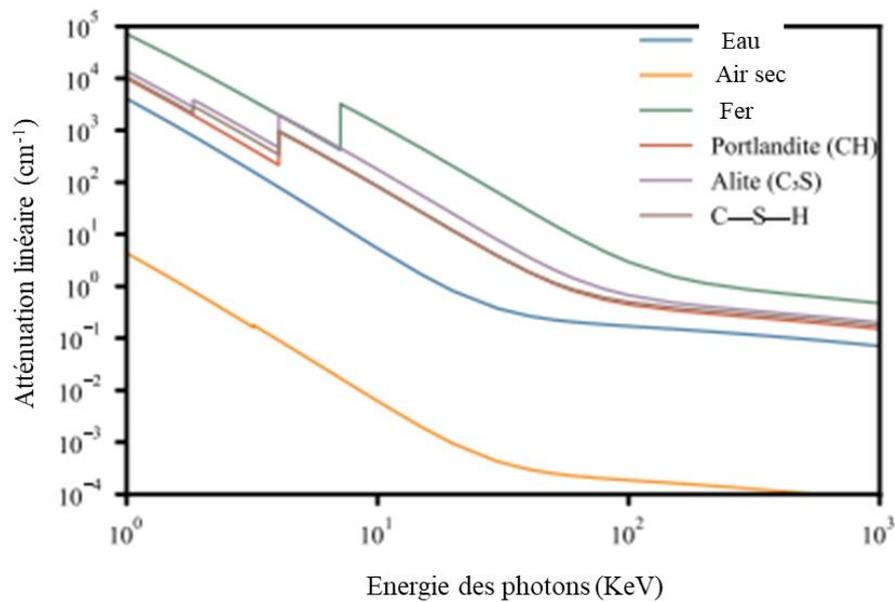
Initialement la tomographie a été utilisée pour l'application médicale. Cependant l'utilisation de la tomographie n'a fait qu'augmenter depuis les années 2000 et en particulier dans le domaine des matériaux cimentaire (Figure 23).



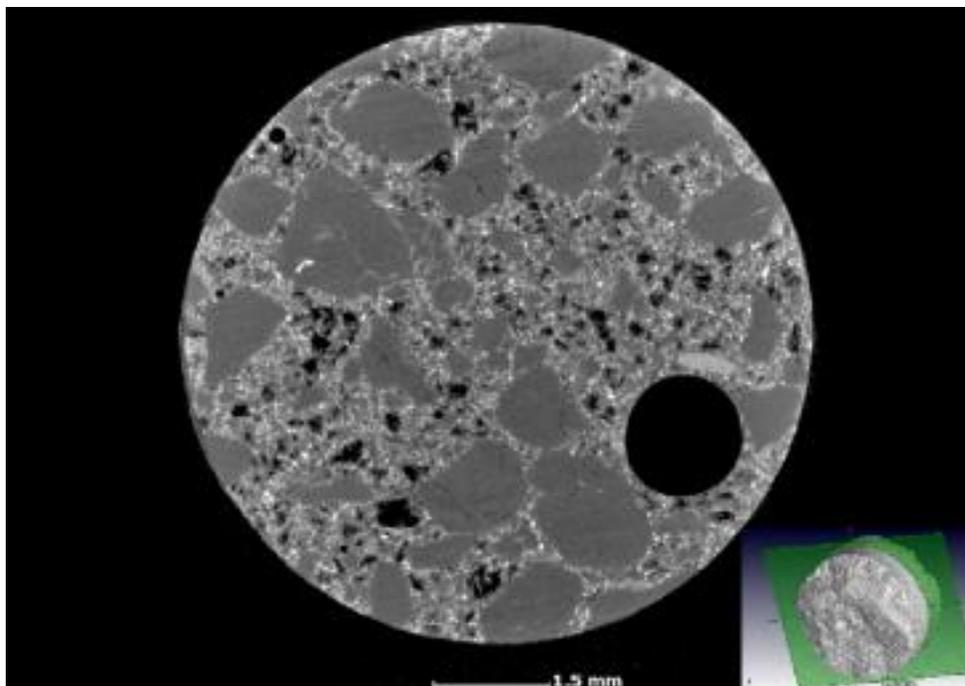
**Figure 23 : Nombre de publications par année liées à la tomographie à Rayons X dans les matériaux cimentaires. [Brisard et al, 2020].**

En effet, comme le montre la Figure 24, le contraste entre les différentes phases composant le matériau cimentaire est bien marqué pouvant faciliter le traitement d'image. Cette différence de contraste est par exemple très clairement visible avec l'air et les phases cimentaires (anhydres et hydratées). (Figure 24 et Figure 25). C'est pourquoi la tomographie semble tout indiquée pour caractériser les matériaux cimentaires. On peut citer l'analyse de la porosité interne du matériau en caractérisant la distribution de la taille des pores, leur tortuosité et connectivité par exemple. On peut citer également le suivi de l'évolution de fissures à la suite

de contraintes de pression ou cycle de gel-dégel ; ou encore le suivi de la réaction d'hydratation du ciment.



**Figure 24 : Coefficient d'atténuation linéaire entre les différentes phases pouvant exister dans les matériaux cimentaires. Il est montré la variation des coefficients en fonction de l'énergie des photons. (Figure extraite de [Brisard et al, 2020]).**



**Figure 25 : Coupe CT d'un échantillon de béton. [Figure extraite de [Du Plessis et Boshoff, 2019]]. On peut y voir en noir l'air dans un pore et en gris les différentes phases cimentaires.**

Cependant, [Brisard et al, 2020] ajoutent, dans le cas de la micro-CT, que la distinction des différentes phases solides cimentaires est un réel défi à cause d'un contraste beaucoup moins important lié à des densités relativement proches (cf Figure 24). Ils ajoutent également que la résolution spatiale actuelle de la micro-CT n'est pas suffisante pour permettre la caractérisation de l'ensemble du réseau poral qui s'étend de l'échelle microscopique à nanométrique. La nano-CT, grâce à des tailles de voxels de l'ordre de la dizaine de nanomètres, permet de répondre en partie à ce dernier point.

### **2.4.3 Exemples d'études utilisant la tomographie pour la caractérisation des ciments.**

[Promentilla et al, 2008] se sont intéressés à la connectivité des pores, à la porosité et à la tortuosité qui en découle au sein de ciments. Ils ont pour cela utilisé la technique de micro-CT par synchrotron à une résolution spatiale de 0,5  $\mu\text{m}$  (taille voxel) pour scanner des éclats de 1mm de largeur et de 1mm de longueur, obtenues par broyage. Ils ont mis au point une méthodologie permettant de caractériser l'espace poreux de pâte de ciment à des temps de durcissement différents (2, 7 et 28 jours). Ils mettent en avant le gain de la technique d'imagerie 3D pour la mesure de la porosité, la connectivité des pores et la tortuosité par rapport à l'imagerie 2D. Ils ajoutent cependant une nuance sur l'interprétation des résultats. En effet ils précisent la sensibilité de l'étape de segmentation en fonction de la valeur de seuil sélectionnée. Ils concluent finalement sur les limites de la micro-CT synchrotron où ils mettent en avant la résolution spatiale assez faible utilisée par rapport à la taille des pores capillaires de cette étude. Ils précisent néanmoins que la micro-CT est la seule technique non invasive existante et que de nouvelles études aideraient d'investiguer sur les relations entre la microstructure 3D et les propriétés de transport au sein des pâtes de ciment (perméabilité et diffusivité...).

[Lu et al, 2017] ont étudié la distribution de taille des vides d'air dans la fraction de la pâte de ciment dans le contexte des bétons légers. Ils ont mis au point une procédure de traitement d'image spécifique permettant de distinguer les vides dans la pâte de ciment des vides dans les agrégats. Pour donner une distribution de taille de pores plus précise, ils ont effectué des balayages à des résolutions différentes en utilisant une loi de puissance afin de combiner les deux balayages. La première résolution est de 55  $\mu\text{m}$ , effectuée sur un échantillon cylindrique de 50x20 (en mm, DxH) ; la deuxième résolution a été faite à 9  $\mu\text{m}$  et sur deux échantillons cylindriques de 5,58x5,62 (en mm, DxH) et 5,49x5,62 (en mm, DxH) extraits du premier. Ils concluent que les résolutions utilisées (9 et 55  $\mu\text{m}$ ) n'ont pas permis de détecter les pores les plus petits.

[Bossa et al, 2015] ont étudié la structure des pores de pâtes de ciment lixiviées à la fois à l'échelle micrométrique et nanométrique en utilisant respectivement la micro-CT de résolution spatiale de 1,81  $\mu\text{m}$  et la nanoCT de résolution spatiale de 63,5 nm. Les échantillons scannés se présentent sous la forme de bâtonnets de 5x5x15 (en mm) pour la micro-CT et de 0,4x0,4x15 (en mm) pour la nanoCT. Ils ont donc pu caractériser l'hétérogénéité 3D du réseau de pores sur la quasi-totalité de la gamme de tailles des pores du ciment (pore capillaire et pore de gel). Ils précisent que la combinaison des deux techniques d'imageries permet de s'affranchir des faiblesses inhérentes aux deux échelles. La micro-CT permet de visualiser un volume d'intérêt (VOI) large afin de localiser les zones altérées pour l'analyse nanoCT. Ils se sont également intéressés à la connectivité et à la taille du réseau de pores pour les deux échelles afin d'en avoir une caractérisation la plus complète. Ils ajoutent que l'utilisation de la nanoCT (voxel de 63,5 nm) permet d'augmenter de 8 fois la résolution spatiale obtenue par micro-CT. Cette nouvelle résolution permet la caractérisation des pores très fin (pores capillaires).

[Sokhansefat et al, 2020] ont étudié le rôle du degré critique de saturation et du système de vide d'air sur la propagation des fissures dans un mortier soumis à des cycles gel-dégel. Les échantillons utilisés dans l'étude correspondent à des cylindres de mortier de 10x10 (en mm, DxH). La résolution utilisée dans cette étude est de 4,85  $\mu\text{m}$ . La comparaison d'images effectuées avant et après la congélation a permis de mesurer l'emplacement et le volume des fissures nouvellement créées et du remplissage des vides d'air.

[Hong et al, 2019] se sont intéressés à la fissuration des matériaux cimentaires à la suite d'effets de compression. Ils se sont intéressés plus particulièrement à l'évolution de l'endommagement d'un échantillon de béton. Les échantillons se présentent comme des cubes de taille 10,13x10,30x10,17 (en mm). La résolution ici est de 14,7  $\mu\text{m}$ . Ils ont mis au point une méthodologie de traitement d'images permettant la visualisation du processus de fissuration et la distinction entre pores et fissures. Cette méthodologie a permis également de quantifier la quantité de solides, les pores et les fissures dans les échantillons de mortier. Ils ajoutent que cette méthodologie permettrait de suivre et de caractériser le processus de fracturation dans un mortier.

[Shields et al, 2018] se sont eux intéressés au développement des fissures dans les matrices cimentaires soumises à des cycles gel-dégel. Ils ont combiné les techniques de micro-CT et

d'émission acoustique afin d'étudier l'influence de la saturation en eau du béton sur la fissuration à la suite d'un cycle gel/dégel. Les échantillons se présentent sous la forme de cylindre de 10x20 (en mm, DxH). La résolution spatiale dans cette étude est de 2,57  $\mu\text{m}$ . Ils concluent sur les limites de cette étude en citant la quantité limitée de données (un échantillon pour chaque pourcentage de saturation) et les limitations pour une estimation correcte de l'incertitude.

[Trainor et al, 2013] se sont intéressés aux mécanismes de dissipation d'énergie interne dans des ciments HP renforcés par des fibres d'acier. Ils ont ainsi effectué des tests de flexion en conjonction avec l'imagerie 3D. La micro-CT leur a permis dans un premier temps de mesurer la fraction volumique des fibres ainsi que leur orientation. Puis, dans un deuxième temps (après la fracturation), de mesurer la quantité de fissures internes ainsi que le degré d'arrachement des fibres par rapport aux échantillons non-endommagés. La taille des échantillons étudiés ici est de 220x48x30 (en mm, L x l x e) pour une résolution de 30  $\mu\text{m}$ . Ils ont ainsi montré la possibilité de coupler des tests mécaniques standards avec la micro-CT pour mesurer les mécanismes de dissipation interne. Ils soulignent que l'analyse quantitative du traitement d'images leur a permis de quantifier la distribution et l'orientation des fibres ainsi que les changements de la structure interne de l'échantillon (fissures par exemple). Ils ajoutent que toutes ces mesures peuvent être reliées aux propriétés micromécaniques des échantillons.

### 3. PRODUCTION ET CARACTERISATION PAR MICRO-CT DE MORTIERS FISSURES.

#### 3.1 METHODOLOGIE DE GENERATION REPRODUCTIBLE DE FISSURES A GEOMETRIE CONTROLEE.

Dans le cadre de cette thèse, une méthodologie a été spécifiquement développée afin de produire de façon reproductible des échantillons de mortiers fissurés en contrôlant la géométrie des fissures. La méthodologie innovante proposée se compose de trois étapes successives synthétisées dans la Figure 26:

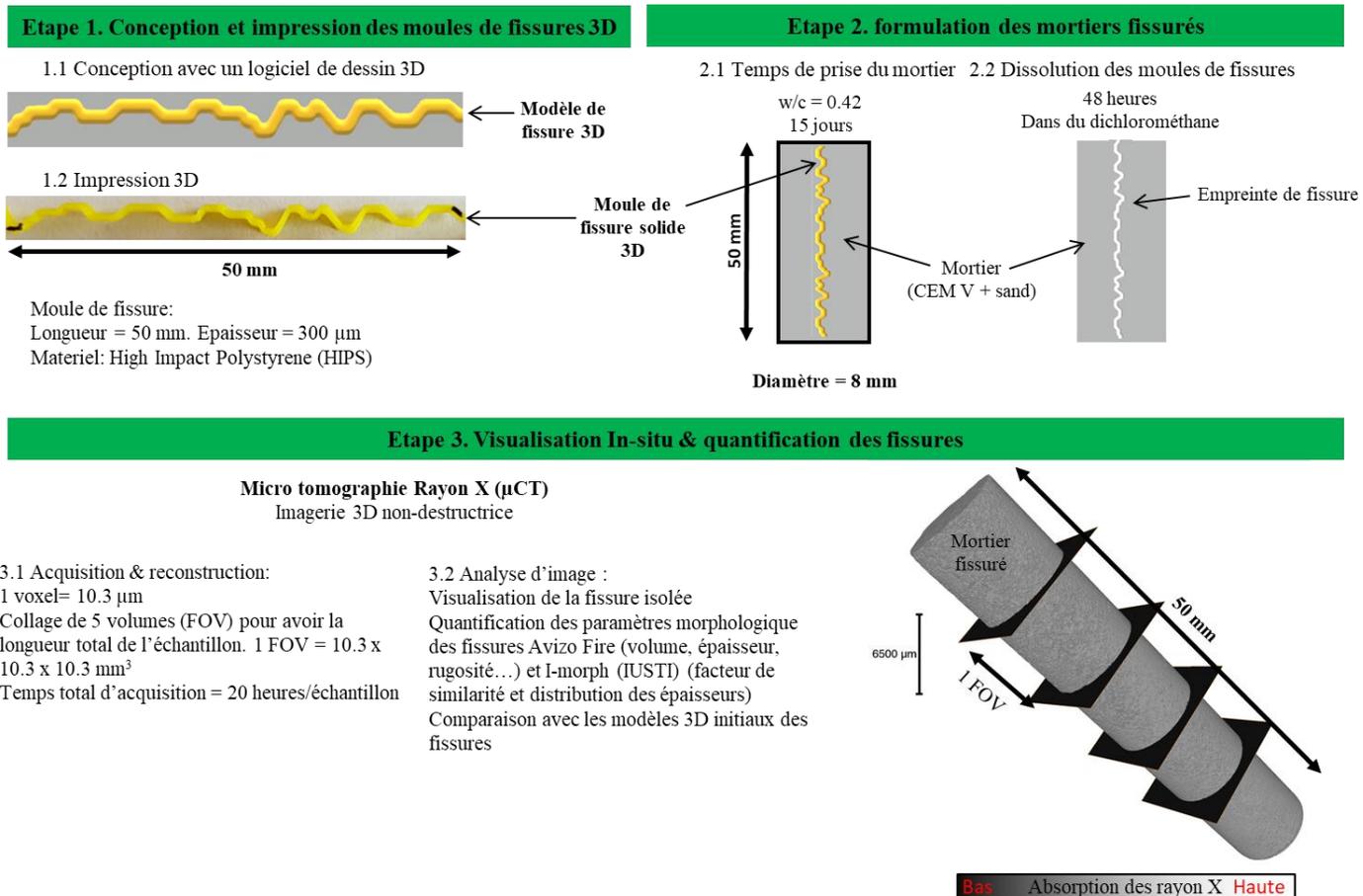
- Etape 1 : conception et impression 3D de moules plastiques de fissures de différentes géométries : simple (plates et sinusoïdales) et formes plus complexes.
- Étape 2 : formulation de mortiers fissurés. Les moules de fissures sont placés au cœur de barreaux de mortier. Après la prise du mortier, la dissolution des moules laisse une empreinte au cœur du mortier et génère une fissure à géométrie contrôlée.
- Etape 3 : visualisation et quantification des fissures obtenues au cœur du mortier. L'imagerie 3D par micro-tomographie RX (micro-CT) et analyse d'images.

Chaque étape est décrite en détails ci-dessous.

Afin d'évaluer la reproductibilité de la méthodologie proposée, quatre répliques d'échantillons de mortier fissuré ont été générés avec une même géométrie de fissure dite « complexe ». Chaque réplique a été nommée Fissure\_X (X = 1, 2, 3 ou 4).

La présentation détaillée de la méthodologie, les résultats obtenus, l'évaluation de sa validité et de sa reproductibilité ont fait l'objet d'une publication dans *Cement and Concrete Research*, en cours de review au moment de l'envoi de ce manuscrit.

Les échantillons de mortier fissuré générés grâce à cette méthodologie seront ensuite utilisés lors des études expérimentales de transfert d'aérosols. Contrôler la géométrie des fissures permet alors : (i) d'étudier son influence sur la migration des particules en comparant les résultats obtenus pour deux géométries variées (ex. fissure plate vs complexe) ou (ii) d'étudier l'influence d'un autre paramètre (ex. débit du gaz vecteur ou taille des particules) sur plusieurs échantillons ayant la même géométrie de fissure.



**Figure 26: Synthèse des 3 étapes successives pour la génération reproductible d'échantillons de mortier fissuré en contrôlant la géométrie de la fissure.**

### 3.1.1 Conception et impression des moules de fissures 3D.

Cette partie décrit la première étape de la méthodologie (Figure 26), c'est-à-dire la conception et l'impression des moules de fissures 3D. La particularité de notre méthodologie repose sur la récente technologie d'impression 3D permettant d'obtenir un moule de fissure en plastique avec une haute précision à partir d'un modèle 3D.

Dans une étude préliminaire, des moules avaient été réalisés en découpant manuellement des feuilles de styrène avec une épaisseur de 152 µm [Pointeau et al., 2018].

Un logiciel de dessin 3D a ensuite été utilisé pour concevoir des modèles de fissures avec une morphologie plus complexe (zigzag, motif en damier) et des dimensions précises et reproductibles (épaisseur, largeur, inclinaison...). Les moules de fissure en plastique sont produits avec l'imprimante 3D Ultimaker 2 Extended+ (voir Figure 27). L'utilisation de l'imprimante 3D permet alors de produire de nombreux moules de fissure identiques.

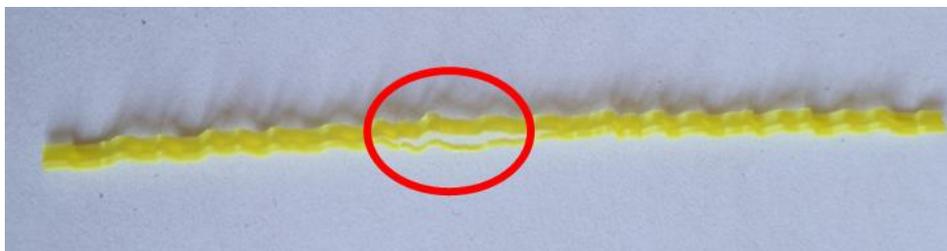
Afin d'obtenir une impression précise, une buse laiton de 0,25 mm a été utilisée et une épaisseur constante de 300 µm est imposée sur toute la longueur des moules de fissures.

Le matériau utilisé pour imprimer les moules de fissures est le High Impact Polystyrene (HIPS). C'est un copolymère obtenu par ajout de polybutadiène lors de la polymérisation du styrène dont les propriétés sont proches de l'ABS. L'HIPS a été choisi car c'est avec ce plastique que nous avons obtenu les meilleurs résultats de finition sur les faibles épaisseurs exigées sur nos objets. L'HIPS possède également une bonne résistance mécanique qui sera utile lors du remplissage du mortier pour bloquer le moule. Enfin, la couleur jaune du HIPS permet d'avoir des effluents jaunes, bien visibles, pendant la dissolution des moules.



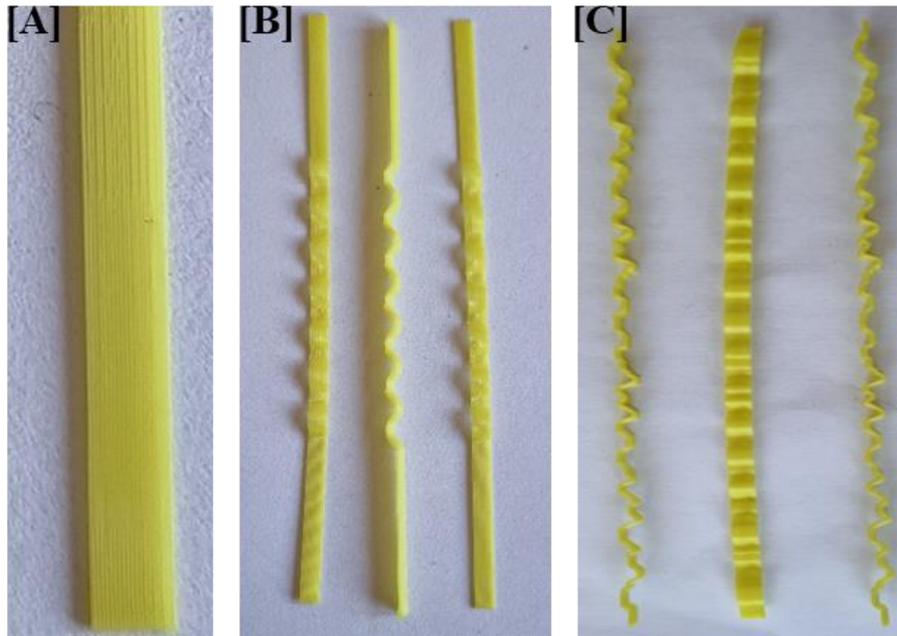
**Figure 27 : Impression de moules plastiques de fissures avec l'imprimante 3D Ultimaker 2 Extended+.**

Il faut noter qu'à la fin de l'impression 3D, les moules doivent impérativement refroidir avant d'être manipulés. Ce temps de refroidissement permet d'éviter que les premières couches d'impression restent collées au plateau de l'imprimante et se détachent du moule (Figure 28).



**Figure 28 : Moule de fissure manipulé avant son refroidissement avec une couche d'impression décollée.**

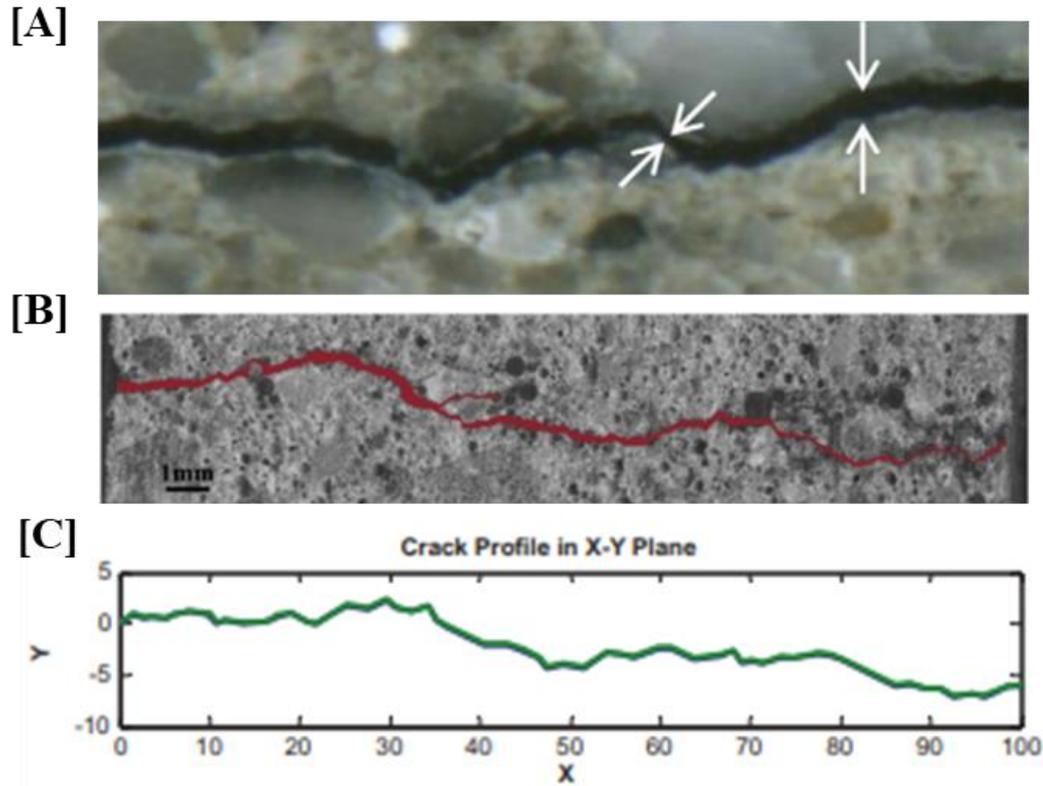
Trois modèles de moules de fissure ont été imprimés (Figure 29) avec des géométries plates, sinusoïdale et complexe.



**Figure 29 : Modèles de moules de fissures imprimés pour cette étude. [A] fissure plate, [B] fissure sinusoïdale et [C] fissure complexe.**

Pour les premiers essais, des formes simples ont été choisies : fissure de forme plate et fissure de forme sinusoïdale. Ces géométries ont été sélectionnées avec pour objectifs d'étudier des mécanismes spécifiques d'arrêt des particules dans la fissure (voir § 4) : respectivement, sédimentation gravitationnelle pour la fissure plate et impaction inertielle et interception pour la fissure sinusoïdale.

Une forme plus complexe a ensuite été développée en donnant un profil résolulement 3D au moule. Cette forme a été spécialement définie afin de mettre en avant tous les mécanismes de déposition et en s'inspirant de l'aspect fracturé et aléatoire d'une fissure réelle (Figure 30). En effet, [Akhavan et al, 2012] montrent dans leurs études que les fissures dans un mortier ne sont jamais droites et lisses. Au contraire (Figure 30[A]) la largeur des fissures varie sur leur longueur et qu'elles sont tortueuses (Figure 30[B] et [C]) ; la longueur réelle de la fissure est ainsi plus grande que la longueur normalisée. Le modèle est ainsi composé de zones irrégulières et tortueuses qui peuvent être des zones de rétentions importantes et spécifiques de certains mécanismes de dépôt des particules (sédimentation pour les zones linéaires et impaction pour les zones tortueuses avec inversion de sens).



**Figure 30 : [A] Fissure réelle générée à la suite d'un test de traction par fendage à épaisseur variable observée dans un échantillon de mortier [Akhavan et al., 2012] [A] Profil numérisé d'une fissure traversante réelle obtenue par fendage [Akhavan et al., 2012]. [B] Géométrie typique d'un modèle statistique de fissure dans un mortier [Bishnoi et Vedula., 2013]**

En plus de leur forme spécifique imposée, les paramètres géométriques du modèle de la fissure sont fixés. La longueur du modèle de fissure est fixée à 50 mm afin d'étudier la migration de particules sur des distances étendues et d'optimiser les possibilités d'observer des variations dans les profils de migration des particules.

L'épaisseur des fissures est étudiée avec une valeur cible d'environ 300  $\mu\text{m}$ , qui est un compromis sur les épaisseurs étudiées dans la littérature (expérience COLIMA à 500  $\mu\text{m}$ , expérience MAEVA à 69  $\mu\text{m}$ ...) ainsi que sur la rigidité nécessaire (liée à l'épaisseur) pour maintenir le moule le plus droit possible dans le cylindre plastique de coulée et aussi en regard du diamètre de particules investigué (40  $\mu\text{m}$ , voir § 4).

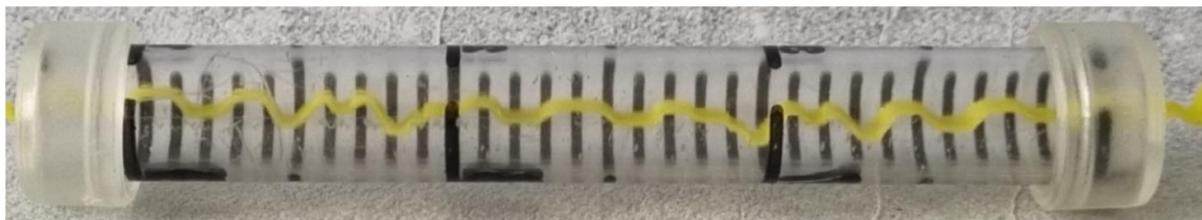
Le dernier paramètre fixé est la largeur de la fissure, égale à 3mm. Cette valeur a été choisie en fonction du diamètre de l'éprouvette de mortier (8mm). L'objectif est d'obtenir une fissure bien centrée dans l'éprouvette, à distance égale de la surface du moule plastique cylindrique de coulée.

Afin d'évaluer la précision et la reproductibilité de l'impression 3D, certains répliques de moules de fissures ont été imagés en 3D par micro-CT. L'objectif est de comparer la géométrie réelle des moules de fissures (déterminée à partir de l'image 3D obtenue) avec la géométrie du modèle dessiné.

### 3.1.2 Formulation des mortiers fissurés.

Les moules de fissures sont ensuite utilisés pour la synthèse des échantillons de mortier fissurés (étape 2 de la Figure 26). Le moule de fissure imprimé en 3D est inséré dans un tube cylindrique en plastique et est maintenu au centre du tube par des bouchons en plastique percés et placés à chaque extrémité (Figure 31). Le tube a pour diamètre interne 8 mm et pour longueur 70 mm. Le diamètre a été optimisé pour l'imagerie 3D lors d'une étude préparatoire [Pointeau et al., 2018].

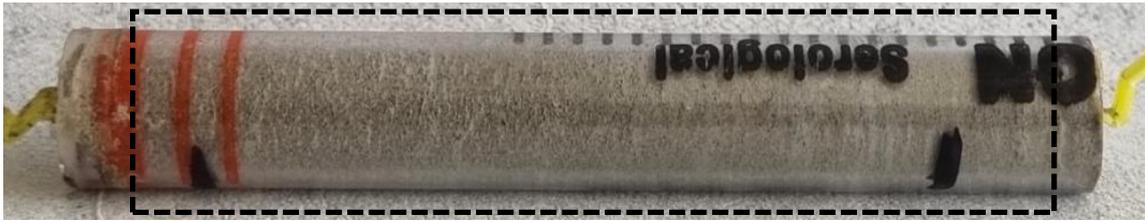
Du mortier est ensuite coulé dans le tube plastique en s'assurant que le moule de fissure conserve sa position dans le tube. La largeur du moule (3mm) et son épaisseur (300  $\mu$ m) lui assure une rigidité suffisante pour limiter ses déplacements dans le tube au cours de cette étape.



**Figure 31 : Positionnement du moule de fissure en plastique au centre du tube de 8 mm, avant l'ajout de mortier.**

Le mortier utilisé dans cette étude a la même formulation que celui utilisé dans le conditionnement de déchets radioactifs. Il s'agit d'un mélange de ciment CEM V/A 32,5 et de grains siliceux (0-4 mm) avec un rapport eau/ciment (w/c) de 0,42. Des adjuvants et un retardateur de prise ont également été ajoutés au mortier. Ces additifs sont indispensables pour obtenir une bonne fluidité et un temps de prise suffisamment long pour préparer les échantillons. En outre, pour optimiser le placement du mortier dans le moule, une tige métallique de piquage est utilisée pour répartir le mortier dans l'échantillon et combler le plus possible des vides.

Après 15 jours de prise (au cours desquels le ciment s'hydrate), les extrémités de l'échantillon sont découpées à l'aide d'une scie à fil dans le but d'obtenir des barreaux de mortier de 50 mm de longueur (Figure 32).



**Figure 32 : Échantillon obtenu après les 15 jours de prise.**

Les barreaux cylindriques obtenus, de longueur de 50 mm et diamètre de 8 mm, sont ensuite immergés dans du dichlorométhane pendant 48 heures afin de dissoudre complètement le moule de fissure bloqué au cœur du mortier ainsi que le tube en plastique externe. Les barreaux sont régulièrement retournés afin de favoriser l'élimination des résidus de moule de fissure. Des billes de verre sont placées en fond de flacon pour permettre au plastique dissous de s'échapper de la fissure. L'empreinte laissée par le moule de fissure après sa dissolution complète forme alors une « fissure modèle » à géométrie contrôlée et répétable à travers le barreau de mortier (Figure 33).



**Figure 33 : Barreau de mortier fissuré obtenu après l'étape de dissolution. Le barreau a été découpé longitudinalement afin d'exposer sa fissure interne.**

La section présentée dans la Figure 33 permet de vérifier visuellement la présence d'une fissure au cœur du barreau de mortier. Néanmoins, l'objectif de cette méthodologie est de générer des barreaux de mortier fissuré intègres sur leur surface extérieure, afin d'étudier expérimentalement le transport d'aérosols dans une fissure.

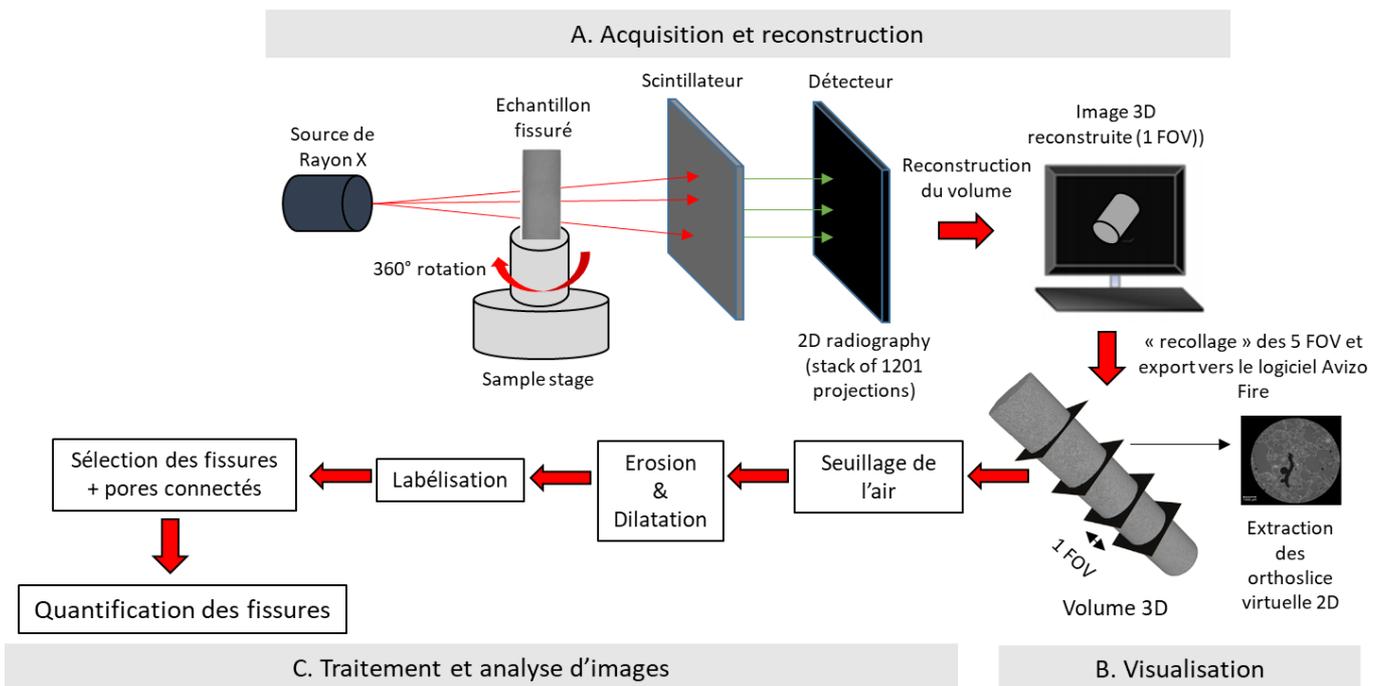
Il faut noter qu'une déformation/endommagement du barreau peut apparaître dans le cadre d'une fissuration sous compression ([Gélain et al., 2008] [Herranz et al., 2010] [Gélain, 2012] [Parozzi et al., 2013] [Jourdain et al., 2016]). Une surface externe sans défaut permet quant à elle de placer des joints autour du barreau de mortier et d'assurer une bonne étanchéité par rapport au passage du gaz vecteur et des particules (voir chapitre 5).

Une technique d'imagerie in-situ et non destructible est nécessaire pour visualiser et quantifier la géométrie de la fissure formée au cœur du barreau de mortier.

### 3.1.3 Visualisation 3D de la fissure au cœur du barreau de mortier par micro-tomographie RX.

La micro-tomographie par rayons X (micro-CT) est la technique d'imagerie RX choisie dans le cadre de cette thèse. Elle fournit une description 3D à haute résolution spatiale (à l'échelle micrométrique) de la géométrie des fissures au cœur des barreaux de mortier. La micro-CT est utilisée ici pour contrôler in situ si les dimensions et les paramètres géométriques du moule de fissure solide imprimé en 3D ont été correctement transférés à la fissure générée par son empreinte dans le mortier (étape 3 de la Figure 26).

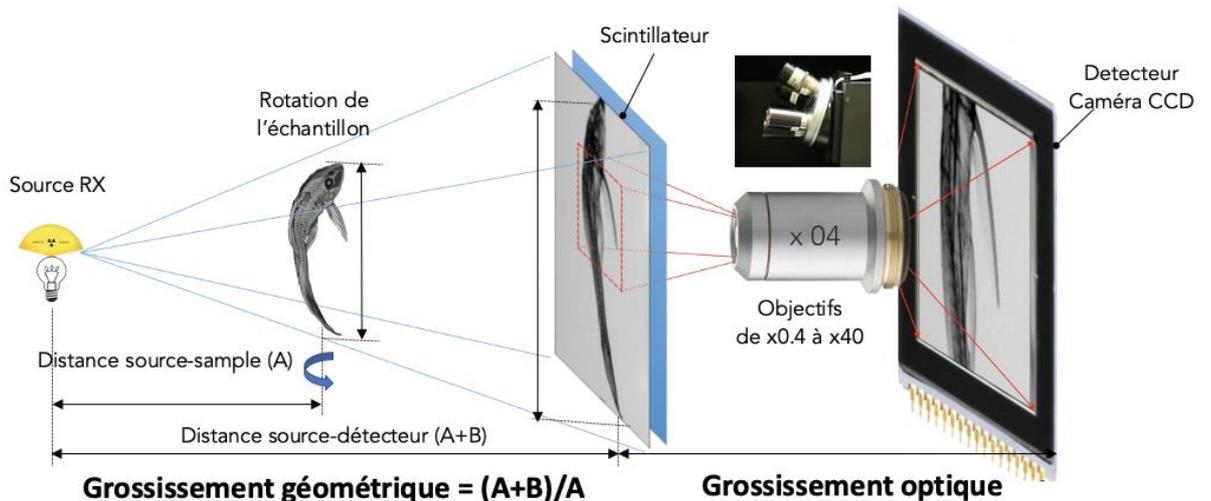
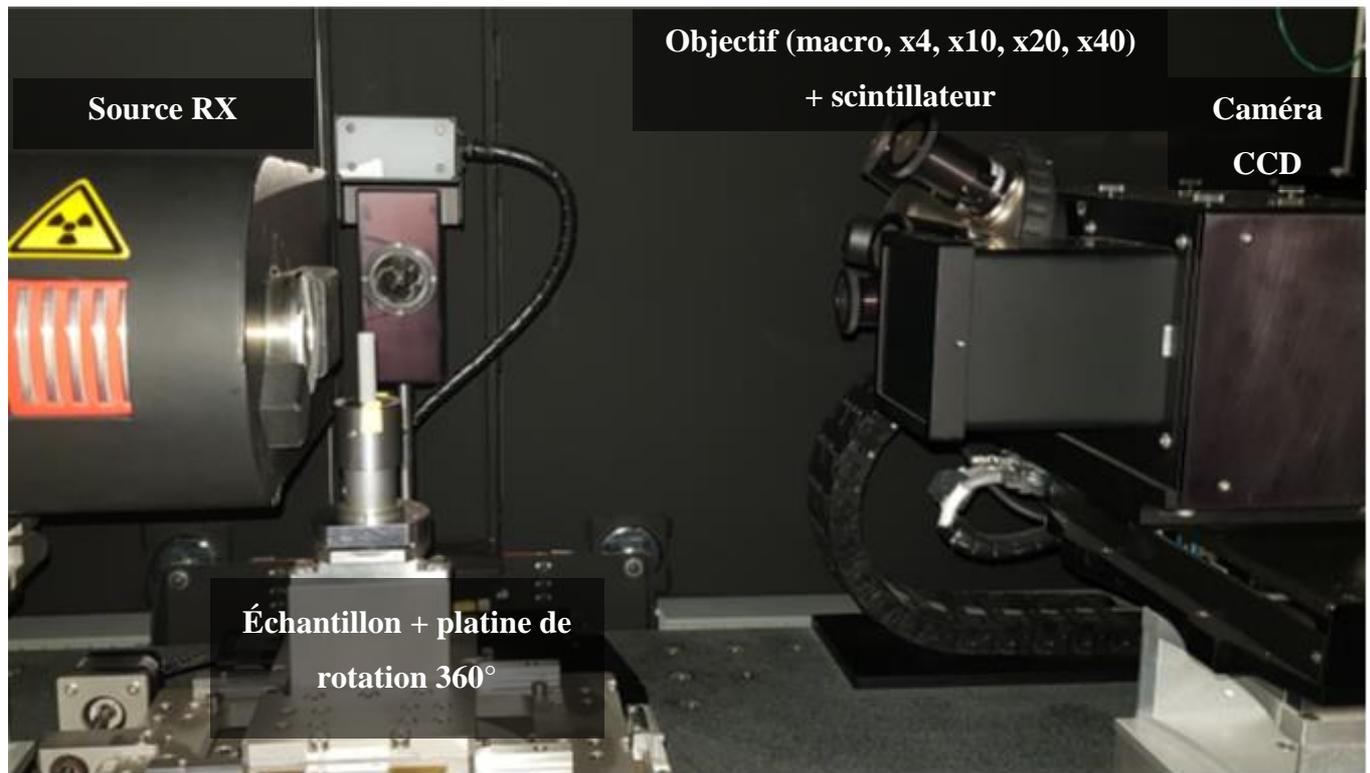
Les différentes étapes qui conduisent à la visualisation 3D des fissures au cœur du mortier puis à leur caractérisation sont présentées ci-dessous (Figure 34).



**Figure 34 : Différentes étapes pour la visualisation 3D et la quantification des fissures au cœur du mortier par micro-tomographie RX.**

#### Acquisition des images 3D par micro-CT.

Le microtomographe RX utilisé est présenté dans la Figure 35 et est plus précisément un équipement commercialisé par Zeiss-Xradia, le MicroXCT-400. Cet appareil appartient au CEREGE (UMR 7330, Aix-Marseille Université, CNRS, IRD, INRA, Collège de France) et fait partie de la plateforme MATRIX d'imagerie RX 2D&3D de l'équipe Environnement Durable.



**Figure 35 : Micro-tomographe MicroXCT-400 (Zeiss Xradia) de la plateforme Matrix (CEREGE, Aix-en-Provence)**

Cet appareil est équipé d'une source de rayons X avec filament de tungstène et peut fonctionner jusqu'à une tension d'accélération de 140 kV et une puissance de 10 W. En complément de l'agrandissement géométrique (distance source-échantillon et échantillon-détecteur), ce micro-tomographe est équipé, en amont de la caméra CCD, de plusieurs objectifs optiques (x4, x10, x20, x40).

Les barreaux de mortier fissuré générés (étapes 1 et 2 de la Figure 26) sont entièrement imagés par micro-CT (étape 3 de la Figure 26).

Chaque scan de micro-CT est composé de 1201 projections 2D avec un temps d'exposition de 9 s par projection sur une rotation de 360°. La tension d'accélération de la source est 60kV, sa puissance 10W et un filtre (LE#5) est utilisé afin de durcir le faisceau RX. Ces paramètres sont choisis afin d'optimiser le contraste des projections 2D enregistrées.

