

# CHAPITRE V

## RESULTATS ET DISCUSSIONS

### V.1 INTRODUCTION

Dans ce chapitre, nous présentons les résultats des essais menés dans le cadre de l'étude de la performance des bétons à matériaux locaux s'appuyant sur des grandeurs mesurables, retenues pour leur signification physique. Dans les paramètres nécessaires à la prédiction de la durabilité, les indicateurs de durabilité cités au début de cette partie.

Les résultats obtenus sont présentés et analysés selon l'organisation suivante :

- En première phase, nous décrivons tout d'abord les résultats obtenus pour la porosité ouverte de nos bétons, à partir des évolutions de la perte de masse en fonction du temps.
- La perméabilité au gaz d'un béton ordinaire est discutée en seconde phase.
- La troisième phase de ce chapitre concerne la discussion des résultats de migration des ions chlorure à travers les différents bétons cités en chapitre IV.
- Une dernière phase est consacrée aux résultats de l'isotherme d'interactions des chlorures déterminées à partir de l'immersion des bétons.

Il convient de préciser que pour la reproductibilité des essais trois échantillons de chaque béton ont été testés pour les différents essais présentés précédemment; néanmoins, les impératifs de temps, l'étude de la perméabilité au gaz a été est donc limitée, expérimentalement, à un seul matériau BO. Aussi on a été amené à faire un seul essai sur les interactions des chlorures-matrice cimentaire d'un béton BO; et enfin deux échantillons des bétons BAP et BHP ont été testés en essai de migration.

Dans le but de la validation de nos essais, nos résultats sont confrontés, lorsque cela est possible, à des résultats expérimentaux de la littérature.

### V. 2 EVALUATION DE LA POROSITE ACCESSIBLE A L'EAU

La connaissance de la structure poreuse et notamment de la porosité ouverte d'un béton est tout à fait pertinente pour traduire la résistance d'un matériau cimentaire à la diffusion des ions chlorures. Il apparaît alors intéressant dans cette étude de conserver une mesure de porosité à l'eau, simple à obtenir, qui servira de « garde fou » afin de s'assurer, par exemple, de l'ordre de grandeur du coefficient de diffusion effectif calculé. En outre, la porosité pilote partiellement d'autres indicateurs et joue un rôle essentiel si l'on souhaite caractériser la durabilité.

La porosité accessible à l'eau reste la méthode la plus préconisée (AFGC, 1997). Il ressort que l'accessibilité dépend prioritairement de la porosité du matériau.

Les tests de mesure ont été effectués sur la moyenne de 3 échantillons des trois bétons BO, BAP, BHP décrits précédemment (chapitre IV). Les différents résultats de calcul de la porosité accessible à l'eau ainsi que la masse volumique apparente sèche des échantillons sont présentés dans le Tableau V-1 :

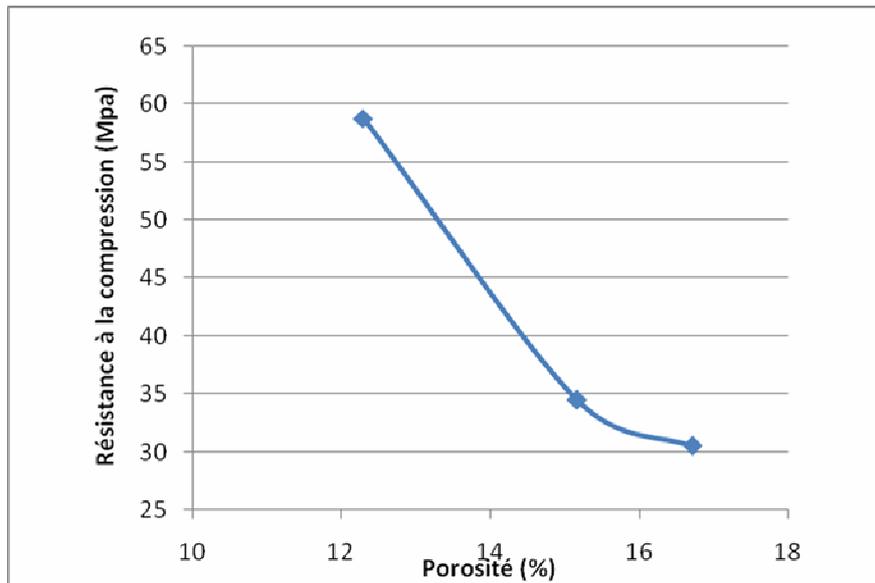
**Tableau V-1** : Porosité accessible à l'eau des trois bétons.

