

# Un nouveau béton auto-cicatrisant grâce à l'incorporation de bactéries

V. Wiktor et H.M. Jonkers

Delft University of Technology, Faculty of Civil Engineering & Geosciences, Section of Materials & Environment – Microlab, Stevinweg 1, 2628 CN Delft, The Netherlands  
e-mail : v.a.c.wiktor@tudelft.nl ; h.m.jonkers@tudelft.nl

## Mots-clés :

Béton ; fissures ; auto-cicatrisation ; bactéries

**Résumé** – La formation d'un réseau continu de fissures contribue à l'augmentation de la perméabilité du béton, réduisant ainsi de manière importante sa résistance à l'attaque d'agents agressifs dissous dans l'eau. Afin d'augmenter la capacité de cicatrisation auto-gène du béton, certains agents cicatrisants spécifiques peuvent être incorporés dans la matrice. L'objectif de ce travail est d'étudier la fonctionnalité et la capacité de précipitation d'un nouveau système auto-cicatrisant. L'agent cicatrisant, composé d'un mélange de spores bactériennes et de lactate de calcium, est d'abord immobilisé à l'intérieur de billes d'argile expansée qui sont ensuite utilisées comme granulats dans le béton. Les fissures sont bouchées par le carbonate de calcium formé via l'activité bactérienne. Les résultats ont montré que ce nouvel agent cicatrisant permettait d'augmenter significativement la fonctionnalité et la capacité de cicatrisation d'un mortier. En effet, 82 % des fissures sont totalement cicatrisées en présence de l'agent cicatrisant alors que cette valeur chute à 61 % pour le témoin. De plus, les mesures de consommation en oxygène ont montré que les bactéries étaient toujours actives après 9 mois. Ce nouvel agent cicatrisant présente un potentiel particulièrement intéressant du point de vue de la durabilité des constructions en béton en environnement humide.

## Key words:

Concrete; cracks; self-healing; bacteria

**Abstract – A novel self-healing concrete thanks to bacteria incorporation.** Increased permeability due to micro crack networking may substantially reduce the durability of concrete structures due to risk of ingress of aggressive substances particularly in moist environments. In order to increase the often observed autogenous crack-healing potential of concrete, specific healing agents can be incorporated in the concrete matrix. The aim of this work was to study the crack-healing capacity and functionality of a specific and novel two-component bio-chemical self-healing agent. The self-healing agent consisting of bacterial spores and calcium lactate is embedded in porous expanded clay particles which act as reservoir particles and replace part of regular concrete aggregates. Upon crack formation bacterially mediated calcium carbonate formation results in physical closure of micro cracks. Experimental results showed that the crack healing potential and functionality were significantly improved by the incorporation of the self-healing agent in the matrix. Hence, 82% of cracks were totally healed in bacteria-based specimen, while the crack-healing decreased to 61% in control specimen. Moreover, oxygen consumption measurements confirm that bacteria are still active 9 months after the specimens casting. We therefore conclude that this novel bio-chemical self-healing agent shows potential for particularly increasing durability aspects of concrete constructions in wet environments.

Reçu le 11 juillet 2011  
accepté le 11 juillet 2011

La fissuration du béton, phénomène quasi-inévitable et couramment observé dans les infrastructures en génie civil, peut conduire à la diminution de la durée de vie des constructions. En effet, la formation d'un réseau continu de fissures contribue à l'augmentation de la perméabilité du béton, réduisant ainsi de manière importante sa résistance à l'attaque d'agents

agressifs dissous dans l'eau, tels que les chlorures, l'oxygène, ou le dioxyde de carbone [1]. La pénétration de ces agents agressifs dès lors facilitée entraîne l'augmentation de la cinétique de corrosion, provoquant la dégradation prématurée de la structure [2].