L'objectif optique de grossissement  $\times 0,39$  est sélectionné pour obtenir une taille de voxel isotropique de 10,3  $\mu\text{m}$  et un champ de vision (FOV) de 10,3x10,3x10,3  $\text{mm}^3$ . Afin de scanner la totalité de l'échantillon, c'est-à-dire les 50 mm du barreau de mortier de diamètre 8 mm, cinq scans selon l'axe z sont nécessaires. Le temps total d'acquisition par échantillon est d'environ 20h (correspondant à 5 scans de 4h chacun).

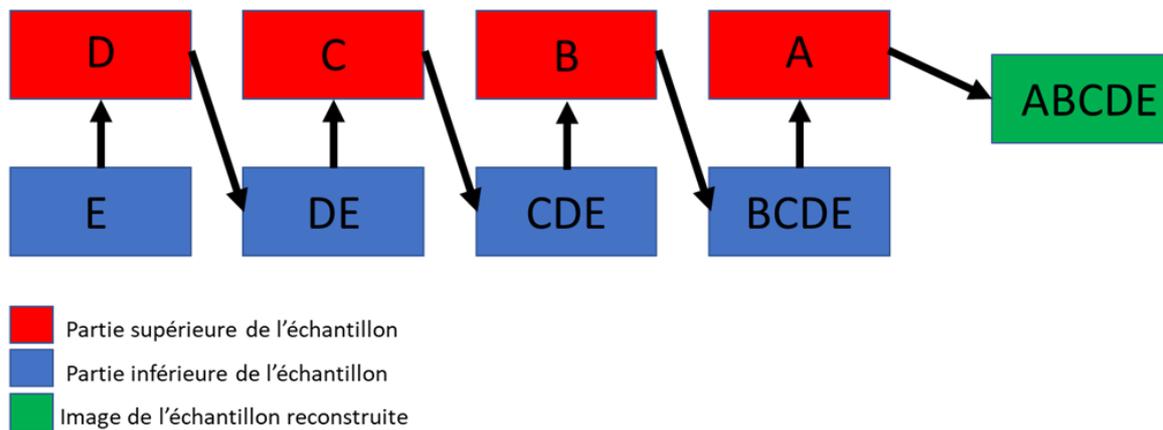
### Reconstruction et assemblage des images 3D

La micro-CT fournit des données brutes (pile de 1201 projections 2D) qui doivent être reconstruites pour obtenir l'image 3D du volume scanné (i.e. portion du barreau de mortier) Figure 34, étapes A et B). La reconstruction du volume a été réalisée à l'aide du logiciel XMReconstructed-Parallel Beam-9.0.6445 en utilisant un algorithme de rétroprojection filtré [Bossa et al., 2015]. Cet algorithme de rétroprojection filtrée applique un filtre de lissage (filtre gaussien) pour corriger le manque de monochromaticité du faisceau de rayons X incident [Brisard et al., 2020].

Pour avoir une reconstruction exacte, il est nécessaire d'effectuer un recentrage de l'image qui se traduit par le déplacement du centre de l'image appelé « center shift ».

Il faut ensuite corriger le durcissement du faisceau de rayons X (« beam hardening ») : ce durcissement est le résultat d'un changement des caractéristiques (i.e. énergie) du faisceau RX lorsqu'il traverse l'échantillon. Ce changement induit des variations dans les niveaux d'absorption des RX pour un même matériau.

L'image 3D de l'intégralité du barreau de mortier est obtenu en assemblant les 5 volumes reconstruits correspondant aux 5 portions de barreau (5 FOV de micro-CT) (Figure 34). La méthode d'assemblage des images est présentée dans la Figure 36.



**Figure 36 : Procédure d'assemblage des 5 scans acquis le long de l'axe z du barreau de mortier. E : FOV de l'extrémité inférieure du barreau, A : FOV de l'extrémité supérieure.**

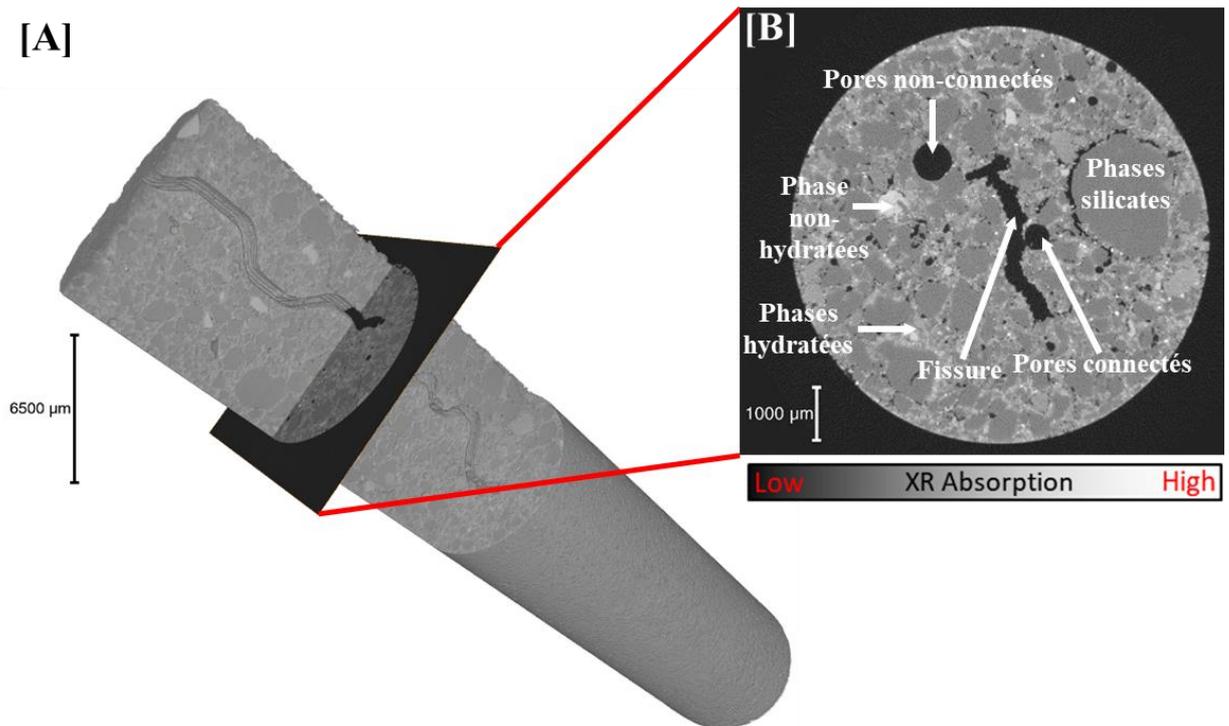
### Visualisation des images 3D

Après assemblage des 5 FOV, l'image 3D du barreau de mortier fissuré est visualisée, traitée et analysée avec le logiciel Avizo 8.0 (Thermo Scientific, Hillsboro). Ce logiciel fournit, entre autres, un rendu volumique et des coupes virtuelles 2D extraites virtuellement du volume (orthoslices) (Figure 34, étape B). Chaque voxel ou pixel de ces images représente une valeur arbitraire de couleur (niveau de gris, GSV, ou de couleurs) qui est proportionnelle au coefficient d'absorption moyen des rayons X (ou atténuation des rayons X) et dépend de la composition atomique et de la densité du matériau dans le voxel [Bossa et al., 2015] [Wan et al., 2015].

Dans les images 3D reconstruites, un matériau dense apparaîtra donc avec des voxels (vx, pixels 3D) brillants (i.e. niveau de gris ou de couleur élevé) et inversement un matériau peu dense apparaîtra avec des voxels sombres, (i.e. niveau de gris ou de couleur faible).

Une orthoslice extraite de l'image 3D est présentée dans la Figure 37. L'absorption des rayons X de chaque voxel est normalisée en valeurs d'échelle de gris de 16 bits (de 0 à 65535) en fonction du coefficient d'absorption des rayons X spécifique au matériau du voxel.

Les différents matériaux qui composent le mortier fissuré peuvent être identifiés distinctement : (i) les vides comprenant les fissures, les pores connectés à la fissure et les pores non connectés et (ii) la matrice solide du mortier comprenant les phases de silicates, les phases de ciment hydraté et les phases de ciment non hydraté [Bossa et al., 2015]. En fonction de leur densité [Bossa et al., 2015] [Wan et al., 2015], ces matériaux présentent des niveaux d'absorption des rayons X croissants, et donc des voxels avec des niveaux de gris également croissants. Les voxels de la fissure et des pores du mortier (vide ou air) apparaissent donc en noir.



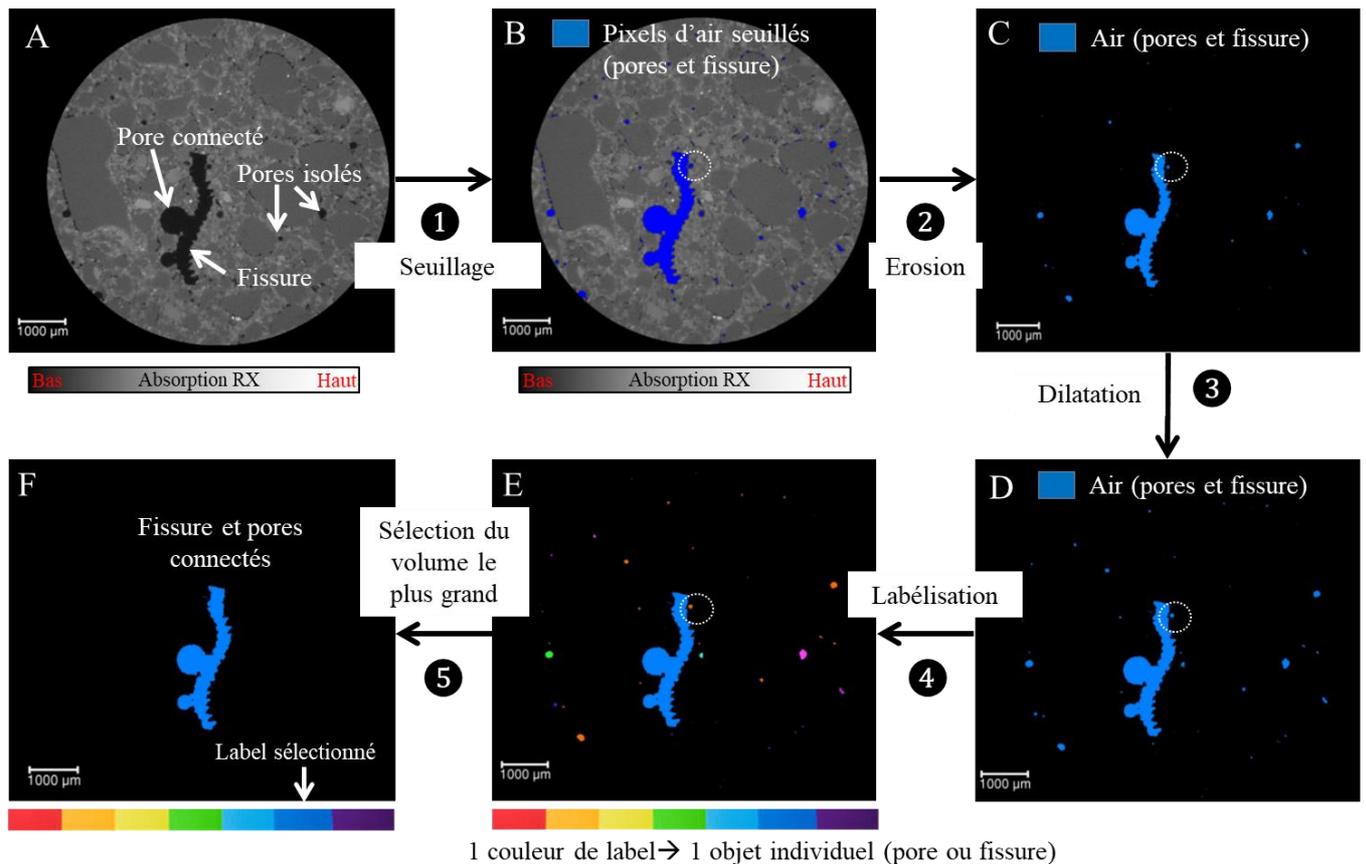
**Figure 37 : [A] Image 3D (volume reconstruit) d'un échantillon de mortier fissuré. Le volume est coupé virtuellement selon l'axe Z pour visualiser partiellement la fissure au cœur du barreau de mortier. [B] Orthoslice selon l'axe Z extraite du volume reconstruit.**

Les images 3D obtenues sont ensuite traitées et analysées avec le logiciel AVIZO. L'objectif du traitement des images est d'isoler les voxels correspondant au volume de la fissure au cœur du barreau de mortier. Cette étape de traitement est indispensable pour pouvoir ensuite analyser le volume de la fissure, i.e. le caractériser et le quantifier (Figure 34, étape C).

### 3.1.4 Caractérisation de la géométrie des fissures.

Une procédure complète de traitement et d'analyse des images 3D a été spécifiquement développée dans cette étude pour caractériser et quantifier efficacement les propriétés des fissures.

La procédure de traitement comprend plusieurs étapes (Figure 38) : (i) segmentation des vides (incluant la fissure et les pores du mortier) ; (ii) érosion et dilatation du volume binaire obtenu ; (iii) labélisation de chacun des objets individuels (clusters) ; (iv) sélection du plus grand cluster correspondant au volume de la fissure et à ses pores connectés. Le volume binaire de la fissure obtenu est ensuite (v) analysé quantitativement (volume, longueur, épaisseur, similarité, ...).



**Figure 38 : Procédure de traitement des images 3D. [A] exemple d'une orthoslice 2D extraite du volume reconstruit. [B] sélection des pixels de vide (en bleu) par seuillage (ou segmentation). Un volume binaire est généré après cette étape de seuillage [C, D] : exemple d'une orthoslice 2D extraite du volume binaire après la succession des opérations d'érosion et de dilatation. [E] exemple d'une orthoslice obtenue après l'étape de labélisation du volume binaire. Une couleur est attribuée à chaque label (cluster ou objet individuel), cette couleur se répète tous les 7 labels. [F] orthoslice obtenue après avoir sélectionné le label le plus grand (plus grand volume). L'image finale obtenue est un volume binaire correspondant aux voxels de la fissure et des pores du mortier connectés à la fissure.**

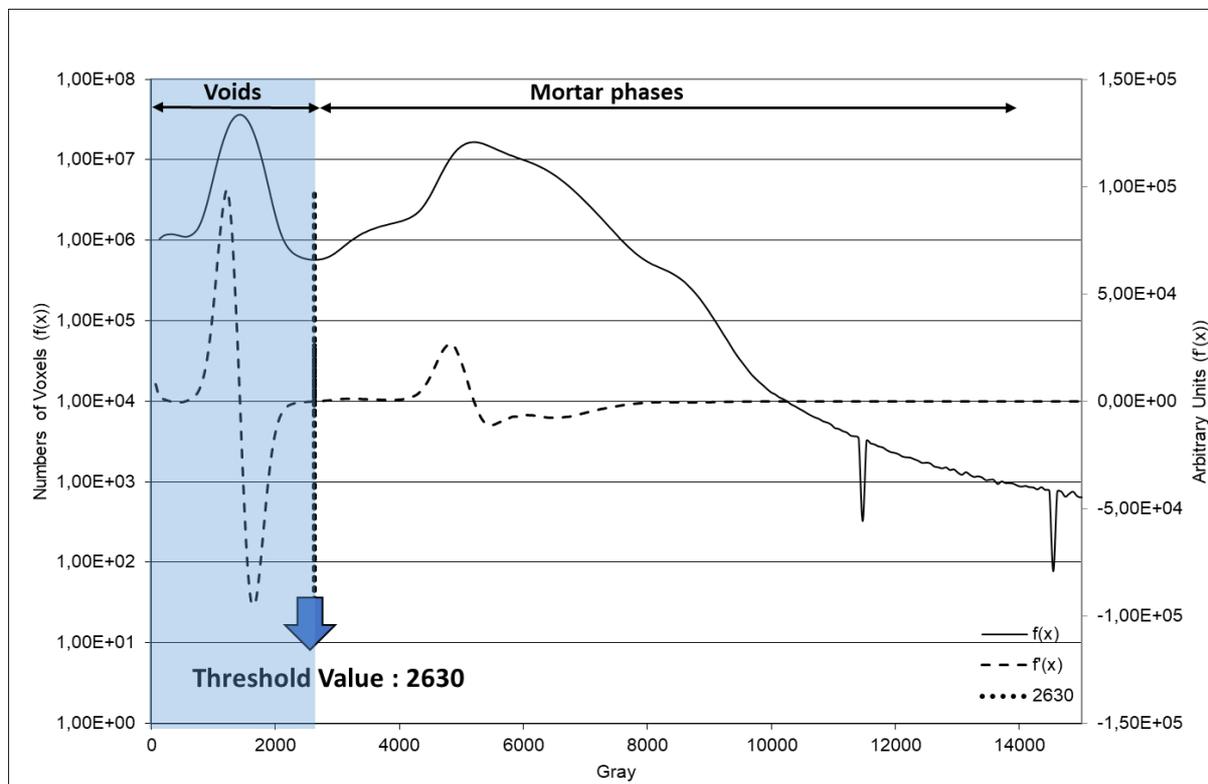
### Segmentation

Tout d'abord, les voxels de vide (correspondant à de l'air) sont identifiés et isolés de l'image par segmentation des niveaux de gris.

La segmentation de l'image peut être effectuée manuellement, mais elle est alors fortement dépendante de l'utilisateur [Lieb-Lappen et al., 2017]. Selon les auteurs, il existe une variété d'algorithmes de seuillage automatisé pour éliminer le facteur humain (par exemple, les méthodes basées sur le regroupement, les méthodes inverses incorporant des seuils multiples...). Deux méthodes couramment utilisées ressortent : le seuillage global qui consiste à scanner chaque voxel de l'image et à déterminer une valeur de seuil de segmentation [Promentilla et al.,

2008] [Zhang et al., 2012] et la méthodologie d'ajustement qui consiste à ajuster l'histogramme avec des courbes gaussiennes, chacune étant liée à une phase [Bossa et al., 2015] [Yokhana et al., 2017]. Pour rappel, l'histogramme de l'image 3D représente la distribution du nombre de voxels (intensité) pour chaque niveau de gris (GSV) ou couleurs [Bossa et al., 2015].

Un exemple d'histogramme de l'image 3D d'un mortier fissuré est présenté dans la Figure 39. Deux pics principaux sont observés. Le premier pic est attribué aux voxels de vide/air (fissure et pores du mortier) et le deuxième aux principales phases du mortier. Plusieurs contributions sont d'ailleurs visibles dans ce pic. La valeur limite entre ces deux pics, i.e. valeur seuil ou threshold value, est déterminée à partir de la dérivée de l'histogramme [Kim et al., 2019], lorsque  $f'(x)=0$ , c'est-à-dire au point d'inflexion de l'histogramme. La même procédure robuste et reproductible de choix du seuil est ainsi réalisée pour chaque image 3D obtenue.



**Figure 39 : Histogramme de l'image 3D du mortier fissuré « crack\_2 » (trait plein,  $f(x)$ ) et sa dérivée (trait pointillé,  $f'(x)$ ). Les niveaux de gris (GSV) assignés aux voxels de vide (voids) ou aux phases du mortier (mortar phases) sont indiqués par des double flèches. La valeur de seuil utilisé pour isoler les voxels de vides par segmentation (Threshold Value) est également indiquée par une flèche bleue.**

Le résultat de cette segmentation est un volume d'intérêt (VOI) binaire où les voxels assignés aux vides sont colorés en bleu (valeur binaire = 1) et les autres voxels sont colorés en noir (valeur binaire = 0) (Figure 38 B).

### Post-traitement du volume binaire : érosion et dilatation successive

L'étape suivante consiste en un post-traitement du volume binaire obtenu par deux opérations successives : une érosion de 1 vx suivie d'une dilatation de 1 vx [Johnson et al., 2019] (Figure 38, C-D). L'objectif est (i) d'éliminer les voxels isolés, (ii) de remplir les « trous » de la taille d'un voxel et (iii) de séparer les pores connectés au volume de la fissure par un seul voxel. Par exemple Figure 38-B, le pore dans le cercle en pointillé est initialement connecté à la fissure. Après les opérations successives d'érosion et de dilatation d'un voxel, il apparaît séparé de la fissure (Figure 38-D). Ainsi, lorsqu'un pore est connecté à la fissure par au moins 2 voxels, son volume est attribué au volume de la fissure.

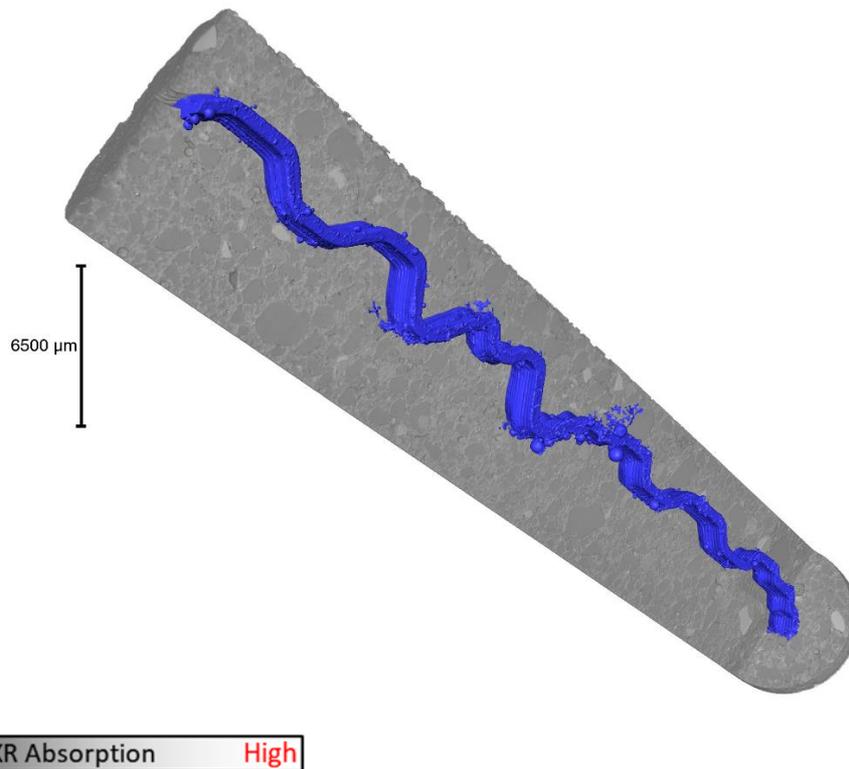
### Labellisation et sélection du volume de la fissure

Des opérations sont ensuite nécessaires pour séparer le volume de la fissure des pores du mortier isolés et non-connectés à la fissure.

Le volume binaire traité est labélisé (Figure 38-E). L'opération de labélisation consiste à identifier, étiqueter et mesurer le volume de chaque objet (ou cluster) individuel. Un cluster de voxels de vide est défini comme étant un groupe de voxels de vide qui sont connectés les uns aux autres en partageant une face commune [Zhang et al., 2012]. Une nouvelle image 3D est générée avec une carte de 7 couleurs d'étiquettes qui se répètent (labels) : une couleur est attribuée à chaque cluster.

Enfin, seul le plus grand cluster, est sélectionné (Figure 38-F). Cet objet correspond à la fissure et aux pores connectés à la fissure. Son volume est plus de cent fois supérieur au plus grand pore du mortier non connecté à la fissure.

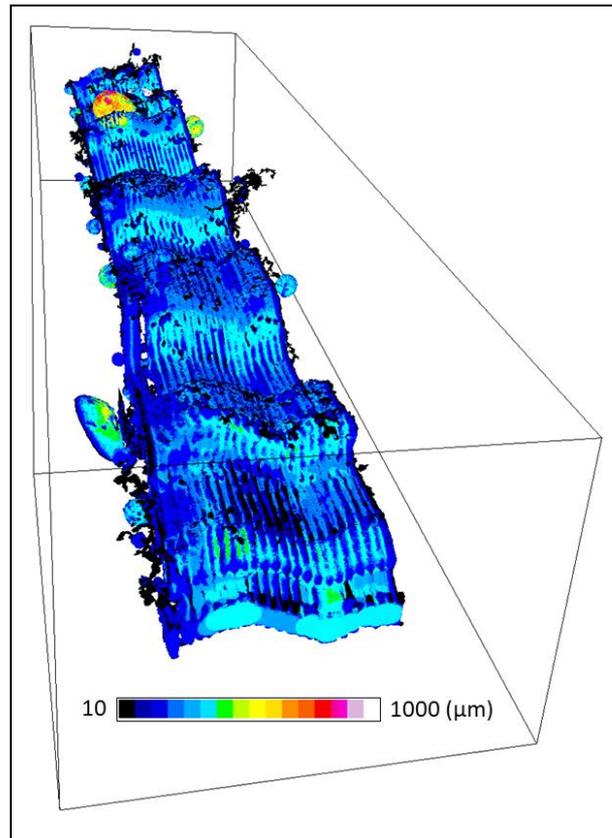
Un exemple d'un volume binaire (en bleu) obtenu après la procédure complète de traitement de l'image 3D du mortier fissuré est donné dans la Figure 40. Il montre la géométrie 3D de la fissure interne, la présence de pores connectés à la fissure et de fissures secondaires. La taille de ce volume binaire (nombre de voxels) correspond au volume de la fissure au cœur du barreau de mortier. D'autres paramètres géométriques plus complexes peuvent également être obtenus à partir de l'analyse quantitative de ce volume binaire.



**Figure 40 : Volume binaire (en bleu) obtenu après la procédure complète de traitement de l'image 3D d'un mortier fissuré. La fissure interne et les pores du mortier connectés à la fissure apparaissent en bleu. L'image 3D du barreau de mortier est virtuellement coupée selon l'axe y pour permettre une visualisation partielle de la fissure interne.**

#### Quantification des épaisseurs locales le long de la fissure

Le calcul de la carte d'ouverture a été utilisé [Brun et al., 2017] pour estimer la distribution locale de l'épaisseur des fissures. Cette carte est obtenue avec le logiciel iMorph [Brun et al., 2008] (iMorph\_v2.0.0, Aix Marseille Université, Marseille, France) et est calculée à partir de la transformation de la carte de distance qui correspond pour chaque voxel de la fissure à sa distance minimale au bord de la fissure. La carte d'ouverture a été précédemment utilisée pour l'évaluation de la morphologie 3D de matières poreuses dans plusieurs matériaux [Brun et al., 2008]. Elle donne pour chaque voxel de la fissure, le diamètre de la sphère maximale incluse totalement enfermée dans la fissure et contenant ce voxel. La distribution de la carte d'ouverture donne pour chaque classe de diamètre des sphères maximales incluses, le nombre de voxels (volume) appartenant à ces sphères. La valeur moyenne de la distribution fournit alors une estimation de l'épaisseur la plus représentative de la fissure en termes de volumes, tandis qu'une distribution basée sur le nombre de sphères maximales fournirait une estimation de l'épaisseur plus sensible aux petites caractéristiques de la fissure (dus au bruit, aux irrégularités de surface, aux petites fissures secondaires...).



**Figure 41 : Carte 3D de l'épaisseur locale d'une fissure. Exemple de résultats obtenus à partir de l'image 3D du mortier fissuré « Crack\_4 ».**

#### Modélisation des fissures par enregistrement 2D

Pour quantifier la similarité entre deux images 3D, un enregistrement d'images 2D de deux sections longitudinales (sections A et B) est effectué.

Le recalage d'images implique des transformations spatiales pour aligner la ou les images source/mouvement ( $I_{mov}$ ) et la ou les images cible/référence ( $I_{ref}$ ) grâce à des transformations géométriques affines successives (rotation et translation). L'image de référence est stationnaire, tandis que les autres ensembles de données sont transformés pour correspondre à l'image de référence.

La métrique de la statistique de Kappa ( $\kappa$ ) est utilisée pour quantifier la similarité entre les images. Cette métrique a été adaptée pour le recalage d'images binaires et a été validée dans des études précédentes [Zijdenbos et al., 1995]. En considérant deux images binaires  $I_{ref}$  pour l'image de référence et  $I_{mov}$  pour l'image en mouvement, le coefficient  $\kappa$  est calculé comme suit :

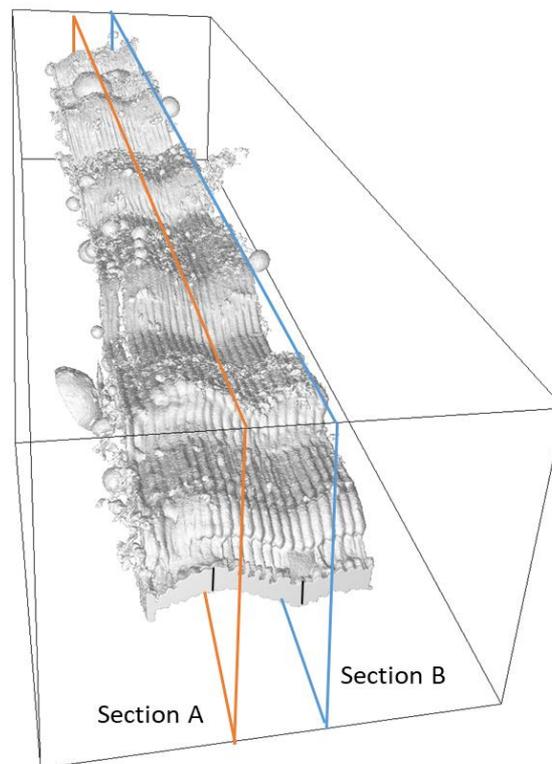
$$\kappa = 2 * \frac{|I_{ref}| \cap |I_{mov}|}{|I_{ref}| + |I_{mov}|}$$

Où  $|I_{ref}|$  est le nombre de pixels de premier plan dans l'image  $I_{ref}$  et  $|I_{mov}|$  le nombre de pixels de premier plan dans l'image  $I_{mov}$ .  $\kappa$  calcule l'aire de la zone commune des deux images.

Dans le calcul, seuls les pixels de premier plan sont pris en compte. Les valeurs de la métrique vont de 0,0 (aucun alignement des avant-plans) à 1,0 (alignement parfait des avant-plans).

Cette approche (enregistrement 2D) a été utilisée afin d'estimer la reproductibilité de l'impression 3D des moules de fissure, i.e. la similarité entre deux images 3D de moule de fissure. Un enregistrement d'images 2D de deux sections longitudinales (sections A et B) représentatives de la géométrie du moule a été effectué.

Cette approche a également été utilisée afin d'évaluer si la géométrie des moules de fissure est bien transférée à la fissure au cœur du barreau de mortier. La similarité entre l'image 3D du moule de fissure original et l'image 3D de la fissure générée au cœur du mortier est alors estimée par l'enregistrement d'images 2D de deux sections longitudinales (sections A et B) représentatives de la géométrie du moule et de la fissure (Figure 42).



**Figure 42 : Coupes transversales longitudinales (section A en orange et section B en bleu) utilisées pour l'enregistrement 2D. Un exemple est montré avec le volume binaire de la fissure dans le mortier fissuré « Fissure\_4 ».**

## 3.2 VALIDITE ET REPRODUCTIBILITE DE LA METHODOLOGIE PROPOSEE.

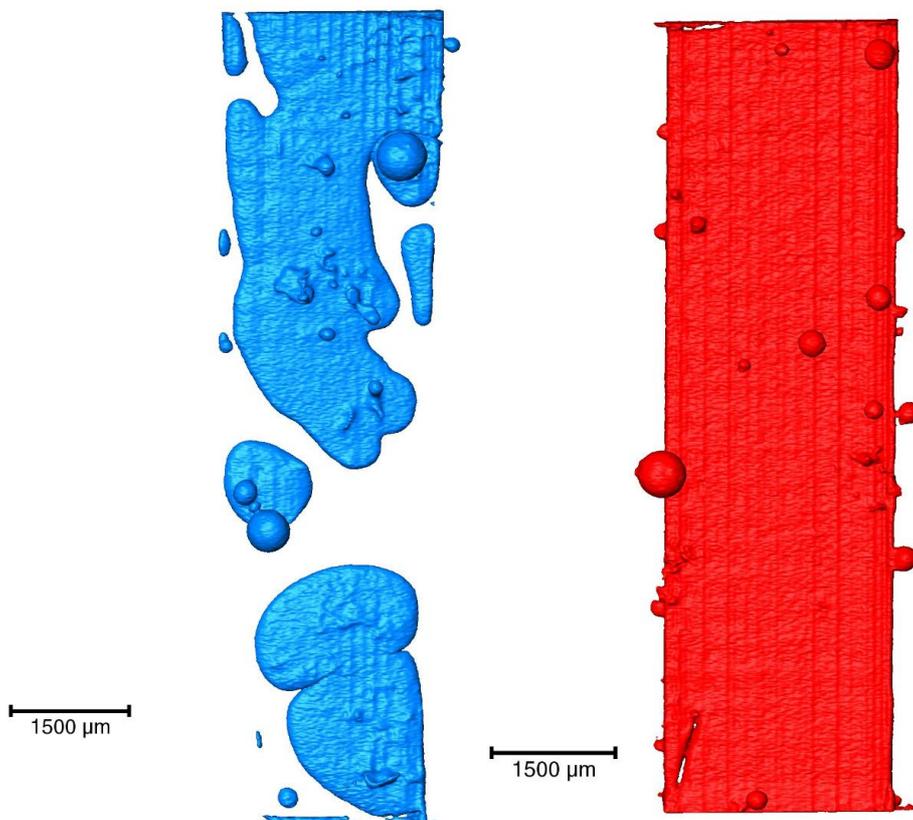
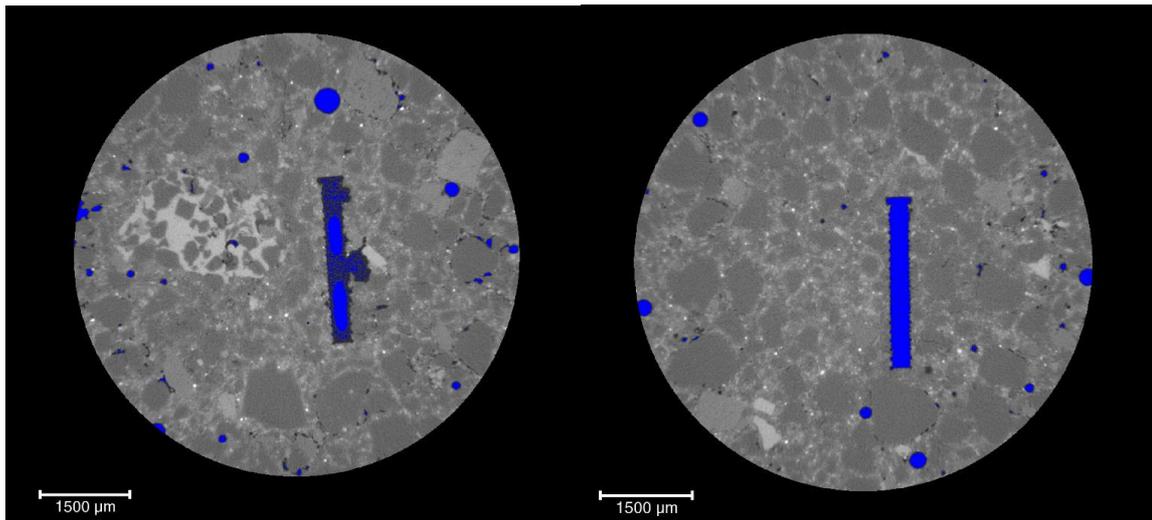
### 3.2.1 Contrôle de la dissolution des moules solides de fissures.

Grâce à l'analyse par micro-CT des barreaux de mortier fissurés, il est possible de contrôler la dissolution du moule de fissure. En effet, les fissures créées étant des milieux étroits, il est possible que la dissolution du moule de fissure dans le dichlorométhane soit incomplète et qu'il reste une certaine quantité de plastique dans la fissure après l'étape de dissolution. Ce plastique résiduel risquerait de « boucher » la fissure, rendant impossible les expériences d'injection de particules dans la fissure, ou de favoriser un colmatage rapide de la fissure invalidant les résultats concernant le transfert de particules.

La Figure 43 montre deux coupes virtuelles (orthoslices) extraites des images 3D de deux échantillons de mortier fissurés. Du fait d'une densité légèrement supérieure à celle de l'air, le plastique du moule apparaît sur la coupe de gauche en gris foncé, i.e. avec un niveau de gris intermédiaire entre l'air (noir) et le ciment (gris moyen à gris clair). Dans un cas (à gauche), le plastique du moule de fissure n'est que partiellement dissous. Dans l'autre cas (à droite), il est complètement dissous.

Sur tous les échantillons analysés (51 échantillons fissurés) seul un échantillon présentait des restes de plastiques. La raison de la présence de plastique pourrait s'expliquer soit par un temps de dissolution insuffisant soit par une saturation en plastique du solvant. Le protocole de dissolution des moules étant inchangé, la deuxième solution est plus probable.

Malgré le faible pourcentage d'échec de dissolution, il apparaît donc bien important de quantifier précisément la géométrie des fissures créées et ce contrôle doit être réalisé avant les expériences de transfert de particules. Cette étape de contrôle de la dissolution du moule de fissure dans le barreau de mortier fissuré est donc indispensable.



**Figure 43 : Observation en micro-CT de barreaux de mortier fissuré avec dissolution partielle (gauche) ou totale (droite) du moule de fissure. Les voxels de vide (pores du mortier et fissure) ont été isolés par seuillage et apparaissent en bleu (orthoslice gauche bas). Les volumes binaires des fissures, isolés selon la procédure de traitement des images 3D présentée ci-dessus, montrent clairement des variations dans le taux de dissolution du moule de fissure.**

### 3.2.2 Effet de la segmentation sur la quantification du volume de la fissure.

La segmentation ou le seuillage est l'étape la plus importante de la procédure de traitement d'images 3D (Figure 38B) car elle conditionne la justesse de toutes les mesures qualitatives et quantitatives qui en découlent [Lieb-Lappen et al., 2017] [Yokhana et al., 2017]. Afin de tester la robustesse de notre méthode de seuillage, nous avons évalué la variation du volume des fissures en fonction de la valeur du seuil (TV). Notre méthodologie de traitement d'image a été appliquée pour différentes TV autour de la TV initiale ( $TV_{ref}$ ) sélectionnée pour laquelle la dérivée de l'histogramme s'annule ( $f'(TV_{ref})=0$ ). Par exemple,  $TV_{ref} = 2630$  pour l'échantillon de mortier fissuré appelé "Fissure\_1", Tableau 3). Quatre valeurs de seuillage ( $TV_1$ ,  $TV_2$ ,  $TV_3$ ,  $TV_4$ ) ont été sélectionnées autour de  $TV_{ref}$  avec des variations allant respectivement de -60, -30 à +30 et +60 environ. Pour chacune de ces valeurs, le volume de la fissure a été déterminé (Tableau 3).

**Tableau 3 : Volume de fissure dans l'échantillon de mortier « Fissure\_1 » obtenu avec différentes valeurs de seuillage ( $TV_i$ ). Les variations sont calculées par rapport à la valeur de TV initiale ( $TV_{ref}$ ).**

Valeur de seuil (TV) en GSV	Variation par rapport à $TV_{ref}$	Volume de fissure ( $\mu m^3$ ) ( $\times 10^{10}$ )	Variation du volume de fissure (%)
$TV_1 = 2571$	-59 GSV/-2,24%	4,40	-1,32
$TV_2 = 2600$	-30 GSV/-1,14%	4,43	-0,62
<b><math>TV_{ref} = 2630^*</math></b>	<b>0</b>	<b>4,46</b>	<b>0</b>
$TV_3 = 2658$	+28 GSV/+1,06%	4,49	+0,57
$TV_4 = 2686$	+56 GSV/+2,13%	4,51	+1,12

GSV : Valeur du niveau de gris

\* $TV_{ref}$  : Valeur de TV initiale sélectionnée à partir de la dérivée de l'histogramme ( $f'(TV_{ref})=0$ ).

Les résultats présentés dans le tableau 4 montrent qu'avec une variation de la valeur du seuil d'environ +/- 60 GSV (soit +/- 2% de  $TV_{ref}$ ), le volume de fissure déterminé varie peu (+/- 1% environ par rapport au volume obtenu avec  $TV_{ref}$ ).

Ces résultats montrent qu'avec une erreur sur la valeur du seuil  $< 2\%$ , la quantification du volume de la fissure reste robuste (la variation de volume reste  $< 1,5\%$ ).

La détermination de la valeur de seuil à partir de l'histogramme lorsque  $f'(TV) = 0$  donne une valeur totalement indépendante de l'utilisateur par rapport à une sélection « visuelle » de TV.

### 3.2.3 Reproductibilité des moules de fissures par impression 3D.

#### Quantification 2D de la similarité

La similarité des moules de fissures obtenus par impression 3D a été évaluée quantitativement en considérant trois répliques d'une même géométrie de moule de fissures (Moule\_1 à Moule\_3). Pour chacun de ces moules, le coefficient de Kappa a été calculé à partir d'un enregistrement 2D de deux sections longitudinales (A et B) représentatives.

Le coefficient de Kappa montre une corrélation élevée pour les deux sections longitudinales A et B (Tableau 4) avec une valeur moyenne de  $0,79 \pm 0,03$  et  $0,80 \pm 0,04$  respectivement pour les sections A et B). En particulier, le Moule\_2 présente les meilleures corrélations avec les deux autres moules traduisant une superposition convenable.

Ces résultats montrent donc une bonne similarité entre les trois moules de fissures 3D que ce soit pour la section A ou B et confirment la bonne reproductibilité de l'impression 3D dans la fabrication de moules de fissures 3D.

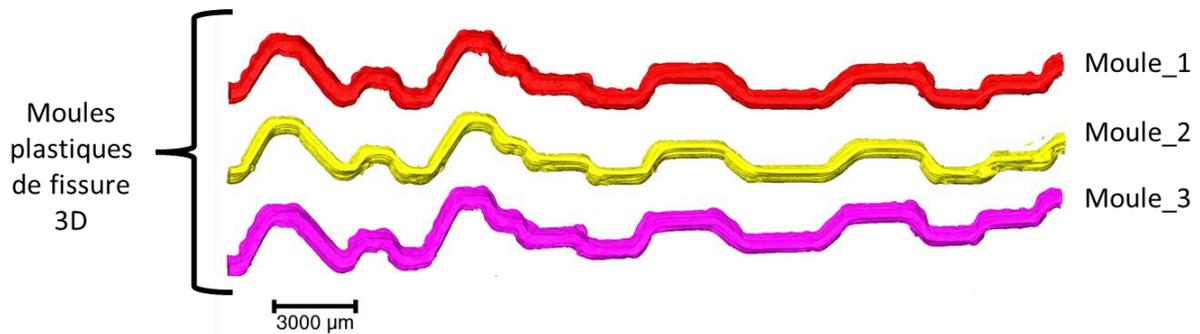
**Tableau 4 : Coefficients de kappa obtenus à partir de l'enregistrement d'images 2D de deux sections longitudinales binaires (Section A et Section B) entre trois répliques de moules (Moule\_1, Moule\_2 et Moule\_3).**

		Kappa	
		Section A	Section B
Moule_1	Moule_2	0,82	0,83
Moule_1	Moule_3	0,77	0,76
Moule_2	Moule_3	0,78	0,81
<b>Moyenne</b>		$0,79 \pm 0,03$	$0,80 \pm 0,04$

#### Comparaison des volumes des moules de fissures

La reproductibilité de l'impression 3D a également été évaluée en comparant le volume des moules de fissures obtenus. Pour cela, trois moules de fissure de même modèle 3D (voir paragraphe précédent, Moule\_1 à Moule\_3) ont été scannés en micro-CT. Les images 3D obtenues ont été binarisées afin de quantifier leur volume. Les volumes binaires obtenus sont

présentés dans la Figure 44 et les volumes de fissures calculés à partir de ces images sont présentés dans le Tableau 5.