Echantillons	BAP	BO	BHP
Rapport E/C	0,5	0,5	0,4
Résistance à la compression à 28 j (Mpa)	30,50	34.50	58,8
Masse volumique apparente sèche (kg/m <sup>3</sup> )	2237	2383	2490
Porosité accessible à l'eau (%)	16,71	15,16	12,29

Si nous prenons en compte l'effet de la porosité sur l'évolution de la résistance du matériau alors nous observons que le BHP est de manière générale moins poreux que les bétons ordinaires. Concernant la relation entre la résistance en compression du béton et sa porosité, il ressort que la porosité accessible à l'eau apparait comme un paramètre assez peu discriminant pour les trois formulations de béton, la porosité décroît de façon marquée lorsque l'on passe d'un béton ordinaire BO à un béton à haute performance BHP.

L'ensemble des travaux présenté en littérature montre que la résistance en compression est essentiellement liée à la porosité globale du matériau.

Par ailleurs, notre initiative de confectionner au sein de notre laboratoire, un BHP fondé sur la réduction de la quantité d'eau nécessaire pour gâcher le ciment (E/C=0.4) avec l'ajout de la fumée de silice qui permet également d'augmenter la compacité des ciments (le but étant d'avoir une fraction volumique solide maximale). Dans ces conditions, la résistance à la compression a passé de 34.50 MPa pour le béton courant à 58.8 MPa. Ce qui a été constaté aussi, sur les valeurs de porosités en passant respectivement de 15.16 % à 12.29 %, ce qui traduit en quelque sorte la bonne durabilité des BHP. La corrélation entre la porosité accessible à l'eau et la résistance à la compression peut être illustrée comme représenté en figure V-1.



**Figure V-1** : Corrélation porosité accessible à l'eau et résistance à la compression.

On remarque aussi que le BAP de porosité de l'ordre de 16.71 %, se classe systématiquement en valeur extrême par rapport aux autres bétons, laissant ainsi transparaître une certaine forme de déterminisme. Cela est du peut être aux bulles d'air et des granulats ( $D_{max} \leq 15 \text{ mm}$ ) qui ont une influence notable sur sa porosité, ce qui est visible en examinant l'échantillon étudié montré en photo V-1.

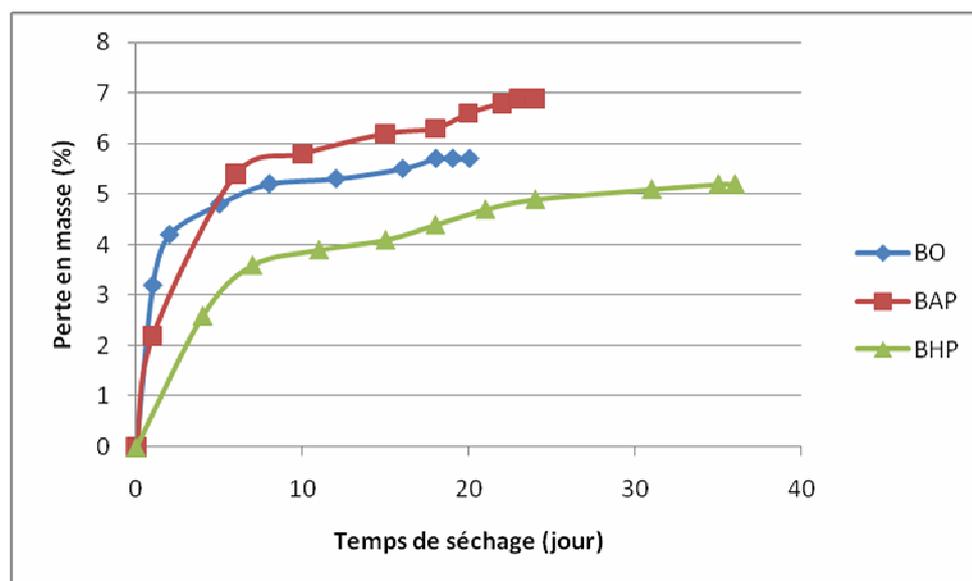


**Photo V-1** : Echantillon BAP.

La cinétique de séchage est d'autant plus rapide que la température est élevée. La température joue un rôle habituel d'accélérateur de cinétique. Les résultats des porosités des deux types de bétons BO et BAP mesurées en pratiquant un séchage à une température de 105°C sont très voisines, la porosité du BHP à la même température est nettement petite par rapport aux premiers bétons.