Néanmoins, toutes les micro-fissures ne conduisent pas à une perte d'intégrité de la structure. Dans certaines conditions, les

petites fissures du béton peuvent « cicatriser ». Ce phénomène, appelé « cicatrisation autogène » ou encore « auto-cicatrisation » du béton, est le résultat de mécanismes physico-chimiques, ou mécaniques, mais la précipitation de carbonate de calcium et l'hydratation des grains de ciment anhydres présents dans le béton sont les principales causes avancées pour décrire ce phénomène [3–6]. Toutefois, la cicatrisation autogène est limitée aux fissures les plus fines. Ainsi, et selon les conditions expérimentales, seules celles ayant une largeur comprise entre 0,1 et 0,3 mm peuvent s'auto-cicatriser [1,3–5,7–12].

Outre la cicatrisation autogène, les fissures peuvent également être réparées de manière autonome grâce à l'ajout dans le matériau d'un agent cicatrisant spécifique. On parle alors de « cicatrisation autonome ». Ainsi, divers agents cicatrisants, majoritairement de nature chimique, ont été développés et appliqués avec succès dans les matériaux cimentaires [1, 13, 14]. Plus récemment, la possibilité d'utiliser un agent cicatrisant d'origine biologique a été considérée [15–18]. En effet, certaines bactéries ont la capacité de précipiter le calcium qu'elles trouvent dans leur environnement sous forme de carbonate de calcium [19]. Dans le cadre de la restauration de monuments, leur application à la surface d'un support (béton, roche calcaire, pierre) a déjà fait l'objet de nombreux travaux publiés dans la littérature [19–26]. Dans ces études les bactéries induisent la précipitation du carbonate de calcium via l'hydrolyse enzymatique de l'urée. Cependant, un inconvénient majeur à ce mécanisme est que, pour chaque ion carbonate, deux ions ammonium sont simultanément produits ; ce qui peut conduire à une accumulation importante de composés azotés dans l'environnement [17]. De plus, dans ces études, les bactéries ou les dérivés enzymatiques sont appliqués de façon annexe sur le béton fissuré ou les échantillons testés. Ainsi, ces systèmes ne sont pas à proprement parler autonomes.

Récemment, Jonkers et al. [15–17] ont développé un système auto-cicatrisant constitué de spores bactériennes et d'un produit organique. Après germination des spores, les bactéries catalysent la conversion méta-

bolique du composé organique en carbonate de calcium. Les deux éléments, directement mélangés à la pâte de ciment, font ainsi partie intégrante du béton. De plus, ils ont montré que l'ajout de bactéries et de certains sels organiques de calcium, tel que le lactate de calcium comme précurseur du carbonate de calcium, n'affectait pas négativement la résistance à la compression du béton. Cependant, les auteurs ont également observé que la fonctionnalité de l'agent auto-cicatrisant directement incorporé (non protégé) dans la matrice était limitée aux échantillons de béton jeune (1 à 7 jours). Ils ont alors émis l'hypothèse qu'au delà de 7 jours, la majorité de spores bactériennes ajoutées s'est retrouvée broyée ou inactivée par la forte alcalinité de la matrice cimentaire. Cela conduit non seulement à une perte de viabilité des spores, mais aussi à une diminution de la capacité de précipitation de l'agent cicatrisant dans les échantillons plus vieux.

Dans l'étude présentée ici, une solution alternative au mélange direct de l'agent cicatrisant à la pâte de ciment a été testée. Afin d'augmenter sa durée de vie et sa fonctionnalité, l'agent cicatrisant est d'abord immobilisé à l'intérieur de billes d'argile expansée qui sont ensuite utilisées comme granulats dans le béton. De cette manière, ces billes d'argile constituent une matrice protectrice pour l'agent cicatrisant mais aussi un élément structural du béton.

L'objectif de ce travail est d'étudier la fonctionnalité et la capacité de précipitation de ce nouveau système auto-cicatrisant.