**Figure 44 : Comparaison des volumes binaires de trois moules de fissures de même géométrie obtenus à l'aide du logiciel Avizo.**

**Tableau 5 : Volumes obtenus à partir d'images binaires micro-CT de 3 moules solides de même géométrie imprimés en 3D.**

	Volume ( $\mu\text{m}^3$ ) ( $\times 10^{10}$ )
<b>Moule de fissure 3D</b>	
Moule_1	3,91
Moule_2	3,59
Moule_3	3,88
<b>Moyenne</b>	<b>3,79 <math>\pm</math> 0,18</b>
<b>Ecart-type relatif (%)</b>	<b>4,70</b>

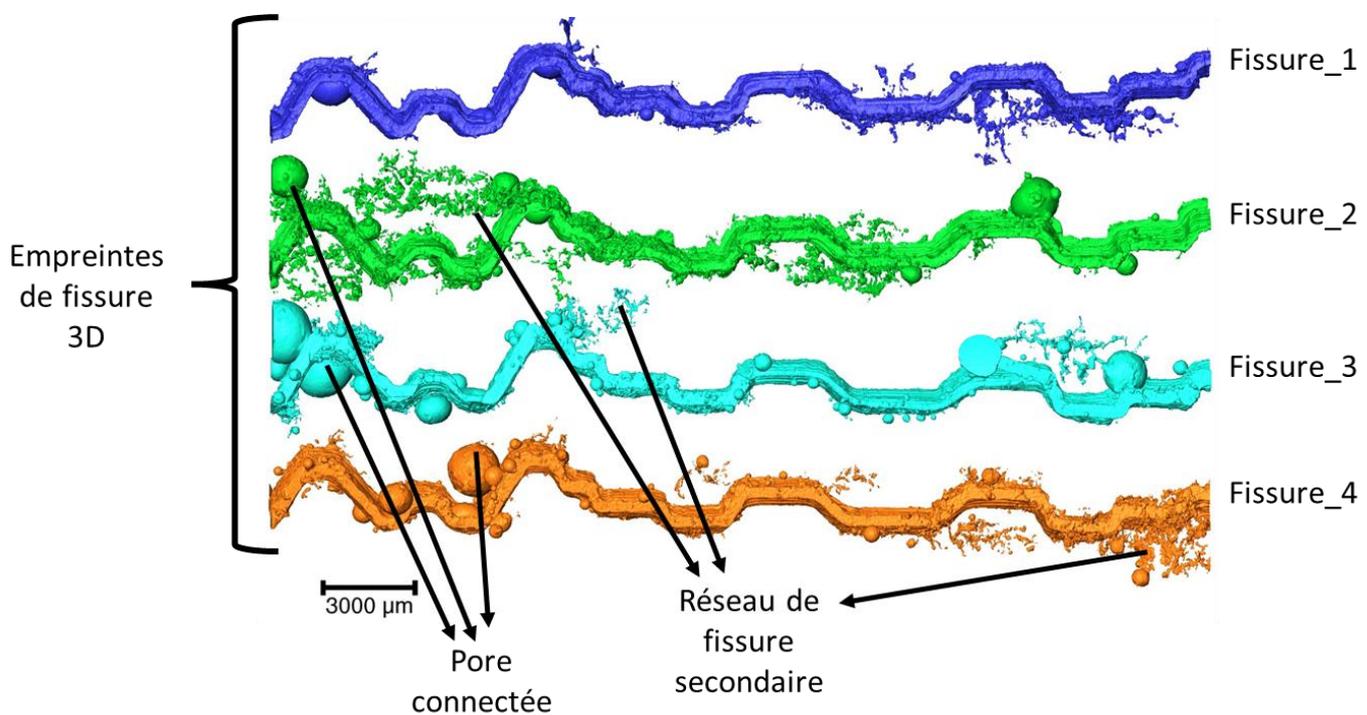
Les résultats montrent que les volumes des trois moules imprimés en 3D sont similaires avec un écart-type relatif inférieur à 5 %, ce qui est un écart acceptable. Ils confirment que l'étape d'impression 3D peut être considérée comme robuste et reproductible pour la production de moules de fissures.

L'impression 3D a permis de générer des moules de fissures de 300  $\mu\text{m}$  d'épaisseur avec des formes complexes, une géométrie et un volume parfaitement contrôlés avec une grande reproductibilité. Il fallait ensuite vérifier si les caractéristiques géométriques des moules de fissures ont bien été transmises au mortier.

### 3.2.4 Transfert des caractéristiques des moules de fissures dans les échantillons de mortier fissuré.

#### Description des fissures générées dans le mortier

Quatre échantillons de mortier fissuré ont été générés à partir de quatre répliques de moules de fissures imprimés à partir du même modèle 3D (Fissure\_1 à Fissure\_4). Les fissures générées au cœur des barreaux de mortier ont été quantifiées et comparées entre elles. L'objectif est ici d'évaluer la reproductibilité de la méthodologie proposée. Les volumes binaires des fissures internes et des pores connectés aux fissures, obtenus selon la procédure décrite en 3.1.4 sont présentés dans la Figure 45.



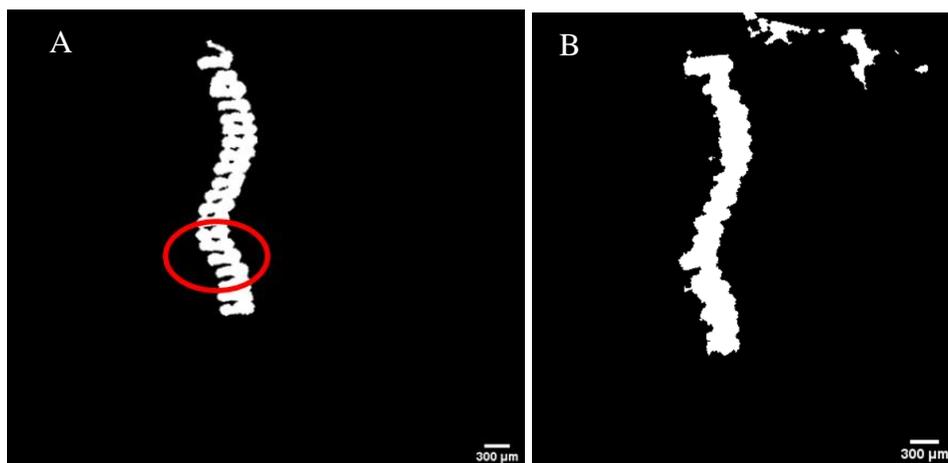
**Figure 45 : Volumes binaires des fissures et des pores connectés à la fissure (Fissure\_1 à Fissure\_4) pour 4 échantillons de mortier générés à partir de moules de fissure identiques.**

Il apparaît clairement que les quatre répliques de fissures internes présentent des géométries similaires. La forme irrégulière et spécifique (par exemple, la double vague au début de la fissure ou l'escalier qui suit) du moule de fissure solide imprimé en 3D peut être clairement identifiée. Cela montre qualitativement que la géométrie du moule de fissure imprimé en 3D est bien transmise à la fissure générée dans le mortier après dissolution du moule.

Néanmoins, comme on peut le voir dans la Figure 45 les fissures internes générées dans les échantillons de mortier présentent certains volumes supplémentaires, par exemple de grands pores sphériques connectés à la fissure et des ramifications conduisant à l'apparition de chemins étroits de fissures secondaires. Ces volumes de fissures sont issus de la difficulté expérimentale de la préparation des échantillons : bulles d'air formées lors de la coulée du mortier malgré l'utilisation de la tige de piquage et parfois décrochement de couches du moule plastique de fissure. En plus de la vérification de la bonne dissolution du moule plastique, il apparaît aussi important de caractériser avant le volume de fissure par micro-CT avant l'injection de particules car les bulles d'air et les chemins secondaires connectés à la fissure auront un impact sur le transfert de particules.

#### Transfert de la rugosité/irrégularités de l'impression 3D.

Grâce à la haute résolution spatiale du microtomographe RX, les détails de la rugosité ou plus exactement des irrégularités des fissures créées au cœur du barreau de mortier peuvent être observés. Ces irrégularités sont créées par les couches d'impression. On peut très clairement voir (Figure 46) les couches successives de l'impression 3D qui s'appuient les unes sur les autres. Dans certaines zones (cercle rouge dans la Figure 46A), on constate également que les couches d'impression peuvent s'affaisser et se détacher les unes des autres sous leur propre poids.



**Figure 46 : Coupe virtuelle (horizontale) extraite du volume binaire [A] d'un moule de fissure et [B] de la fissure générée à partir de ce moule dans un barreau de mortier. Les couches d'impression successives se distinguent entre elles formant une rugosité, des irrégularités à la surface de la fissure.**

Si on observe une coupe horizontale d'un mortier fissuré (Figure 46B), on constate que les irrégularités du modèle de fissure imprimé en 3D induites par les couches successives de dépôts sont également transférées à l'échantillon de mortier.

Ces formes non contrôlées créent une rugosité, des irrégularités de surface dictées par le nombre de couches d'impression. Même si ces irrégularités n'étaient pas prévues initialement, elles peuvent être mises à profit pour conférer une certaine rugosité de surface aux fissures générées après dissolution des moules dans le mortier (Figure 47). [Liu et Nazaroff, 2003] ont montré que les surfaces des matériaux de construction courant (briques, ciment, bois...) présentent une rugosité pouvant aller de 15 à 70  $\mu\text{m}$ . Dans notre cas la rugosité artificielle ainsi créée est d'environ 10-20  $\mu\text{m}$ .



**Figure 47 : Exemple de rugosité d'une fissure créée dans un mortier. [Akhavan et al., 2012]**

La rugosité intervient dans l'étude du transfert de particules d'aérosols car elle peut favoriser le dépôt des particules [Thatcher et Nazaroff, 1997] [Lai, 2002] [Liu et Nazaroff, 2003] [Lai, 2005] [Lai et Nazaroff, 2005]. [Pan et al, 2020] ont montré l'effet que pouvait avoir la hauteur de rugosité sur la vitesse de dépôt des particules. Ils ont montré dans le cas de particules de diamètre moyen inférieure à 2,5  $\mu\text{m}$  qu'à partir d'une hauteur de relief de rugosité 6  $\mu\text{m}$ , la vitesse de dépôt des particules augmentent de manières significatives quand la hauteur de rugosité augmente.

### Quantification de la similarité 2D des fissures

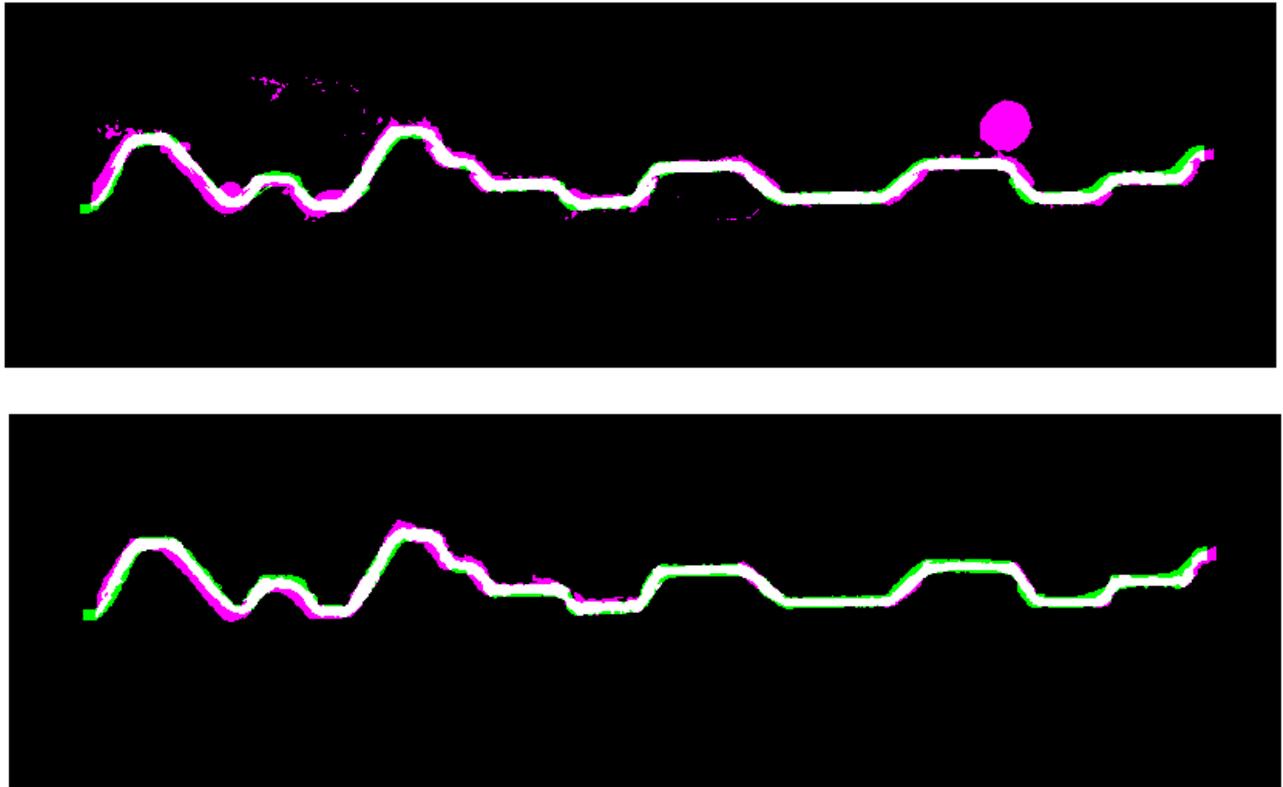
La similarité 2D des fissures générées dans le mortier a été évaluée en recalant l'image binaire du moule de fissure « Moule\_2 », aux images des 4 fissures présentées dans Figure 45 (Fissure\_1 à Fissure\_4).

Un exemple d'enregistrement d'image est présenté dans la Figure 48. Il illustre l'enregistrement entre le moule de fissure « Moule\_2 » en pixels verts et la fissure « Fissure\_3 » en pixels violets pour la section longitudinale A. Le résultat de l'enregistrement est montré en pixels blancs après superposition des pixels du moule et de la fissure.

Par rapport aux coefficients Kappa du Tableau 4 (enregistrement entre les images des répliques du moule), les coefficients Kappa obtenus pour les fissures originales (Tableau 6, fissures originales) diminuent légèrement, montrant une corrélation plus faible pour les deux sections longitudinales. Ceci est induit par la présence des pores et des fissures secondaires connectés au volume de la fissure et par des valeurs de torsion différentes entre la fissure\_3 et le moule\_2. Toutefois, les coefficients restent relativement élevés pour les sections A et B, à respectivement  $0,72 \pm 0,07$  et  $0,71 \pm 0,06$  alors qu'ils étaient de l'ordre de 0,8 pour les moules de fissures.

La géométrie globale du moule de fissure solide imprimé en 3D est donc clairement maintenue dans la fissure interne.

Si on « nettoie » les fissures en éliminant les pores connectés et les fissures secondaires en enlevant les pixels correspondants, les coefficients kappa de ces « fissures filtrées » sont, comme on pouvait s'y attendre, plus élevés (Figure 48, bas). On retrouve les valeurs obtenues lors de la comparaison entre les moules de fissures à respectivement  $0,78 \pm 0,02$  et  $0,77 \pm 0,02$  pour les deux sections longitudinales (Tableau 6, fissures filtrées).



**Figure 48 : Enregistrement d'images 2D (blanc) entre le moule de fissure « Moule\_2 » (vert) et la fissure « fissure\_3 » (violet) le long de la section longitudinale A. Fissure originale en haut (kappa = 0,73) et fissure filtrée en bas (kappa = 0,80).**

**Tableau 6 : Coefficients Kappa obtenus à partir du recalage d'images 2D entre les images binaires du moule\_2 et les fissures isolées (Fissure\_1 à Fissure\_4). Fissure\_1\* à Fissure\_4\* appelées fissures filtrées\* correspondent à l'image originale de la fissure après l'opération de nettoyage morphologique, la suppression des fissures secondaires et des pores connectés.**

		Fissure_1	Fissure_2	Fissure_3	Fissure_4	Moyenne	Ecart-type
<b>Moule_2</b>	Section A	0,77	0,73	0,62	0,74	0,72 ± 0,07	0,07
	Section B	0,76	0,69	0,69	0,71	0,71 ± 0,03	0,03
		Fissure_1*	Fissure_2*	Fissure_3*	Fissure_4*	Moyenne	Ecart-type
<b>Moule_2</b>	Section A	0,80	0,80	0,76	0,79	0,78 ± 0,02	0,02
	Section B	0,79	0,78	0,76	0,74	0,77 ± 0,02	0,02

### Quantification et comparaison des volumes des fissures

Les volumes des 4 fissures générées dans les barreaux de mortier (fissures décrites dans le paragraphe 4.2.4.2) sont présentées dans le Tableau 7. Globalement, les volumes des fissures sont similaires avec un écart type-relatif inférieur à 10% (8,72%). On peut cependant noter quelques différences et deux groupes se distinguent :

- Les volumes des fissures « Fissure\_1 » et « Fissure\_4 » (respectivement 4,46 % et 4,41 % soit un écart de 1%) sont très similaires ;
- Ceux des fissures « Fissure\_2 » et « Fissure\_3 » sont également similaires (5,24 % et 5,04 % soit un écart de 4 %) mais plus élevés que les précédents.

Les images 3D de ces fissures révèlent que dans le cas de la fissure « Fissure\_2 », c'est le réseau de fissures secondaires qui est particulièrement développé et participe à l'augmentation du volume de fissures. Dans le cas de la « Fissure\_3 », c'est la présence de bulles d'air de grand diamètre connectées à la fissure qui occasionne l'augmentation du volume total. Ces différences sont liées à la mise en œuvre et à la prise du mortier, seul phénomène aléatoire de la méthodologie qui diffère d'un échantillon à l'autre bien que les échantillons proviennent de la même gâchée. La prise peut en effet entraîner le piégeage d'air et/ou la création de pores lors de la dissolution et de la précipitation des phases hydratées. Nous avons préparé les barreaux de mortier de manière aussi homogène que possible en utilisant une petite tige en acier comme mélangeur afin de limiter les pores de grandes tailles. Cependant, il est impossible d'être parfaitement reproductible notamment en raison du petit diamètre du cylindre en plastique.

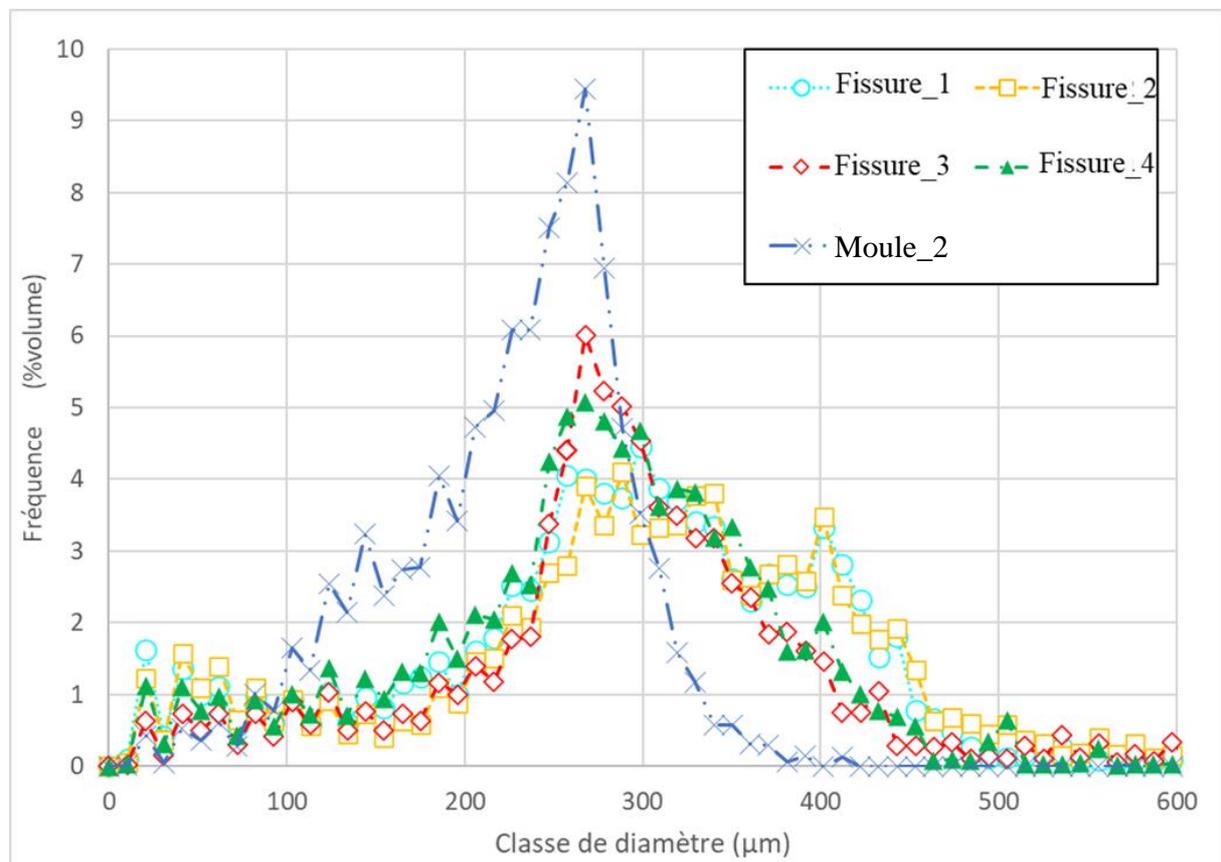
**Tableau 7 : Volumes obtenus à partir d'images binaires micro-CT de fissures isolées de même géométrie dans des échantillons de mortier (4 répliques).**

	Volume ( $\mu\text{m}^3$ ) ( $\times 10^{10}$ )	Ecart entre la moyenne des volumes des moules et la Moyenne des volumes des fissures (%)
<b>Fissure interne (mortier)</b>	Volume	
Fissure_1	4,46	
Fissure_2	5,24	
Fissure_3	5,04	
Fissure_4	4,41	
Moyenne	<b>4,79 <math>\pm</math> 0,42</b>	<b>126,39</b>
<b>Ecart-type relatif (%)</b>	<b>8,72</b>	

Si on compare le volume moyen des fissures générées dans le barreau de mortier (Tableau 7) au volume moyen des moules de fissure (Tableau 6), on constate une augmentation d'environ 25% pour les fissures liées à la présence des bulles d'air et des fissures secondaires connectées à la fissure principale.

#### Quantification des épaisseurs locales des fissures

Pour aller plus loin dans la comparaison quantitative des moules de fissure et de leurs empreintes générées dans le mortier, les épaisseurs locales du moule de fissure « Moule\_2 » et des fissures « Fissure\_1 à Fissure\_4 » ont été déterminées à l'aide du logiciel Imorph sur la base du calcul du diamètre d'ouverture. Les distributions des épaisseurs locales des fissures et du moule de fissure sont présentées dans la Figure 49.



**Figure 49 : Distribution des épaisseurs locales dans le Moule\_2 et dans les fissures générées dans les barreaux de mortier.**

La Figure 49 montre que la distribution des épaisseurs locales est centrée autour de 270 µm pour le Moule\_2, ce qui correspond approximativement à l'épaisseur du modèle de fissure (300 µm). L'épaisseur est légèrement sous-estimée en raison de la forme en dents de scie du bord

des fissures due à l'effondrement des couches d'impression 3D (Figure 46). On observe également une dissymétrie vers les faibles diamètres, liée à la superposition des couches les unes sur les autres sans qu'elles ne fusionnent, créant des espaces vides entre chaque couche (assimilée à la rugosité du coup dans les fissures générées dans le mortier).

Les distributions obtenues pour les fissures sont également centrées sur une valeur similaire (environ 270  $\mu\text{m}$ ). Cela confirme que l'épaisseur du moule de fissure est bien transmise à la fissure interne des échantillons de mortier fissuré. Ce résultat indique que les fissures générées sont reproductibles au niveau de leur épaisseur locale, et ce en dépit des différences de volume observées et induites par la prise du mortier (Figure 45).

On observe dans le cas des fissures, une dissymétrie vers les grands diamètres au-dessus de 300  $\mu\text{m}$  ainsi qu'un pic de fréquence autour de 400  $\mu\text{m}$ . Ceci est largement dû à la présence de pores et de réseaux de fissures secondaires connectés à la forme principale qui ont tendance à augmenter l'épaisseur locale au niveau de leurs connexions.

La comparaison visuelle des empreintes de fissure générées dans le mortier, la mesure de leur similarité 2D et de leur volume et la quantification de leur épaisseur locale montrent que la géométrie et les caractéristiques des moules sont bien transmises dans le mortier, validant notre protocole présenté dans ce chapitre. Les volumes des fissures obtenues sont relativement similaires (un écart-type de 8,72%) ce qui permet de montrer la reproductibilité du protocole. Cependant, la préparation du mortier et la prise du ciment induisent la présence de pores et de fissures secondaires connectés au réseau principal. Ces éléments induisent des différences entre les fissures modifiant ainsi leurs volumes et leurs épaisseurs locales. L'amélioration de la reproductibilité de la préparation du mortier en limitant notamment la présence de ces bulles d'air sera un enjeu de futures études.

La présence de pores connectés à la fissure montre l'importance de la caractérisation préalable des fissures par micro-CT car elle permet de prendre en compte la forme et le volume réels de la fissure, la présence de bulles d'air étant inhérente aux coulées de mortier dans différents récipients.

Ces échantillons de mortier fissuré, dont la géométrie des fissures est bien caractérisée, peuvent être ensuite utilisés lors des études expérimentales de transfert de particules.

#### 4. ETUDE DU TRANSPORT DE PARTICULES DANS UN MORTIER FISSURE.

Le deuxième objectif de la thèse consiste à étudier le transport de particules au travers des fissures précédemment créées et caractérisées par micro-CT, dans des conditions propres à celle des colis de déchets. Des particules modèles de  $\text{CeO}_2$  sont ainsi injectées dans les échantillons de mortier fissuré par l'intermédiaire d'un dispositif expérimental avec des débits de gaz vecteur faibles, le plus cohérent possible avec des valeurs de dégazage de colis (attendus  $< 0,2 \text{ mL/min}$ ).

Avec des débits de gaz aussi faibles, il est possible que peu de particules, voire qu'aucune particule, ne passent au travers des fissures rendant difficile l'utilisation de compteurs de particules pour mesurer la concentration volumique de particules en sortie de la fissure. Une méthodologie a alors été spécifiquement développée pour permettre de mesurer directement dans le solide le profil de migration des particules dans la fissure. Cette méthodologie s'appuie principalement sur la microtomographie RX qui permet la visualisation et la quantification des dépôts de particules directement dans les fissures (distance d'arrêt des particules, taille des particules...). Elle permet également d'apprécier les différents mécanismes responsables de leur dépôt et rétention dans la fissure.

Dans un deuxième temps et à partir des méthodologies développées, l'influence de certains paramètres, tels que le débit de gaz vecteur et la forme des fissures, sur le transport des particules pourra être étudiée. En effet, bien contrôler la géométrie des fissures, permet (i) d'étudier son influence sur la migration des particules en comparant les résultats obtenus pour deux géométries variées (ex. fissure plate vs complexe) ou (ii) d'étudier l'influence d'un autre paramètre (ex. débit du gaz vecteur) en s'affranchissant de l'effet de la géométrie de la fissure.

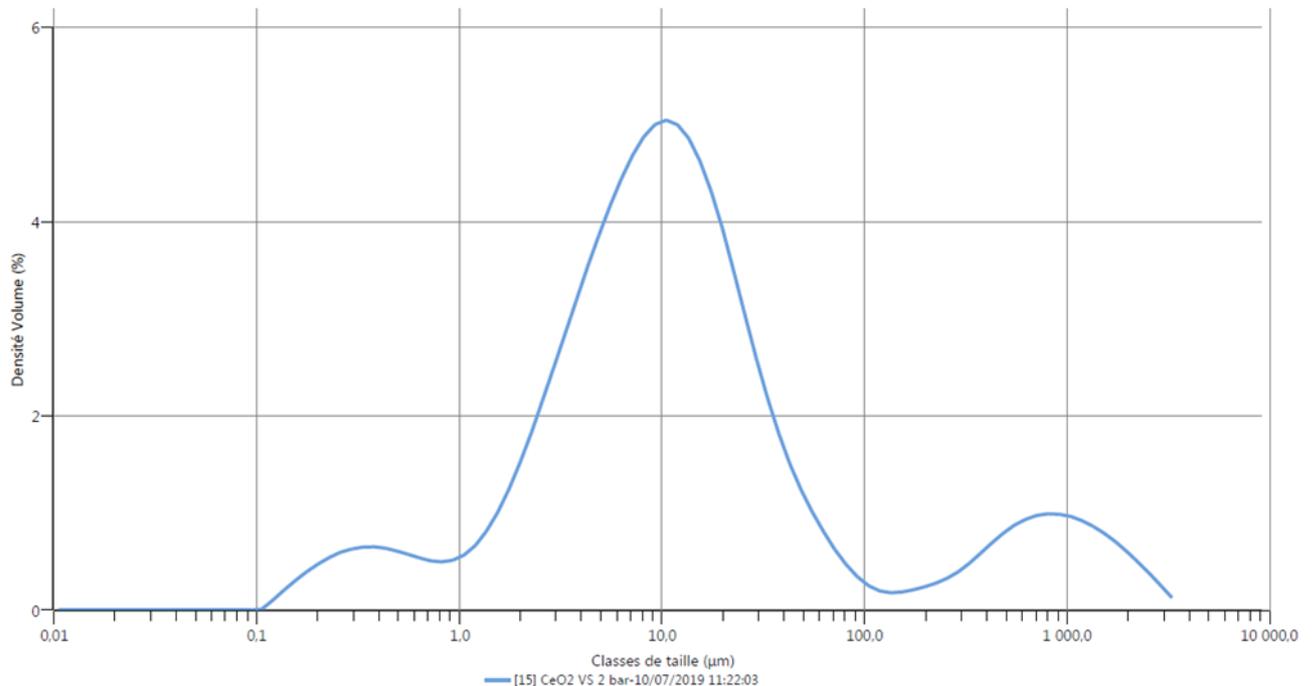
#### 4.1 MATERIELS ET METHODES.

##### 4.1.1 Particules modèles : l'oxyde de cérium.

Comme détaillé dans la partie 2.4.1, le principe de la micro-CT repose sur le contraste d'absorption des rayons X par les matériaux selon leurs densités [Withers, 2021]. Dans le cas du mortier, les principaux constituants de ce dernier possèdent les masses volumiques suivantes :  $3,12 \text{ g/cm}^3$  pour les phases  $\text{C}_3\text{S}$  ;  $2,6 \text{ g/cm}^3$  pour les phases  $\text{SiO}_2$  ;  $2,3 \text{ g/cm}^3$  pour les CSH et  $2,2 \text{ g/cm}^3$  pour les phases  $\text{Ca(OH)}_2$ , notamment [Balonis ET Glasser, 2009]. Pour pouvoir identifier les particules injectées puis retenues à l'intérieur des fissures par micro-CT, celles-ci devront posséder une densité notablement plus élevée que celles des composants du mortier, afin que le contraste entre les particules et les phases minérales soit suffisant.

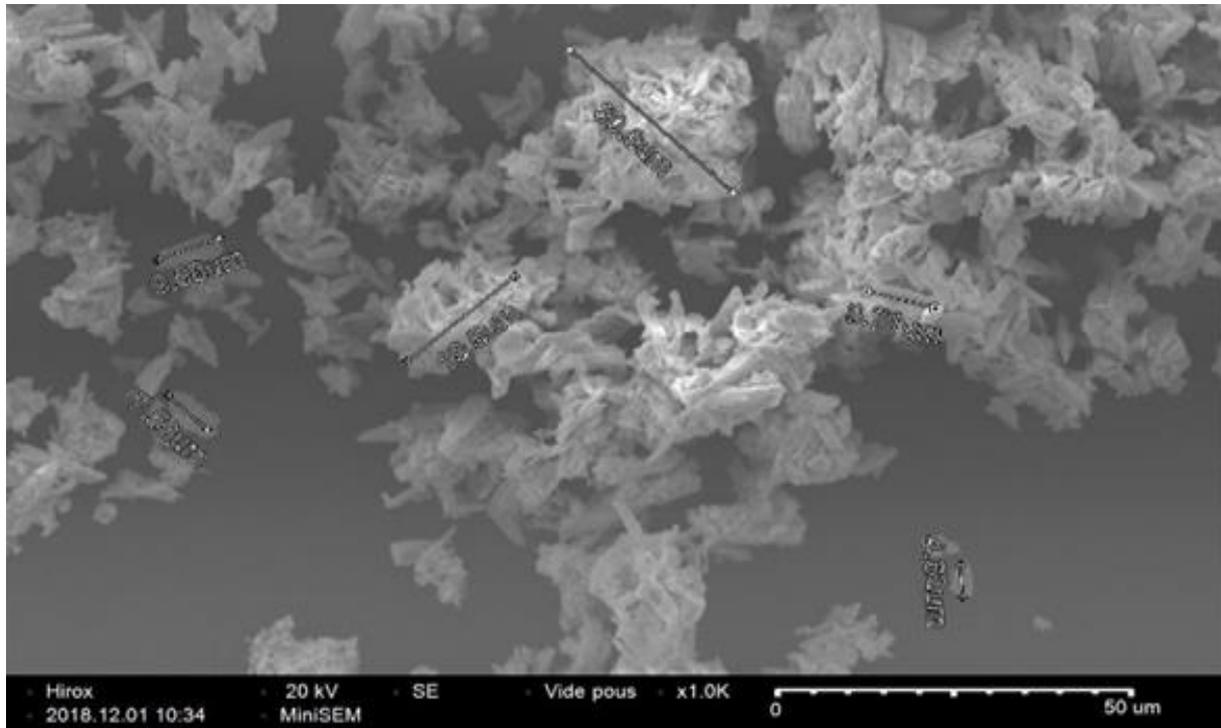
Dans l'exemple des études de [Gélain, 2012], l'utilisation de fluorescéine (particules également très utilisées dans la qualification des filtres THE) n'est pas adaptée car leur densité est très faible (molécule organique).

C'est pourquoi le choix des particules s'est orienté sur de l'oxyde de cérium  $\text{CeO}_2$ . Avec sa densité de  $7,22 \text{ g/cm}^3$ , le contraste de densité rendra l'identification des particules déposées plus facile. Cette densité est plus proche de celles de particules représentatives de particules d'accident nucléaire ( $7,35 \text{ g/cm}^3$ ), sélectionnées dans l'étude COLIMA [Morandi et al., 2012]. De plus, [Guetat et al., 2008] ont noté que si la densité théorique de l'oxyde de plutonium est de  $11,5 \text{ g/cm}^3$ , la densité des particules qui en découle est normalement inférieure à celle-ci. Pour les composés d'uranium considérés comme un analogue des aérosols radioactifs, [Ansoborlo et al., 2002] indiquent une valeur de densité moyenne de  $9 \text{ g/cm}^3$  pour  $\text{UO}_2$ , à partir de mesures en milieu industriel. De plus le  $\text{CeO}_2$  a déjà été utilisé comme particules modèles dans une étude de sureté des colis de déchets [Mitchell et al., 1992] et [Morton et al., 1992]. Un lot brut de poudre a été acquis avec une distribution granulométrique centrée sur  $10 \mu\text{m}$ . La distribution granulométrique par voie sèche de ce lot, obtenue par SDTECH à l'aide d'un Mastersizer 3000 (Malvern) et d'un AeroS, à une pression de 2 bars, est représentée Figure 50.



**Figure 50 : Distribution granulométrique d'un lot de poudre d'oxyde de cérium ( $\text{CeO}_2$ ) dont le diamètre moyen ( $D_m$ ) est de  $10 \mu\text{m}$ .**

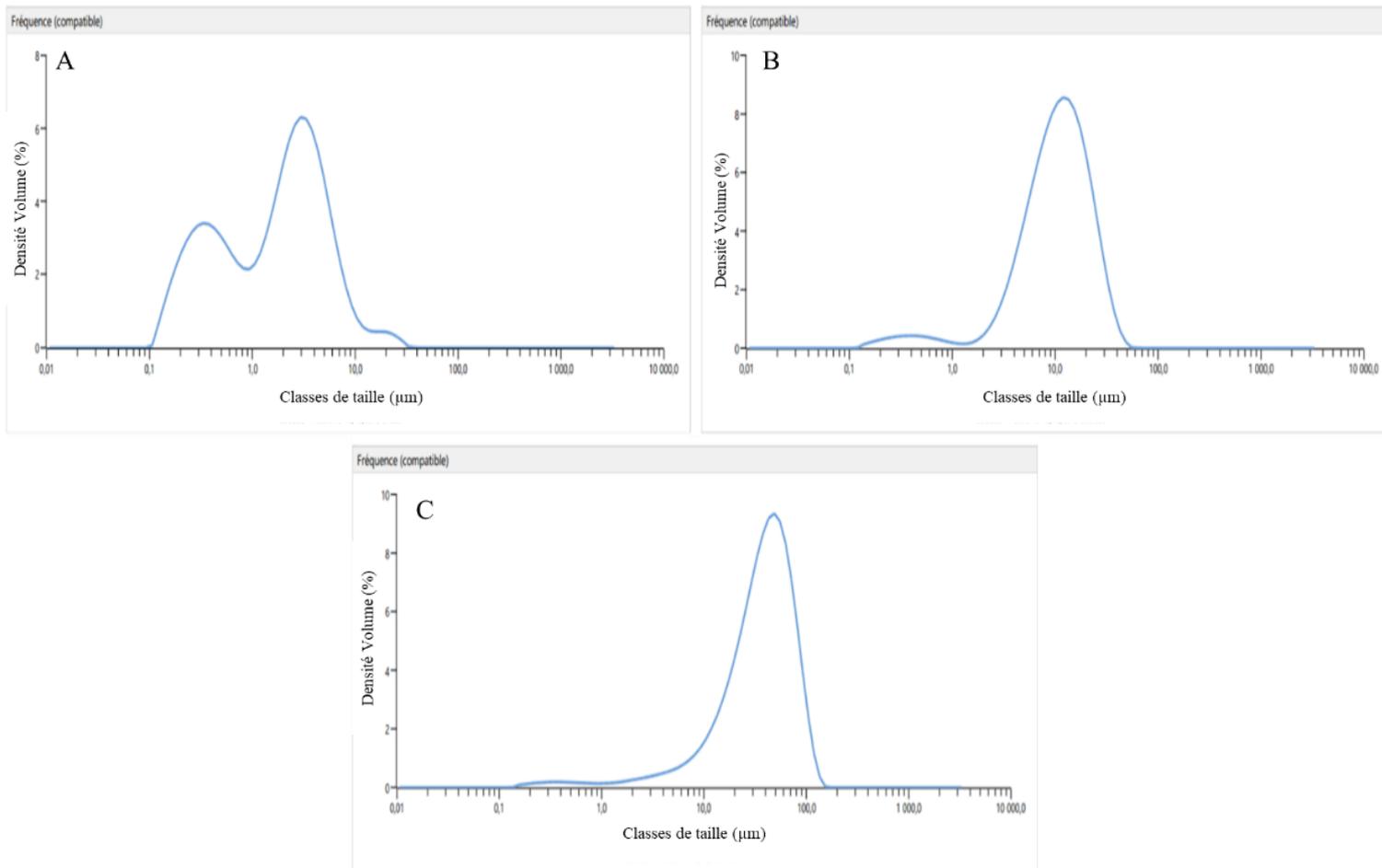
Une étude en microscopie électronique (MEB) des particules de CeO<sub>2</sub> a montré que les particules possèdent des formes irrégulières (Figure 51).



**Figure 51 : Observation au MEB du lot de particules de CeO<sub>2</sub>, avec des exemples de mesures de classes de tailles des particules**

Les particules sélectionnées pour notre étude devaient répondre à deux critères : (i) leur taille devait s'approcher de la taille des aérosols susceptibles de migrer dans les colis de stockage et (ii) les particules devaient être détectables en micro-CT. C'est-à-dire que leur taille devait être à minimum égale à 3 voxels (30 µm environ). Si la taille des aérosols tels que l'uranium varie de 2 à 10 µm [Ansoborlo, 1997] [Fritsch, 2006] [Guetat et al., 2008], la résolution spatiale que nous avons choisie dans le cadre de cette étude (voxel de 10,3 µm) requiert des particules sensiblement plus grandes.

A partir du lot de poudre de CeO<sub>2</sub>, une sélection granulométrique par voie sèche a donc été faite afin d'obtenir différents lots de tailles en particules centrés sur différents diamètres d'intérêt : 1, 10 et 40 µm, voir, Figure 52. Le lot centré à 40 µm a été sélectionné pour initier cette étude car il s'avère le mieux adapté à nos contraintes.

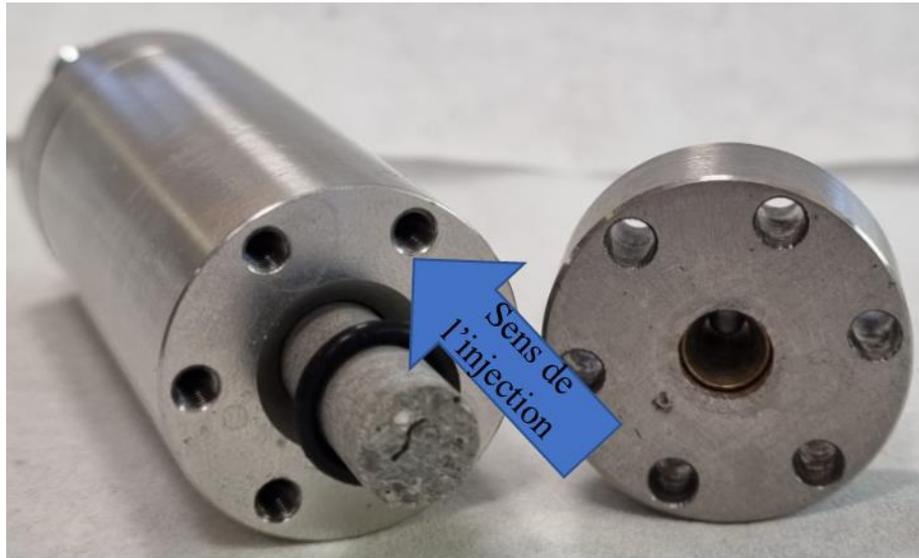


**Figure 52 : Courbes granulométriques de différents lots de poudre de CeO<sub>2</sub> obtenus à partir du lot initial présenté dans la Figure 1. [A] : Lot de poudre de D<sub>m</sub> = 1 μm. [B] : Lot de poudre de D<sub>m</sub> = 10 μm. [C] lot de poudre de D<sub>m</sub> = 40 μm.**

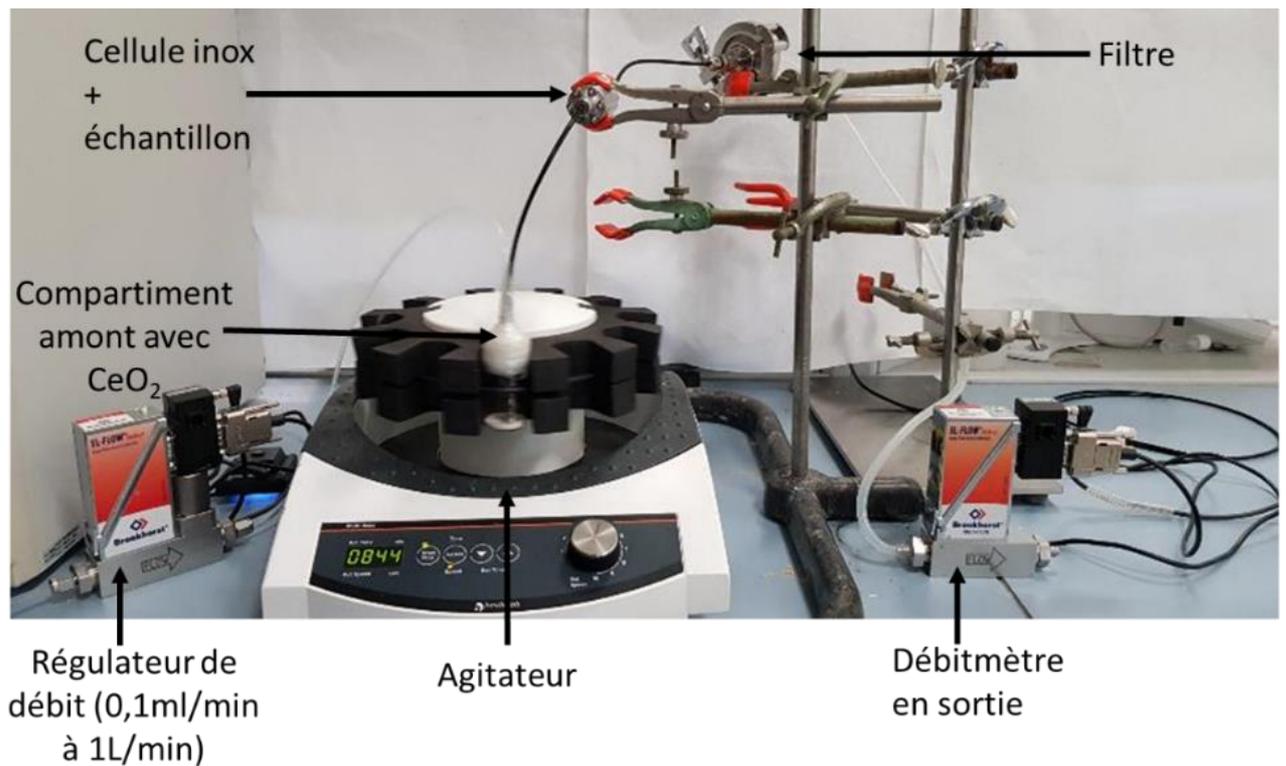
#### 4.1.2 Dispositif expérimental simulant un transport de particules dans un mortier fissuré.