Les séchages tels que recommandés par l'AFGC ont permis de drainer l'eau dans les BO et BAP assez rapidement, car l'équilibre semble être atteint après une durée de vingt jours, et les BHP après une trentaine de jours. L'écart de la distribution des résultats est très minimale pour les trois échantillons de chaque type de béton.

La variation de la perte de masse en fonction du temps de séchage des bétons est représentée en figure V-2. Les points reportés sur les graphiques sont les moyennes obtenues pour 3 échantillons testés pour chaque type de béton.



**Figure V-2:** Perte en masse en fonction de la durée de séchage à 105°C.

Le BO et le BAP perdent de l'eau en plus grande quantité car leurs porosités sont plus importantes : respectivement 15.16 % et 16.71 % contre 12.29 % pour le BHP. De plus, la cinétique de perte de masse initiale est plus rapide pour le BO et le BAP car les pores de ces bétons présentent certainement des tailles plus importantes.

Dans le cas du BHP, la quantité de fumée de silice remplit les pores, cela se traduit par une diminution de porosité conduisant à une réduction de la perte de masse.

Pour les spécifications proposées pour la durabilité vis-à-vis de la corrosion des armatures induite par les chlorures, en fonction du type d'environnement et de la durée de vie exigée donnée dans le tableau II-6 (voir § II-4.3.3). Les résultats obtenus montrent que le BHP présente une porosité < 13 % ce qui correspond à une durée comprise entre 50 et 100 ans, mais la mesure seule de la porosité n'est pas suffisante pour discriminer des bétons, il faut absolument accompagner cet essai d'une mesure de la perméabilité et d'une diffusivité (voir recommandation AFGC) (Baroghel et col, 2005).

### V.3 DETERMINATION DE LA PERMEABILITE INTRINSEQUE

La perméabilité d'un béton est, pour de nombreuses applications une caractéristique essentielle d'étude de la durabilité d'un matériau. Pour la mesurer, différentes méthodes ayant recours à un fluide percolant liquide ou gazeux existent. Comme elle est en règle générale faible (inférieure à  $10^{-15}m^2$ ), les mesures directes de perméabilité à l'eau sont délicates à mener, et exigent notamment un temps de mise en œuvre important pour atteindre un régime d'écoulement permanent. Les mesures de perméabilité utilisant un gaz comme fluide de percolation sont par contre, plus rapides et plus souples dans leur mise en œuvre et permettent diverses configurations d'essais.

Cependant, la mesure de la perméabilité apparente comprise entre  $10^{-18}$  et  $10^{-15} m^2$  d'un béton, constitue l'essentiel des mesures. C'est le cas normal d'utilisation d'un perméamètre à charge constante de type CEMBUREAU tel qu'il est envisagé dans les différentes recommandations avec un écoulement visqueux auquel se superpose un effet de glissement.

A cet effet, et à l'issue du préconditionnement recommandée, les mesures de perméabilité au gaz ont été effectuées sur l'échantillon de béton ordinaire, à l'aide d'un perméamètre disposant d'une gamme de pressions absolues allant de 1 à  $6.10^5$  Pa (1 à 6 bar).

Cependant, si l'on souhaite déterminer la perméabilité intrinsèque du matériau, c'est-à-dire une perméabilité indépendante de la pression de gaz, il est nécessaire de réaliser des mesures à quatre ou cinq pressions différentes comme le préconise l'AFGC (Baroghel et col., 2000).

Ainsi, cinq valeurs de pression d'injection ont été réalisées sur l'échantillon, en procédant par ordre décroissant pendant deux heures d'essai. A l'aide d'un débitmètre, le débit massique est enregistré automatiquement par une acquisition informatisé en (mV). La conversion en débit volumiques est donnée par la formule suivante :

$$Q = [(4,023 \times V) - 320,713] \times \left( \frac{0,000001}{60} \right) \quad (V- 1)$$

Les résultats sont récapitulés dans le tableau (V-2) suivant :

**Tableau V-2** : Conversion des débits massiques en débits volumiques.

Voltage (mV)	débit (ml/min)	débit (m <sup>3</sup> /s)
79,942	31,2156666	5,2026E-07
78,554	25,1052742	4,1842E-07
76,97	18,132031	3,022E-07
75,832	13,1222136	2,187E-07