## 1 Matériel et méthodes

### 1.1 Préparation de l'agent cicatrisant

L'agent cicatrisant est constitué d'un mélange de lactate de calcium et de spores bactériennes imprégnés dans des billes d'argile expansée. Les spores proviennent d'un isolat bactérien prélevé sur le sol d'un lac alcalin (Wadi Natrun, Egypte). L'analyse de la séquence de l'ANRr 16S de cet isolat montre 98,7 % de similitude avec la souche bactérienne alcalinophile du sol *Bacillus alkalinitrilicus* [27]. Les billes d'argile expansée (Liapor R 1–4 mm, Liapor GmbH Germany) sont tout d'abord imprégnées deux

**Tableau 1. Proportions utilisées pour la préparation des éprouvettes en mortier.***Table 1. Mixing proportions of mortar specimens.*

Composition	Masse (g)
Ciment (CEM I)	384
Eau	192
Granulats fins (0,125–1 mm)	929
Billes argile expansée (1–4 mm)	292

fois sous vide avec une solution de lactate de calcium ( $80 \text{ g L}^{-1}$ ) et d'extrait de levure ( $1 \text{ g L}^{-1}$ ). Cette étape est suivie de l'imprégnation finale avec la suspension de spores bactériennes. Après chaque imprégnation, les billes d'argile expansée ont été séchées 5 jours à  $37^\circ \text{C}$ . L'agent cicatrisant ainsi obtenu contient 6 % en masse de lactate de calcium et  $1,7 \times 10^5$  spores  $\times \text{g}^{-1}$  bille.

## 1.2 Préparation des éprouvettes

Les éprouvettes de mortier, de dimension  $4 \times 4 \times 16 \text{ cm}$ , sont préparées avec du ciment Portland ordinaire (CEM I 42,5N, ENCI, Pays-Bas), du sable, et les billes d'argile expansée imprégnées (épreuve avec bactéries) ou non (épreuve témoin). Les proportions utilisées sont présentées dans le tableau 1.

Chaque éprouvette comporte une tige en acier zingué (4 mm de diamètre, 26 cm de long) le long de son axe central horizontal, 5 cm de tige dépassant de part et d'autre de l'éprouvette. Les éprouvettes sont démoulées après 24 h et emballées hermétiquement dans un film plastique (pour éviter l'évaporation de l'eau), et conservées à température ambiante 56 jours. Après la période de conservation, la tige en acier est étirée grâce à l'application d'une force de traction contrôlée par ordinateur, provoquant ainsi la formation de multiples fissures sur les éprouvettes (12 à 14 fissures par éprouvette). La largeur des fissures est comprise entre 0,05 et 1 mm.

## 1.3 Phase de cicatrisation

Deux éprouvettes de mortier (1 témoin et 1 avec bactéries), contenant chacune un nombre important de fissures, sont immergées horizontalement dans de l'eau douce

dans un sceau en plastique. Chaque semaine, les éprouvettes sont retirées de l'eau et les observations au stéréomicroscope (Leica MZ6) sont effectuées. Les images (résolution  $2592 \times 1944$ ) sont acquises avec une caméra Leica DFC 420 et sont exportées sous format TIFF. Les largeurs de fissures sont ensuite mesurées à l'aide du logiciel Image J. Nous suivons sur chaque éprouvette la cicatrisation de 5 fissures (soit une longueur totale de 53 mm).

## 1.4 Mesures de la consommation en oxygène

La conversion métabolique du lactate de calcium par les bactéries consomme de l'oxygène. Un microcapteur optique à oxygène (micro-optode) a été utilisé pour quantifier la consommation en oxygène par les éprouvettes de mortier (avec ou sans bactéries). La concentration en oxygène est mesurée dans la colonne d'eau au dessus de la surface de l'échantillon, et la consommation déterminée par le gradient de concentration en oxygène dans la couche limite de diffusion selon la 1ère loi de diffusion de Fick :