Le montage expérimental simulant le transport de particules est présenté dans la Figure 54. Il est constitué de :

- Une cellule inox (Figure 53) accueillant l'échantillon de mortier maintenu horizontalement ;
- Une arrivée d'air au travers de raccords swagelok directement soudés sur le corps de la cellule ;
- Un compartiment amont déporté qui peut être vibré à l'aide d'un agitateur. Cela permet d'éviter la cohésion des particules entre elles pour faciliter leur entraînement par le courant gazeux, homogénéiser le tas de poudre et éviter les « zones mortes » sur les bords du compartiment.

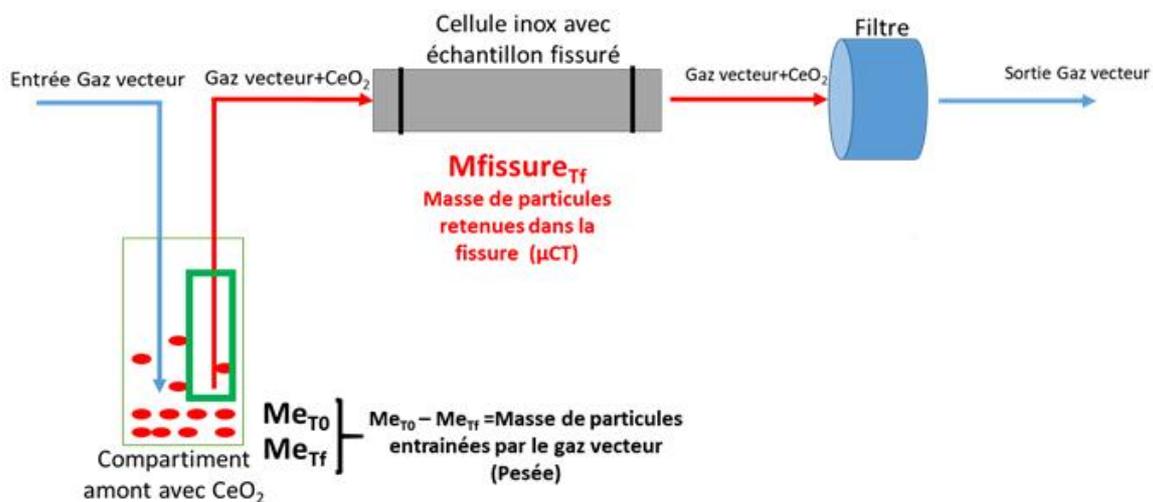


**Figure 53: Photographie de la cellule inox accueillant le barreau de mortier fissuré. L'injection du flux de gaz vecteur est réalisée horizontalement.**



**Figure 54 : Photo du montage expérimental utilisé pour l'injection de particules de CeO<sub>2</sub> au travers des échantillons de mortier fissuré. La cellule inox contenant un échantillon de mortier est placée horizontalement au centre du montage et elle est instrumentée par un régulateur et capteur de débit du gaz vecteur.**

Le montage est équipé de débitmètres autorisant des débits de gaz vecteur compris entre 0,1 ml/min à 10 ml/min dans le compartiment amont dans lequel une quantité de poudre de  $\text{CeO}_2$  a été déposée (voir Tableau 8). Le compartiment amont déporté est agité de façon constante et le gaz vecteur entraîne avec lui des particules en direction de la cellule inox dans lequel les échantillons fissurés sont placés. Le tuyau reliant la chambre de particules et la cellule de transport est un tuyau antistatique PTFE à très faible rugosité qui permet de prévenir au maximum des interactions entre les parois du tuyau et les particules. Un filtre est également placé en sortie de la cellule inox pour piéger les particules qui auraient pu traverser l'échantillon. Le montage est complété en sortie par un débitmètre permettant une surveillance continue du débit afin de détecter un risque de fuite ou de colmatage. Les temps d'investigation sont compris entre 7 et 30 jours. La Figure 55 représente la schématisation du montage expérimental ainsi que les grandeurs mesurées dans cette étude tandis que le Tableau 8 récapitule les mesures de masses mises en jeu dans chaque expérience. Les données présentées dans le Tableau 8 seront discutées et développées ultérieurement dans la partie résultats.



**Figure 55 : Schématisation du montage précédent avec les grandeurs mesurées : En noir mesuré par pesée. En rouge : mesuré par traitement d'image grâce à la micro-CT.**

- $M_{\text{e}_{\text{T0}}}$  correspond à la masse de particules initialement placées dans le compartiment amont ;
- $M_{\text{e}_{\text{Tf}}}$  correspond à la masse de particules encore présentes dans le compartiment au bout de 7 jours d'injection ;
- $M_{\text{fissure}_{\text{Tf}}}$  correspond à la masse de particules retenues dans la fissure qui est calculée à partir des résultats de traitement d'images après caractérisation par micro-CT (et est comparée au bilan de masse).

La balance utilisée pour les pesées est une Mettler Toledo AG245 avec une précision sur la mesure au 10<sup>ème</sup> de milligramme.

Rappel formule sur la fraction de particules mises en suspension :

$$Fms = \frac{\Delta m}{Me_{T0}}$$

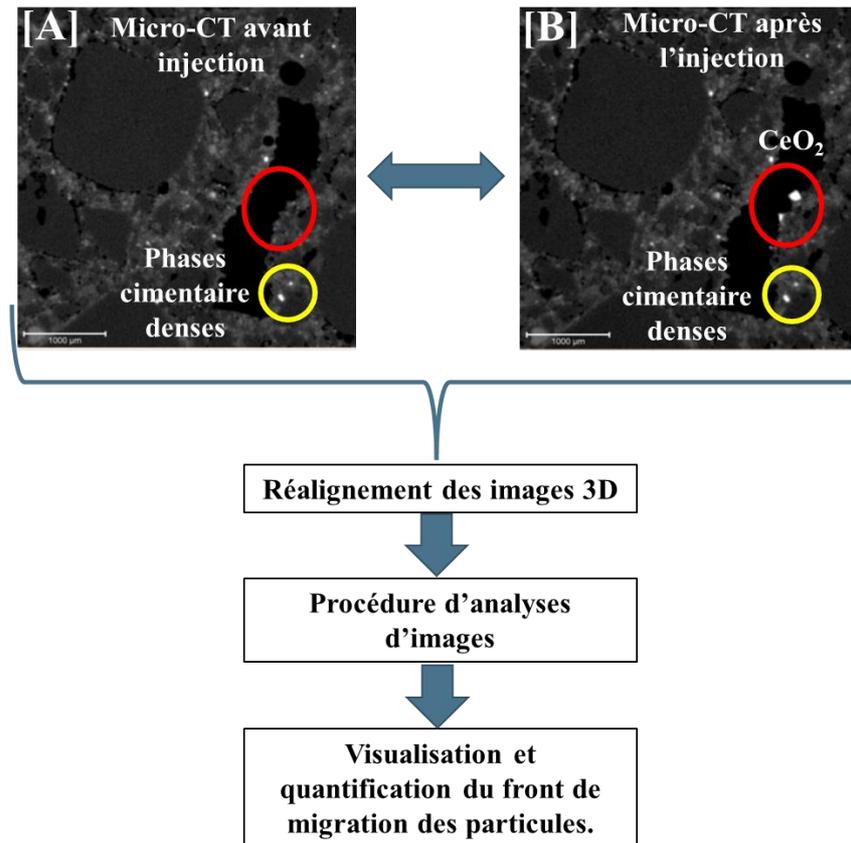
$$\Delta m = Me_{T0} - Me_{Tf} \text{ (g)}$$

**Tableau 8 : Tableau récapitulatif des masses de particules mises en jeu. Me<sub>T0</sub> correspond à la masse de particules initialement placées dans le compartiment amont ; Me<sub>Tf</sub> correspond à la masse de particules encore présentes dans le compartiment au bout de 7 jours d'injection.**

Echantillons à fissure complexe, injection sur 7 jours (sauf pour 1 ml/min sur 1 mois).				
Débit	Masse avant (Me <sub>T0</sub> ) (g)	Masse après (Me <sub>Tf</sub> ) (g)	Me <sub>T0</sub> -Me <sub>Tf</sub> (g)	Fraction de particules mises en suspension
1 ml/min	1,3626 ± 0,0001	1,3588 ± 0,0001	0,0038 ± 0,0002	(2,789 ± 0,200).10 <sup>-3</sup>
5 ml/min	2,9650 ± 0,0001	2,9093 ± 0,0001	0,0557 ± 0,0002	(18,786 ± 0,201).10 <sup>-3</sup>
10 ml/min	3,1793 ± 0,0001	3,0367 ± 0,0001	0,13721 ± 0,0002	(43,230 ± 0,201).10 <sup>-3</sup>
Echantillons à forme de fissure variable (débit = 10 ml/min sur 7 jours)				
Fissure	Masse avant (Me <sub>T0</sub> ) (g)	Masse après (Me <sub>Tf</sub> ) (g)	Me <sub>T0</sub> -Me <sub>Tf</sub> (g)	Fraction de particules mises en suspension
Plate	3,4391 ± 0,0001	3,1756 ± 0,0001	0,2635 ± 0,0002	(76,618 ± 0,202).10 <sup>-3</sup>
Sinusoïdale	1,1480 ± 0,0001	0,9694 ± 0,0001	0,1786 ± 0,0002	(155,572 ± 0,214).10 <sup>-3</sup>
Complexe	3,1793 ± 0,0001	3,0367 ± 0,0001	0,13721 ± 0,0002	(43,230 ± 0,201).10 <sup>-3</sup>

#### 4.1.3 Visualisation et caractérisation des profils de particules déposées dans les échantillons de mortiers fissurés.

Après l'injection des particules, les échantillons sont scannés à nouveau par micro-CT. Pour permettre la détection des particules, les images 3D des échantillons après injection sont comparées aux images 3D des échantillons obtenues avant l'injection de particules. Les différentes étapes qui conduisent à la visualisation et à la caractérisation des profils de particules déposées dans les échantillons de mortiers fissurés sont présentées dans la Figure 56 et détaillées dans les parties suivantes.



**Figure 56 : [A] coupe 2D extraite d'une image 3D d'un échantillon de mortier fissuré avec l'injection des particules de CeO<sub>2</sub>. [B] représente la même coupe 2D du même échantillon effectué après l'injection des particules de CeO<sub>2</sub>. Les deux étapes conduisant à la visualisation et la quantification du front de migration des particules sont également présentées.**

Les conditions d'acquisitions des scans après injection sont les mêmes que ceux avant injection présentées dans le Chapitre 4. Pour rappel la taille du voxel est de  $10,3 \times 10,3 \times 10,3 \mu\text{m}^3$ . Afin d'imager les échantillons dans leur totalité, 5 scans sont réalisés puis assemblés afin d'obtenir un seul volume global.

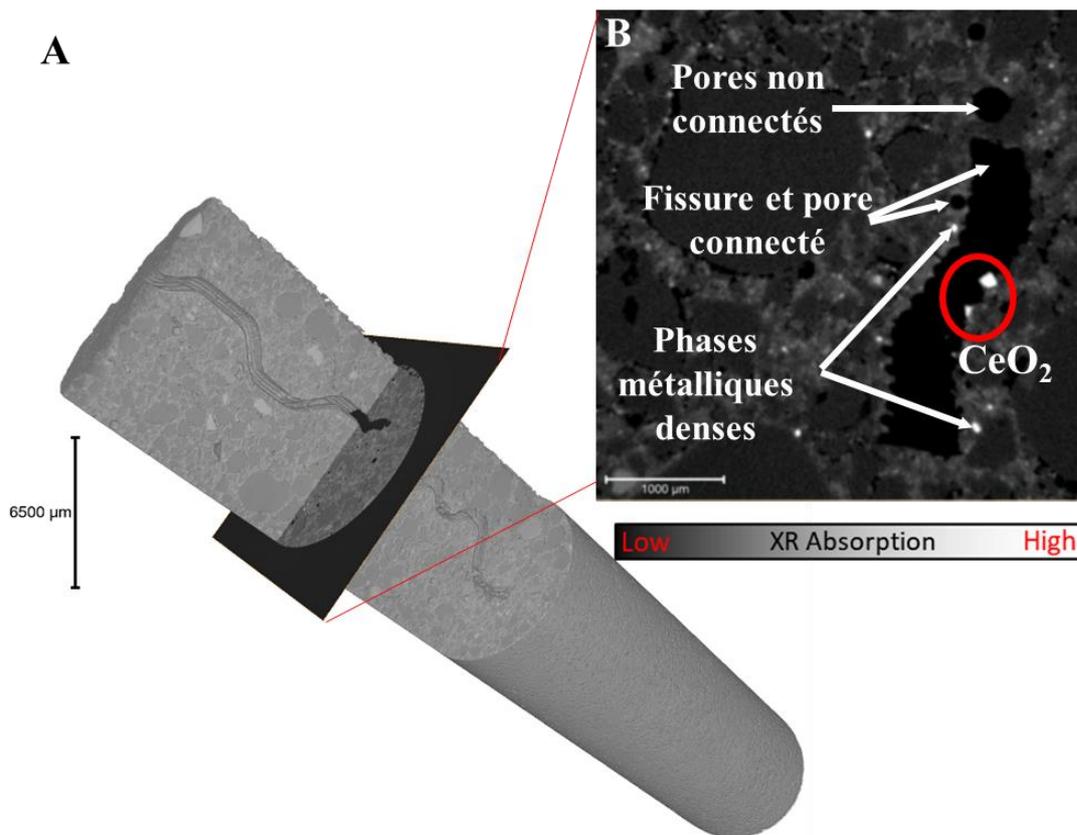
Le temps total d'acquisition pour un même échantillon avant et après injection est de 40 heures environ : 20 heures d'acquisition pour caractériser la fissure entière avant injection des particules (5 scans de 4h) puis 20 heures d'acquisition après injection des particules pour visualiser le profil de migration de particules dans toute la fissure (5 scans de 4h).

L'objectif de l'étape d'analyse des images 3D est de visualiser et quantifier le dépôt de particules dans les fissures (localisation des particules, masse et volume des particules déposées, distance d'arrêt, taille des particules...).

Les particules de CeO<sub>2</sub> dans la fissure doivent donc être isolées par seuillage des images 3D reconstruites. Les particules de CeO<sub>2</sub>, denses, absorbent fortement les rayons X et apparaissent

donc en blanc brillant sur l'orthoslice de la Figure 57. Cependant, la matrice de ciment autour des grains de sable contient également une phase absorbant fortement les rayons X (pixels blanc brillant dans la matrice cimentaire, Figure 57). Le niveau d'absorption des RX de ces deux phases est très proche. Il est donc impossible d'isoler par simple seuillage les seuls voxels des particules de  $\text{CeO}_2$ .

Il a donc fallu mettre au point une méthode de traitement et d'analyse adaptée à notre problématique (i.e. localiser les particules de  $\text{CeO}_2$  dans le mortier fissuré).



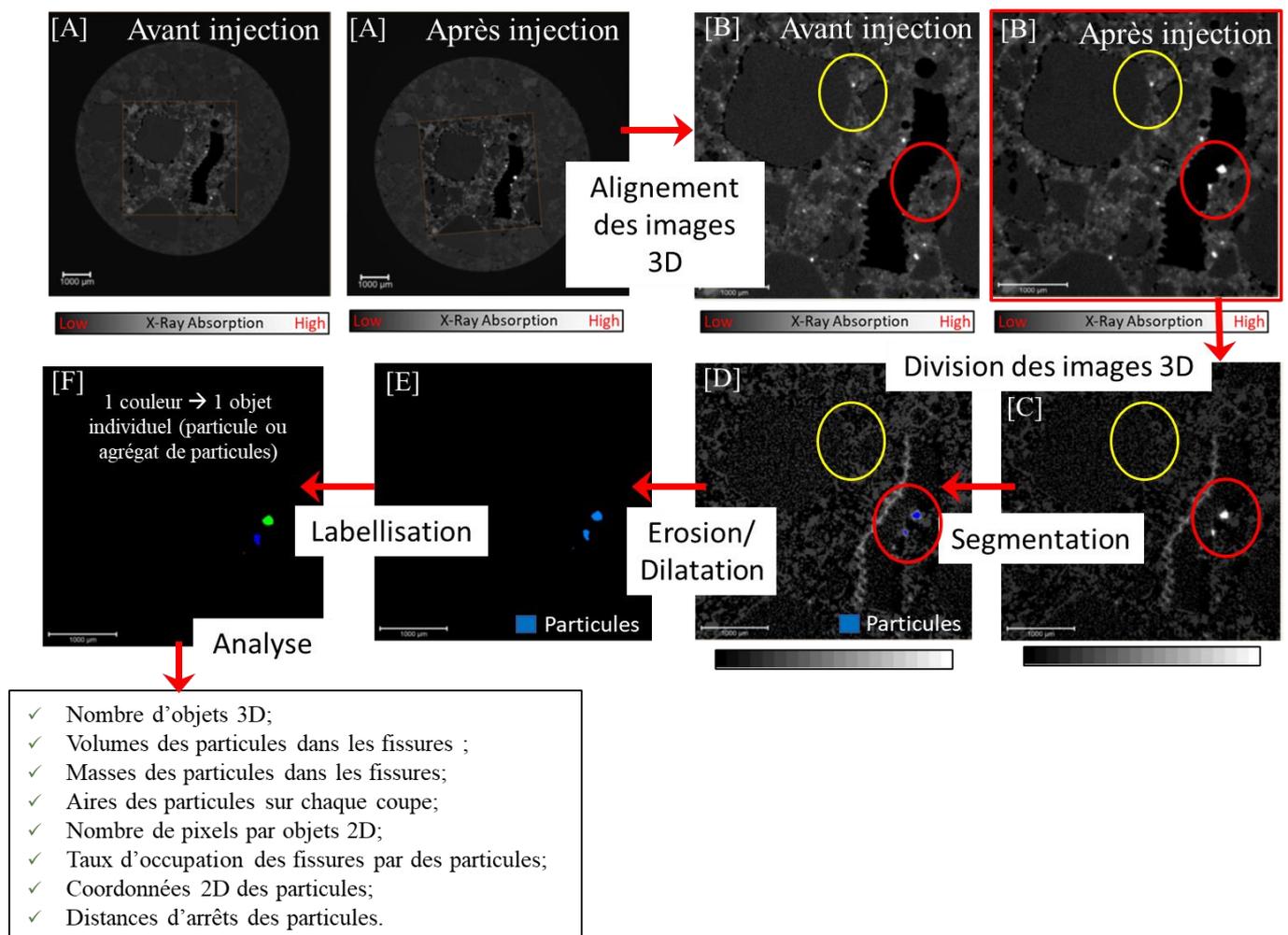
**Figure 57 : [A] Volume reconstruit d'un échantillon de mortier fissuré dans lequel du  $\text{CeO}_2$  a été injecté. L'échantillon est virtuellement coupé le long de l'axe Z pour permettre une visualisation partielle de la fissure [B] Orthoslice 2D virtuelle selon l'axe x extraite depuis le volume reconstruit permettant la visualisation des différents éléments (fissure, pores, phase cimentaire et particules de  $\text{CeO}_2$ )**

Afin de caractériser les dépôts de particules tout en évitant la sélection des phases de ciment denses, la comparaison et la superposition des images 3D des échantillons avant et après injection est une nécessité. Cette méthodologie plus lourde, impose donc deux caractérisations du mortier fissuré par micro-CT à savoir avant et après l'injection des particules modèles de

CeO<sub>2</sub>. Une procédure complète de traitement d'image a été spécialement développée pour garantir la seule sélection des particules de CeO<sub>2</sub>.

La nouvelle procédure inclut deux nouvelles étapes dans le traitement d'images : (i) alignement et superposition des volumes reconstruits avant et après injection ; (ii) division des volumes (ou images 3D) avant/après afin de ne conserver que les particules de CeO<sub>2</sub>.

La méthode de traitement développée permettant de détecter, visualiser et quantifier le dépôt de particules est présentée dans la Figure 58.



**Figure 58 : Procédure d'analyse d'image pour la visualisation et la quantification des particules de CeO<sub>2</sub> dans les fissures –Exemple de coupes 2D virtuelles extraites des volumes reconstruits avant et après injection des particules dans le mortier fissuré, [A] sans alignement et [B] après une étape d'alignement des images 3D. Les images 3D sont alignées pour pouvoir [C] réaliser une division entre elles afin de laisser apparaître les différences avant et après injection : c'est-à-dire les seules particules de CeO<sub>2</sub>. [D] Orthoslice extraite du volume binaire obtenu par seuillage de [C]. [E] Orthoslice extraite du volume binaire obtenue après des étapes successives d'érosion et de dilatation. [F] Orthoslice extraite du volume obtenu avec une étape de labellisation.**

- La première étape du traitement d'image, Figure 58B, consiste à superposer les images 3D reconstruites obtenues avant et après injection de particules dans un même échantillon de mortier fissuré Figure 58A. Néanmoins une étape de réalignement des images avant et après injection est nécessaire. Un module d'Avizo Fire « Align surface » permet de réaliser l'alignement des images 3D par l'intermédiaire des volumes binaires des fissures 3D isolées par seuillage. La méthodologie de traitement d'image effectuée sur les images avant injection doit donc être effectuée aussi pour la même fissure après l'injection des particules. Une fois les alignements effectués, il est nécessaire de recouper virtuellement les fissures pour éliminer les parties non communes des échantillons afin de disposer des mêmes zones de comparaison : les jeux de données doivent être de même dimension pour que l'opération de division soit possible.
- L'opération de division des images avant et après injection (Figure 58C) est une opération permettant la détection des variations entre les images (i.e. les particules de  $\text{CeO}_2$  dans cette étude). C'est une opération automatique se faisant pixel par pixel permettant de s'affranchir de l'influence de l'illumination sur l'image. Il n'est donc pas nécessaire de normaliser les niveaux de gris des images. À la suite de l'étape de division une nouvelle image est créée (Figure 58C). Une nouvelle échelle de gris est créée dont l'intensité des voxels dépendra de l'amplitude des différences entre les images avant et après injection. Les voxels noirs correspondent à des zones sans différences et les voxels gris sont provoqués par de légers décalages entre les images. Les voxels blanc correspondent aux particules de  $\text{CeO}_2$ , seule différence majeure entre les images.

La combinaison de ces deux étapes permet d'isoler les particules de  $\text{CeO}_2$  du reste de l'image et donc de s'affranchir des difficultés de seuillage liées à la présence de phases de ciment denses.

- À la suite de ces deux étapes, une étape de seuillage et de binarisation est ajoutée (Figure 58D). Le seuillage est facilité par l'étape de division des images. Le seuillage peut donc se faire manuellement en sélectionnant les voxels les plus intenses.
- L'étape d'alignement n'étant pas parfaite, il est possible de constater de très légers décalages (~ un voxel), principalement situés au niveau des parois des fissures et des pores. Durant l'étape de seuillage, ces voxels artefacts (Figure 58 C et D) peuvent être sélectionnés en même temps que les particules. Une étape d'érosion et dilatation (Figure 58E) d'un voxel est appliqué pour nettoyer le résultat du seuillage de ces voxels artefacts

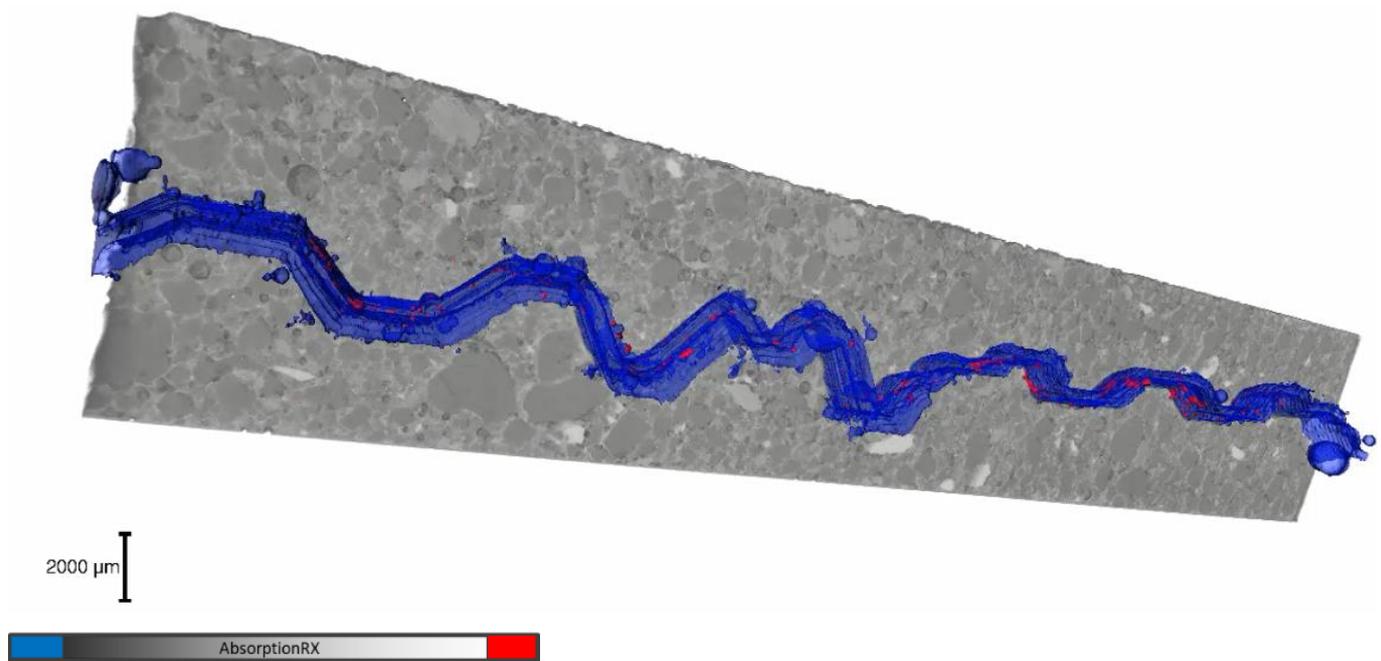
et déconnecter des objets 3D pouvant être reliés uniquement par 1 voxel. Ce choix d'un voxel repose sur l'hypothèse que pour considérer qu'un objet 3D correspond à une particule, celui-ci doit être au moins caractérisé par deux voxels.

- Une fois les volumes binaires nettoyés, une dernière opération de labélisation est requise afin de séparer et quantifier les objets 3D non-connectés correspondant à des particules ou agrégats de particules (Figure 58F).

Grâce au traitement d'image, il sera possible d'extraire des données quantitatives sur :

- **Le volume total des particules ( $\mu\text{m}^3$ )** dans les fissures. Il permettra de calculer dans un premier temps la **masse totale de particules dans les fissures ( $M_{\text{fissureTF}}$ )**. Il permettra ensuite dans un deuxième temps de calculer le **taux d'occupation volumique (%)** global des fissures par des particules. Le taux d'occupation volumique est calculé à partir du volume des fissures ( $\mu\text{m}^3$ ) extraite dans la partie 3.2.4 et est donnée par :  
$$\frac{\text{Volume total des particules} * 100}{\text{Volume de la fissure}}$$
- **L'aire des particules et des fissures ( $\mu\text{m}^2$ )** de chaque coupe 2D des images 3D. Les aires des particules et des fissures permettront de calculer un **taux d'occupation (%)** des fissures par des particules coupe par coupe. Cela permettra donc d'être plus sensible aux variations des dépôts dans les fissures. Le taux d'occupation est calculé également à partir de la formule présentée précédemment.
- **La distance d'arrêt des particules.** Deux distances d'arrêt sont extraites, la première est la distance d'arrêt absolue c'est-à-dire qu'elle ne tient pas compte de la tortuosité des fissures et servira dans les graphiques présentés dans la partie résultats. La deuxième correspond à la **distance d'arrêt la plus grande parcourue par une particule** en tenant compte de la tortuosité des fissures.

Un exemple de volume binaire final obtenu après application complète de la procédure de traitements d'image est présenté dans la Figure 59. Il y apparaît : le dépôt interne de particules de  $\text{CeO}_2$ , voxels rouge, dans la fissure au cœur de l'échantillon de mortier (voxels bleu transparents).



**Figure 59 : Image 3D d'un échantillon de mortier fissuré (voxels en niveau de gris) La fissure interne et ses pores connectés apparaissent en bleu et les particules de CeO<sub>2</sub> injectées dans la fissure apparaissent en rouge. L'échantillon est virtuellement coupé selon l'axe z pour permettre une visualisation partielle de la fissure interne et des particules.**

## 4.2 RESULTATS ET DISCUSSIONS.

### 4.2.1 Influence du débit sur le transport des particules dans les mortiers fissurés.

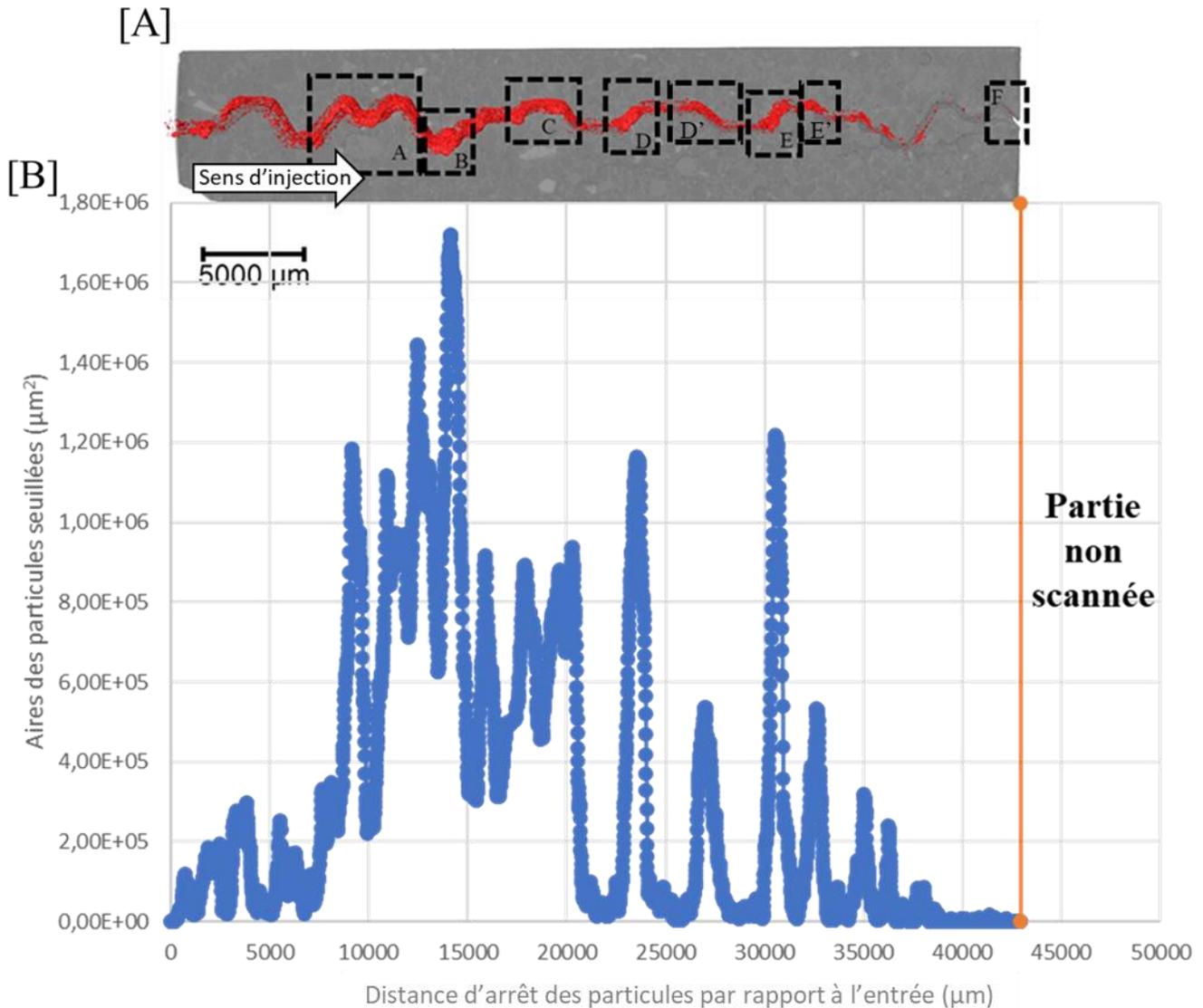
Afin de définir l'influence du débit sur le transport des particules, trois valeurs de débit (1, 5 et 10 ml/min) à partir d'air sec ont été utilisées.

Dans les trois cas, une fois les échantillons scannés par micro-CT, tous les objets binaires correspondant à des particules ou agrégats de particules sur chaque coupe ont été répertoriés et quantifiés afin d'obtenir une résolution équivalente à l'épaisseur de la coupe (10,3 μm) : le nombre d'objets, nombre de pixels caractérisant un objet 2D, l'aire des objets 2D, leurs coordonnées 2D X et Y...

Le premier débit étudié est celui à 10 ml/min. Il correspond au débit le plus élevé utilisé dans cette étude car il permettait de maximiser le dépôt de particules dans la fissure et faciliter les premières investigations par micro-CT.

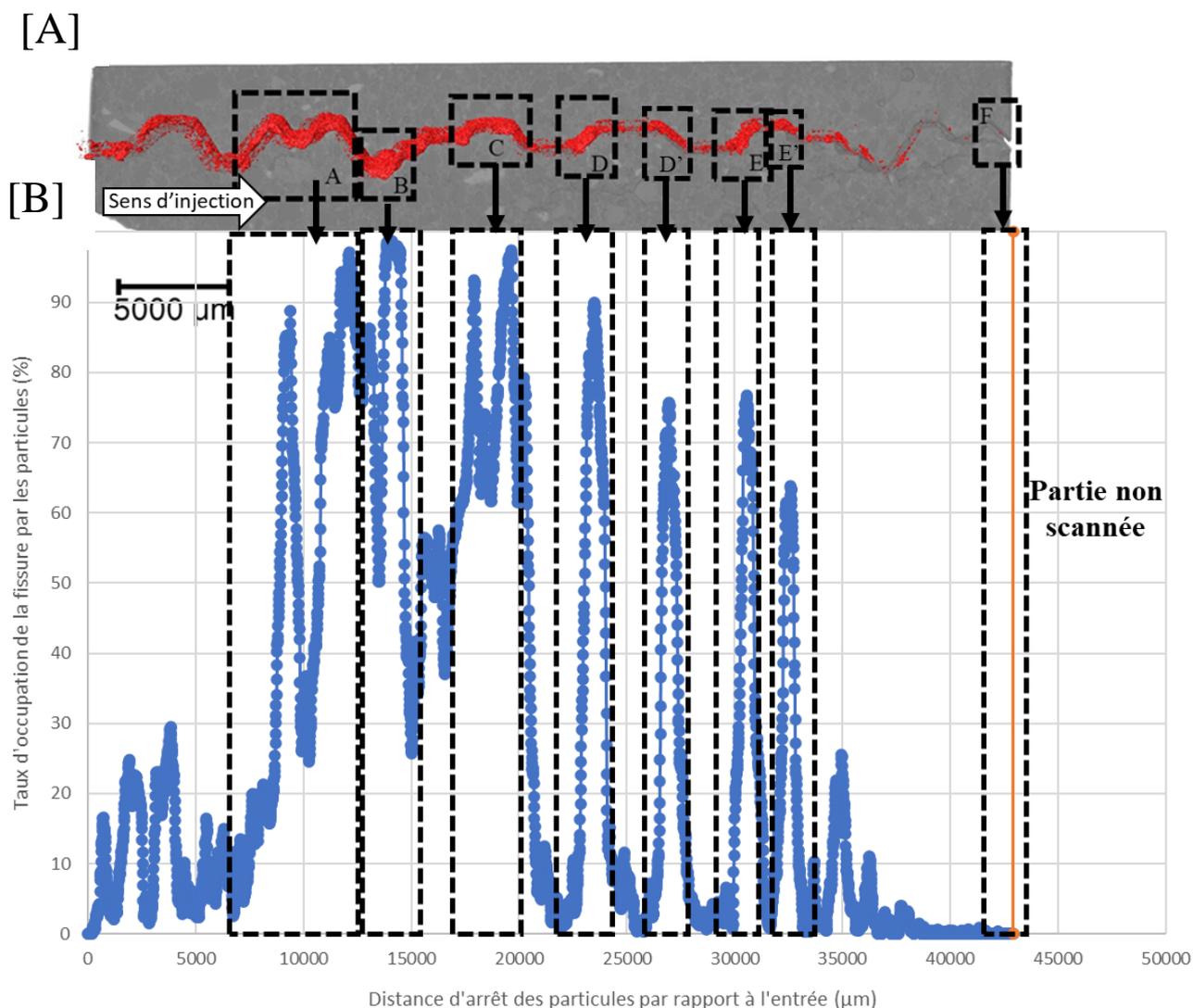
La Figure 60A illustre les résultats obtenus et montre une distribution très hétérogène de la quantité de particules (ou d'agrégats de particules) dans la fissure, avec une diminution progressive à partir des zones D-D' jusqu'à la zone F. A noter que, même au débit le plus élevé de 10 mL/min, pour la forme de fissure complexe, aucune particule n'a été détectée dans le filtre en sortie.

Cette information est confirmée par la courbe traduisant l'aire totale des objets 2D seuillés en fonction de leur distance dans la fissure. L'aire totale des particules est intégrée sur une coupe de 10 microns d'épaisseur (Figure 60B). On constate que l'aire des objets 2D (proportionnelle à la quantité de particules) est relativement faible sur les 7000 premiers  $\mu\text{m}$ . Ensuite la zone entre 7000 et 20000  $\mu\text{m}$  contient la plus grande quantité de particules, réparties de manière très hétérogène. Une valeur maximale de  $1,7 \cdot 10^6 \mu\text{m}^2$  est atteinte à environ 1,4 cm de l'entrée. Les quantités les plus importantes semblent associées aux changements de direction de la fissure. Il semblerait même qu'un changement d'inclinaison en direction vers le haut ait tendance à retenir beaucoup plus les particules qu'un changement de direction vers le bas. En effet on peut voir que respectivement dans les zones D et E l'aire totale des particules est d'environ  $1,1 \cdot 10^6 \mu\text{m}^2$  et  $1,2 \cdot 10^6 \mu\text{m}^2$  contre  $4,9 \cdot 10^5 \mu\text{m}^2$  et  $5,0 \cdot 10^5 \mu\text{m}^2$  pour les changements de direction suivant les zones D'et E'. On notera également que la dernière particule est arrêtée à une distance de 4,29 cm (zone F) par rapport à l'entrée. Le parcours total de la particule dans la fissure est de 5,08 cm.



**Figure 60: [A] Image 3D d'un barreau de mortier avec une fissure de forme complexe dans lequel des particules de  $\text{CeO}_2$  ont été injectées avec un débit d'air de 10ml/min. Les particules dans la fissure sont représentées en rouge. Le corps du mortier est virtuellement coupé selon l'axe z pour permettre une visualisation partielle de la fissure interne et des particules. [B] Pour chaque coupe 2D virtuelle d'épaisseur 10,3 µm extraite le long de la fissure, l'aire totale des particules ou agrégats de particules détectés est calculée (courbe bleue). La courbe orange représente la fin de l'image 3D et délimite la partie non-scannée de l'échantillon.**

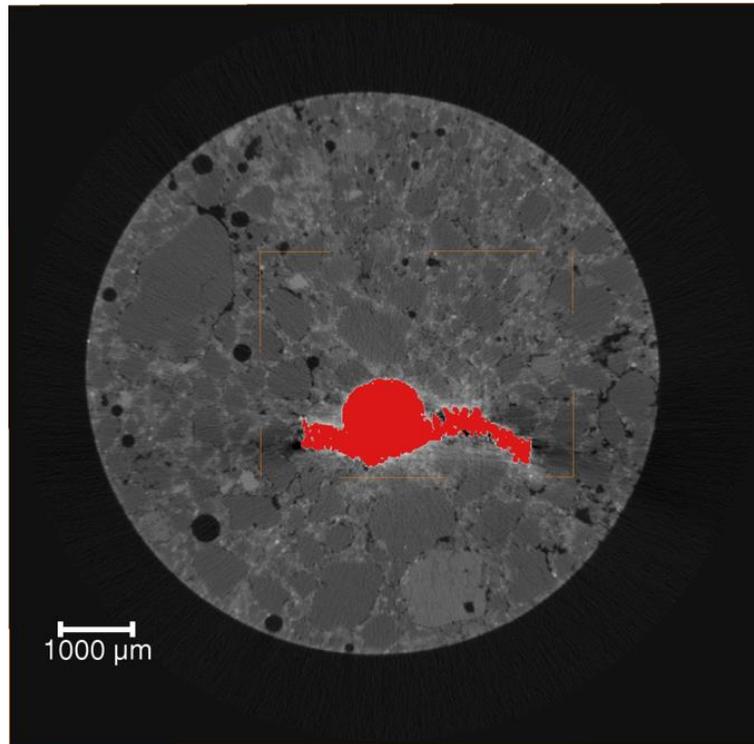
Afin de déterminer l'état de colmatage de la fissure, le taux d'occupation des particules a été calculé pour chaque coupe du barreau de mortier. Il est présenté sur la Figure 61.



**Figure 61 : [A] Image 3D d'un barreau de mortier avec une fissure de forme complexe dans lequel des particules de CeO<sub>2</sub> ont été injectées avec un débit d'air de 10 ml/min. Les particules dans la fissure sont représentées en rouge. Le corps du mortier est virtuellement coupé selon l'axe z pour permettre une visualisation partielle de la fissure interne et des particules. [B] Pour chaque coupe 2D virtuelle d'épaisseur 10,3 μm extraite le long de la fissure, le taux d'occupation de la fissure par des particules a été calculé (courbe bleue). La courbe orange représente la fin de l'image 3D et délimite la partie non-scannée de l'échantillon. Des rectangles noirs sont placés pour représenter les principales zones à forte rétention de particules dans la fissure.**

Cette représentation renforce les observations précédentes. On peut voir qu'entre 7000 et 20000 μm, soit entre 7 mm et 20 mm de l'entrée de la fissure (Figure 61), le taux d'occupation de la fissure par des particules est supérieur à 60% et sur certaines zones (A, B, C et D) le taux d'occupation devient supérieur à 95%. Par exemple dans la zone B, le taux d'occupation est proche du colmatage total de la fissure par les particules (Figure 62).

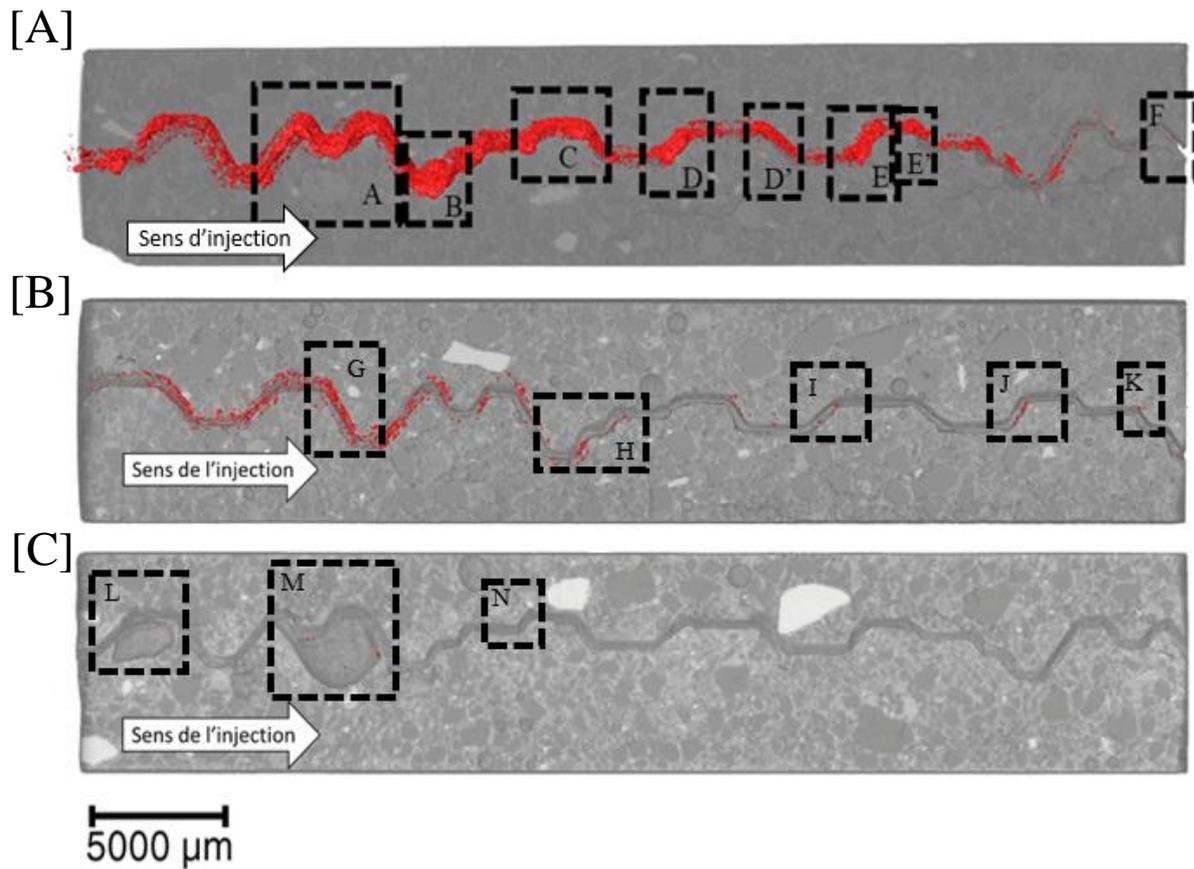
L'accumulation des particules dans la fissure et leur adhésion entre elles peuvent entraîner le colmatage complet de la fissure et ainsi potentiellement empêcher les particules d'être transportées plus loin dans la fissure. Cela pourrait expliquer en partie la diminution de la quantité de particules sur la fin de la fissure.