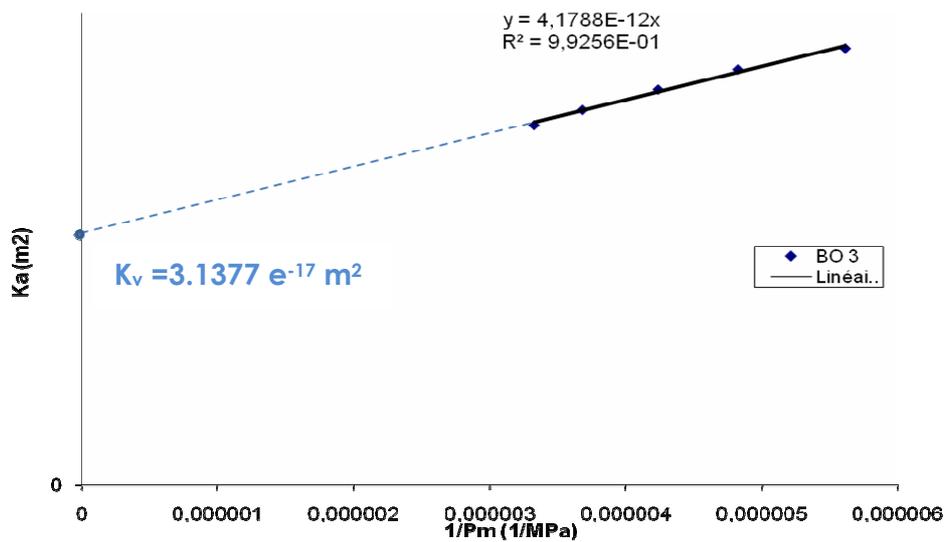
74,792	8,5438216	1,424E-07
--------	-----------	-----------

Après conversion, on peut déterminer les perméabilités apparentes correspondantes, dont elles sont présentées dans le tableau (V-3).

**Tableau V-3** : Récapitulatif des résultats des perméabilités apparentes en fonction de l'inverse pression moyenne et la perméabilité intrinsèque.

	P.rel (mbar)	Q (m <sup>3</sup> /s)	k <sub>a</sub> (m <sup>2</sup> )	1/P <sub>m</sub>	k <sub>int</sub> (m <sup>2</sup> )	Coeff	β (Pa)
P 1	3951	5,2026E-07	4,4929E-17	3,3261E-06			
P 2	3373	4,1842E-07	4,6827E-17	3,6799E-06			
P3	2660	3,022E-07	4,9362E-17	4,2355E-06			
P4	2086	2,187E-07	5,1857E-17	4,8216E-06			
P5	1504	1,424E-07	5,4472E-17	5,6085E-06	3,1377E-17	0,99627313	3,1752E+16

Le calcul de la perméabilité intrinsèque s'effectue en appliquant la méthode de klinkenberg. Ainsi, à partir d'un tracé de la courbe  $k_a = f(1/P_m)$  on détermine la perméabilité intrinsèque, comme étant l'intersection de la droite linéaire avec l'axe des ordonnées (voir figure V-3) :



**Figure V-3** : Graphe représentant la perméabilité  $K_a = f(1/P_m)$

Le résultat des mesures est compatible avec la loi d'évolution de la perméabilité proportionnelle à l'inverse des pressions moyennes.

La majorité des perméabilités des bétons ordinaires étudiés et présentés dans la littérature s'étalent sur une plage située entre  $10^{-18}$  m<sup>2</sup> et  $10^{-17}$  m<sup>2</sup>. Ainsi, le résultat obtenu de notre béton BO3,  $K_v = 3.13 \cdot 10^{-17}$  illustre une bonne concordance.

Cette valeur demeure néanmoins conforme à celles obtenues par plusieurs auteurs qui ont utilisés le même dispositif d'essai au laboratoire GeM de l'IUT de Saint-Nazaire, notamment qui ont travaillé sur la perméabilité des bétons aux gaz à savoir : V. Picandet (2001) et Djerbi (2007) qui ont utilisé un béton ordinaire nommé BO45 de rapport E/C= 0.49 et de résistance à 28 jours 45.5 Mpa, ont trouvé respectivement une perméabilité intrinsèque de  $1.8 \cdot 10^{-17}$  m<sup>2</sup> et  $2.2 \cdot 10^{-17}$  m<sup>2</sup>, aussi plusieurs essais menés par Choinska (2006) sur un béton BO25 de rapport E/C=0.6 et de résistance mécanique à 28 jours 26 Mpa a abouti sur une plage de perméabilité se situant entre  $6 \cdot 10^{-17}$  et  $12 \cdot 10^{-17}$  m<sup>2</sup>.