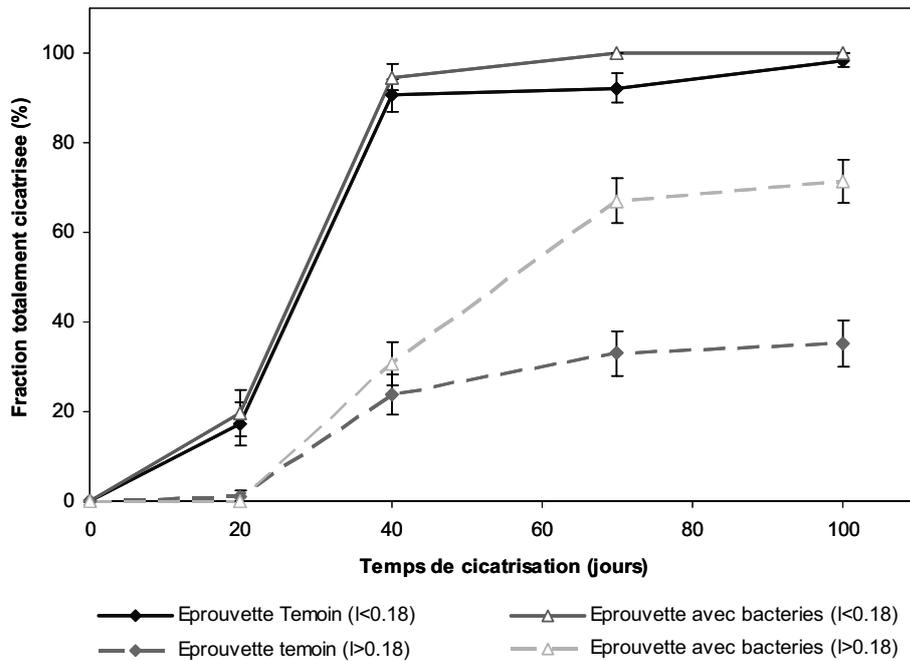
$$J = -D_{\text{O}_2} \frac{dC(z)}{dz} \quad (1)$$

avec  $D_{\text{O}_2}$  = coefficient de diffusion de  $\text{O}_2$  dans l'eau,  $C(z)$  = concentration en  $\text{O}_2$  à la profondeur  $z$ .

Nous utilisons un micro-capteur de type Oxy50M (Pyro-Science, Allemagne) permettant une mesure de 0 à  $700 \mu\text{M}$  d' $\text{O}_2$ . Les profils sont acquis de 5 mm au dessus, jusqu'à la surface de l'échantillon, avec un pas vertical de  $20 \mu\text{m}$ . Les mesures sont effectuées sur 10 éprouvettes de mortier avec ou sans bactéries (conservées 9 mois dans l'eau) et fraîchement fracturées.

## 2 Résultats

La déformation des éprouvettes par l'application d'une force de traction a entraîné la formation de plusieurs fissures (12 à 14) de longueur et largeur ( $l$ ) variables, parallèlement et perpendiculaire à l'axe de l'armature. De plus, le long d'une même fissure, la largeur peut varier de façon notable. Ainsi,



**Fig. 1. Pourcentage de fissures totalement cicatrisées en fonction du temps de cicatrisation pour les éprouvettes témoins et avec bactéries (trait plein : largeur de fissure  $l < 0,18$  mm – pointillés :  $l > 0,18$  mm).**

*Fig. 1. Percentage of completely healed cracks as a function of healing time for control and bacteria-based specimens (full line: crack width  $l < 0,18$  mm – dotted line:  $l > 0,18$  mm).*

il n’apparaît pas très judicieux de classer et comparer les fissures entre elles par leur largeur moyenne. Nous avons donc mesuré, pour chaque fissure, la largeur à intervalle régulier, tous les 0,4 mm, chaque semaine les mesures étant prises exactement au même endroit. Le taux de cicatrisation est alors déterminé selon l’équation (2) :

$$\% \text{cicatrisation} = \frac{l_i - l_t}{l_i} \times 100 \quad (2)$$

avec  $l_i$  : largeur initiale,  $l_t$  : largeur mesurée au temps  $t$ .