**Figure 62 : Coupe 2D virtuelle extraite dans la zone B identifiée sur la Figure 61. Les particules déposées dans la fissure apparaissent en rouge. On peut voir que les particules ont pratiquement colmaté toute la zone fissurée de cette coupe.**

Le front de migration des particules au sein de la fissure a également été déterminé pour les expériences avec injection de particules avec un débit d'air de 1 ml/min et 5 ml/min.

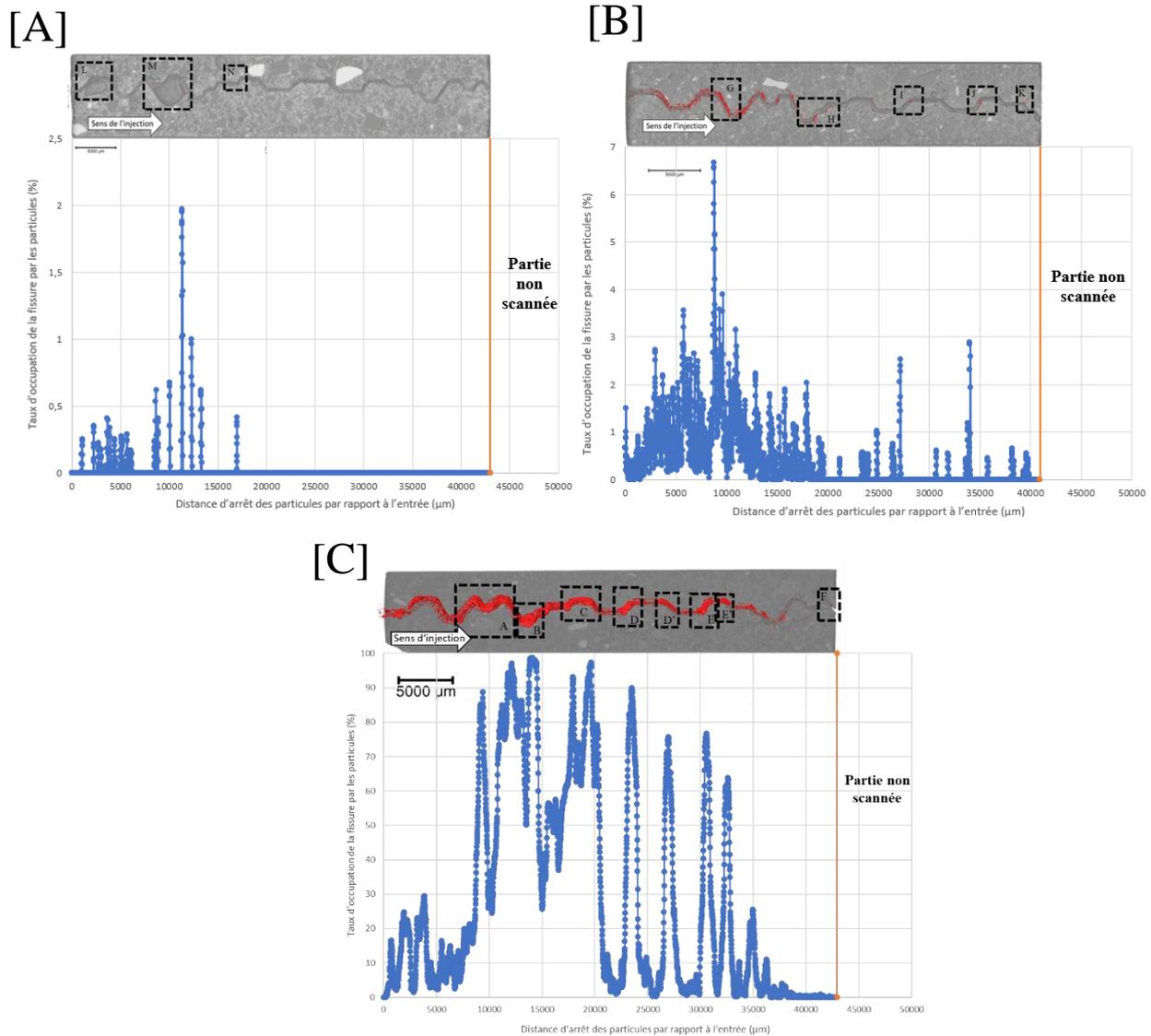
La Figure 63 compare les images 3D de mortier fissuré obtenues après injection de particules de CeO<sub>2</sub> avec les trois débits d'air différents. Le Tableau 9 répertorie les données quantitatives obtenues après traitement et analyse des images 3D présentées dans la figure 64.



**Figure 63 : Images 3D des échantillons de mortier avec une fissure de forme complexe obtenus après l'injection de particules de CeO<sub>2</sub> avec différents débits d'air [A] 10 ml/min, [B] 5 ml/min et [C] 1 ml/min. Les particules apparaissent en rouge après l'étape de seuillage. Les images 3D ont été virtuellement sectionnées selon l'axe z.**

**Tableau 9 : Rappel des masses de particules mises en suspension (pesées) pour les trois valeurs de débits étudiés. Il est également affiché les valeurs quantitatives extraites à partir de la micro-CT et par traitement des images 3D pour les trois échantillons.**

Débit d'air injecté	Masse de particules mises en suspension Me <sub>T0</sub> -Me <sub>TF</sub> (mg)	Nombre d'objets 3D (particules ou agrégats de particules)	Volume total des particules 3D (μm <sup>3</sup> ) dans la fissure	Estimation de la masse totale de particules dans la fissure (mg) (M <sub>fissureTF</sub> ) à partir de leur volume	Taux d'occupation volumique de la fissure (%)	Distance d'arrêt la plus grande parcourue par une particule par rapport à l'entrée de la fissure (cm)
10 ml/min	137,21 ± 0,2	6574	1,34.10 <sup>-2</sup>	97,04	28,62	5,08
5 ml/min	55,7 ± 0,2	1998	3,40.10 <sup>-4</sup>	2,45	0,66	4,90
1 ml/min	3,8 ± 0,2	42	8,87.10 <sup>-6</sup>	6,40.10 <sup>-2</sup>	0,01	2,14



**Figure 64 : Image 3D de barreaux de mortiers avec des fissures de forme complexe dans lesquels des particules de  $\text{CeO}_2$  ont été injectées avec des débits différents. Les particules dans les fissures sont représentées en rouge. Les corps de mortiers sont virtuellement coupés selon l'axe z pour permettre une visualisation partielle des fissures internes et des particules. Pour chaque coupe 2D virtuelle d'épaisseur  $10,3 \mu\text{m}$  extraite le long de la fissure, le taux d'occupation des fissures par des particules a été calculé dans [A] l'échantillon à  $1 \text{ ml/min}$ , [B] l'échantillon à  $5 \text{ ml/min}$  et [C]  $10 \text{ ml/min}$ . Les courbes orange représentent la fin de l'image 3D et délimite la partie non-scannée des échantillons.**

Les résultats présentés dans la Figure 63, Figure 64 et le Tableau 9, montrent que la quantité de particules transportées et arrêtées dans la fissure dépend fortement du débit du gaz vecteur (ou de la différence de pression comme a pu le montrer [Xu et al, 2010] ou encore [Narayanam et al, 2020]) : quand celui-ci diminue on constate une diminution significative de la masse de particules transportées. La masse de particules du réservoir entraînées par le gaz (calculée par pesée) diminue de  $137,21 \pm 0,2 \text{ mg}$  à  $10 \text{ ml/min}$ ,  $55,7 \pm 0,2 \text{ mg}$  à  $5 \text{ ml/min}$  et  $3,8 \pm 0,2 \text{ mg}$  pour

1ml/min. Les masses totales de particules retenues dans la fissure sont estimées à partir du volume des particules de CeO<sub>2</sub> détectées par micro-CT et de leur densité moyenne. Les masses obtenues (Tableau 9) diminuent avec le débit de gaz mais non linéairement. En effet la quantité de particules retenues avec un débit de gaz à 1 ml/min est 38 fois inférieure à la quantité de particules retenues avec un débit 5 fois plus élevé (5 ml/min) et environ 168 fois inférieure à la quantité de particules retenues avec un débit 10 fois plus élevé (10 ml/min).

Cependant les masses totales de particules retenues dans la fissure restent inférieures aux masses de particules mises en suspension. En effet à 10ml/min la masse de particules estimée au sein de la fissure de mortier est de 97,04 mg, alors que la masse de particules entraînée par le gaz est de 137,21 mg. Trois hypothèses peuvent expliquer cette différence.

Tout d'abord, le traitement et l'analyse des images 3D permettent de quantifier le volume des particules dans la fissure mais avec une certaine erreur (par ex. liée à l'alignement des images ou au seuillage) qui pourrait aboutir à une sous-estimation de la masse totale de particules dans la fissure. La distribution en taille du lot de particules étant large, il est tout à fait possible que des particules de tailles inférieures à 10 µm ne soient pas détectées et pourraient participer également à la sous-estimation de la masse totale de particules dans la fissure.

Ensuite, la rétention des particules dans la fissure peut être inférieure à 100%, une partie des particules peut avoir traversé la totalité de la fissure. Néanmoins, le fait que la quantité de particules diminue fortement sur les derniers centimètres de la fissure et qu'aucune particule ne soit détectée par micro-CT après 4,29 cm ainsi que sur le filtre en sortie de fissure nous laisse à penser que cette hypothèse est peu probable. La dernière hypothèse est liée au volume entre le réservoir et l'entrée de la fissure. Il est envisageable que des particules soient bloquées au niveau du bouchon du réservoir lors de leur mise en suspension. Par ailleurs, si les tubes antistatiques permettent d'éviter au maximum le blocage de particules, il n'est pas exclu que des particules soient fixées à la paroi du tube. Ensuite, la connexion entre le tube et l'entrée de la fissure n'étant pas géométriquement parfaite, une quantité de particules pourrait s'accumuler. Si cette hypothèse était vérifiée, il faudrait considérer qu'environ 40 mg puissent rester bloqués en amont de la fissure.

On constate aussi que la distance parcourue par les particules augmente de manière importante en fonction du débit : plus le débit est élevé plus les particules ont tendance à parcourir une plus grande distance dans la fissure, 2,14 cm à 1ml/min, 4,90 cm à 5 ml/min et 5,08 cm à 10 ml/min.

Dans les trois cas la distance parcourue par les particules reste inférieure à la longueur réelle de la fissure (4.97 cm pour la fissure à 1 ml/min, 4.95 pour celle à 5 ml/min et 5.16 pour celle à 10 ml/min).

Il est intéressant de noter la présence dans la fissure à 1 ml/min de deux pores de taille conséquente qui sont connectés à la fissure, zones L et M Figure 64A. Il s'agit là de la zone principale de dépôt des particules, principalement la zone M où l'aire totale maximale des particules est atteinte ( $2.5 \cdot 10^2 \mu\text{m}^2$ ) ce qui correspond à un taux d'occupation de 2%.

Il faut préciser que le débit de 1 ml/min correspond au seuil bas qui a été fixé dans cette étude. Il reste néanmoins 10 fois supérieur à la valeur hypothétique des débits de gaz réels dans un colis. Au vu de la diminution importante de particules entre la fissure à 5 ml/min et 10 ml/min (40 fois), pour des injections de 7 jours, il a été décidé d'augmenter le temps d'injection à 1 mois pour le débit de 1 ml/min. La non-linéarité du phénomène de transport en fonction du débit, suggère que la quantité de particules mobilisée dans un cas réel, avec des débits inférieurs à 0,1 ml/min serait extrêmement faible.

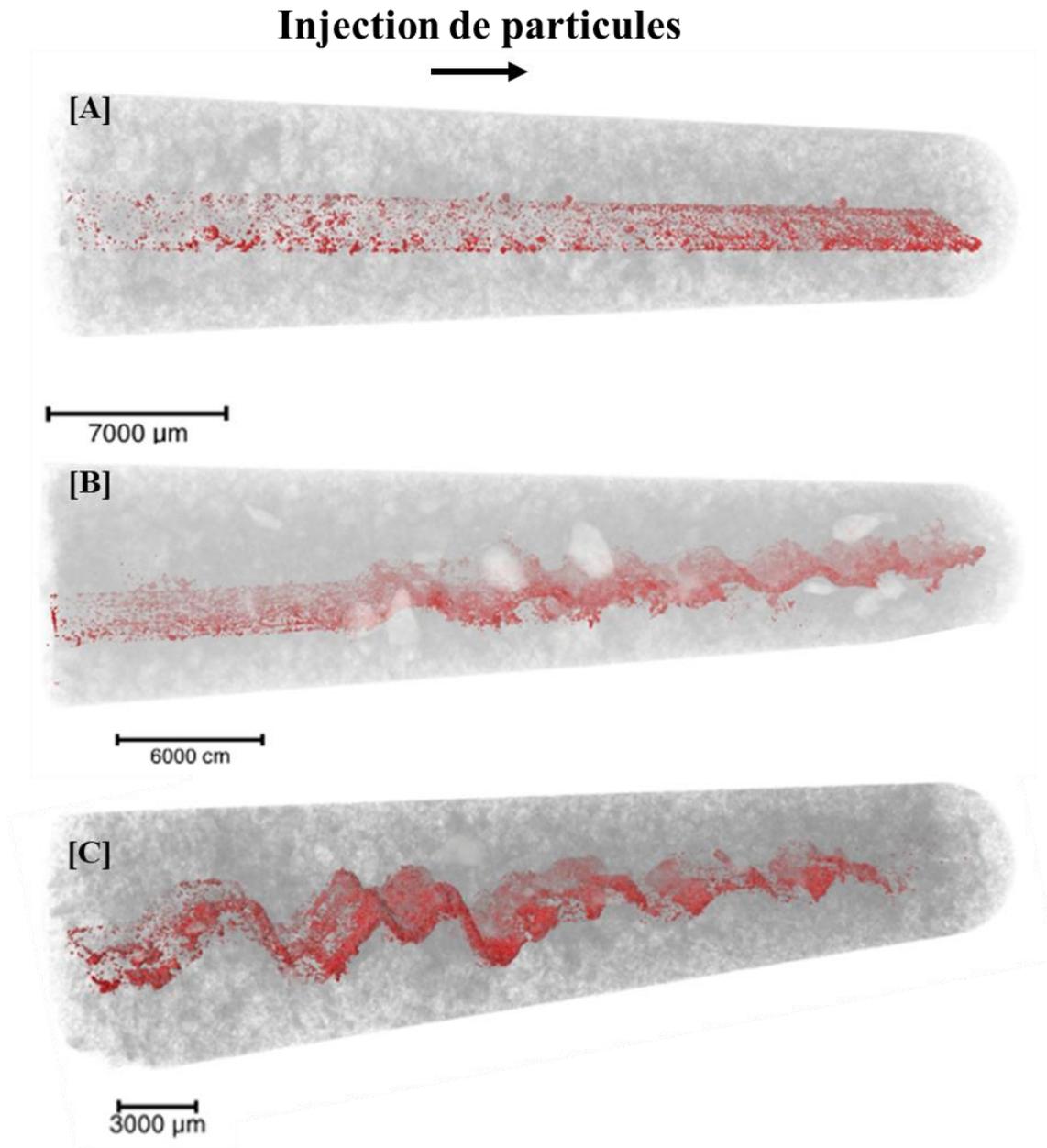
On peut également constater (principalement dans les fissures étudiées à 5 et 10 ml/min) que les particules semblent se déposer de manière plus importante au niveau des zones de changements de direction. Quand on regarde la Figure 61 on remarque dans les zones A, B, C, D et E les quantités de particules les plus importantes. Le taux de colmatage est supérieur à 90% voire égal à 100% dans ces zones. Cela voudrait donc dire que les particules auraient tendance à être arrêtées sous l'effet de l'impaction inertielle.

Afin d'identifier les mécanismes de dépôt responsables de l'arrêt des particules de nouveaux échantillons de mortier fissuré ont été synthétisés avec des formes de fissures plus simples. Des fissures avec une géométrie plate, constituées uniquement d'une section droite, et des fissures sinusoïdales, constituées d'une alternance de changement de direction sans rupture de pente rapide ont été générées au sein de barreaux de mortier.

Les formes de fissure permettent de mettre en avant ou d'amplifier certains mécanismes : la fissure plate pour le phénomène de sédimentation gravitationnelle ; la fissure sinusoïdale pour le mécanisme d'impaction inertielle et la fissure complexe regroupant les trois mécanismes.

#### 4.2.2 Influences de la géométrie de la fissure sur le transport des particules dans les mortiers fissurés.

La Figure 65 présente les volumes reconstruits des trois échantillons de mortier avec des fissures de formes différentes. On peut y voir les échantillons dans leurs entières avec les particules représentées en rouge dans la figure.



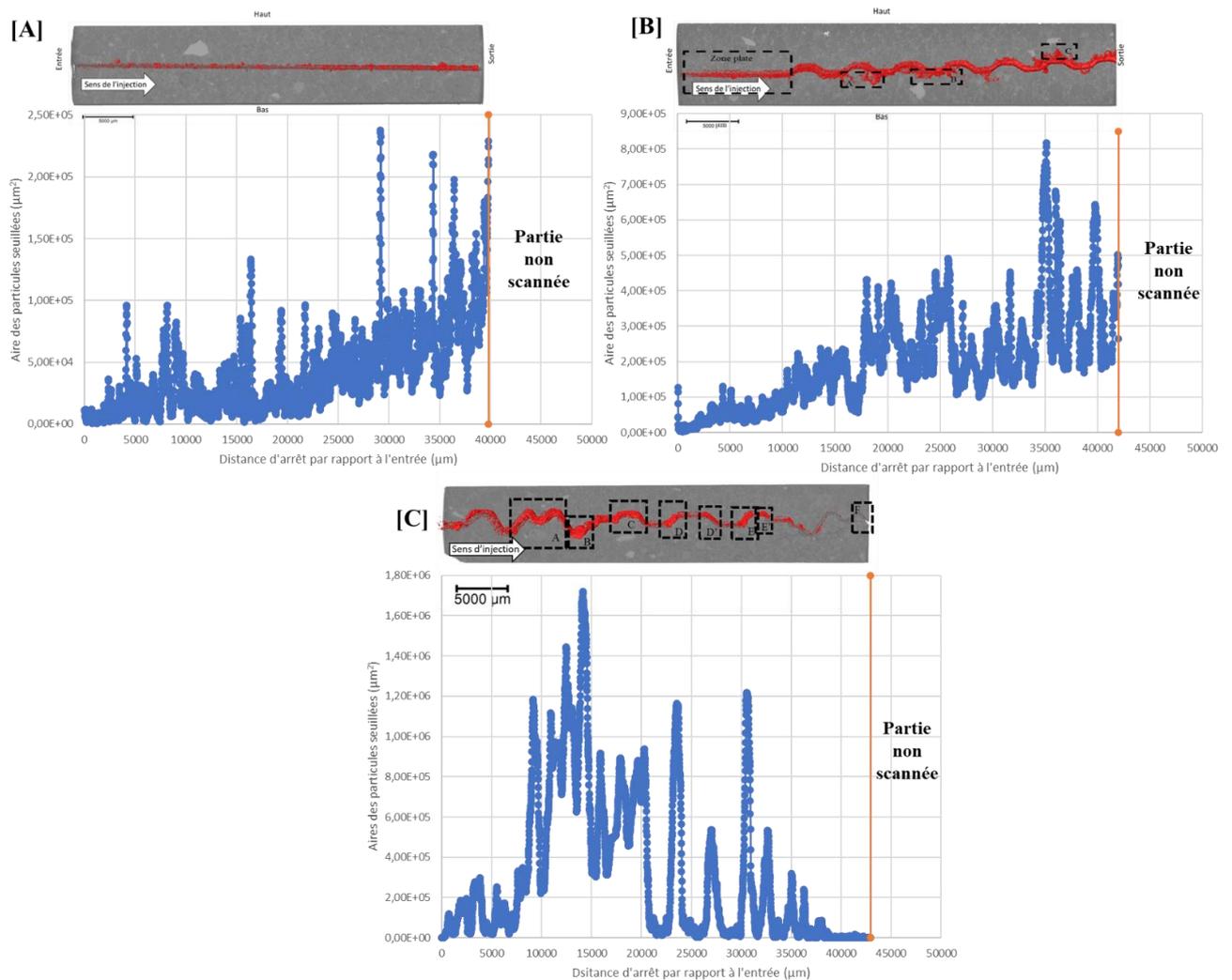
**Figure 65 : Volume reconstruit des échantillons de mortiers fissurés de forme différente (colormap en niveau de gris) avec les particules dans la fissure en rouge. Le niveau de transparence de l'échantillon est modifié afin de laisser apparaître les particules à l'intérieur des fissures. [A] Volume 3D de l'échantillon à fissure plate [B] Volume 3D de l'échantillon à fissure sinusoïdale [C] Volume 3D de l'échantillon à fissure complexe.**

Le Tableau 10 présente les résultats obtenus à partir de la méthodologie de traitement d'image. Une colonne a été rajoutée pour le calcul de la quantité de particules ayant traversé les fissures. Ce bilan de matière tient compte des particules déposées dans les fissures mais correspond à une estimation avec beaucoup d'incertitude, en particulier la possibilité du blocage d'une quarantaine de mg avant l'entrée de la fissure et la quantité exacte de particules en sortie de fissure qui n'a pas été mesurée. Cependant ce calcul reste une information intéressante notamment sur la capacité de rétention des différentes fissures.

**Tableau 10 : Rappel des masses de particules mises en suspension (pesées) pour les trois échantillons avec des formes de fissures différentes et résumé des valeurs quantitatives extraites à partir de la micro-CT et par traitement des images 3D pour les trois échantillons.**

Fissure	Masse de particules mises en suspension $M_{eT0}-M_{eTf}$ (mg)	Nombre d'objets 3D	Volume total des particules 3D ( $\mu\text{m}^3$ )	Estimation de la masse de particules dans la fissure (mg) à partir du volume des particules	% de volume de fissure occupé par les particules	Plus grande distance par rapport à l'entrée (cm)	Estimation de la quantité de particules en sortie (mg)
Plate	$263,5 \pm 0,2$	6996	$1,69 \cdot 10^{-3}$	12,18	3,87	Traversé	$251,32 \pm 40$
Sinusoïdale	$178,6 \pm 0,2$	11893	$8,36 \cdot 10^{-3}$	60,35	13,07	Traversé	$118,25 \pm 40$
Complexe	$137,21 \pm 0,2$	6574	$1,34 \cdot 10^{-2}$	97,04	28,62	4,29	$0 \pm 40$

La Figure 66 présente les aires des particules pour chaque coupe en fonction de la distance d'arrêt des particules des trois échantillons.



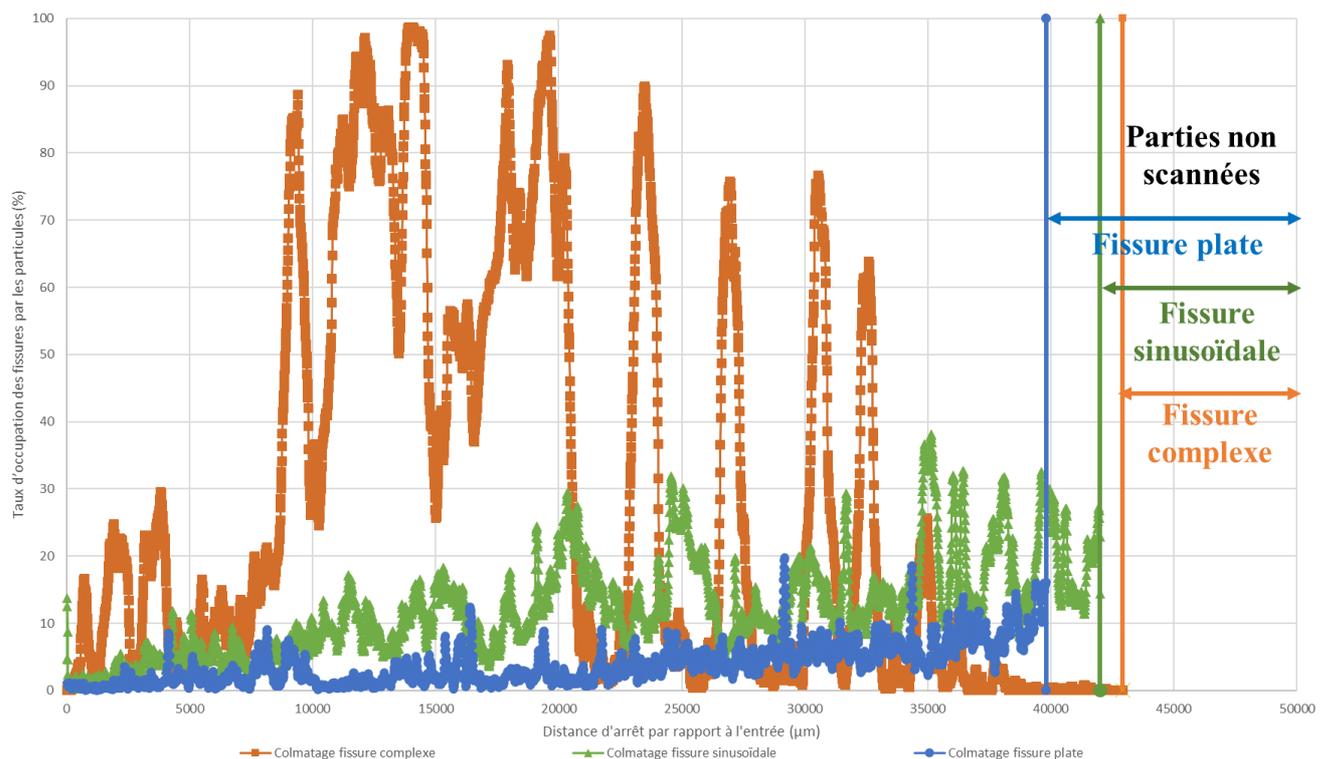
**Figure 66 : Image 3D de barreaux de mortiers avec des fissures de formes différentes dans lesquels des particules de  $\text{CeO}_2$  ont été injectées avec un débit de 10 ml/min. Les particules dans les fissures sont représentées en rouge. Les corps de mortiers sont virtuellement coupés selon l'axe z pour permettre une visualisation partielle des fissures internes et des particules. Pour chaque coupe 2D virtuelle d'épaisseur 10,3  $\mu\text{m}$  extraite le long de la fissure, l'aire total des particules ou agrégats de particules détectés est calculée (courbes bleues) dans [A] l'échantillon à fissure plate, [B] l'échantillon à fissure sinusoïdale et [C] l'échantillon à fissure complexe. Les courbes orange représentent la fin de l'image 3D et délimite la partie non-scannée des échantillons.**

Dans le cas de la fissure plate on constate que l'aire des particules augmente quand on s'éloigne de l'entrée. On a en fin de fissure une aire de particules de  $2,2 \cdot 10^5 \mu\text{m}^2$  contre  $1,0 \cdot 10^4 \mu\text{m}^2$  à l'entrée. La présence de particules dans le compartiment aval (non mesurée) signifie que dans ce type de configuration des particules sont passées au travers de la fissure de manière importante.

Concernant l'échantillon avec la fissure sinusoïdale, il se décompose en deux parties, une partie plate sur un cm et d'une partie sinusoïdale sur les 4 cm restant. On constate que dans ce premier centimètre de fissure l'effet sur l'arrêt des particules est moindre et dès lors que les particules arrivent dans la zone sinusoïdale la quantité de particules arrêtées augmente.

On passe d'une aire égale à  $1,00.10^5 \mu\text{m}^2$  au bout des 1 cm de la partie plate à une valeur d'aire maximale de  $7,88.10^5 \mu\text{m}^2$  atteinte à 3,5 cm de l'entrée. On peut donc voir que la forme sinusoïdale de la fissure, possédant une alternance de changement de direction, à un effet plus important sur l'arrêt des particules que la partie plate.

Dans le cas de la fissure complexe, on remarque que l'aire des particules est beaucoup plus importante que celles des deux autres fissures. En moyenne, l'aire des particules varie entre  $2,00.10^5 \mu\text{m}^2$  et  $1,70.10^6 \mu\text{m}^2$ . Ce constat est discuté ensuite via le taux de colmatage des fissures par les particules pour les trois échantillons afin de normaliser les résultats précédents, voir Figure 67.



**Figure 67 : Représentation graphique du taux d'occupation des fissures par des particules sur chaque coupe 2D de  $10,3 \mu\text{m}$  d'épaisseur pour chaque échantillon de formes différentes.**

On peut voir dans la Figure 67 que le pourcentage d'occupation de la fissure par les particules est plus important dans la fissure complexe que dans la fissure sinusoidale qui est lui-même supérieur à la fissure plate. En effet dans la fissure complexe le pourcentage total d'occupation des particules est de 29%, 13 % pour la fissure sinusoidale et de 4% pour la fissure plate (Tableau 10).

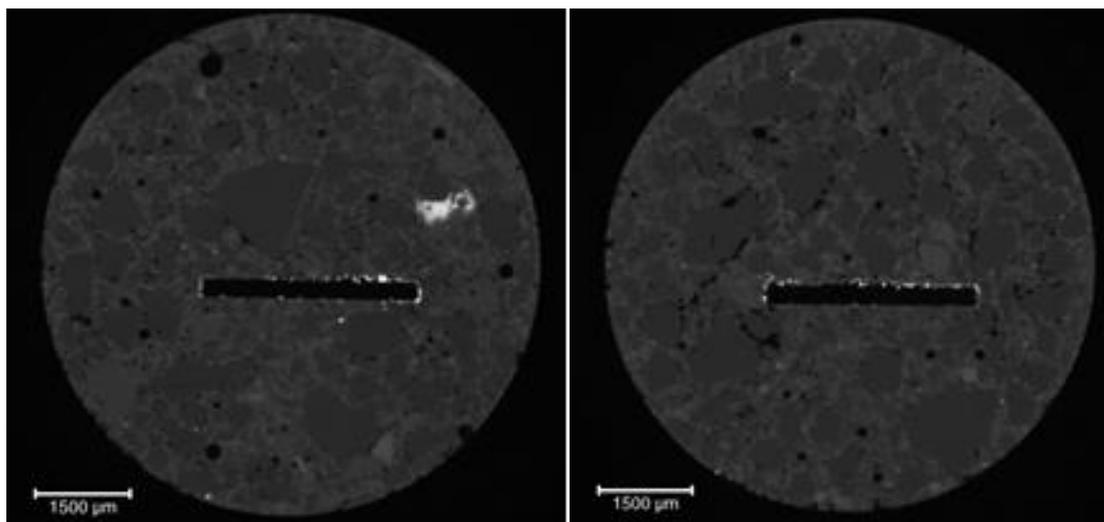
Cette observation signifie donc, comme l'on pouvait s'y attendre, que la capacité de rétention des particules des fissures est moindre pour la fissure sinusoidale et plate.

Le Tableau 10 appuie cette observation. On a estimé, à partir des variations de masse dans le compartiment amont et de la masse de particules dans la fissure, la quantité de particules en sortie de fissure. On trouve ainsi que dans le cas de la fissure plate environ 251 mg de particules auraient pu traverser la fissure contre 118 mg pour la fissure sinusoidale.

Une des raisons pouvant expliquer une rétention plus importante dans la fissure complexe puis sinusoidale serait la distance « réelle » parcourue par les particules dans les fissures. En effet les distances dans les graphiques représentaient la distance des particules par rapport à l'entrée de la fissure sans tenir compte de la forme de la fissure. Quand on mesure chaque section de la fissure complexe, on remarque que la longueur totale de la fissure est de 5,16 cm au lieu de 4,35 cm (partie de l'échantillon scannée) contre 4,39 cm au lieu de 4,29 cm pour la fissure sinusoidale et de 4,11 cm pour la fissure plate. Ainsi plus la distance parcourue par les particules est grande, plus il y a de chance que les particules soient arrêtées avant la fin de la fissure, cette observation a été déjà faite notamment par [Liu et Nazaroff, 2003] [Xu et al, 2010] [Li et al, 2017] [Narayanam, 2020] qui ont montré que les fissures avec les plus grandes longueurs avaient une rétention en particules plus importante.

Toutefois, il semble qu'au vu des résultats précédents, le changement de direction dans les fissures (rupture de pente) augmente la capacité de rétention de ces dernières de manière importante et que ce soit là la principale explication de la meilleure capacité d'arrêt des particules de la fissure complexe.

A l'origine la fissure plate a été conçue de manière à discriminer la sédimentation gravitationnelle des autres mécanismes de dépôt et définir son importance sur le transport des particules. Cependant quand on extrait des coupes 2D (Figure 68) de la fissure plate, on constate que les particules ont tendance à être stoppées sur les parties supérieures et latérales de la fissure.



**Figure 68 : Coupes 2D extraites de l'échantillon à fissure plate. On peut y voir au centre l'aire de la fissure. On peut voir également les particules de CeO<sub>2</sub> déposées dans la fissure.**

Afin de distinguer l'importance de la sédimentation gravitationnelle par rapport à l'impaction inertielle et l'interception, il est présenté en Figure 69 les résultats de calculs de barycentre des particules sur chaque coupe de l'échantillon. Le barycentre des particules de chaque coupe est calculé en tenant compte de l'importance relative de chaque aire se trouvant sur une même coupe. Tout point en dessous de la valeur zéro indique que le barycentre est orienté vers le bas de l'échantillon et suggère un mécanisme de dépôt par sédimentation. Inversement, tout point sur le haut s'approche du mécanisme d'impaction inertielle (et interception).

Le barycentre se définit à partir de la formule suivante :

$$x_B = \frac{\sum A_i x_i}{\sum A_i}$$

$$y_B = \frac{\sum A_i y_i}{\sum A_i}$$

$x_B$  Correspond à la coordonnée du point x du barycentre des particules pour une coupe de l'échantillon

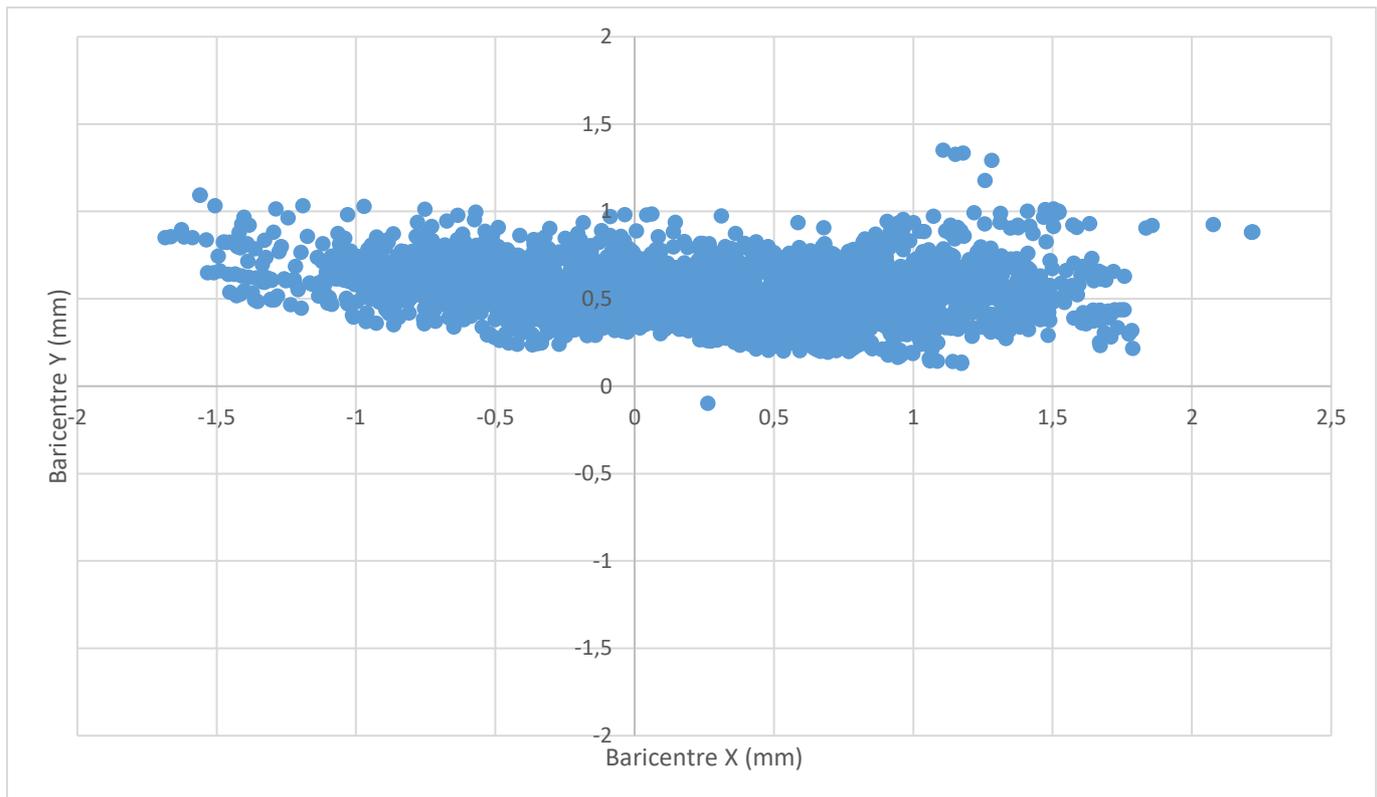
$y_B$  Correspond à la coordonnée du point y du barycentre des particules pour une coupe de l'échantillon

$A_i$  Correspond à l'aire d'une particule sur un coupe donnée

$x_i$  Correspond à la coordonnée du point x d'une particule sur une coupe donnée

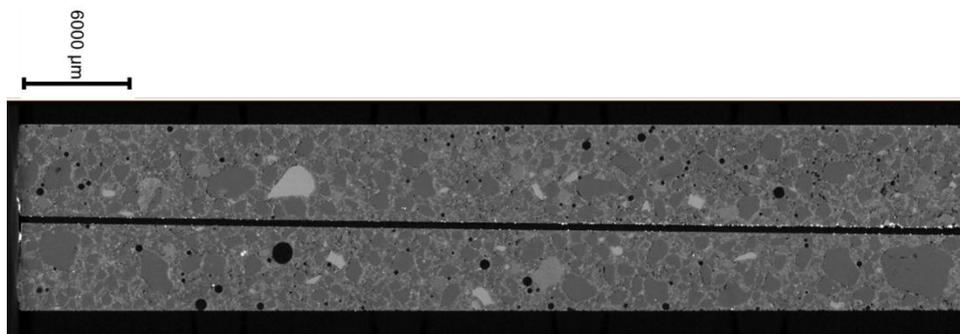
$y_i$  Correspond à la coordonnée du point y d'une particule sur une coupe donnée

$\sum A_i$  Correspond à la somme des aires des particules sur une coupe



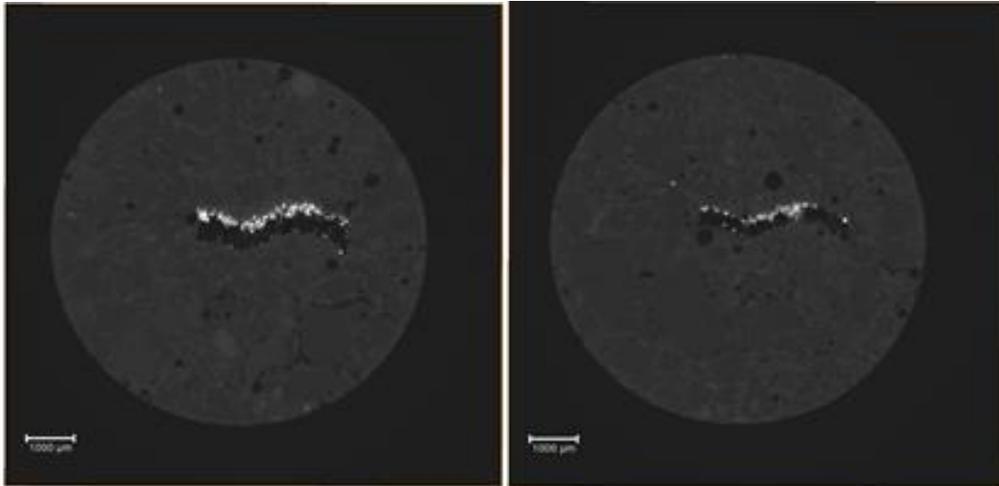
**Figure 69 : Représentation graphique des barycentres des objets 2D de chaque coupe sur le long de la fissure plate.**

On peut alors constater sur la Figure 69 que la majorité des points correspondants aux barycentres des aires des particules de chaque coupe est localisée sur le haut de la fissure. Ce résultat pourrait s'expliquer par une torsion de la fissure plate, voir Figure 70. En effet la fissure plate n'est pas parfaitement droite dans le mortier mais légèrement inclinée vers le bas pouvant potentiellement permettre l'impaction ou l'interception des particules. Par ailleurs, la rugosité de la surface de la fissure semble développer un relief suffisant pour des impactions et les particules semblent se maintenir au contact (insertion dans les aspérités, humidité résiduelle ?).



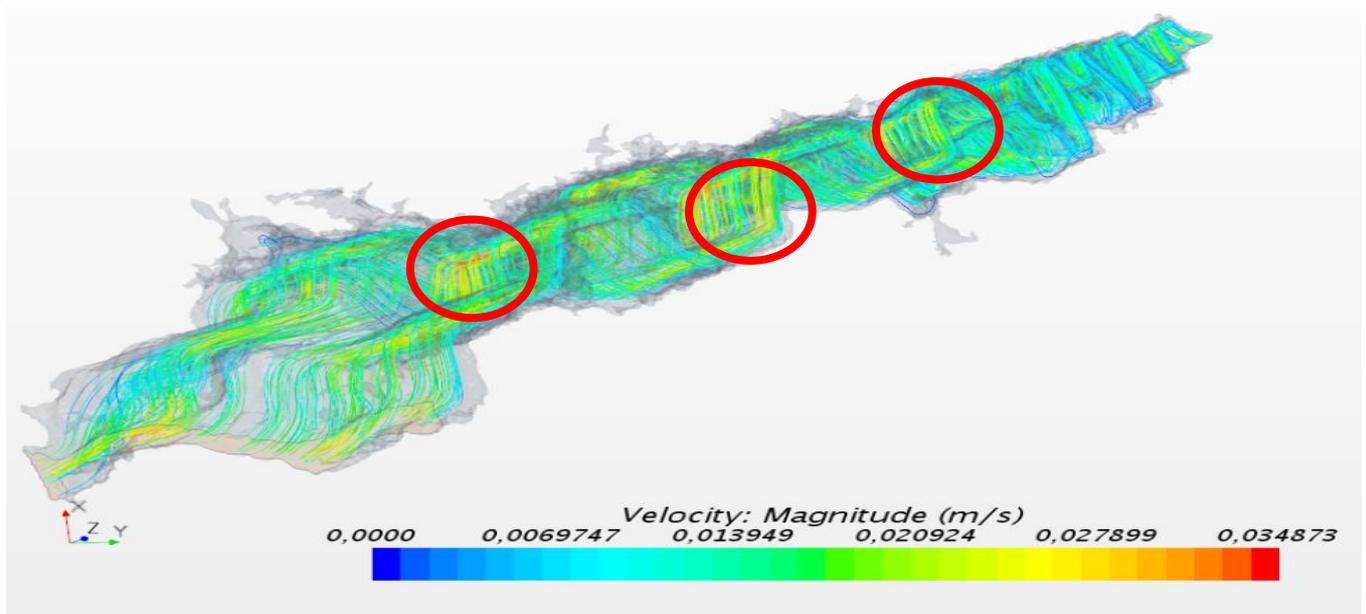
**Figure 70 : : Coupes 2D longitudinale extraites de l'échantillon à fissure plate permettant d'observer la torsion de cette dernière. On peut y voir au centre l'aire de la fissure. On peut voir également des particules de CeO<sub>2</sub> déposées dans la fissure.**

Les fissures sinusoïdales et complexes ont été spécialement conçues pour étudier le dépôt de particules par impaction inertielle/interception par la présence de changement de direction de la fissure (cf Figure 68, Figure 69, Figure 71).