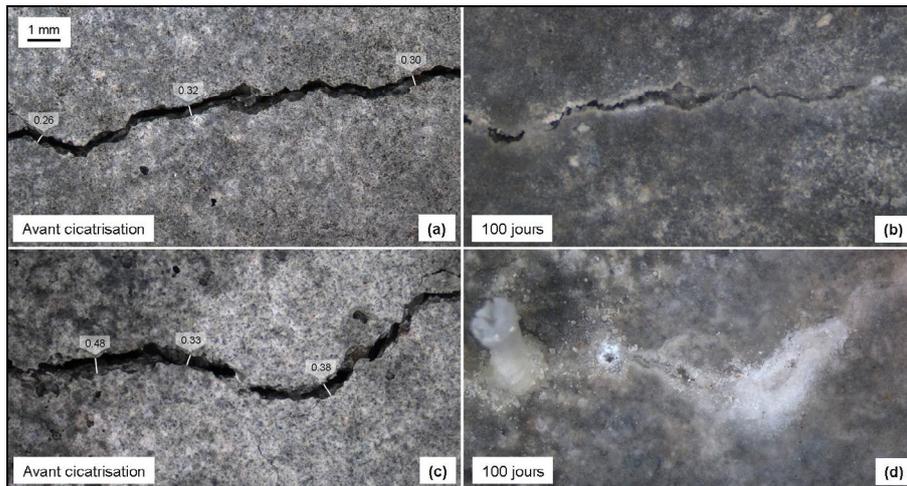
Nous avons réalisé 150 mesures au total par éprouvette ; ce qui correspond au suivi de la cicatrisation de 5 fissures distinctes sur chacune d’elles.

Wiktor et Jonkers [28] ont montré que, dans des conditions opératoires similaires, la cicatrisation autogène des éprouvettes de mortier est limitée aux fissures n’excédant pas 0,18 mm de largeur. La figure 1 représente la fraction totalement cicatrisée (mesure = 100 % de cicatrisation) en fonction du temps pour deux groupe de fissures :  $l < 0,18$  mm et  $l > 0,18$  mm.

Tout d’abord, les éprouvettes avec ou sans bactéries présentent un comportement similaire à la cicatrisation des fissures de  $l < 0,18$  mm. Il s’agit ici de la cicatrisation autogène de la matrice, et pour ce groupe de fissures aucun effet des bactéries sur la cicatrisation des fissures n’est observé.

En revanche, ces observations changent pour les fissures plus larges,  $l > 0,18$  mm. Dans un premier temps, nous ne constatons pas de différence pendant les 20 premiers jours de cicatrisation entre les éprouvettes témoin ou avec bactéries. De plus, les observations directes au stéréomicroscope montrent la formation d’un précipité blanc à la surface des fissures. Ce précipité bouche complètement les fissures les plus fines (largeur  $l < 0,07$  mm) [28].

Cependant, après 40 jours d’immersion dans l’eau, la cicatrisation des fissures diffère très nettement entre les deux types d’éprouvettes (Figs. 1 et 2). En effet, l’éprouvette témoin ne présente qu’une faible quantité de précipité nouvellement formé. Cette dernière demeure ensuite constante jusqu’à 100 jours, et certaines fissures restent



**Fig. 2. Observation au stéréomicroscope de la cicatrisation des fissures : (a) éprouvette témoin avant cicatrisation et (b) après 100 jours de cicatrisation, (c) éprouvette avec bactéries avant cicatrisation et (d) après 100 jours de cicatrisation.**

*Fig. 2. Stereomicroscope images of crack-healing process in control mortar specimen (a) before and (b) after 100 days healing, in bio-chemical agent-based specimen (c) before and (d) after 100 days healing.*

largement ouvertes. En revanche, pour l'éprouvette avec bactéries, une précipitation continue et massive est constatée après 40 et 70 jours d'immersion. Au-delà, la formation du précipité semble se stabiliser (Figs. 1 et 2).

Nous constatons un effet notable de l'activité des bactéries sur la capacité de cicatrisation des éprouvettes. Ainsi, 70 % des fissures  $l > 0,18$  mm sont totalement cicatrisées pour l'éprouvette avec bactéries, alors que ce taux est seulement de 35 % pour l'éprouvette témoin.

Nous notons également qu'une période d'une vingtaine de jours environ, après l'immersion des éprouvettes, est nécessaire aux bactéries pour être actives (production massive de précipité).

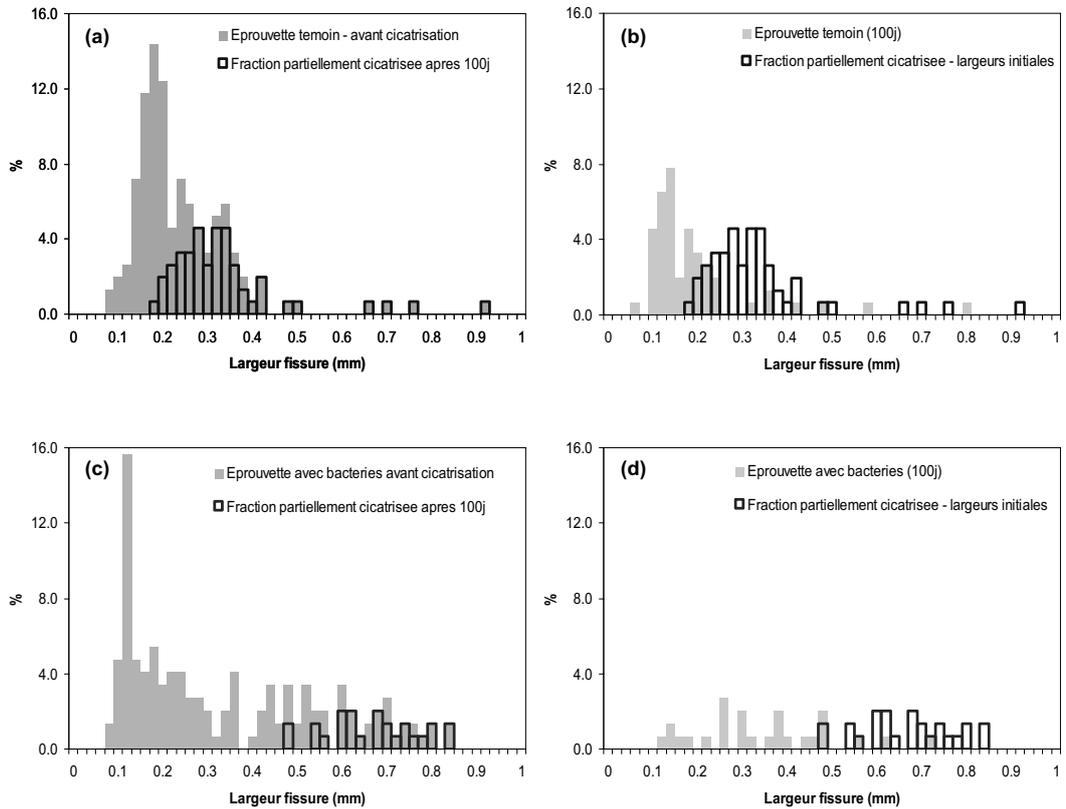
Les figures 3a et 3c montrent la distribution de largeur de fissures avant cicatrisation (barres pleines), respectivement pour l'éprouvette témoin et celle avec bactéries. Les barres non pleines représentent la fraction non cicatrisée après 100 jours et les largeurs initiales. Néanmoins, ces fissures étant partiellement cicatrisées après 100 jours, la nouvelle distribution est représentée sur les figures 3b et 3d par les barres pleines ; les barres non pleines sont les largeurs initiales correspondantes.

Nous remarquons d'après les figures 3a et 3c, que la fraction partiellement cicatri-

sable a une distribution plus étendue pour le témoin [0,18–0,92 mm] que l'éprouvette avec bactéries [0,48–0,84 mm]. De plus, l'effet bénéfique de l'activité bactérienne sur la capacité de cicatrisation des éprouvettes est observable sur ces figures (Figs. 3a et 3c). Ainsi, 82 % des fissures sont totalement cicatrisées lorsque les bactéries sont présentes contre 61 % seulement pour le témoin.