**Figure 71 : coupes 2D extraite des zones C et D'(Figure 63) de l'échantillon avec une fissure complexe**

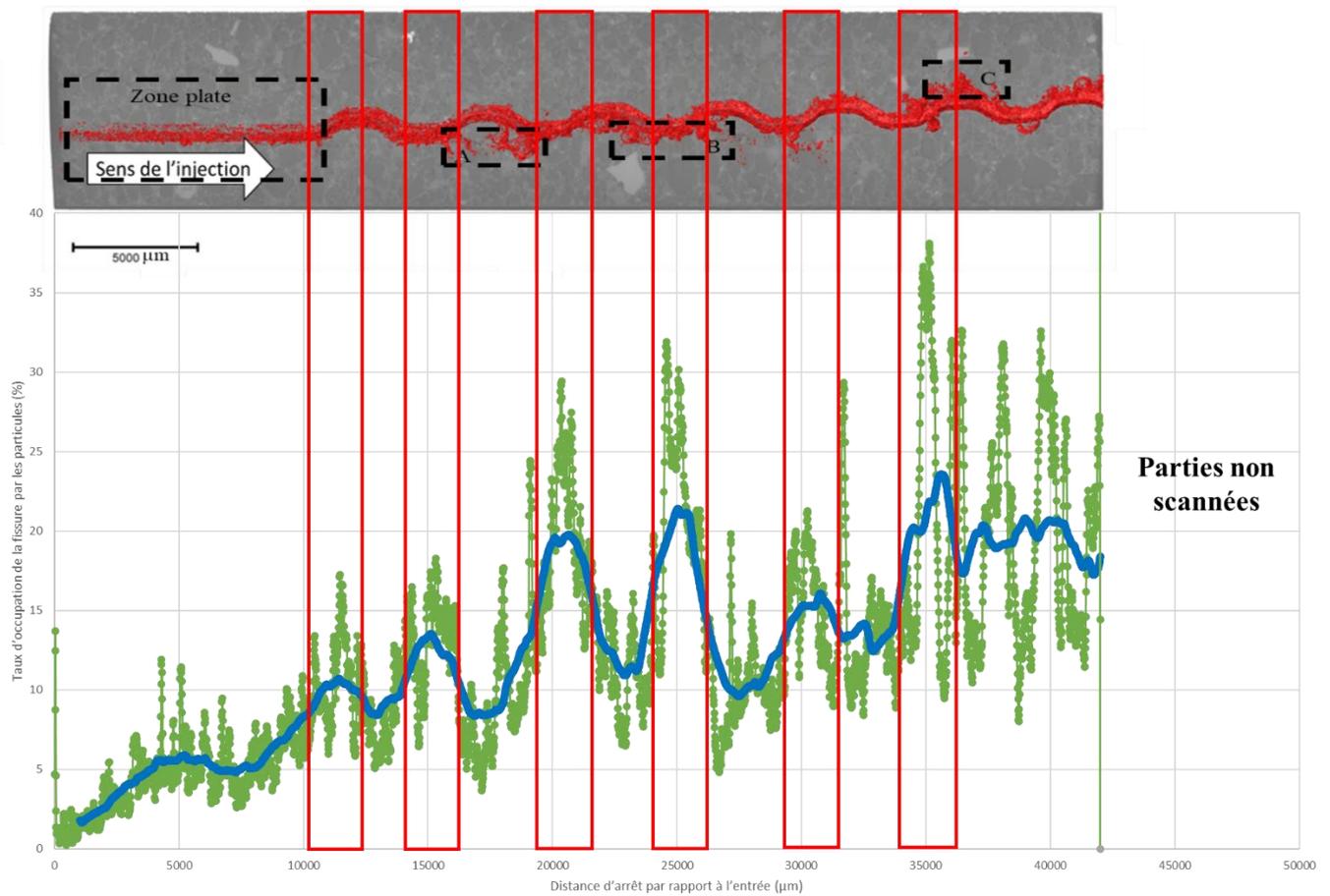
Ainsi la présence de changement de direction favoriserait grandement l'impaction inertielle. En effet [Li et al, 2017] apportent comme explication que la vitesse du gaz vecteur varie aux niveaux de ces zones modifiant ainsi la probabilité que les particules soient arrêtées. En effet quand on regarde un résultat de simulation du champ de vitesse du gaz vecteur réaliser sur la fissure complexe (Figure 72), on peut remarquer que les zones où la vitesse augmente correspondent aux changements de direction de la fissure complexe.



**Figure 72 : Modélisation d'un champ de vecteur vitesse du gaz vecteur dans une fissure complexe. Un champ de couleur est appliqué. Le travail a été réalisé avec la collaboration du IUSTI Centrale Marseille par M. Jean-Vincent Daurelle.**

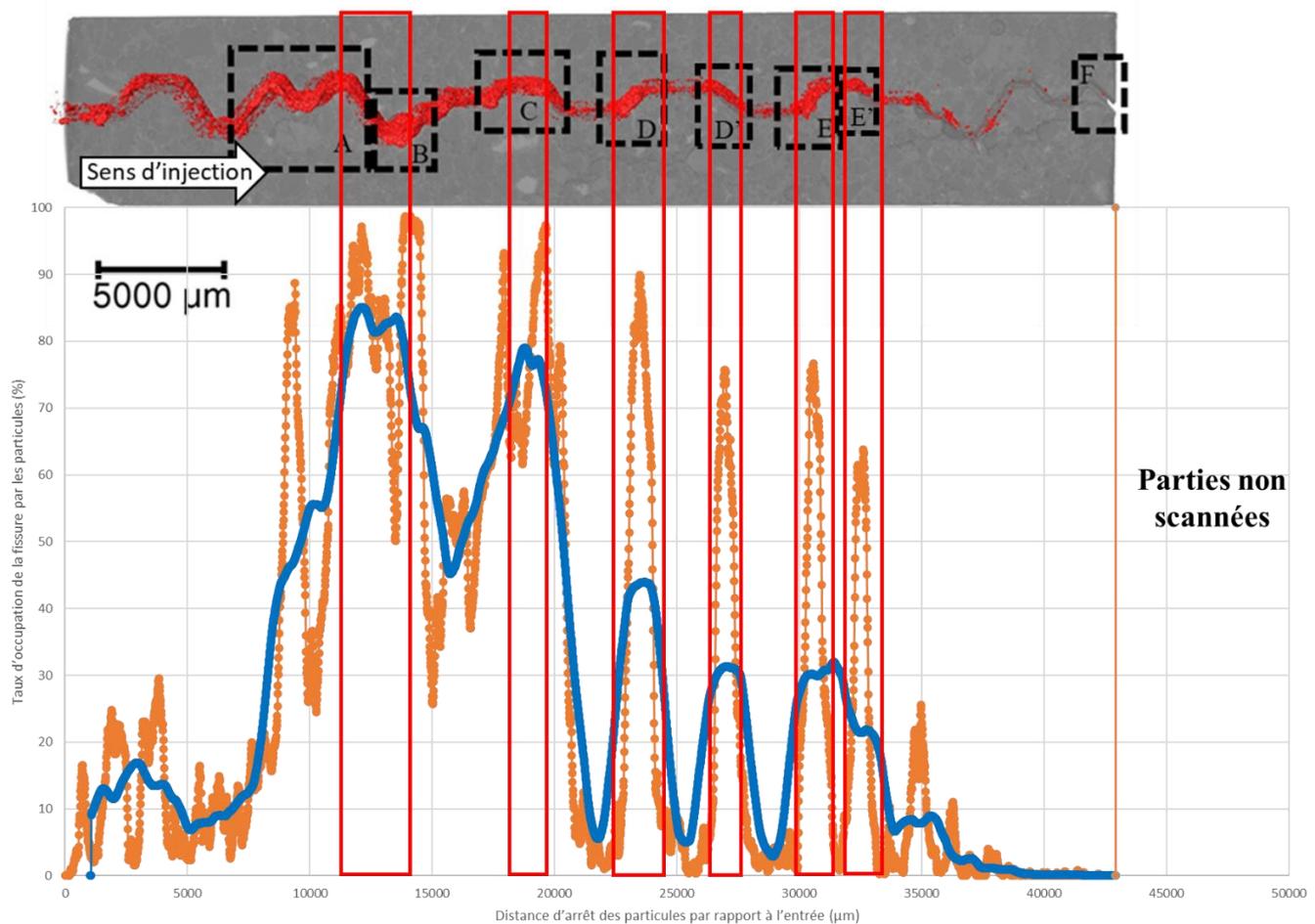
Pour aller plus loin, la différence de rétention entre la fissure complexe et sinusoïdale pourrait s'expliquer par le mode de changement de direction : abrupte ou graduelle. En effet [Li et al, 2017] ont montré que le nombre d'angle droit dans une fissure exerçait une influence sur le facteur de pénétration et que ce dernier diminuait quand le nombre d'angle droit augmentait. Ils ont montré que ce phénomène était marqué à partir de particules de 8  $\mu\text{m}$  de diamètre.

La figure suivante (Figure 73) présente une moyenne mobile (n=200) du pourcentage d'occupation de la fissure sinusoïdale en lien avec les zones de cette fissure. Dans le cas de cette fissure, il existe bien des changements de direction, mais sans existence de rupture de pente. Dans ce cas il apparait clairement que les zones d'accumulation maximale se situent dans les zones où la fissure à une direction ascendante.



**Figure 73 : Pourcentage d’occupation de la fissure par des particules sur chaque coupe de l’échantillon à fissure sinusoïdale.**

La figure suivante (Figure 74) présente une moyenne mobile (n=200) du pourcentage d’occupation de la fissure complexe en lien avec les zones de cette fissure.



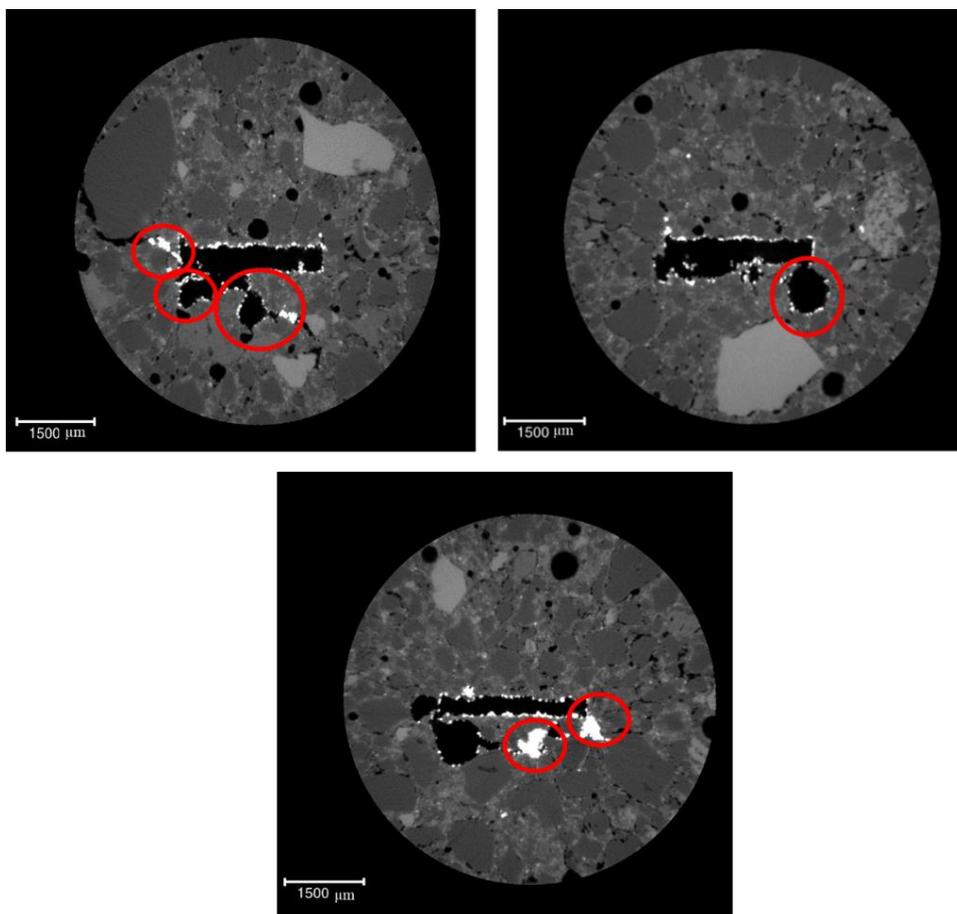
**Figure 74 : Pourcentage d’occupation de la fissure par des particules sur chaque coupe de l’échantillon de fissure complexe.**

Si l’on ne prend pas en compte la zone entre 7 et 20 mm, il apparaît clairement que les taux d’occupation les plus importants apparaissent à chaque cassure de pente, dans ce cas aussi avec une valeur sensiblement plus élevée dans le cas des trajectoires ascendantes. La zone entre 7 et 20 mm quant à elle pourrait représenter un ‘bouchon’ apparaissant suite à des colmatages quasi complets de certaines parties. La comparaison entre les fissures sinusoïdales et complexes montre ainsi que les changements directionnels sont à l’origine de dépôts, suggérant des mécanismes par impaction inertielle/interception. Il faut néanmoins rappeler que la quantité de particules fixées dans la fissure complexe est nettement plus importante que dans la fissure sinusoïdale. Ce dernier point permet de préciser que si le changement de direction est abrupt, le mécanisme d’impaction inertielle/interception est amplifié.

### 4.2.3 Influences des défauts de surface sur la rétention des particules.

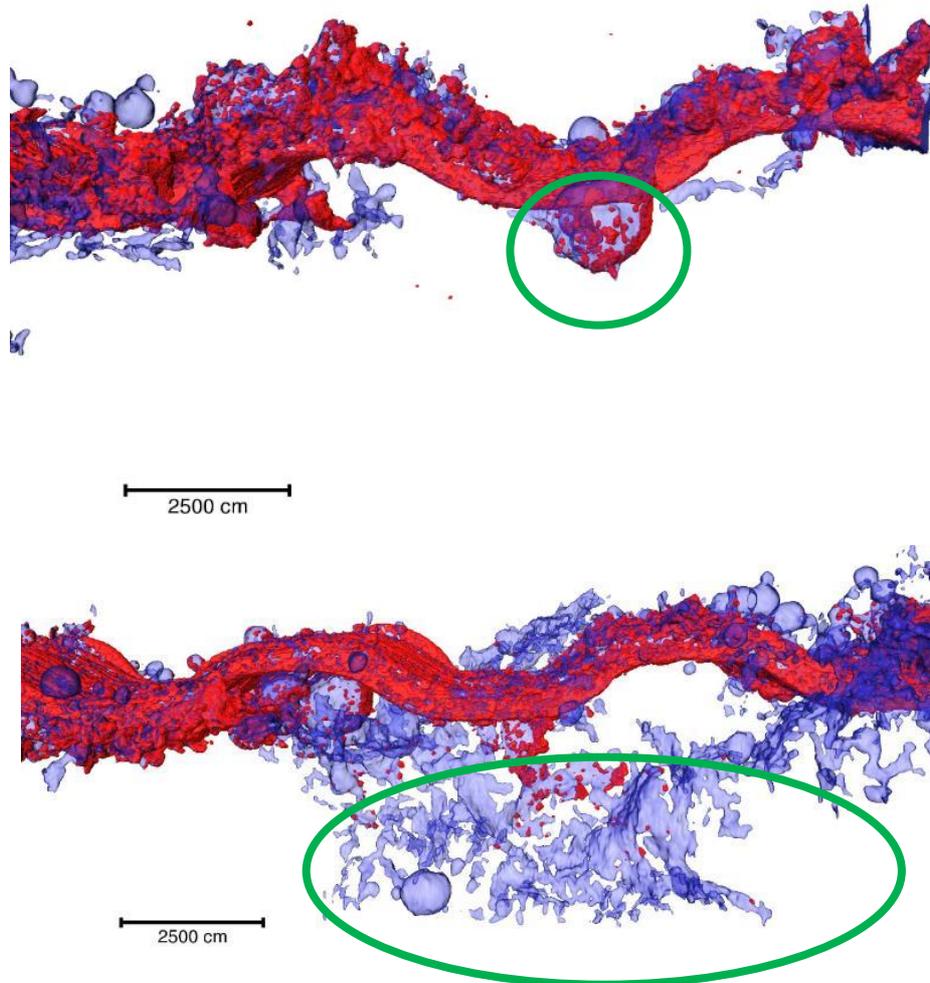
Comme il a été vu précédemment, des défauts de surface peuvent se former lors de la synthèse des échantillons le long de la fissure, notamment par la présence de bulles d'air ou de détachement de lamelles du moule plastique de la fissure.

En étudiant le cas de la fissure sinusoïdale, la présence de ces aspérités constitue des zones « mortes » à fort potentiel de rétention. Comme on peut le voir dans les coupes 2D de la Figure 75, des particules (dans les cercles rouges) se sont déposées dans les pores et fissures connectés au réseau de fissure principale, parfois en quantité importante.



**Figure 75 : Coupes 2D de l'échantillon sinusoïdal. On peut y voir de nombreux pores connectés à la fissure où des particules (dans les cercles rouges) se sont déposées.**

Il est proposé dans la Figure 76, deux images 3D de la fissure sinusoïdale qui permettent de visualiser les particules déposées dans les zones « mortes » : dans un pore connecté (image du haut) et dans un réseau de fissure secondaire (image du bas).



**Figure 76 : Images 3D de deux parties de l'échantillon sinusoïdal servant à montrer le dépôt en particules dans des zones « mortes » telles qu'un pore ou un réseau de fissure secondaire. Le volume 3D binaire de fissure est affiché en bleu et avec une transparence afin de permettre la visualisation des particules en rouge.**

Ces zones « mortes », pouvant être présentes dans le cas de fissures réelles [Akhavan et al, 2017] peuvent être vues comme des réservoirs augmentant la capacité de rétention des fissures. Les particules qui y sont déposées le sont certainement de façon définitive car les vitesses de gaz sont ici les moins élevées, et ne seraient pas suffisantes pour les ré-entraîner. L'arrêt des particules à ces endroits peut s'expliquer de deux façons : soit l'augmentation de l'aire sectionnelle de la fissure à cet endroit conduit à un abaissement de la vitesse du gaz vecteur, ce qui conduit à une sédimentation accélérée de la particule, soit la présence de ce défaut crée une aspérité sur laquelle la particule vient s'arrêter (pore connecté dans une montée par exemple). Ce constat est intéressant car si la présence de bulles d'air, inhérent aux matériaux cimentaires, est en général un facteur négatif dans les propriétés de diffusion et de résistance mécanique d'un mortier, cela aurait ici un effet positif sur la rétention des particules.

## 5. CONCLUSION DE L'ETUDE ET PERSPECTIVES.

L'objectif de ce travail portait donc sur l'étude du transport de particules sous de faibles débits d'air au travers de fissures dans des échantillons de mortier. Il apparaissait en effet important d'être au plus près des conditions réelles propres aux colis de déchets radioactifs : faibles flux de gaz vecteur et particules d'intérêt de densité élevée (oxydes de produits de fission ou d'actinides).

Pour répondre à cet objectif, nous avons développé une **méthodologie basée sur l'impression 3D**, afin de produire des moules de fissure qui ont été intégrés dans un mortier de confinement puis dissous afin d'y laisser leur empreinte. Ainsi, des échantillons de mortier fissuré, contenant des fissures à géométrie simple (plate, sinusoidale) ou complexe (nombreux changements de direction), ont été générés, permettant de pouvoir tester différents paramètres (vitesse de gaz, diamètre de particules) avec les mêmes géométries de fissuration.

**La microtomographie (micro-CT), combinée à une procédure d'analyse d'image que nous avons développée**, a fourni une description 3D et quantitative à haute résolution spatiale à la fois (i) des moules de fissures solides imprimés en 3D et (ii) des fissures générées dans les échantillons de mortier. Les résultats obtenus par micro-CT ont mis en évidence la fiabilité et la reproductibilité de la méthodologie puisque les valeurs de similitude obtenues par enregistrement d'images 2D comparant les moules de fissures avec les fissures des échantillons de mortier sont élevées. La mesure des volumes des fissures générées dans les échantillons de mortier (quatre répliques) après dissolution, s'est révélée très reproductible (écart-type du volume des fissures < 9%). Les fissures secondaires et les pores de ciment (bulles d'air) reliés à la fissure principale et quantifiés avec précision par la micro-CT ont un effet limité sur la variation de volume de l'empreinte de la fissure. Leur caractérisation s'avère toutefois indispensable car ces volumes secondaires peuvent jouer un rôle important dans l'arrêt des particules comme cela a été vu. En outre, le calcul des épaisseurs locales de la fissure et du moule à partir du logiciel iMorph montre un maximum de fréquence autour de 270µm, proche de l'épaisseur de 300µm utilisée pour l'impression 3D des moules. Ces résultats confirment quantitativement que **la géométrie et les caractéristiques du moule ont été transmises avec succès et de manière reproductible à la fissure générée dans le mortier**.

L'objectif suivant de l'étude consistait visualiser et si possible à quantifier le transport de particules représentatives (oxyde de cérium, CeO<sub>2</sub>) dans les fissures précédemment créées. Expérimentalement, la méthode de synthèse des cylindres de mortier fissuré assure une surface

extérieure lisse sur le barreau de mortier, permettant avec un joint torique compressé entre le mortier et la cellule d'injection, de garantir une très bonne étanchéité lors des expériences d'injection de particules. Les paramètres ici investigués ont été le flux de particules et les formes des fissures. Un seul diamètre de particules a été étudié, centré autour de 40  $\mu\text{m}$ , imposé par la résolution du voxel d'analyse en micro-CT (diamètre du voxel 10,3  $\mu\text{m}$ ). Nous avons développé, à partir des données de micro-CT, une procédure de traitement et d'analyse d'image spécifique qui nous a permis de visualiser et de quantifier les particules déposées dans la fissure. Cette procédure repose sur la comparaison précise du volume avant et après injection de particules afin de mettre en évidence spécifiquement les dépôts de particules. Ces résultats montrent :

- **L'absence de particules en aval des fissures à géométrie complexe**, et ce, même avec le débit le plus élevé étudié (10 ml/min) ;
- **L'influence du débit de gaz vecteur sur le dépôt de particules** : plus le débit est faible, moins il y a de particules transportées et moins le chemin parcouru par les particules est important ;
- **L'influence de la forme de la fissure sur le dépôt de particules** : **plus la forme présente des changements de direction abrupts et nombreux, plus les particules seront arrêtées**. Cette rétention plus importante de particules pour la fissure complexe puis sinusoidale apparaît clairement au niveau des changements directionnels de la fissure et plus encore lorsque ces changements sont abrupts comme pour la fissure complexe. Dans le cas du transport de ces particules de 40 $\mu\text{m}$ , l'impaction inertielle semble être le mécanisme prépondérant des mécanismes d'arrêt des particules (par rapport à la sédimentation gravitationnelle et interception)
- **Les zones secondaires des fissures (pores connectés et fissures secondaires non débouchantes), présentes également dans les fissures réelles, apparaissent comme des pièges à particules importants.**

Dans un mortier plus massif coulé dans un colis, il est à noter que le taux d'humidité y est beaucoup plus élevé que pour les expériences menées dans cette étude (éprouvette et particules séchées) et que l'effet d'arrêt serait encore amplifié. Également, le flux d'air devrait être encore plus faible dans un colis réel, ce qui sera propice évidemment à un transport encore moins important des particules (de diamètre proche de 40  $\mu\text{m}$ ).

La poursuite de ce travail devrait s'axer en priorité sur trois points majeurs :

- Etudier des particules de diamètre inférieur, proche du  $\mu\text{m}$ , principalement entre 0,1 et 5  $\mu\text{m}$ . Il aurait été aussi intéressant de travailler sur des échantillons de plus petite taille (par exemple de 10 mm de longueur et de diamètre plus étroit), ce qui permettrait d'augmenter la résolution spatiale et donc de diminuer la taille du voxel et de détecter des particules plus petites. On arrive cependant aux limites de la faisabilité de synthèse des échantillons.
- Mieux maîtriser la gestion du terme source de particules, en utilisant un générateur à brosse tournante par exemple, ce qui est essentiel pour développer des modélisations de transport. Surtout, cela permettrait de s'assurer du temps exact d'injection puisqu'il y aurait en permanence un flux de particules.
- Développer une modélisation du transport des particules à l'aide d'un code de calcul existant, en fonction du flux de gaz, du diamètre de particules... Un travail dans ce sens avait été initié avec l'aide du IUSTI sur le calcul d'écoulement d'air dans une fissure complexe à l'aide du code de calcul STARCCM+.

## 6. BIBLIOGRAPHIE.

**Akhavan A, Shafaatian SMH, Rajabipour F. (2012).** *Quantifying the effects of crack width, tortuosity, and roughness on water permeability of cracked mortars.* Cem Concr Res 2012; 42:313–320. <https://doi.org/10.1016/j.cemconres.2011.10.002>.

**Aïtcin PC, Neville A, Acker P. (1998).** *Les différents types de retrait du béton.* Bulletin des Laboratoires des Ponts et Chaussées 1998; 215 :41-51.

**Allen T. (1990).** *Particle size measurement.* 4th ed. Chapman and Hall. Powder Technology series.

**Alloul-Marmor L. (2002).** *Réentrainement par écoulement d'air d'une contamination particulaire déposée sur une surface : application au cas d'un "tas" de poudre.* Université de Paris XII Val-De-Marne.

<https://www.andra.fr/>

**Ansoborlo E, Boulaud D, Leguen B, (1997).** *Distribution granulométrique d'aérosols d'uranium dans l'industrie française de fabrication du combustible.* Radioprotection 1997; 32 :319-330.

**Ansoborlo E, Chazel V, Hengé-Napoli MH, Pihet P, Rannou A, Bailey MR, Stradling N. (2002).** *Determination of the physical and chemical properties, biokinetics, and dose coefficients of uranium compounds handled during nuclear fuel fabrication in France.* Health Phys. 2002 ; 82(3) :279-289. <https://doi.org/10.1097/00004032-200203000-00001>. PMID : 11845831.

**Balonis M, & Glasser F. (2009).** *The density of cement phases.* Cement and Concrete Research 2009; 39:733-739.

**Baron PA & Willeke K. (2001).** *Aerosol Measurement Principles, Techniques and Applications.* 2nd Edition, John Wiley & Sons, INC., New York.

**Belhamri L & Remache A. (2008).** *Modélisation du séchage par convection.* Rev. Des Energies Renouvelables CISM-08: 289–297.

**Bémer D, Régnier R, Callé S, Thomas D, Simon X, Appert-Collin J.-C. (2006).** *Filtration des aérosols - Performances des médias filtrants.* Hygiène Sécurité Trav. – Cah. Notes Doc. 202, 7–21.

- Benabed A. (2017).** *Contribution à l'étude de la remise en suspension de particules générée par le pas humain au sein d'une ambiance du bâtiment.* Mécanique des fluides [physics.class-ph]. Université de La Rochelle, 2017. Français. NNT : 2017LAROS034. TEL-01804988
- Bigot B, Vernaz E, (2008).** *Le conditionnement des déchets nucléaires.* Éd. Le Moniteur : CEA (Commissariat à l'énergie atomique), Paris.
- Bishnoi LR, Vedula RP. (2013).** *Prediction of air leakage and aerosol transport through concrete cracks with a fractal-based crack morphology model.* Nucl Eng Des 2013 ; 265:393–401. <https://doi.org/10.1016/j.nucengdes.2013.06.032>.
- Boualem A. (2016).** *Estimation de distribution de tailles de particules par techniques d'inférence bayésienne.* Autre. Université d'Orléans, 2016. Français. NNT : 2016ORLE2030. TEL-01493986
- Bossa N, Chaurand P, Vicente J, Borschneck D, Levard C, Aguerre-Chariol O, Rose J. (2015).** *Micro- and nano-X-ray computed-tomography: A step forward in the characterization of the pore network of a leached cement paste.* Cem Concr Res 2015; 67:138–147. <https://doi.org/10.1016/j.cemconres.2014.08.007>.
- Burton M. (1958).** *The effects of radiation on materials.* Reinhold Publishing Corporation, New York; 243.
- Brisard S, Serdar M, Monteiro PJM. (2020).** *Multiscale X-ray tomography of cementitious materials: A review.* Cem Concr Res 2020 ;128 :105824. <https://doi.org/10.1016/j.cemconres.2019.105824>.
- Brun E, Ferrero C, Vicente J. (2017).** *Fast Granulometry Operator for the 3D Identification of Cell Structures.* Fundamenta Informaticae. 2017; 155: 363-372. <https://doi.org/10.3233/FI-2017-1590>.
- Brun E, Vicente J, Topin F, Ocelli R. (2008).** *IMorph: A 3D Morphological Tool to Fully Analyze All Kind of Cellular Materials.* CELLMET-Symposium, Dresden, Germany, 22–26 September 2008
- Darquenne C. (2020).** *Deposition Mechanisms.* J. Aerosol Med. Pulm. Drug Deliv. 2020; 33:181–185. <https://doi.org/10.1089/jamp.2020.29029.cd>

- Darma IS, Sugiyama T, Promentilla MAB. (2013).** *Application of X-Ray CT to Study Diffusivity in Cracked Concrete Through the Observation of Tracer Transport.* Journal of Advanced Concrete Technology 2013; 11: 266-281. <https://doi.org/10.3151/jact.11.266>.
- Dodds J, Baluais G. (1993).** *Caractérisation de la taille des particules. Particle size characterization.* In : Sciences Géologiques. Bulletin, tome 46, n°1-4. Minéraux finement divisés. pp. 79-104.
- Dorrian MD. (1995).** *Particle size distribution of radioactive aerosols measured in workplaces.* Radiation Protection Dosimetry 1995; 60:119-133. <https://doi.org/10.1093/oxfordjournals.rpd.a082709>
- Du Plessis A & Boshoff WP. (2019).** *A review of X-ray computed tomography of concrete and asphalt construction materials.* Constr Build Mater 2019; 199:637–651. <https://doi.org/10.1016/j.conbuildmat.2018.12.049>.
- Eckhoff RK. (1997).** *Dust Explosions in the Process Industries*, 2nd ed., Butterworth Heinemann, Oxford
- Eckhoff RK. (2006).** *Differences and similarities of gas and dust explosions: A critical evaluation of the European 'ATEX' directives in relation to dusts.* Journal of Loss Prevention in the Process Industries 2006; 19:553-560.
- Fritsch P, Raynaud P, Blanchin N, Mièle A. (2006).** *Incertitudes sur les expositions, les niveaux de contamination et les doses après inhalation d'actinides.* Radioprotection 2006; 41: 287–308. <https://doi.org/10.1051/radiopro:2006006>.
- Gallé C. (2001).** *Effect of drying on cement-based materials pore structure as identified by mercury intrusion porosimetry A comparative study between oven-, vacuum-, and freeze-drying.* Cem Concr Res 2001:11.
- Gélain T. (2012).** *An original method to assess leakage through cracked reinforced concrete walls.* Eng Struct 2012; 38:11–20. <https://doi.org/10.1016/j.engstruct.2011.12.037>.
- Gélain T, Vendel J. (2008).** *Research works on contamination transfers through cracked concrete walls.* Nucl Eng Des 2008 ; 238 :1159–1165. <https://doi.org/10.1016/j.nucengdes.2007.08.007>.

**Guetat P, Monfort M, Ansoborlo E, Bion L, Boucher L, Jourdain F, Moulin V, Reiller P, Van Dorpe F, Vercoouter T, Compte A, Flury Herard A, Fritsch P, Menetrier F. (2008).** *Impacts environnemental et sanitaire des isotopes du Plutonium. Etude bibliographique et quantification.* Commissariat à l’Energie Atomique (CEA). Rapport CEA-R-6186.

**Guichard R. (2013).** *Dynamique d’un aérosol de nanoparticules : modélisation de la coagulation et du transport d’agrégats.* Autre [cond-mat.other]. Université de Lorraine, 2013. Français. NNT : 2013LORR0137. Tel-01750217.

**Herranz LE, Ball J, Auvinen A, Bottomley D, Dehbi A, Housiadas C, Piluso P, Parozzi, Hinds WC. (1999).** *Aerosol Technology: properties, behavior, and measurement of airborne particles.* Second edition. Ed. John Wiley & Sons, Inc., New York.

**Hong S, Liu P, Zhang J, Xing F, Dong B. (2019).** *Visual & quantitative identification of cracking in mortar subjected to loads using X-ray computed tomography method.* Cem Concr Compos 2019 ; 100:15–24. <https://doi.org/10.1016/j.cemconcomp.2019.03.010>.

**Hosdez J. (2017).** *Fissuration par fatigue de fontes à graphite sphéroïdal et vermiculaire : caractérisation des effets de la plasticité et d’un vieillissement thermique.* Ecole doctoral SPI 072.

**Ismail M. (2006).** *Etude des transferts et de leurs interactions avec la cicatrisation dans les fissures pour prolonger la durée de services des infrastructures (ponts, centrales nucléaires).* Institut national des sciences appliquées de Toulouse.

**Jacquelin M. (2008).** *Étude de la mise en suspension de particules par chute de poudre.* Université de Paris XII -Val-de-Marne.

**Johnson TF, Iacoviello F, Hayde DJ, Welsh JH, Levison PR, Shearing PR, Bracewell D. (2019).** Packed bed compression visualisation and flow simulation using an erosion-dilatation approach. *Journal of Chromatography A*; 1611: 460601. <https://doi.org/10.1016/j.chroma.2019.460601>.

**Jourdain X & Rastiello G. (2016).** *Experimental study of non-linear air flow through a single concrete crack characterised geometrically by X-ray microtomography.* 13èmes Journées d’études des Milieux Poreux 2016, Oct 2016, Anglet, France. [hal-01394451](#)

**Kim JS, Chung SY, Stephan D, Han TS. (2019).** *Issues on characterization of cement paste microstructures from  $\mu$ -CT and virtual experiment framework for evaluating*

*mechanical properties.* Constr Build Mater 2019; 202:82-102.  
<https://doi.org/10.1016/j.conbuildmat.2019.01.030>.

**Laborde JC. (2005).** *Le comportement des aérosols : de l'installation à l'environnement.* Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire. 21<sup>ème</sup> congrès français sur les aérosols Paris.

**Lahalle H. (2016).** *Conditionnement de l'aluminium métallique dans les ciments phospho-magnésiens. Chimie théorique et/ou physique.* Université de Bourgogne. Français. NNT : 2016DIJOS048. TEL-01686692f

**Lai A & Nazaroff W. (2005).** *Supermicron particle deposition from turbulent chamber flow onto smooth and rough vertical surfaces.* Atmos Environ 2005; 39:4893–4900.  
<https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2005.04.036>.

**Lai ACK. (2002).** *Particle deposition indoors: a review.* Indoor Air 2002; 12: 211-214.

**Lai ACK. (2005).** *Modeling indoor coarse particle deposition onto smooth and rough vertical surfaces.* Atmos Environ 2005 ; 39: 3823-3830.

**Lai ACK, Fung JLS, Li M, Leung KY. (2012).** *Penetration of fine particles through rough cracks.* Atmos Environ 2012; 60:436–443.  
<https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2012.06.053>.

**Lewis S. (1995).** *Solid particle penetration into enclosures.* J Hazard Mater 1995; 43:195–216. [https://doi.org/10.1016/0304-3894\(95\)00037-U](https://doi.org/10.1016/0304-3894(95)00037-U).

**Li A, Ren T, Yang C, Lv W, Zhang F. (2017).** *Study on particle penetration through straight, L, Z, and wedge-shaped cracks in buildings.* Build Environ 2017; 114:333–343.  
<https://doi.org/10.1016/j.buildenv.2016.12.024>.

**Lieb-Lappen RM, Golden EJ, Obbard RW. (2017).** *Metrics for interpreting the microstructure of sea ice using X-ray micro-computed tomography.* Cold Reg Sci Technol 2017; 138:24–35. <https://doi.org/10.1016/j.coldregions.2017.03.001>.

**Liu DL & Nazaroff WW. (2003).** *Particle Penetration Through Building Cracks.* Aerosol Sci Technol 2003; 37:565–573. <https://doi.org/10.1080/02786820300927>.

**Lu H, Alymov E, Shah S, Peterson K. (2017).** *Measurement of air void system in lightweight concrete by X-ray computed tomography.* Constr Build Mater 2017 ; 152 :467–483. <https://doi.org/10.1016/j.conbuildmat.2017.06.180>.

**Maro D. (2011).** *Transfert des radionucléides sous forme de gaz et d'aérosols dans les environnements complexes : études expérimentales de dispersion atmosphérique et d'échanges aux interfaces.* Université des Sciences de Nantes. Ecole doctorale SPIGA.

**Mitchell JP, Morton DAV, North BM (1992).** *The penetration of sub-micron non-spherical particles through ultrafine capillaries.* AEA Technology Report AEA-EE-0361, Winfrith.

**Mitrakos D, Chatzidakis S, Hinis E, Herranz LE, Parozzi F, Housiadas C. (2008).** *A simple mechanistic model for particle penetration and plugging in tubes and cracks.* Nucl. Eng. Des. 2008 ;238 : 3370–3378. <https://doi.org/10.1016/j.nucengdes.2008.07.002>

**Monge J. (2007).** *Fissuration des mortiers en couches minces - Effet de l'hydratation, du séchage et de la carbonatation.* Sciences de l'ingénieur [physics]. École normale supérieure de Cachan - ENS Cachan, 2007. Français. TEL-00256911

**Morewitz HA. (1982).** *Leakage of aerosols from containment buildings.* Health Phys 1982; 42(2):195-207. <https://doi.org/10.1097/00004032-198202000-00010>.

**Morandi S, Parozzi F, Salina E, Journeau C, Piluso P, (2008).** *Aerosol retention in containment leak paths: indications for a code model in the light of COLIMA Experimental Results.* 5<sup>th</sup> European Review meeting on severe Accident Research (ERMSAR-2012) NH Hotel Mediapark, Cologne (Germany):1-15.

**Morton DAV, North BM, Mitchell JP. (1992).** *The penetration of micron-sized non-spherical particles through ultrafine capillaries.* AEA Technology Report AEA-EE-0301, Winfrith.

**Morton DAV, Mitchell JP. (1995).** *Aerosol penetration through capillaries and leaks: Experimental studies on the influence of pressure.* J. Aerosol Sci. 1995; 26: 353–367. [https://doi.org/10.1016/0021-8502\(94\)00093-E](https://doi.org/10.1016/0021-8502(94)00093-E).

**Mounanga P. (2003).** *Etude expérimentale du comportement de pâtes de ciment au très jeune âge : hydratation, retraits, propriétés thermophysiques.* Thèse de doctorat, Université de Nantes, Nantes, France.

**Narayanam SP, Kumar A, Sen S, Pujala U, Subramanian V, Srinivas CV, Baskaran R. (2020).** *Experimental measurements and theoretical simulation of sodium combustion aerosol leakage through capillaries.* Prog Nucl Energy 2020; 118:103111. <https://doi.org/10.1016/j.pnucene.2019.103111>.

**Neilson RM & Dole LR. (1985).** *Chemical considerations for the immobilization of low-level radioactive waste.* Radioactive waste Technology, Ed. by Moghissi, Godbee, Hobart. Chapter 8. 317p.

**Nickling WG. (1994).** *Aeolian sediment transport and deposition. Sediment Transport and Depositional Process.* Edité par Kenneth Pye, Blackwell Scientific Publications, Oxford, 293-350.

**Pan Y, Lin C-H, Wei D, Chen C. (2020).** *Influence of surface roughness on particle deposition distribution around multi-slot cabin supply air nozzles of commercial airplanes.* Build Environ 2020 ; 176:106870. <https://doi.org/10.1016/j.buildenv.2020.106870>.

**Parozzi F, Caracciolo EDJ, Journeau C, Piluso P. (2013).** *The COLIMA experiment on aerosol retention in containment leak paths under severe nuclear accidents.* Nucl Eng Des 2013; 261:346–351. <https://doi.org/10.1016/j.nucengdes.2012.12.012>.

**Pointeau I, Borschneck D, Boccheciampe A, Le Cocguen A, Garcia M, Chaurand P, Rose J, Lamotte H, Carré D. (2013).** *Controlled artificial cracks generated in mortar.* NUWCEM: 24 – 26 October 2018 Avignon, France. Cement-based Materials for Nuclear Wastes.

**Powers DA. (2009).** *Aerosol penetration of leak pathways : an examination of the available data and models.* United States. <https://doi.org/10.2172/953727>. <https://www.osti.gov/servlets/purl/953727>.

**Promentilla MAB, Sugiyama T, Hitomi T, Takeda N. (2008).** *Characterizing the 3D Pore Structure of Hardened Cement Paste with Synchrotron Microtomography.* J Adv Concr Technol 2008; 6:273–286. <https://doi.org/10.3151/jact.6.273>.

**Promentilla MAB, Sugiyama T. (2010).** *X-Ray Microtomography of Mortars Exposed to Freezing-Thawing Action.* J Adv Concr Technol; 2010 8:97–111. <https://doi.org/10.3151/jact.8.97>.

**Ranade MB. (1987).** *Adhesion and Removal of Fine Particles on Surfaces.* Aerosol Sci. Technol 1987 ; 7 :161-176.

**Reichmanis E, O'Donnell JH. (1989).** *The Effects of Radiation on High-Technology Polymers* Washington, DC : American Chemical Society, 1989.

**Renoux A. (1998).** *Les aérosols : physique et métrologie.* Paris Londres New York : Tec & doc-Lavoisier, Print.

**Renoux A & Boulaud D.** *Physique des aérosols Partie 1*. Tech Ing Phys Chim 2003; base documentaire : TIP053WEB. <https://doi.org/10.51257/a-v1-af3612>.

**Ritchet C, LeBescop P, Gallé C, Peycelon H, Bejaoui S, Pointeau I, L'Hostis V, Bary B. (2004).** *Dossier de synthèse sur le comportement à long terme des colis : Dossier de référence phénoménologique « Colis Beton »*. Commission à l'Energie Atomique (CEA). Département de Physico-Chimie. Service de la Corrosion et du Comportement des Matériaux dans leur Environnement. Rapport RT-DPC/SCCME 04-679-A.

**Rondeau A. (2015).** *Étude de la mise en suspension aéraulique appliquée à la problématique des poussières dans le futur tokamak ITER*. Mécanique des fluides [physics.class-ph]. Université Paris Saclay (COmUE), 2015. Français. NNT : 2015SACLS181. TEL-01281475.

**Rouspard P. (2013).** *Etude phénoménologique du dépôt sec d'aérosols en milieu urbain : Influence des propriétés des surfaces, de la turbulence et des conditions météorologiques*. Autre [cond-mat.other]. INSA de Rouen, Français. NNT : 2013ISAM0007. TEL-00845215

**Sercombe J, Vidal R, Gallé C, Adenot F. (2006).** *Experimental study of gas diffusion in cement paste*. Cement and Concrete Research 2006;37(4): 579-588. <https://doi.org/10.1016/j.cemconres.2006.12.003>.cea-02360113.

**Shields Y, Garboczi E, Weiss J, Farnam Y. (2018).** *Freeze-thaw crack determination in cementitious materials using 3D X-ray computed tomography and acoustic emission*. Cem Concr Compos 2018;89:120–9. <https://doi.org/10.1016/j.cemconcomp.2018.03.004>.

**Sokhansefat G, Moradian M, Finnell M, Behravan A, Ley MT, Lucero C, Weiss J. (2020).** *Using X-ray computed tomography to investigate mortar subjected to freeze-thaw cycles*. Cem Concr Compos 2020 ;108 :103520. <https://doi.org/10.1016/j.cemconcomp.2020.103520>.

**Souche JC. (2015).** *Etude du retrait plastique des bétons à base de granulats recyclés avec mesure de l'influence de leur degré de saturation*. Mécanique des matériaux [physics.class-ph]. Université Montpellier, Français. NNT : 2015MONT097. TEL-01831008.

**Sutter SL, Johnston JW, Owzarski PC, Mishima J. & Schwendiman LC (1981).** *Depleted Uranium Dioxide Powder Flow Through Very Small*

*Openings*, Nuclear Technology 1981; 52(1); 100-104, <https://doi.org/10.13182/NT81-A32693>.

**Sutter SL, Ballinger MY, Halverson MA. et Mishima J. (1983).** *Accident-generated radioactive particle source term development for consequence assessment of nuclear fuel cycle facilities*. Pacific Northwest Laboratories, Richland, WA, PNL-SA-11243.

**Suzuki T, Nishimura S, Shimamoto Y, Shiotani T, Ohtsu M. (2020).** *Damage estimation of concrete canal due to freeze and thawed effects by acoustic emission and X-ray CT methods*. Constr Build Mater 2020; 245:118343. <https://doi.org/10.1016/j.conbuildmat.2020.118343>.

**Taylor HFW. (1997).** *Cement Chemistry*. 2nd Edition, Thomas Telford Publishing, London, 361. <http://dx.doi.org/10.1680/cc.25929>.

**Thatcher T. (1995).** *Deposition, resuspension, and penetration of particles within a residence*. Atmos Environ 1995;29:1487–97. [https://doi.org/10.1016/1352-2310\(95\)00016-R](https://doi.org/10.1016/1352-2310(95)00016-R).

**Thatcher TL & Nazaroff WW. (1997).** *Effect of Small-Scale Obstructions and Surface Textures on Particle Deposition from Natural Convection Flow*. Aerosol Sci Technol 1997;27:709–25. <https://doi.org/10.1080/02786829708965506>.