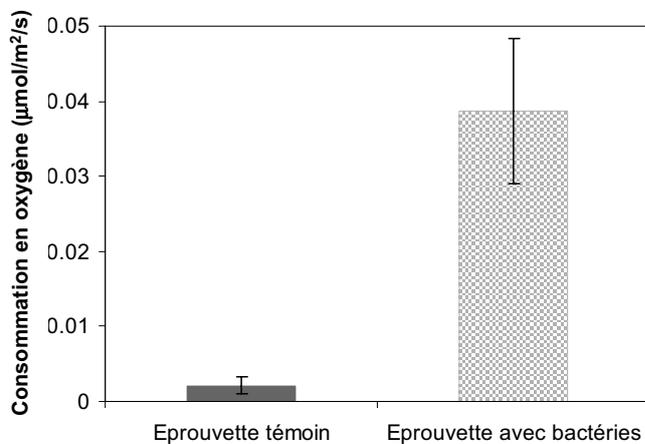
Nous observons également que, pour la fraction partiellement cicatrisable, le décalage entre la distribution de largeur de fissure avant (Fig. 3b, barres non pleines) et après 100 jours de cicatrisation (Fig. 3b, barres pleines) est environ de 0,15 mm pour l'éprouvette témoin, alors que pour l'éprouvette avec bactéries (Fig. 3d) ce décalage est de 0,35 mm environ. Ainsi, bien que partielle, la cicatrisation de ces fissures est une fois de plus, meilleure avec les bactéries que pour le témoin, reflétant une meilleure capacité de cicatrisation de l'éprouvette avec bactéries.

Enfin, la figure 4 montre que seules les éprouvettes avec bactéries consomment de l'oxygène, et ce même après neuf mois de conservation dans l'eau. Cela signifie que les bactéries sont bien actives à l'intérieur de la matrice, et donc que la capacité de cicatrisation plus importante observée pour l'éprouvette avec bactéries par rapport au témoin est bien due à la présence et à l'activité des



**Fig. 3. Distribution de largeur de fissures pour l'éprouvette témoin (a) avant et (b) après 100 jours de cicatrisation, éprouvette avec bactéries (c) avant et (d) après 100 jours de cicatrisation.**

*Fig. 3. Crack width distribution in control mortar specimen (a) before and (b) after 100 days healing, in bio-chemical agent-based specimen (c) before and (d) after 100 days healing.*



**Fig. 4. Consommation en oxygène des éprouvettes de mortier avec et sans bactéries immergées dans l'eau (mesures réalisées après 9 mois de conservation des éprouvettes dans de l'eau douce).**

*Fig. 4. Oxygen consumption of submerged control- and bacteria based mortar specimens (Measurements are performed after 9 months of specimens curing in tap water).*

bactéries. Ceci représente une réelle amélioration par rapport à l'étude précédente, où la fonctionnalité de l'agent cicatrisant était limitée à 7 jours [17].

### 3 Conclusion

Ce travail avait pour but d'étudier la fonctionnalité et la capacité de cicatrisation d'un nouvel agent cicatrisant composé d'un mélange de spores bactériennes et de lactate de calcium, tous les deux imprégnés dans des billes d'argile expansée.

Les résultats ont montré d'une part que la capacité de cicatrisation d'un mortier avec bactéries était nettement supérieure à celle d'un mortier témoin. En effet, 82 % des fissures sont totalement cicatrisées en présence de l'agent cicatrisant alors que cette valeur chute à 61 % pour le témoin. La

consommation en oxygène par les échantillons contenant l'agent cicatrisant confirme que cette importante capacité de cicatrisation est bien due à l'activité des bactéries.

D'autre part, les résultats ont aussi révélé que ce nouvel agent cicatrisant était fonctionnel après plus de 9 mois, ce qui représente une nette amélioration par rapport à l'étude précédente (7 jours).

### Remerciements

Les auteurs remercient le Centre pour Matériaux de Delft (DCMat) pour son soutien financier sous la forme du projet SHM08704, "Bio-chemical self-healing agent to prevent reinforcement corrosion in concrete".