**Thomas D, Charvet A, Bemer D, Chalezet S. (2019).** *Filtration des nanoparticules*. Tech. Ing. Opérations Unit. Génie Réaction Chim. base documentaire: TIP452WEB. <https://doi.org/10.51257/a-v1-j3402>

**Tian M, Gao H, Han X, Wang Y, Zou R. (2017).** *Experimental study on the penetration efficiency of fine aerosols in thin capillaries*. J. Aerosol Sci. 111, 26–35. <https://doi.org/10.1016/j.jaerosci.2017.06.001>

**Trainor KJ, Foust BW, Landis EN. (2013).** *Measurement of Energy Dissipation Mechanisms in Fracture of Fiber-Reinforced Ultrahigh-Strength Cement-Based Composites*. J Eng Mech 2013;139:771–9. [https://doi.org/10.1061/\(ASCE\)EM.1943-7889.0000545](https://doi.org/10.1061/(ASCE)EM.1943-7889.0000545).

**Wan K, Chen L, Xu Q. (2015).** *Calibration of grayscale values of cement constituents using industrial X-ray tomography*. Sci China Technol Sci 2015; 58:485–92. <https://doi.org/10.1007/s11431-014-5751-6>.

**Withers PJ. (2021).** *X-ray computed tomography*. 2021:21.

**Witschger O. (1999).** *Mise en suspension de contamination particulaire radioactive, synthèse bibliographique.* IPSN Rapport d'étude DPEA/SERAC/LPMA/99-I 3.

**Xu B, Liu S, Zhu Y. (2010).** *Ultrafine particle penetration through idealized vehicle cracks.* J. Aerosol Sci. 2010; 41:859–868. <https://doi.org/10.1016/j.jaerosci.2010.05.005>

**Yang B, Wu A, Miao X, Liu J. (2014).** *3D characterization and analysis of pore structure of packed ore particle beds based on computed tomography images.* Trans Nonferrous Met Soc China 2014;24:833–838. [https://doi.org/10.1016/S1003-6326\(14\)63131-9](https://doi.org/10.1016/S1003-6326(14)63131-9).

**Yokhana VSK, Arhatari BD, Gureyev TE, Abbey B. (2017).** *Soft-tissue differentiation and bone densitometry via energy-discriminating X-ray microCT* 2017:14.

**Zhang M, He Y, Ye G, Lange DA, Breugel K van. (2012).** *Computational investigation on mass diffusivity in Portland cement paste based on X-ray computed microtomography ( $\mu$ CT) image.* Constr Build Mater 2012; 27:472–481. <https://doi.org/10.1016/j.conbuildmat.2011.07.017>.

**Zijdenbos AP, Dawant BM, Margolin RA, Palmer AC. (1994).** *Morphometric Analysis of White Matter Lesions in MR Images: Method and Validation.* IEEE Transactions On Medical Imaging 1994; 13; 4:716\_724. <https://doi.org/10.1109/42.363096>.

## 7. ANNEXE

# Conception and characterization of cracks with controlled geometry in containment mortar

A. Boccheciampe<sup>1,2</sup>, D. Borschneck<sup>2</sup>, P. Chaurand<sup>2</sup>, J. Vicente<sup>3</sup>, E. Soldati<sup>3</sup>  
V. Vidal<sup>2</sup>, I. Pointeau<sup>1</sup>, J. Rose<sup>2</sup>

<sup>1</sup>CEA, DES, DDS, DFDE, SECC/LECD, CADARACHE, F-13108 Saint-Paul-Lez Durance, France

<sup>2</sup>Aix Marseille Univ, CNRS, IRD, INRAE, Coll France, CEREGE 13545 Aix-en-Provence, France

<sup>3</sup>Aix Marseille Univ, CNRS, IUSTI, 13453 Marseille France

Email : [boccheciampe@cerege.fr](mailto:boccheciampe@cerege.fr)

## Keywords

Crack; mortar; Radioactive waste; 3D Printing; X-ray micro-computed-tomography; 3D image analysis.

## 1. Abstract

In the context of radioactive wastes management, nuclear risk assessments need to include accidental scenarios in which cracks occur in the mortar barrier that could lead to the release of particles from the core of the package to its surface.

To investigate the behaviour of particles in cracks in mortar, robust experiments are needed to quantify the role of different parameters including gas fluxes, particle size and crack size. We describe a new methodology to produce cracked mortar samples with controlled and repeatable design and properties, including geometry, morphology and tortuosity. First, 3D printing was used to produce plastic crack moulds with well-controlled geometric parameters, i.e. thickness, length, and width. Second, X-ray micro computed-tomography ( $\mu$ CT) was performed to visualise the internal structure of the cracked mortar samples and to characterise the geometry

of the cracks. Third, I-morph modelling software was used to investigate details of the variability and the thickness distribution of the generated samples.

## 2. Introduction

Nuclear research and decommissioning produce radioactive wastes of different categories which are managed as a function of their activity and half-life. One of these categories, Intermediate-level long-lived wastes (ILW-LL) may contain metal, plastic, or cellulose. Part of these wastes are placed in plastic bags and stainless-steel drums that are then sealed in a container filled with mortar for final immobilisation in a waste package. At the French Alternative Energies and Atomic Energy Commission (CEA), a CEM V mortar is used in radioactive waste packages where a few centimetres of this material act as an efficient containment barrier.

The permeability of the mortar barrier allows the removal of corrosion and of the radiolysis gases produced inside the package. Radiolysis is the dissociation of molecules by ionizing radiation ( $\alpha$ ,  $\beta$ ,  $\gamma$ ). Radiolysis creates radical species that can recombine and produce gases ( $H_2$ ,  $CO$ ,  $CO_2$ ,  $CH_4$ ) [1,2]. Inside the waste package, interactions can occur between the radioactive matter and organic materials such as polymers, or cellulose. In this case, several litres of gas can be produced per year by a waste package. The CEM V mortar of the containment barrier exhibits low permeability values [3] that allow the release of any gas generated thereby preventing gas from accumulating inside the package. Additionally, gas transfer may mobilise radioactive particles.

Nevertheless, the mortar barrier must prevent the release of radioactive particles, and, in practice, a large proportion of ILW-LL waste is contaminated by alpha-emitter radioactive particles. These U or Pu particles have a high density of approximately  $10 \text{ g.cm}^{-3}$  for actinide oxides, and their activity median aerodynamic diameter (AMAD) ranges from 0.12 to 25  $\mu\text{m}$ , depending on the radioactive materials present in the workplace [4]. CEM V mortar is a porous material that acts as a very efficient particles filter as its pores are very small with a pore access diameter of around 5 nm. [5].

Even so, micro and macro cracks may form in the containment barrier, for example if a waste package falls during handling. In this case, if interconnected cracks form a path from the wastes to the external surface of the mortar, radioactive particles could migrate through the cracks. The migration rate of the particles could be influenced by many factors including the velocity and

the humidity of the gas vector, and the thickness, length, roughness and connectivity of the crack relative to the diameter of the particles [6,7].

Nuclear risk assessments thus need to include such an incident in risk scenarios and to evaluate the effects of mortar cracking on the transport of aerosol particles. Many studies in different scientific fields (health, nuclear safety, building materials) have focused on the leakage of aerosols through paths in mortar depending on parameters like pressure, humidity, the concentration of the aerosol, or the size of aerosol particles [6,7,8,9,10,11,12,13]. Two topics in particular are investigated in the literature dealing with the transport of aerosol particles in cracks. The first is aerosol leakage through a model penetration path such as capillary or slot [9,11,14,15]. However, the path geometry is simplified and remains far from realistic crack geometry. The second topic consists in creating a real crack network in cement-based samples (e.g. concrete) by compression or bending, and using shims as reference thickness. The resulting cracks are actually random, uncontrolled and are consequently not reproducible. The advantage of this approach is the crack morphology is realistic. However, the geometrical dimensions remain unknown and need to be determined indirectly by aeraulic measurement [6,7] or by direct measurement [16,17], which inevitably degrades the samples [6,7,16,17,18]. Other studies, as the development of fractal-based crack morphology models to simulate the leakage of aerosols through cracked concrete [19], focused on the importance of the morphology of the crack network, i.e., thickness, tortuosity, rugosity (or surface roughness), throat size, in the transfer of aerosol particles.

In this context, the aim of this study was thus to develop a multi-step methodology to generate reproducible cracked mortar samples with controlled and well-characterized crack morphology. The originality of our approach is taking advantage of two technologies. Firstly, 3D printing was used to produce reproducible crack moulds with high precision (about 100  $\mu\text{m}$ ), and complex geometry to get closer to real crack geometry. The footprint of the crack moulds, embedded in mortar and then dissolved, creates a geometry-controlled crack through the mortar. Secondly, X-ray micro computed-tomography ( $\mu\text{CT}$ ) was used to produce a precise in-situ description of the 3D crack geometry in cracked mortar at high spatial resolution (e.g. at the micrometre scale). In recent years, this non-destructive technique, which was originally developed for medical applications [20], has been widely used in cement-based materials, including to investigate internal pore structure, pore size and connectivity [21,22,23,24,25], or to investigate the cracking process during incremental loading [26,27,28,29,30,31, 32].

In cracked mortar samples observed by  $\mu\text{CT}$ , voids (micro pores and internal cracks) and mortar phases exhibit highly contrasted X-ray absorption. Thus, based on specific image processing

[20], it is possible to (i) isolate voids voxels, (ii) to separate micro pores from internal cracks and (iii) to quantitatively determine three-dimensional crack geometry parameters, such as total volume and thickness.

Third, I-morph modelling software was used to investigate details of the variability and the thickness distribution of the generated samples.

### 3. Materiel & Methods

The proposed multi-step methodology to control and characterise cracks in mortar is summarised in Figure 1 and each step is detailed below.

Four replicates of the cracked mortar sample were generated to evaluate the reproductibility of the methodology. In this study, each replicate was named Crack\_X.

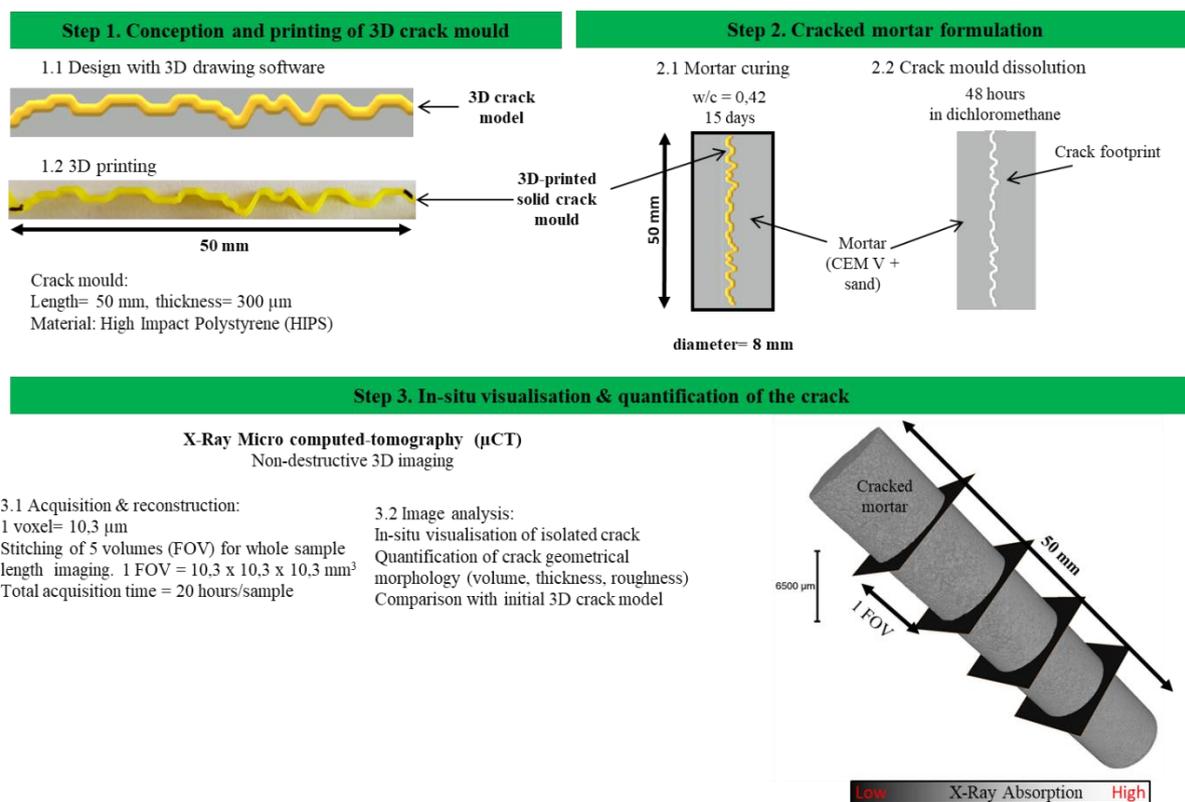


Figure 1. Multi-step methodology to generate cracked mortar samples with controlled and well-characterised internal crack morphology.

#### 3.1. Conception and printing of 3D solid crack mould (step 1)

The originality of our methodology is that it uses recent 3D printing technology to obtain high-precision crack moulds from a 3D *in-silico* complex model. A 3D drawing software was used

to design 3D crack models with complex morphology (e.g. zigzag shape, checkerboard pattern) and exact dimensions (e.g. thickness) [6,7,8]. The geometry of our 3D crack model (Figure 1) was established to identify particle deposition mechanisms including sedimentation and impaction. 3D crack models were defined as a succession of straight linear paths connected to each other by angles of varying sharpness in order to discriminate deposition mechanisms by creating potential particle clogging zones and that as closely as possible resemble real cracks [19,32].

The model crack was 50 mm long to enable analysis of a long deposit of particles. To maximise particle deposition, the width of the crack was set to 3 mm and its thickness to 300  $\mu\text{m}$ , which is the thickness acceptance limit of ANDRA (French agency for Radioactive Waste Management) for the cracks in radioactive waste packages.

The model crack was then 3D printed with an UltiMaker 2 EXTENDED + tool (The Netherlands), to obtain a solid crack mould. The printer was equipped with a 0.25 mm nozzle to ensure a constant thickness/width of 300  $\mu\text{m}$  all along the crack mould. The crack moulds were produced with high-impact polystyrene (HIPS) filament (Figure 1) which is easily dissolved by dichloromethane. HIPS is a good compromise between the degree of flexibility required to pour the mortar and easy dissolution. To assess the precision and the reproducibility of 3D printing, three replicates of the resulting solid crack moulds were scanned with  $\mu\text{CT}$  to compare the experimental and model geometry.

### 3.2. Cracked mortar formulation (step 2)

The 3D-printed crack mould was inserted into a cylindrical plastic tube filled with mortar. The diameter of the tube (8 mm) was optimised for 3D imaging at micrometric spatial resolution (see step 3). The mortar used in this study has the same formulation than the one actually used to package radioactive waste. It was a mixture of cement CEM V/A 32.5 and siliceous grains (0-4 mm) with a water/cement ratio (w/c) of 0.42. Admixtures and setting retarder were added to the mortar. In addition, to improve the homogeneity of the mortar and avoid the formation of additional pores, the mortar was compacted using a small metal rod.

After 15 days of curing, the upper and lower parts of the sample were removed with a wire saw. The resulting cylindrical core (length 50 mm, diameter 8 mm) was immersed in dichloromethane for 48 hours to ensure complete dissolution of the 3D-printed solid mould embedded in the mortar. The footprint of the dissolved mould created a geometry-controlled crack through the mortar.

### 3.3. In-situ visualisation and characterisation of the crack properties (step 3)

X-ray micro computed-tomography ( $\mu$ CT) was used to obtain a 3D description at high spatial resolution (e.g. at the micrometre scale) of the crack geometry in the samples of mortar.  $\mu$ CT is a powerful 3D imaging technique (Figure 2) to check in situ whether the dimensions and geometrical parameters of the 3D-printed solid crack mould have been properly transferred to the generated cracked mortar.

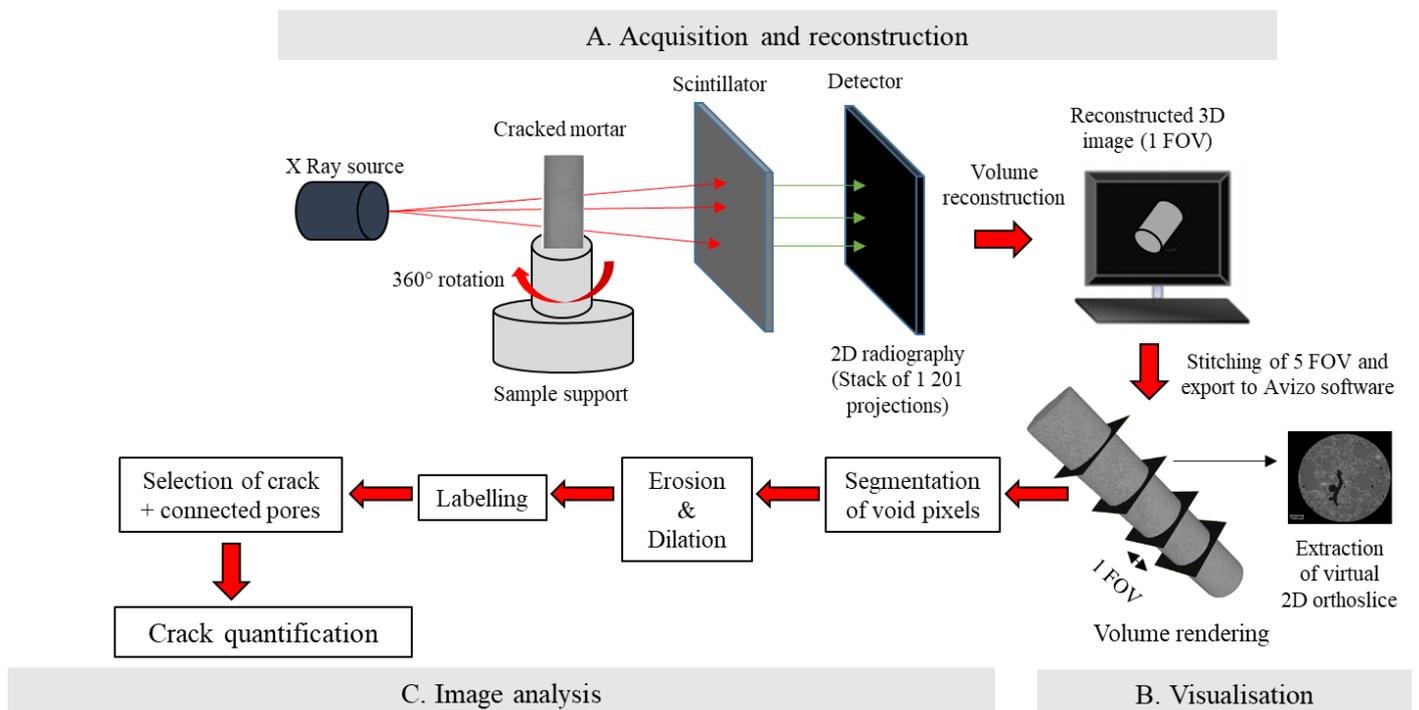


Figure 2. 3D imaging of the cracked mortar by  $\mu$ CT.

#### 3.3.1. Acquisition

$\mu$ CT was performed with a microXCT-400 X-ray microscope (Zeiss) at the MATRIX platform at Centre Européen de Recherche et d'Enseignement en Géosciences de l'Environnement (CEREGE). Data were acquired with a tungsten X-ray source at an accelerating voltage of 60kV and a power of 10 W. A filter (LE#5) was placed in front of the source to reduce beam hardening. Each scan consisted in 1 201 projections at an exposure time of 9 s per projection

collected while the sample is rotated 360°. The sample was placed on a stainless-steel support and blocked by a plastic ring.

A 0.4x magnification optical objective was used to achieve an isotropic voxel of 10.3  $\mu\text{m}$  and a field-of-view (FOV) of 10.3x10.3x10.3  $\text{mm}^3$ . Five scans were required to image the full sample length (50 mm). The total acquisition time of each cracked mortar sample was about 20 hours.

### 3.3.2. Reconstruction

$\mu\text{CT}$  provides raw data (a stack of 1 201 2D projections) that had to be reconstructed to obtain the 3D image of the scanned sample. The volume was reconstructed using XMReconstructed-Parallel Beam-9.0.6445 software with a filtered back projection algorithm [21]. The filtered back projection algorithm applied a Gaussian smoothing filter to correct the lack of monochromaticity of the incident X-ray beam [20] (Figure , step A)

### 3.3.3. Stitching

A stitching method was used to obtain a single 3D image of the whole cracked mortar sample from 5 FOV (Zeiss software).

### 3.3.4. 3D Image analysis

Avizo 8.0 software (Thermo Scientific, Hillsboro, OR, USA) was used for the visualisation, processing, and analysis of the reconstructed dataset. Avizo software renders volume and virtual 2D slices extracted from the volume (Figure 3). Each voxel or pixel in these images represents an arbitrary gray scale value (GSV) that is proportional to the average X-ray absorption coefficient (or X-ray attenuation) and depends on the atomic composition and density of the material inside the voxel [21,33].

The histogram of the 3D image represents the GSV in each voxel of the scanned volume as a function of the number of voxels for each GSV (intensity) [21].

The aim of the image analysis is to isolate the crack volume (including crack and connected pores) in order to quantify the crack morphology (volume, thickness, etc.). The complete procedure is detailed in Results & Discussion below (part 4.1)

## 4. Results & Discussion

### 4.1. 3D image-analysis procedure applied to the $\mu$ CT images

A complete procedure was specifically developed in this study to efficiently characterise and quantify crack properties. The procedure includes several steps: (i) voids segmentation (including crack and mortar pores), (ii) erosion and dilation of the obtained binary volume; (iii) multiple cluster labelling to identify and measure the volume of each individual cluster in the binary volume, (iv) extraction of the crack volume from isolated and dead-end pores in the mortar matrix, and (v) quantification of its volume, length, thickness, and similarity.

#### 4.1.1. Image segmentation: selection of voids voxels

First, the voids voxels (air) were extracted from the 3D image using gray threshold segmentation. A typical 2D slice extracted from the reconstructed volume is shown in Figure 3 and Figure 5. The X-ray absorption of each voxel is normalised to 16-bit gray scale values (from 0 to 65535) based on the material specific X-ray absorption coefficient of the voxel. The different materials that composed the cracked mortar can be clearly distinguished: (i) voids including cracks, connected pores and unconnected pores and (ii) mortar solid matrix including silicate phases, hydrated cement phases and non-hydrated cement phases[21]. These materials exhibit increasing X-ray absorption levels according to their density [21,33]. The lowest GSV was assumed to be associated with air (voids) and the highest GSV was assigned to the solid mortar matrix.

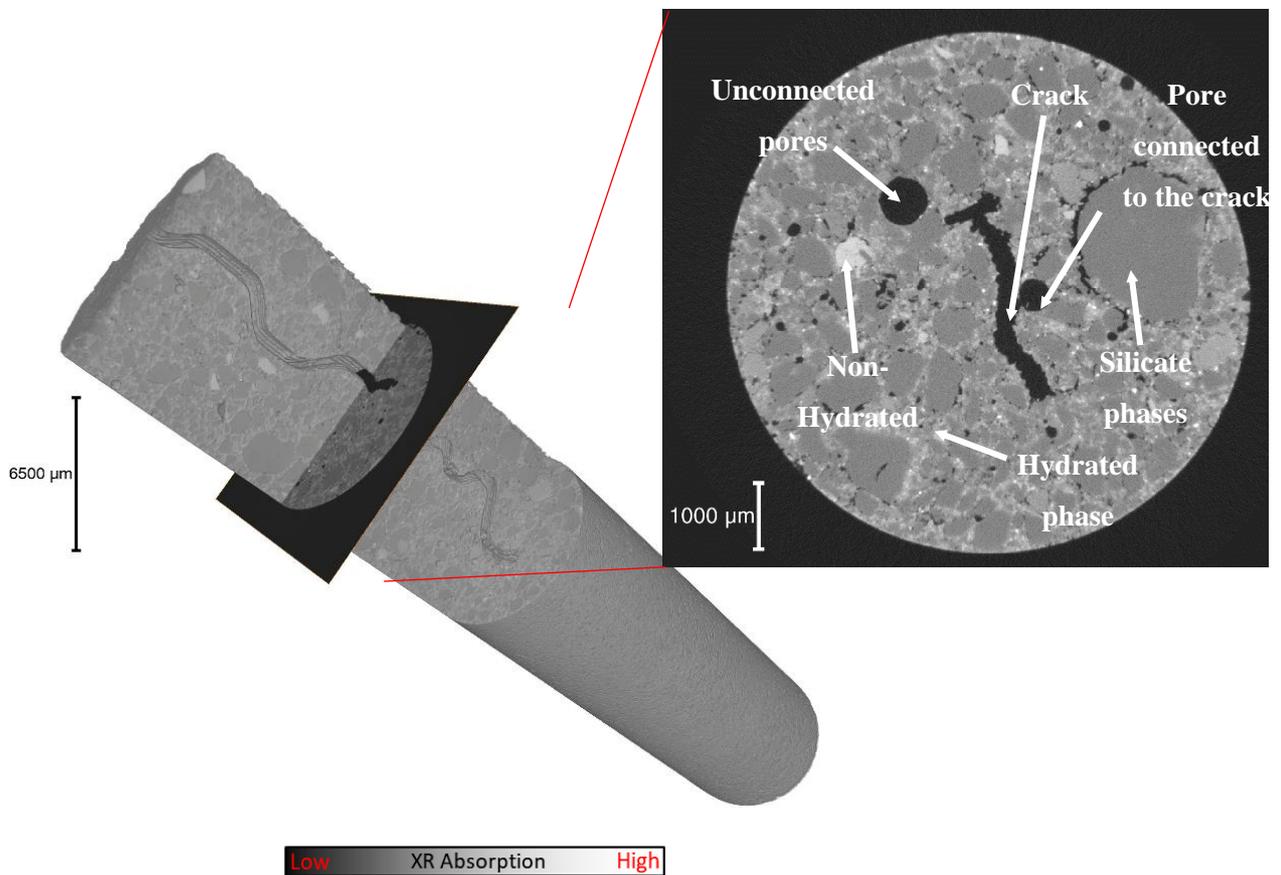


Figure 3. Reconstructed volume of cracked mortar sample (left). The mortar core is virtually cropped along the y-axis to partially reveal the internal crack. 2D virtual ortho-slice along the z-axis extracted from the reconstructed volume (right).

The image can be segmented manually but is then highly user-dependent [14]. According to Lieb-Lappen, a variety of automated thresholding algorithms exists to remove the human factor, including clustering-based methods and inverse methods incorporating multiple thresholds [14,20,24]. Two widely used methods stand out: global thresholding, which consists in scanning each voxel in the image and determining a threshold value for each element [34,35] and fitting, which consists in fitting the histogram to Gaussian curves, each related to one phase [21,36].

In this study, because of the complexity of the histogram, we chose to study the first derivative of the histogram Figure 4 [37]. The threshold value of the voids was determined when the derivative was null.

The original reconstructed image is presented in Figure 3 and Figure 5A. The different voids elements to be isolated by the segmentation procedure are indicated on the ortho-slice: the crack and the connected pores, and the unconnected pores.

The result of segmentation was a binary volume of interest (VOI) where the voxels assigned to voids are coloured blue (binary value = 1) and the other voxels are black (binary value = 0) (Figure 5B).

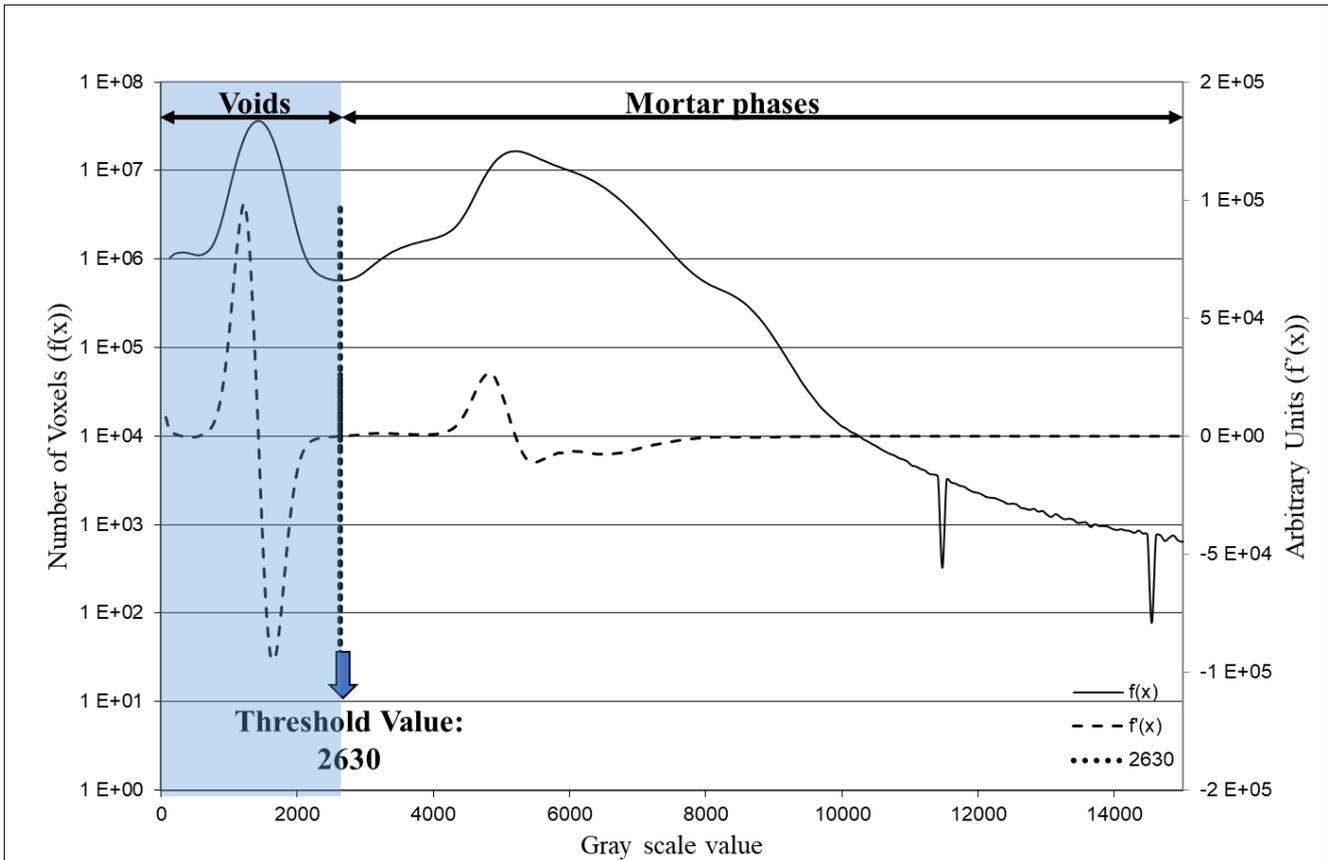


Figure 4. Histogram of reconstructed volume showing the GSV assigned to voids (GSV < threshold value) and to the main mortar phases (silicate, cement hydrated phase and cement non-hydrated phase). The dotted line shows the derived curve of the histogram and the plot ( $f'(x)=0$ ) determine the threshold value. (colored)

#### 4.1.2. Clean-up of binary volume

The next step consisted in post-segmentation image processing to clean up the binary volume obtained. Successive erosion and dilation operations [38] (of 1 voxel and considering 6 neighbouring voxels, Figure 5C and 5D) were used to fill 1-voxel size holes, remove isolated voxels and separate pores connected to the crack volume by only one voxel. For example, the pore in the dotted circle is initially connected to the crack (Figure 5B), but after 1-voxel erosion and dilation operations it appears separated from the crack (Figure 5D). **THEREFORE, WHEN A PORE IS CONNECTED TO THE CRACK BY AT LEAST TWO VOXELS, ITS PORE VOLUME IS ATTRIBUTED TO THE INTERNAL CRACK VOLUME.**

### 4.1.3. Multiple cluster labelling

Once the binary image was cleaned, operations were required to separate the internal crack volume and the isolated and dead-end pores. The cleaned binary volume was then labelled (Figure 5E). The multiple cluster labelling operation consisted in identifying, labelling and measuring the volume of each individual void object (or cluster). Here we define a void cluster as the group of void voxels that are connected to each other by a shared common edge [35]. A new 3D image was generated with a label colour map: a colour was attributed to each void cluster (Figure 5E). Finally, only the largest cluster (almost one hundred times bigger than the biggest unconnected pore) corresponding to the crack volume (crack and connected pores) was selected (Figure 5F).

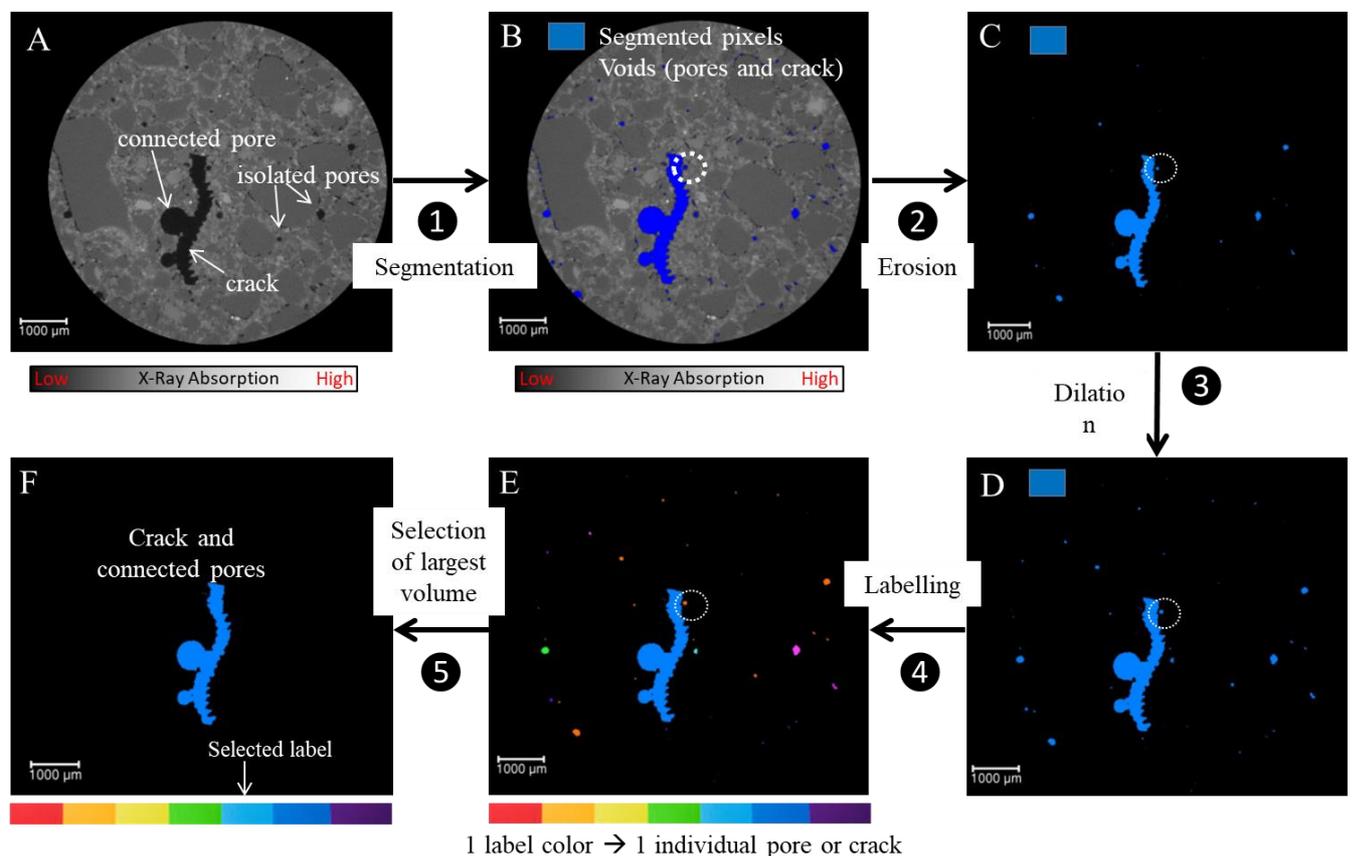


Figure 5. Image analysis procedure – [A] example of a 2D ortho-slice extracted from the original dataset [B] The same ortho-slice combined with the binary mask used for segmentation [C] Binary ortho-slice obtained after the successive erosion and [D] dilation operation. [E] Label ortho-slice obtained after cluster labelling operation. A colour label is attributed to one void cluster. [F] Label (or binary) ortho-slice obtained after selection of the only largest void cluster (i.e. crack and connected pores). (colored)

The final binary volume obtained after the complete 3D image-processing procedure is presented in supporting information (appendix\_1). The binary volume shows the 3D morphology of the internal crack, connected pores and secondary cracks in the cracked mortar sample and was used to quantify crack geometric parameters (volumes, local thickness).

#### 4.2. Crack volume quantification dependency dictated by thresholding

Thresholding is the most important step in the image analysis methodology because it determines all subsequent qualitative and quantitative measurements [14,36].

To assess the dependency of the crack volume measurement on selection of the threshold value (TV), the image processing method was applied to various TVs around the originally selected TV (e.g. 2630 for the cracked mortar sample called “crack\_1”, Table 1): four TVs ( $TV_1$ ,  $TV_2$ ,  $TV_3$ ,  $TV_4$ ) were selected around the reference TV ( $f'(TV_{ref})=0$ ) where  $f'(TV_i)$  equal -100, -50, 50 and 100, respectively (Table 1).

A deviation calculation was performed (Table 1) to evaluate the robustness of the derivation methodology in estimating variations in the obtained binary volume of acceptable inaccuracy in the TV and to assess the accuracy of the thresholding methodology.

Table 1. Crack volume measurements obtained from different threshold values and variations from the initial TV ( $TV_{ref}=7750$ ) for the cracked mortar sample « Crack\_1 ».

Threshold value (TV) in GSV	TV variation (%)	Crack volume ( $\mu\text{m}^3$ ) ( $\times 10^{10}$ )	Crack volume variation (%)
$TV_1= 2571$	-2.24	4.40	-1.32
$TV_2= 2600$	-1.14	4.43	-0.62
<b><math>TV_{ref}= 2630^*</math></b>	<b>0</b>	<b>4.46</b>	<b>0</b>
$TV_3= 2658$	+1.06	4.49	+0.57
$TV_4= 2686$	+2.13	4.51	+1.12

GSV: Gray scale value

\* $TV_{ref}$ : Reference TV selected from the first derivative of the histogram ( $f'(TV_{ref})=0$ ).

The worst case tested ( $TV_1$ , variation of 2.24% from  $TV_{ref}$ ) led to a maximum crack volume variation of 1.32%, which we considered acceptable.

Determining the threshold value from the histogram when  $f'(TV)=0$  resulted in a totally non-user-dependent value compared to a manual TV selection. Even an error of 2 % in selection of the TV (for example an error of -59 GSV in table 1) is acceptable as it does not excessively over- or under-estimate crack volume (volume variation remains <1.5%).

### 4.3. Modelling cracks to quantify the geometric parameters

#### 4.3.1. Quantification of similarity using 2D image registration

To quantify the similarity between moulds, and between moulds and cracks, 2D image registration was performed of two longitudinal sections (sections A and B) representative of the crack and mould shape in Figure 6. Image registration involves spatial transformation to align the source/moving image(s) ( $I_{mov}$ ) and the target/reference image(s) ( $I_{ref}$ ) through successive geometric affine transformations (rotation and translation). The reference image is stationary, while the other datasets are transformed to match the reference image.

The Kappa statistics metric ( $\kappa$ ) was used to quantify the similarity between images.

This metric was adapted for the registration of binarized images and was validated in previous studies [39]. By considering two binary images  $I_{ref}$  for the reference image and  $I_{mov}$  for the moving image, the  $\kappa$  coefficient was computed as:

$$\kappa = 2 * \frac{|I_{ref}| \cap |I_{mov}|}{|I_{ref}| + |I_{mov}|}$$

where  $|I_{ref}|$  is the number of foreground pixels in image  $I_{ref}$  and  $|I_{mov}|$  is the number of foreground pixels in image  $I_{mov}$ .  $\kappa$  computes the extent of the area shared by the two images.

Only foreground pixels were considered in the computation. The metric values ranged from 0.0 (no foreground alignment) to 1.0 (perfect foreground alignment). This approach enables estimation of the reproducibility of the 3D printing and identifies the differences between the final cracks and original moulds.

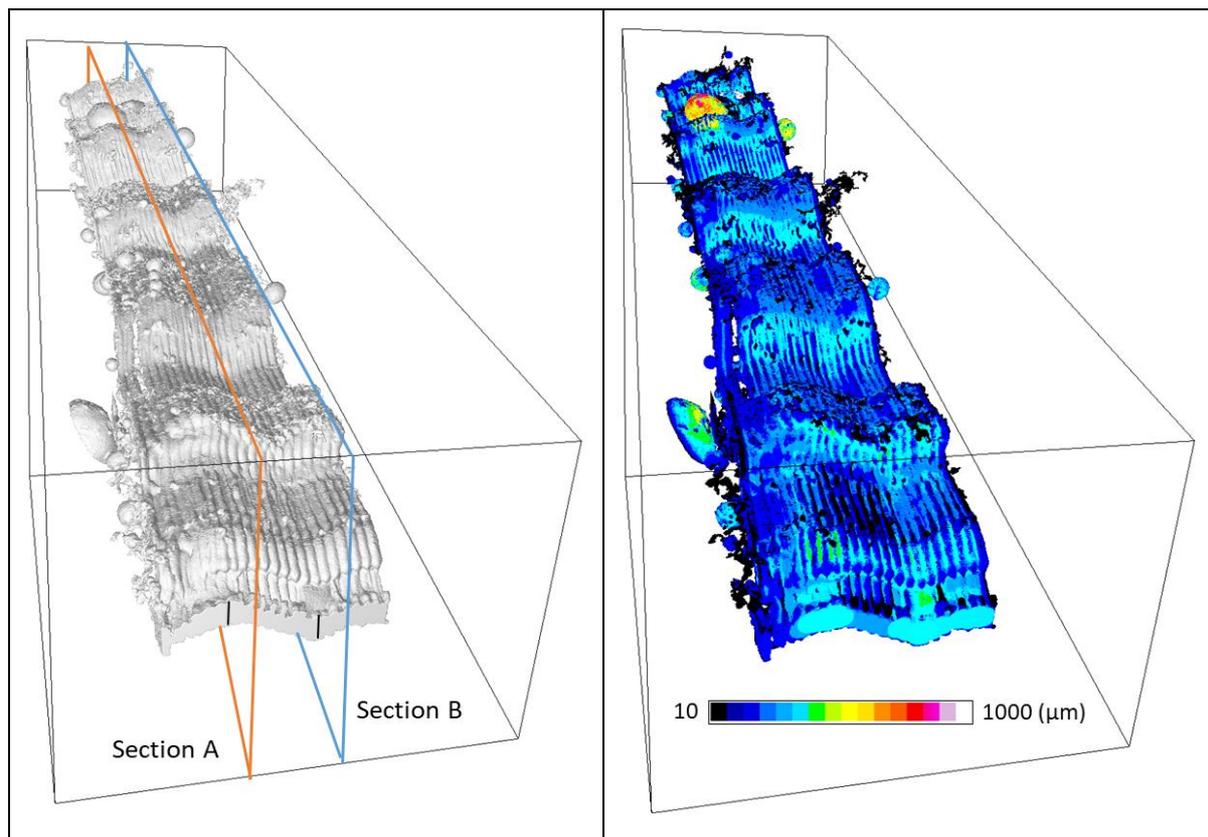


Figure 6: Cross longitudinal sections used for 2D image registration (left) and 3D map of local crack thickness (right) illustrated using Crack\_4. (colored)

#### 4.3.2. Local thickness along the cracks

Aperture map computation was used [40] to estimate the local crack thickness distribution. The map is obtained with iMorph software [41] (iMorph\_v2.0.0, Aix Marseille University, Marseille, France) and is computed from the distance map transformation that, for every crack voxel, corresponds to the minimum distance to the edge of the crack. The aperture map has already been used to evaluate the 3D morphology of porous materials in several fields [40] and for every voxel of the crack, gives the diameter of the maximum sphere totally enclosed in the crack and that contains the voxel concerned. For each diameter class of the maximum number of spheres included, the aperture map distribution gives the number of voxels (volume) belonging to these spheres. The mean distribution value thus provides an estimation of the most representative thickness of the crack in terms of volume, while a distribution based on the maximum number of spheres would provide estimations of thickness that are more sensitive to small features in cracks, for example, due to noise, surface irregularities, or small secondary cracks.

#### 4.4. Description of the internal crack generated in the mortar samples

##### 4.4.1. Comparison with the 3D-printed solid crack moulds

Four replicates of each cracked mortar sample were generated and characterised to evaluate the feasibility and the reproducibility of the proposed methodology. The obtained binary volumes of the internal crack and connected pores in the mortar are shown in Figure 7B. (Crack\_1 to Crack\_4), the four replicates of the internal crack were also compared to the binary volumes obtained for the three replicates of 3D-printed solid crack moulds (Figure 7A).

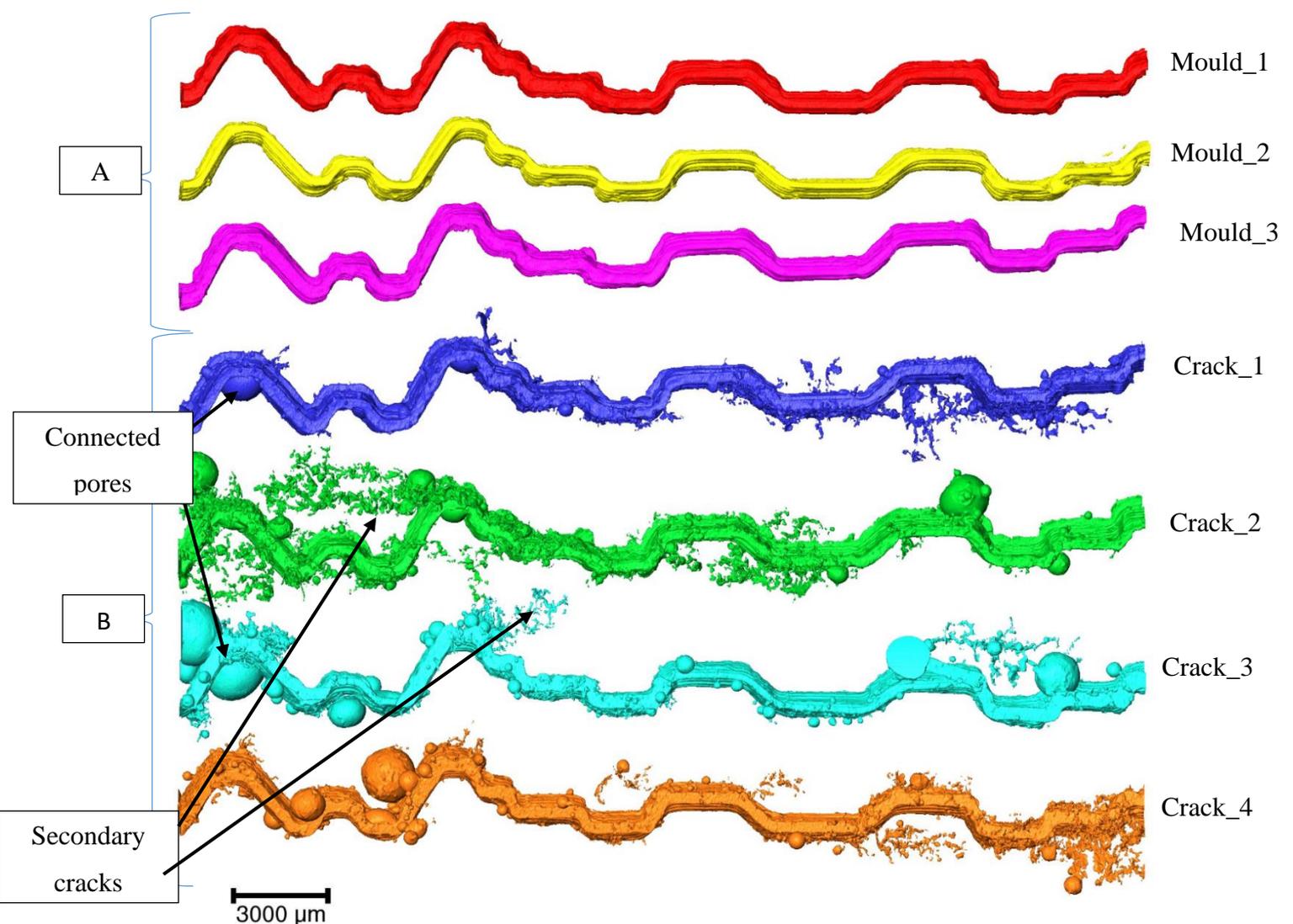


Figure 7. Comparison of [A] Binary volumes of 3D printed crack moulds and [B] Binary volumes of an isolated crack in the mortar samples. (colored)

The visual comparison of the four internal crack replicates confirmed that the crack geometry is very similar. The irregular and specific shape (e.g. the double wave or the staircase) of the 3D-printed solid crack mould can be clearly identified. Qualitatively, this shows that the crack geometry of the 3D-printed crack mould is nicely transmitted to the cracked mortar.

Due to the high spatial resolution of  $\mu$ CT, details of the surface roughness of the crack can be seen. This roughness is not controlled and created by the printing layers. During the printing of the 3D-printed solid mould, the deposition of the plastic and thermal shrinkage created a slight roughness on the surface of the mould. The surface roughness of the 3D-printed crack model is then transferred to the cracked mortar sample.

However, even if they are not intentional, the shapes can be used to mimic the surface roughness of real cracks [32,19,42] which is not described by the smooth walls of the crack model. [8]. The roughness is an important parameter in the deposition of aerosol particles [8,43,44,45] and will be characterised in a future study.

Nevertheless, internal cracks in mortar samples do exhibit some additional features, e.g. large spherical pores connected to the crack and ramifications which led to the appearance of secondary narrow cracking paths. These uncontrolled crack volumes produced during the cement hydration process have an impact on the total crack volume and generate regions with high particle retention potential. This result reveals that it is important to characterise the properties of the internal crack generated in mortar sample precisely in situ, before studying particle transfer.

#### 4.4.2. 2D Quantification of crack similarity

First, registration between the binary images obtained for the three replicate moulds was performed to assess the reproducibility of 3D printing.

In this case, the kappa coefficient for the two longitudinal sections A and B was closely correlated (Table 2) (mean correlation  $0.79\pm 0.03$  and  $0.80\pm 0.04$  for section A and B, respectively). Mould\_2 in particular, showed the best correlation with the other two moulds. The results indicate good similarity between moulds, consolidating the reproducibility of the 3D-printing.

Table 2: Kappa coefficients obtained from 2D image registration between the binary images of the three replicate moulds

		<b>Kappa</b>	
<b>Moulds</b>		Section A	Section B
Mould_1	Mould_2	0.82	0.83
Mould_1	Mould_3	0.77	0.76
Mould_2	Mould_3	0.78	0.81
<b>Mean</b>		$0.79 \pm 0.03$	$0.80 \pm 0.04$

The image registration between binary image of mould (mould\_2) and isolated cracks was also performed. An example of image registration is presented in Figure 8. It illustrates the registration between mould\_2 in green pixels and the isolated crack\_3 in purple pixels. The registration result is shown in white pixels after superposition of the mould on the crack pixels. Compared to the kappa coefficients in Table 2 (registration between the images of the replicate moulds), the kappa coefficients obtained for original cracks (Table 3, original cracks) decreased slightly, showing a lower correlation for the two longitudinal sections. This was due to the presence of pores and secondary cracks connected to the crack volume and by different torsion values between crack\_3 and mould\_2. Nevertheless, the overall geometry of the 3D-printed solid crack mould is clearly maintained in the internal crack. Indeed, the kappa coefficients of the original cracks remained high for section A and B,  $0.72 \pm 0.07$  and  $0.71 \pm 0.03$ , respectively. As expected, the kappa coefficients were higher for filtered cracks (obtained after morphological cleaning, and removal of secondary cracks and connected pores from the original cracks, Figure 8, bottom) but the increase was limited ( $0.78 \pm 0.02$  and  $0.77 \pm 0.02$ , respectively, for the two longitudinal sections) (Table 3, filtered cracks).

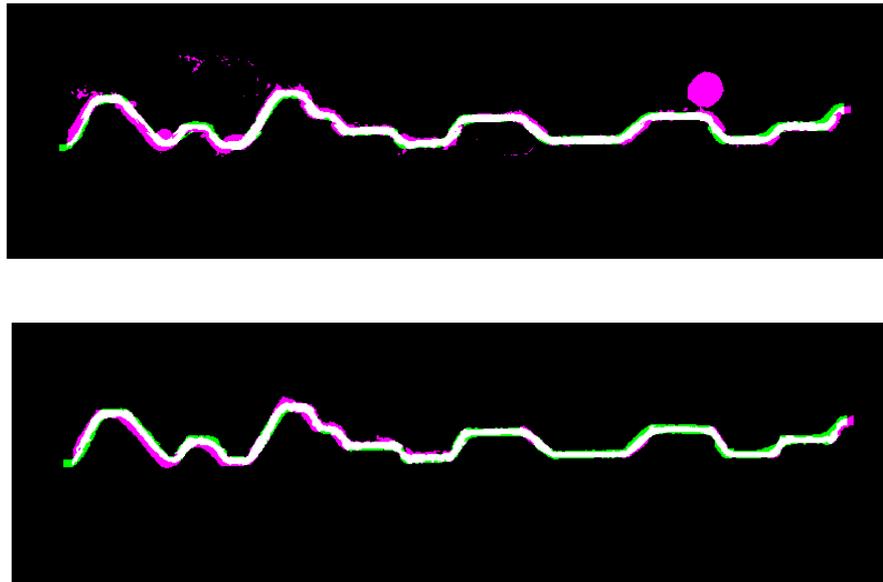


Figure 8. 2D image registration (in white) between Mould\_2 (in green) and Crack\_3 (in purple) along the longitudinal section A (top original crack ( $\kappa = 0.73$ ), bottom filtered crack ( $\kappa = 0.80$ )). (colored)

Table 3. Kappa coefficients obtained from 2D image registration between the binary images of mould\_2 and isolated cracks (Crack\_1 to Crack\_4). Crack\_1\* to Crack\_4\*, called filtered crack\*, correspond to the original crack image after morphological cleaning, removal of secondary cracks and connected pores.

		Original cracks				
		Crack_1	Crack_2	Crack_3	Crack_4	mean
<b>Mould_2</b>	a	0.77	0.73	0.62	0.74	0.72±0.07
	b	0.76	0.69	0.69	0.71	0.71±0.03
		Filtered cracks*				
		Crack_1*	Crack_2*	Crack_3*	Crack_4*	mean
<b>Mould_2</b>	a	0.80	0.80	0.76	0.79	0.78±0.02
	b	0.79	0.78	0.76	0.74	0.77±0.02

#### 4.4.3. Reproducibility of the proposed methodology based on quantification of isolated crack volumes

From the binary volumes obtained by  $\mu$ CT, the volume of the isolated cracks (4 replicates) was quantified and then compared with the volume of the crack mould (3 replicates). The results are summarized in Table 4. The mean volume and standard deviation (%) for mould and crack replicates shown in this table were calculated separately. The variations in volume were then calculated for internal cracks using the mean mould volume as reference to estimate the reproducibility of the methodology.

Table 4. Volumes obtained from  $\mu$ CT binary images of 3D-printed solid mould (3 replicates) and isolated internal cracks in mortar samples (4 replicates). Variations in volume were calculated for internal cracks using the mean mould volume as reference.

	Volume ( $\mu\text{m}^3$ ) ( $\times 10^{10}$ )	Deviation from mean mould volume (%)
<b>3D-printed solid mould</b>		
Mould_1	3.91	$\phi$
Mould_2	3.59	$\phi$
Mould_3	3.88	$\phi$
<b>Mean</b>	<b>3.79 <math>\pm</math> 0.18</b>	<b>100</b>
<b>Standard deviation (%)</b>	<b>4.70</b>	
<b>Internal Crack (mortar)</b>		
Crack_1	4.46	117.68
Crack_2	5.24	138.28
Crack_3	5.04	133.06
Crack_4	4.41	116.24
<b>Mean</b>	<b>4.79 <math>\pm</math> 0.42</b>	<b>126.39</b>
<b>Standard deviation (%)</b>	<b>8.72</b>	

The results show that the standard deviation between 3D-printed solid mould volumes is less than 5%, which is an acceptable deviation. The results also confirm that the 3D-printing step can be considered as robust and reproducible to produce crack moulds.

The crack volumes listed in Table 4 are similar; the standard deviation of the crack volume is 8.72%. The variations in crack volume, visible in Figure 7, are mostly due to the pores and secondary cracks connected to the crack. These differences were probably caused by mortar setting, which was the only random phenomenon in the methodology and differed from one sample to another (even though the samples came from the same blender). Setting can entrap air and/or voids can be created during the dissolution and precipitation of hydrated phases. Although we prepared the mortar cylinders as homogeneously as possible to avoid large pore sizes by using a small steel rod, we were not able to ensure optimal reproducibility because of the small diameter of the plastic cylinder tube.

This random phenomenon induced a deviation of the internal crack volume from the mean mould volume. The maximum deviation reached +38%, and its average value was +26%. This result provides quantitative confirmation that the crack volume of the 3D-printed crack mould is well transmitted to the cracked mortar.

#### 4.4.4. Quantification of the local thickness

The distribution values of the local thicknesses of the cracks and the mould\_2 are shown in Figure 9.

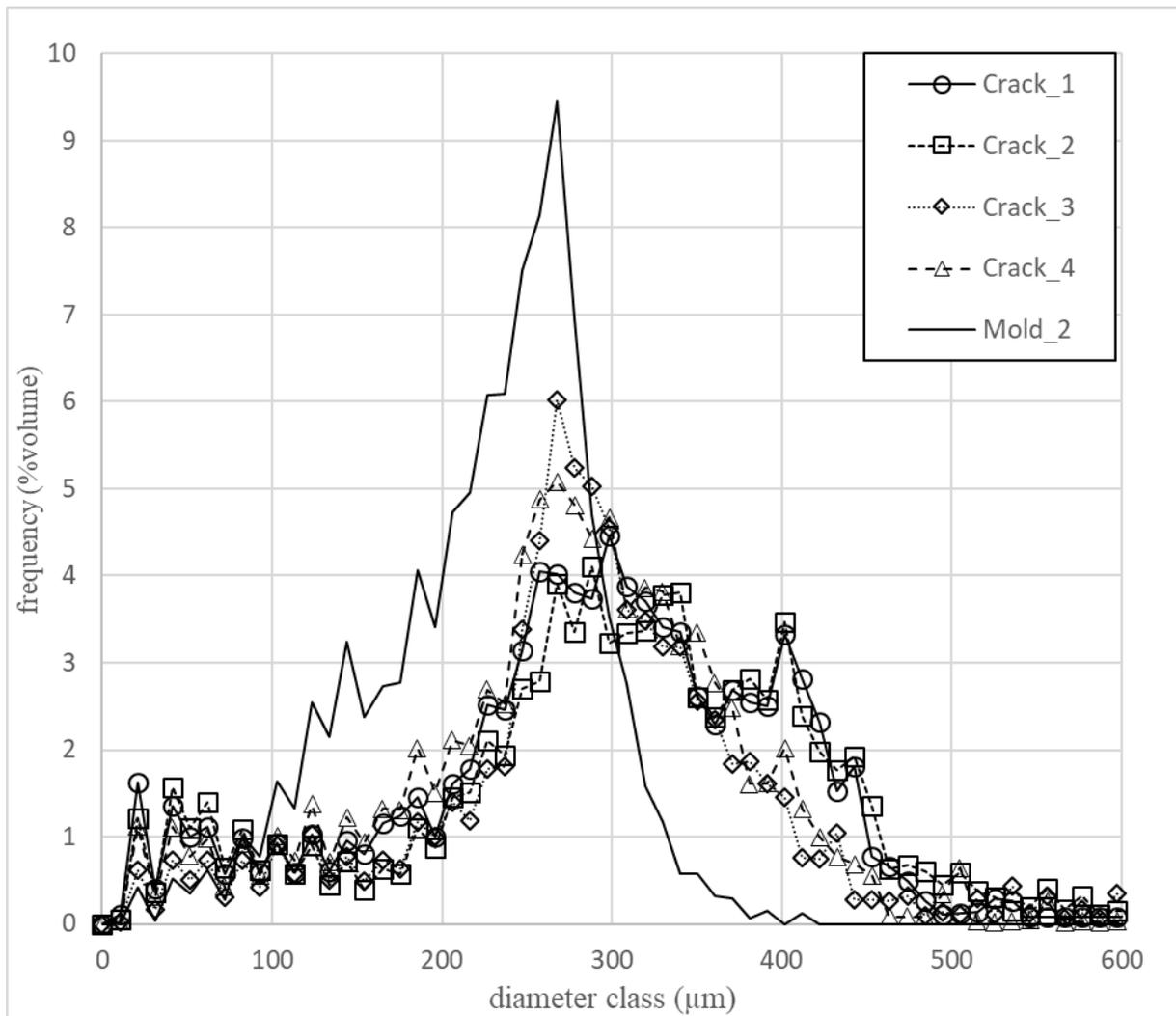


Figure 9. Distribution of the local thicknesses in mould\_2 and in the cracks isolated in the cracked mortar based on the calculated diameter of the aperture.

Figure 9 shows that the distribution of the thickness classes for mould\_2 is centred around 270  $\mu\text{m}$ , approximatively corresponding to the thickness of the crack model (300  $\mu\text{m}$ ). Thickness is slightly underestimated because of the sawtooth shape of the edge of the cracks due to the collapse of the 3D-printing layers that can be seen on the  $\mu\text{CT}$  binary volumes (see Figure 5A). Moreover, the distributions obtained for the cracks are centred around a similar value (around 270  $\mu\text{m}$ ). This confirms that the thickness of the mould is well transmitted to the internal crack in cracked mortar samples, which results in cracks that are reproducible despite the differences that may arise during mortar setting.

Nevertheless, above 400  $\mu\text{m}$ , a broad additional frequency peak in larger diameters can be observed. This is largely due to the presence of pores and secondary crack networks connected to the main shape, which tend to increase local thickness at their connections. This may also be linked to the previously quantified increase in volume.

The 2D aperture distribution of the orthogonal sections along the z axis shows the same peak values as the total 3D aperture distribution (Figure 9). This is the case for the whole set of different cracks and moulds; we can thus conclude that the thickness remains homogeneous along the longitudinal direction, as no constrictions or enlargements were observed.

We can thus conclude positively on the reproducibility of the cracked sample generation methodology whose shapes and geometric parameters are controlled and repeatable.

## 5. Conclusion

We developed an innovative methodology to produce cracked mortar samples. To the best of our knowledge, this is the first time that complex geometry-controlled and reproducible cracks have been generated in mortar samples.

$\mu$ CT combined with an adapted image analyse procedure provided a high spatial resolution quantitative 3D description of both (i) the 3D-printed solid crack moulds and (ii) the cracks generated in mortar samples.

The results obtained by  $\mu$ CT confirm the reliability and reproducibility of the methodology.

The similar values obtained with 2D image registration comparing crack moulds with each other showed high values (kappa values  $> 0.72$ ) and the mould volumes determined from  $\mu$ CT reconstructed images exhibited low standard variation ( $< 5\%$ ). Taken together, these values show that 3D printing produced very reproducible solid moulds despite the complex geometry defined in this study.

The similar values obtained by 2D image registration of crack moulds and cracks in mortar samples were also high. Moreover, the volume of cracks generated in the mortar samples (4 replicates) were very similar to the volume of the mould and were reproducible (crack volume standard deviation  $< 9\%$ ). These results quantitatively confirm that the mould geometry and characteristics were successfully and reproducibly transmitted to the crack generated in the mortar.

The reliability of the methodology was also confirmed by calculating the local thicknesses of the crack and mould, which showed a frequency maximum around  $270 \mu\text{m}$ , close to the thickness used to 3D print the moulds.

$\mu$ CT provided a precise in-situ description of the crack characteristics, and revealed that secondary cracks and cement pores (bubbles) connected to the main crack can form during

mortar curing. This uncontrolled process was quantified when crack volume was assessed and seen to have a limited effect on crack volume reproducibility. Interestingly, the surface of the moulds resulting from the deposition of the 3D-printed layers was reproduced in the cracked mortar samples: it gave some roughness to the surface of the cracks, making them more realistic.

This methodology was developed with the aim of producing a large number of identical mortar samples with well predicted and controlled crack characteristics including geometry and shape. The quantitative and in-situ characterisation of these cracks by  $\mu$ CT is essential for future particle transport experiments and modelling. Work is currently underway to assess the influence of various parameters, including particle diameter, airflow, and crack geometry, on particle migration inside the cracks.

#### *Declaration of competing interest*

The authors declare that they have no known competing financial interests or personal relationships that could influence the work reported in this paper.

#### *Acknowledgement*

This work was supported by the EXUFU CEA project, which supervises R&D actions on intermediate-level long-lived wastes (ILW-LL) features to ensure their compliance with the waste disposal specifications. This work benefited from the support of the MATRIX platform (Micro and Nanotomography x-ray imaging) which is a part of the Equipex + IMAGINE2 project funded by the Agence Nationale de la Recherche under the Programme d'Investissements d'Avenir with the reference ANR-21-ESRE-0043. MATRIX is also member of REGEF French CNRS-INSU network.

## References

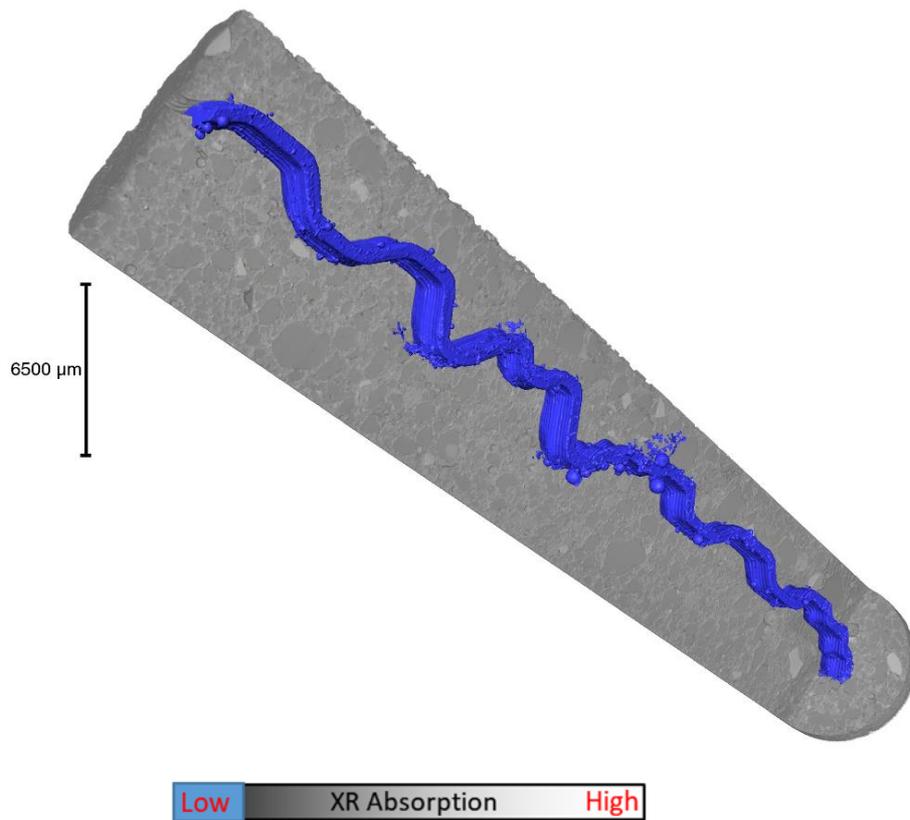
- [1] O'Donnel JH. The effects of radiation on high-technology polymers. American Chemical Society, Washington DC 1989;1.
- [2] Burton M. The effects of radiation on materials. Reinhold Publishing Corporation, New York 1958;243.
- [3] Sercombe J, Vidal R, Galle C, Adenot F. Experimental study of gas diffusion in cement paste. *Cement and Concrete Research* 2006;37(4): 579-588. <https://doi.org/10.1016/j.cemconres.2006.12.003>.cea-02360113.
- [4] Dorrian MD. Particle size distribution of radioactive aerosols measured in workplaces. *Radiation Protection Dosimetry* 1995;60:119-133. <https://doi.org/10.1093/oxfordjournals.rpd.a082709>
- [5] Galle C. Effect of drying on cement-based materials pore structure as identified by mercury intrusion porosimetry A comparative study between oven-, vacuum-, and freeze-drying. *Cem Concr Res* 2001;11.
- [6] Gelain T. An original method to assess leakage through cracked reinforced concrete walls. *Eng Struct* 2012;38:11–20. <https://doi.org/10.1016/j.engstruct.2011.12.037>.
- [7] Gelain T, Vendel J. Research works on contamination transfers through cracked concrete walls. *Nucl Eng Des* 2008;238:1159–65. <https://doi.org/10.1016/j.nucengdes.2007.08.007>.
- [8] Lai ACK, Fung JLS, Li M, Leung KY. Penetration of fine particles through rough cracks. *Atmos Environ* 2012;60:436–43. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2012.06.053>.
- [9] Lewis S. Solid particle penetration into enclosures. *J Hazard Mater* 1995;43:195–216. [https://doi.org/10.1016/0304-3894\(95\)00037-U](https://doi.org/10.1016/0304-3894(95)00037-U).
- [10] Li A, Ren T, Yang C, Lv W, Zhang F. Study on particle penetration through straight, L, Z and wedge-shaped cracks in buildings. *Build Environ* 2017;114:333–43. <https://doi.org/10.1016/j.buildenv.2016.12.024>.
- [11] Narayanam SP, Kumar A, Sen S, Pujala U, Subramanian V, Srinivas CV, et al. Experimental measurements and theoretical simulation of sodium combustion aerosol leakage through capillaries. *Prog Nucl Energy* 2020;118:103111. <https://doi.org/10.1016/j.pnucene.2019.103111>.
- [12] Powers DA. Aerosol penetration of leak pathways : an examination of the available data and models. 2009. <https://doi.org/10.2172/953727>.
- [13] Thatcher T. Deposition, resuspension, and penetration of particles within a residence. *Atmos Environ* 1995;29:1487–97. [https://doi.org/10.1016/1352-2310\(95\)00016-R](https://doi.org/10.1016/1352-2310(95)00016-R).

- [14] Lieb-Lappen RM, Golden EJ, Obbard RW. Metrics for interpreting the microstructure of sea ice using X-ray micro-computed tomography. *Cold Reg Sci Technol* 2017;138:24–35. <https://doi.org/10.1016/j.coldregions.2017.03.001>.
- [15] Morton DAV, Mitchell JP. Aerosol penetration through capillaries and leaks. *J Aerosol Sci* 1995;26:353-367.
- [16] Herranz LE, Ball J, Auvinen A, Bottomley D, Dehbi A, Housiadas C, et al. Progress in understanding key aerosol issues. *Prog Nucl Energy* 2010;52:120–7. <https://doi.org/10.1016/j.pnucene.2009.09.013>.
- [17] Parozzi F, Caracciolo EDJ, Journeau C, Piluso P. The COLIMA experiment on aerosol retention in containment leak paths under severe nuclear accidents. *Nucl Eng Des* 2013;261:346–51. <https://doi.org/10.1016/j.nucengdes.2012.12.012>.
- [18] Jourdain X, Rastiello G. Experimental study of non-linear air flow through a single concrete crack characterised geometrically by X-ray microtomography 2016:3.
- [19] Bishnoi LR, Vedula RP. Prediction of air leakage and aerosol transport through concrete cracks with a fractal based crack morphology model. *Nucl Eng Des* 2013;265:393–401. <https://doi.org/10.1016/j.nucengdes.2013.06.032>.
- [20] Brisard S. Multiscale X-ray tomography of cementitious materials\_ A review. *Cem Concr Res* 2020:35.
- [21] Bossa N, Chaurand P, Vicente J, Borschneck D, Levard C, Aguerre-Chariol O, et al. Micro- and nano-X-ray computed-tomography: A step forward in the characterization of the pore network of a leached cement paste. *Cem Concr Res* 2015;67:138–47. <https://doi.org/10.1016/j.cemconres.2014.08.007>.
- [22] Du Plessis A, Boshoff WP. A review of X-ray computed tomography of concrete and asphalt construction materials. *Constr Build Mater* 2019;199:637–51. <https://doi.org/10.1016/j.conbuildmat.2018.12.049>.
- [23] Lu H, Alymov E, Shah S, Peterson K. Measurement of air void system in lightweight concrete by X-ray computed tomography. *Constr Build Mater* 2017;152:467–83. <https://doi.org/10.1016/j.conbuildmat.2017.06.180>.
- [24] Withers PJ. X-ray computed tomography 2021:21.
- [25] Yang B, Wu A, Miao X, Liu J. 3D characterization and analysis of pore structure of packed ore particle beds based on computed tomography images. *Trans Nonferrous Met Soc China* 2014;24:833–8. [https://doi.org/10.1016/S1003-6326\(14\)63131-9](https://doi.org/10.1016/S1003-6326(14)63131-9).
- [26] Darma IS, Sugiyama T. Application of X-Ray CT to Study Diffusivity in Cracked Concrete Through the Observation of Tracer Transport 2013;11:17.

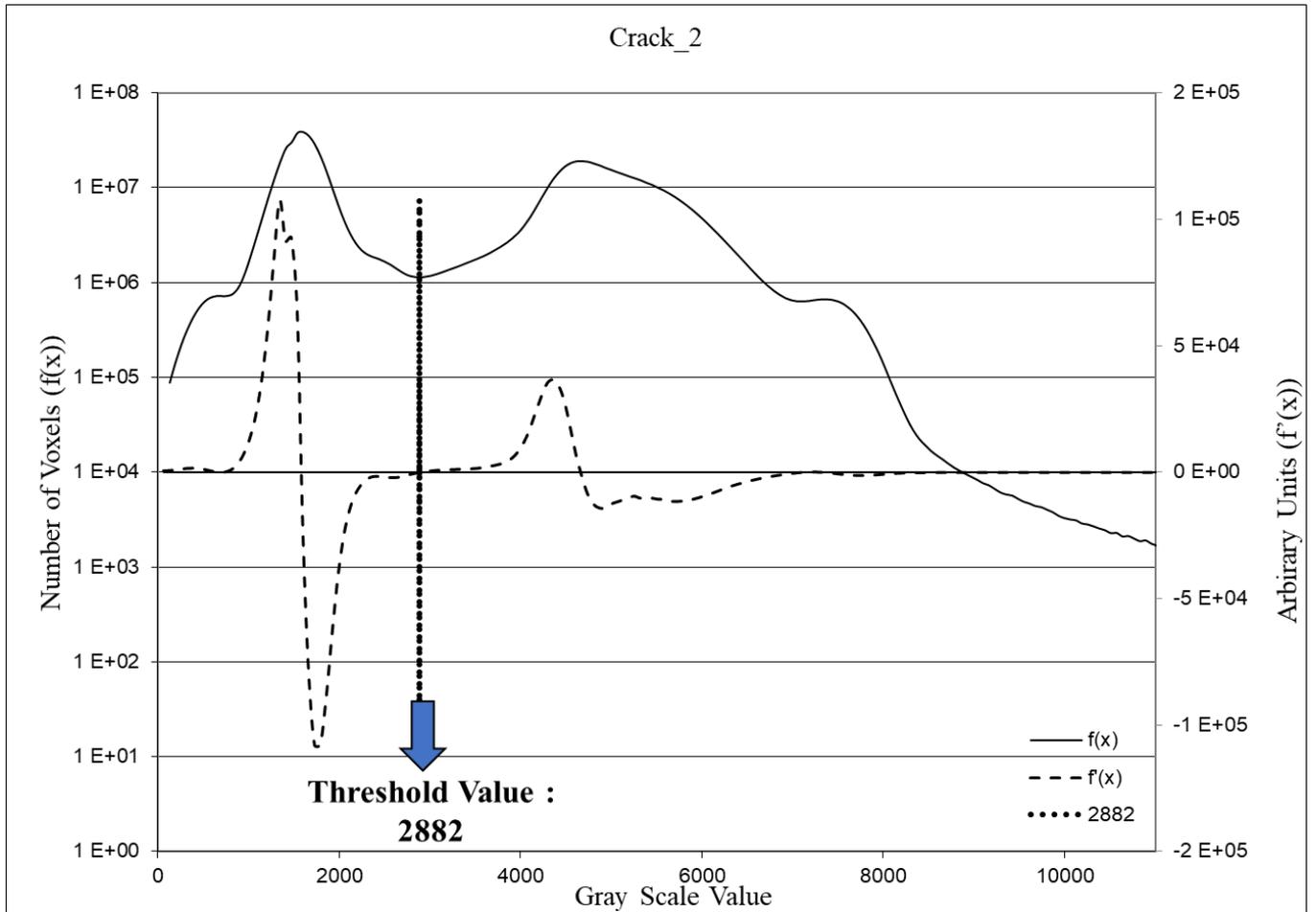
- [27] Hong S, Liu P, Zhang J, Xing F, Dong B. Visual & quantitative identification of cracking in mortar subjected to loads using X-ray computed tomography method. *Cem Concr Compos* 2019;100:15–24. <https://doi.org/10.1016/j.cemconcomp.2019.03.010>.
- [28] Shields Y, Garboczi E, Weiss J, Farnam Y. Freeze-thaw crack determination in cementitious materials using 3D X-ray computed tomography and acoustic emission. *Cem Concr Compos* 2018;89:120–9. <https://doi.org/10.1016/j.cemconcomp.2018.03.004>.
- [29] Sokhansefat G, Moradian M, Finnell M, Behravan A, Ley MT, Lucero C, et al. Using X-ray computed tomography to investigate mortar subjected to freeze-thaw cycles. *Cem Concr Compos* 2020;108:103520. <https://doi.org/10.1016/j.cemconcomp.2020.103520>.
- [30] Suzuki T, Nishimura S, Shimamoto Y, Shiotani T, Ohtsu M. Damage estimation of concrete canal due to freeze and thawed effects by acoustic emission and X-ray CT methods. *Constr Build Mater* 2020;245:118343. <https://doi.org/10.1016/j.conbuildmat.2020.118343>.
- [31] Promentilla MAB, Sugiyama T. X-Ray Microtomography of Mortars Exposed to Freezing-Thawing Action. *J Adv Concr Technol* 2010;8:97–111. <https://doi.org/10.3151/jact.8.97>.
- [32] Akhavan A, Shafaatian S-M-H, Rajabipour F. Quantifying the effects of crack width, tortuosity, and roughness on water permeability of cracked mortars. *Cem Concr Res* 2012;42:313–20. <https://doi.org/10.1016/j.cemconres.2011.10.002>.
- [33] Wan K, Chen L, Xu Q. Calibration of grayscale values of cement constituents using industrial X-ray tomography. *Sci China Technol Sci* 2015;58:485–92. <https://doi.org/10.1007/s11431-014-5751-6>.
- [34] Promentilla MAB, Sugiyama T, Hitomi T, Takeda N. Characterizing the 3D Pore Structure of Hardened Cement Paste with Synchrotron Microtomography. *J Adv Concr Technol* 2008;6:273–86. <https://doi.org/10.3151/jact.6.273>.
- [35] Zhang M, He Y, Ye G, Lange DA, Breugel K van. Computational investigation on mass diffusivity in Portland cement paste based on X-ray computed microtomography ( $\mu$ CT) image. *Constr Build Mater* 2012;27:472–81. <https://doi.org/10.1016/j.conbuildmat.2011.07.017>.
- [36] Yokhana VSK, Arhatari BD, Gureyev TE, Abbey B. Soft-tissue differentiation and bone densitometry via energy-discriminating X-ray microCT 2017:14.
- [37] Kim J-S, Chung S-Y, Stephan D, Han T-S. Issues on characterization of cement paste microstructures from I-CT and virtual experiment framework for evaluating mechanical properties. *Constr Build Mater* 2019:21.

- [38] Johnson TF, Iacoviello F, Hayden DJ, Welsh JH, Levison PR, Shearing PR, et al. Packed bed compression visualisation and flow simulation using an erosion-dilation approach. *J Chromatogr A* 2020;1611:460601. <https://doi.org/10.1016/j.chroma.2019.460601>.
- [39] A. P. Zijdenbos, B. M. Dawant, R. A. Margolin, A. C. Palmer. Morphometric Analysis of White Matter Lesions in MR Images: Method and Validation. *IEEE Transactions On Medical Imaging* 1994; 13; 4;716\_724. DOI: 10.1109/42.363096.
- [40] Brun E, Ferrero C, Vicente J. Fast Granulometry Operator for the 3D Identification of Cell Structures. *Fundam. Inform.* 2017; 155: 363–372.
- [41] Brun E, Vicente J, Topin F, Occelli R. IMorph: A 3D Morphological Tool to Fully Analyze All Kind of Cellular Materials. *CELLMET-Symposium, Dresden, Germany, 22–26 September 2008*
- [42] Liu D-L, Nazaroff WW. Particle Penetration Through Building Cracks. *Aerosol Sci Technol* 2003;37:565–73. <https://doi.org/10.1080/02786820300927>.
- [43] Lai A, Nazaroff W. Supermicron particle deposition from turbulent chamber flow onto smooth and rough vertical surfaces. *Atmos Environ* 2005;39:4893–900. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2005.04.036>.
- [44] Lai ACK. Particle deposition indoors : a review. *Indoor Air* 2002;12; 211-214.
- [45] Thatcher TL, Nazaroff WW. Effect of Small-Scale Obstructions and Surface Textures on Particle Deposition from Natural Convection Flow. *Aerosol Sci Technol* 1997;27:709–25. <https://doi.org/10.1080/02786829708965506>.

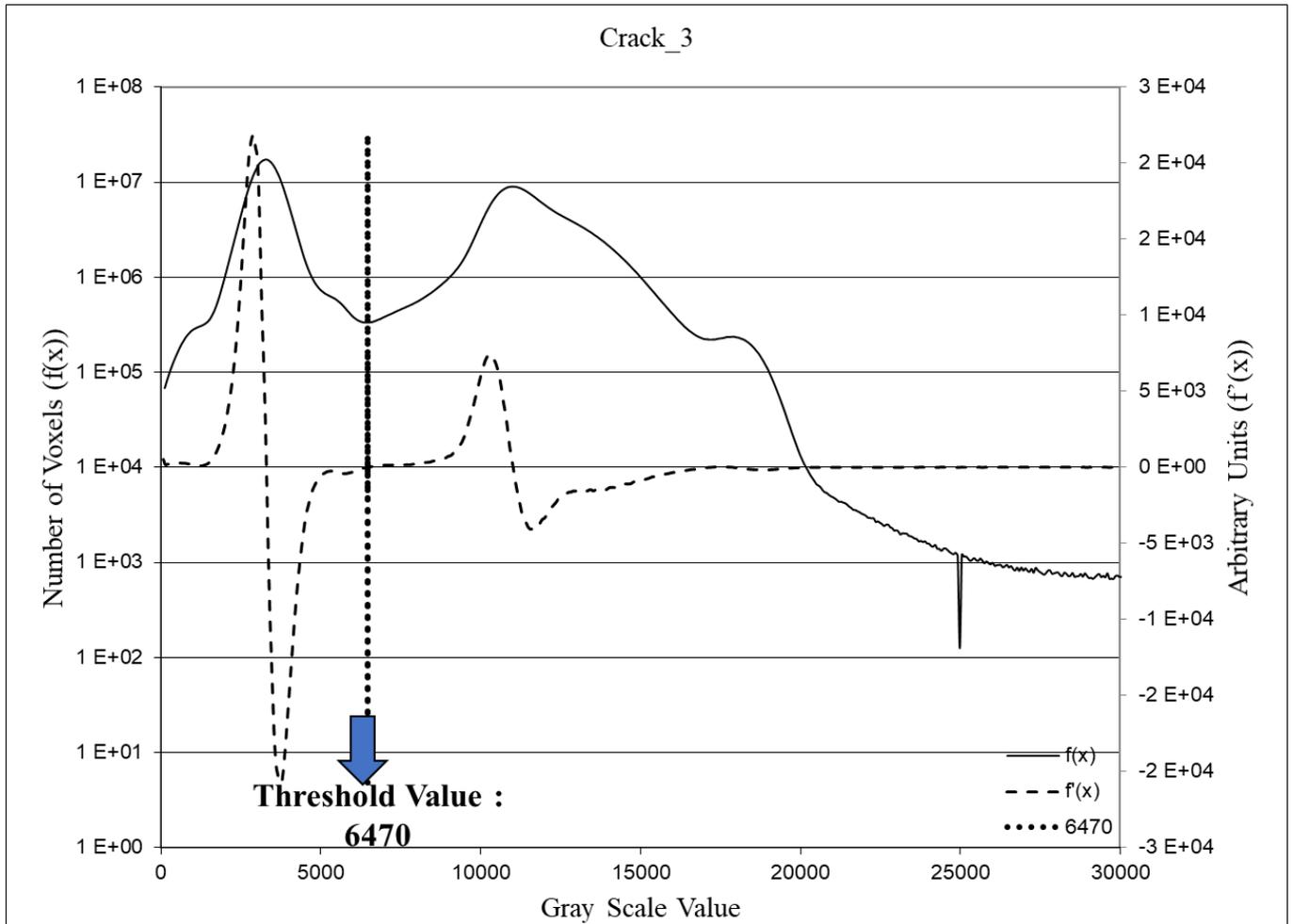
## Appendix:



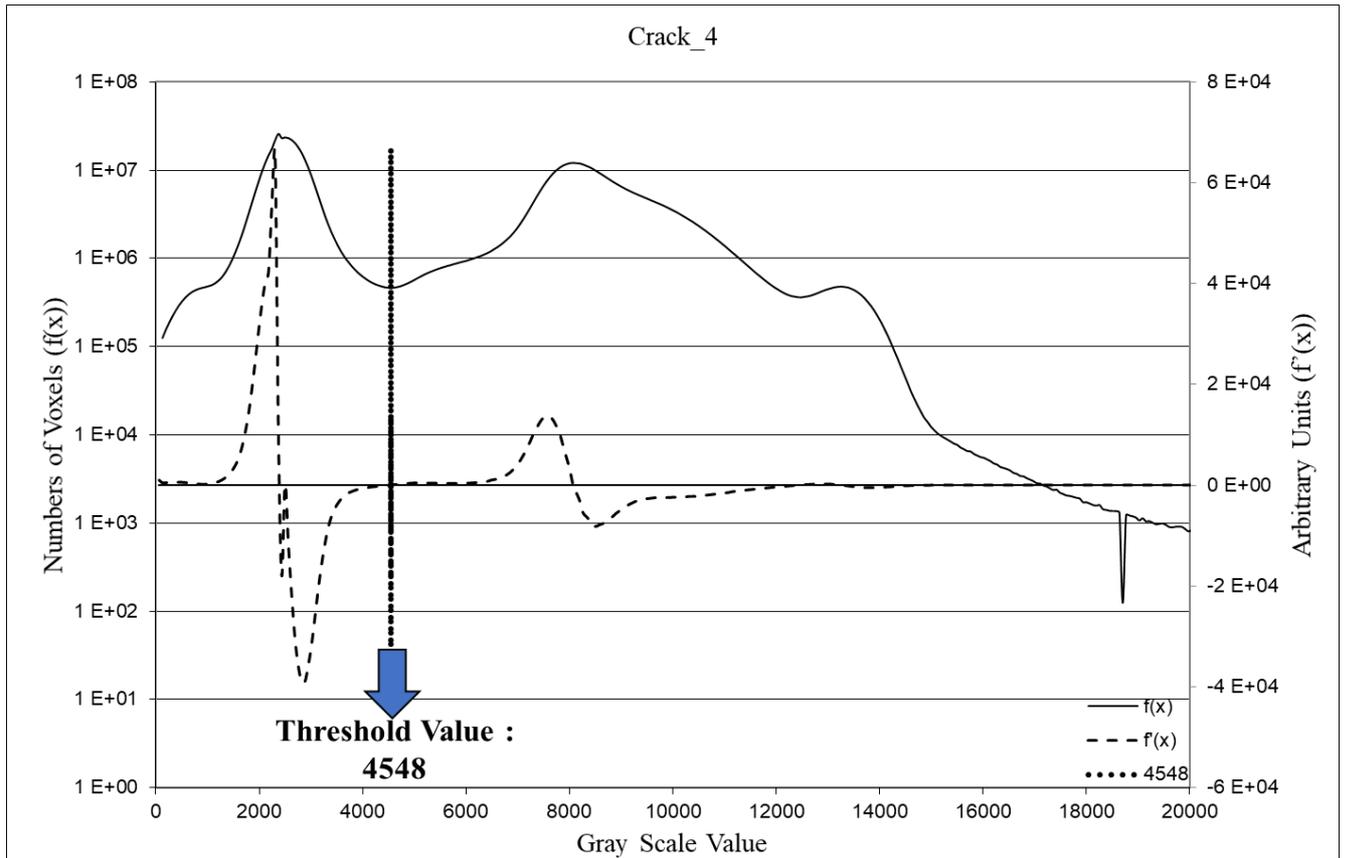
Appendix 1. Reconstructed volume of a cracked mortar sample (gray scale colour map) superimposed on the binary volume of crack and connected pores (in blue). The mortar core is virtually cropped along the y axis to give a partial internal view of the crack.



Appendix 2. Histogram of reconstructed volume of crack\_2. The dotted line shows the derived curve of the histogram and the plot ( $f'(x)=0$ ) determine the threshold value.



Appendix 3. Histogram of reconstructed volume of crack\_3. The dotted line shows the derived curve of the histogram and the plot ( $f'(x)=0$ ) determine the threshold value.



Appendix 4. Histogram of reconstructed volume of crack\_4. The dotted line shows the derived curve of the histogram and the plot ( $f'(x)=0$ ) determine the threshold value.