### Références

- [1] E. Schlangen, C. Joseph, Self-healing processes in concrete, WILEY-VCH verlag GmbH & Co. KGaA, Weinheim, 2009, 141-182
- [2] F. Paradis, V. Lapointe, S. Fellah, M. Jolin, J. Marchand, Avancement des travaux sur l'étude de la corrosion des armatures de l'université de Laval, *Septième édition des Journées scientifiques du Regroupement francophone pour la recherche et la formation sur le béton (RF)2B*, Toulouse, France, 2006
- [3] C. Edvardsen, *ACI Mater. J.* **96** (1999) 448-454
- [4] S. Granger, A. Loukili, G. Pijaudier-Cabot, G. Chanvillard, *Cem. Concr. Res.* **37** (2007) 519-527
- [5] N. Hearn, *Mat. Struct.* **31** (1998) 563-567
- [6] A. Neville, Hall, Harlow, England, 1995
- [7] C.M. Aldea, W.J. Song, J.S. Popovics, S.P. Shah, *J. Mater. Civ. Eng.* **12** (2000) 92-96
- [8] B. Gerard, J. Marchand, *Cem. Concr. Res.* **30** (2000) 37-43
- [9] S. Jacobsen, J. Marchand, L. Boisvert, *Cem. Concr. Res.* **26** (1996) 869-881
- [10] J. Parks, M. Edwards, P. Vikesland, A. Dudi, *J. Mater. Civ. Eng.* **22** (2010) 515-524
- [11] H.W. Reinhardt, M. Jooss, *Cem. Concr. Res.* **33** (2003) 981-985
- [12] W.H. Zhong, W. Yao, *Constr. Build. Mater.* **22** (2008) 1137-1142
- [13] C.M. Dry, *Cem. Concr. Res.* **30** (2000) 1969-1977
- [14] C. Joseph, Experimental and numerical study of the fracture and self-healing of cementitious materials, Ph.D. thesis, Cardiff University, Cardiff, 2008
- [15] H.M. Jonkers, Self-healing concrete: a biological approach, Springer, 2007, 195-204
- [16] H.M. Jonkers, E. Schlangen, A two component bacteria-based self-healing concrete, Crc Press-Taylor & Francis Group, Boca Raton, 2009, 119-120
- [17] H.M. Jonkers, A. Thijssen, G. Muyzer, O. Copuroglu, E. Schlangen, *Ecol. Eng.* **36** (2010) 230-235
- [18] V. Wiktor, H.M. Jonkers, Bio-chemical self-healing agent to prevent reinforcement corrosion in concrete, Proceeding of the 2nd International Conference on Self-Healing Materials, Chicago, United-States, 2009
- [19] V. Wright, Étude de la polychromie de reliefs sur terre crue de la Huaca de La Luna – Trujillo, Perou, Thèse de doctorat, Université Paris I – Panthéon Sorbonne, 2008
- [20] S.S. Bang, J.K. Galinat, V. Ramakrishnan, *Enzyme Microb. Technol.* **28** (2001) 404-409
- [21] W. De Muynck, N. De Belie, W. Verstraete, *Ecol. Eng.* **36** (2010) 118-136
- [22] W. De Muynck, D. Debrouwer, N. De Belie, W. Verstraete, *Cem. Concr. Res.* **38** (2008) 1005-1014
- [23] J. Dick, W. De Windt, B. De Graef, H. Saveyn, P. Van der Meeren, N. De Belie, W. Verstraete, *Biodegradation* **17** (2006) 357-367
- [24] S.K. Ramachandran, V. Ramakrishnan, S.S. Bang, *ACI Mater. J.* **98** (2001) 3-9
- [25] C. Rodriguez-Navarro, M. Rodriguez-Gallego, K. Ben Chekroun, M.T. Gonzalez-Munoz, *Appl. Environ. Microbiol.* **69** (2003) 2182-2193
- [26] K. Van Tittelboom, N. De Belie, W. De Muynck, W. Verstraete, *Cem. Concr. Res.* **40** (2010) 157-166
- [27] D.Y. Sorokin, S. van Pelt, T.P. Tourova, *FEMS Microbiol. Lett.* **288** (2008) 235-240
- [28] V. Wiktor, H.M. Jonkers, *Cem. Concr. Compo.* **33** (2011) 763-770