Etant donné que la perméabilité du béton est contrôlée par les propriétés de sa microstructure, celle ci dépend pour l'essentiel de la connectivité de la structure poreuse, tandis que la résistance en compression est essentiellement liée à la porosité globale du matériau.

A ce point, il est important de constater que la perméabilité d'un béton ordinaire à une relation avec la résistance mécanique; Cette constatation se retrouve lorsque l'on compare les résultats des auteurs cités précédemment avec celui de notre béton. En fait, le BO3 étudié à une résistance en compression de 34.50 Mpa avec une perméabilité de  $3.13 \cdot 10^{-17}$  m<sup>2</sup> ce qui le met entre les deux bétons déjà cités (voir tableau V-4).

**Tableau V-4** : Comparaison des perméabilités intrinsèques pour un béton ordinaire

Echantillons	BO25 (Choinska, 2006)	BO3	BO45 (Picandet, 2001)
Rapport E/C	0,6	0,5	0,49
Résistance à la compression à 28 j (Mpa)	26	34,50	45,5
Perméabilité intrinsèque moyenne ( $10^{-17}$ m <sup>2</sup> )	9	3.13	2

Aussi, on voit que les bétons de faible rapport E/C offrent bien sûr une plus faible perméabilité que les bétons de rapport E/C élevé. La perméabilité est fortement influencée

par la présence de pores capillaires. Les bétons ayant un rapport E/C faible offrent une porosité plus raffinée et moins étalée, d'où une perméabilité plus faible.

Ensuite, afin de caractériser l'évolution de la perméabilité avec la résistance en compression, cette analyse montre bien qu'avec l'augmentation la perméabilité, la résistance mécanique diminue.

Par ailleurs, Abbas et col. (2000) ont démontré expérimentalement que les relations empiriques, qui ont pu être établies par d'autres chercheurs pour certains bétons entre la perméabilité et la résistance mécanique, ne peuvent pas être généralisées.

Cependant, la perméabilité du béton BO3 étudié est supposée supérieure à celle d'un béton d'ouvrage pour deux raisons. La première raison concerne le taux de saturation, qui est plus élevée dans un béton d'ouvrage. La deuxième est liée au processus expérimental du séchage qui peut entraîner un endommagement par effets thermiques Baroghel (1994) et Hearn (1999).

Néanmoins, l'échantillon de béton considéré dans cette étude à un taux de saturation presque nulle, ainsi que le même endommagement de séchage. Etant donné que nous nous intéressons plus particulièrement à la perméabilité intrinsèque, plutôt qu'à sa valeur absolue, la perméabilité de ce béton est considérée pour une valeur de référence dans l'analyse des résultats présentés par la suite.

Enfin, la perméabilité caractérise essentiellement la capacité de transfert dans la porosité capillaire (dimension supérieure à 10 nm) interconnectée d'un béton à traversé par des fluides sous un gradient de pression. Bien que la perméabilité d'un milieu poreux dépend fortement de sa porosité, d'autres paramètres du réseau poreux l'influencent également. Parmi ceux-ci, nous pouvons citer : la connectivité, la tortuosité, ainsi que la constrictivité du réseau poreux liée à la taille des pores (Choinska, 2006).

On constate par ailleurs, que l'essai du perméamètre CEMBUREAU répond bien au besoin d'un résultat rapide pour qualifier un béton et pouvoir ainsi l'utiliser pour un ouvrage donné. Seulement le béton étudié doit respecter le critère de traitement thermique avant l'essai de perméabilité.

Cependant la perméabilité ne permet pas plus que la porosité du béton d'expliquer à elle seule les performances des bétons, particulièrement en environnement agressif tel un milieu chloridrique. Comme le montre le paragraphe suivant, une étude plus poussée menée sur la détermination d'un coefficient de diffusion fournit des informations fiables sur la durabilité et performance du matériau béton.

## V. 5 ETUDE DE LA DIFFUSION DES IONS CHLORURES DANS LES BETONS

Tout comme la perméabilité, la diffusion est liée à la structure poreuse des bétons. Pour mieux comprendre le phénomène de diffusion, nous proposons dans ce paragraphe une prédiction du coefficient de diffusion effectif qui régit le déplacement physique des ions chlorure dans la solution interstitielle. Et d'étudier Les interactions physico-chimiques qui se créent entre les ions chlorures et la matrice cimentaire.

### V.5.1 Evaluation du coefficient de diffusion des ions chlorure

L'essai de migration en milieu saturé sous champ électrique permet d'évaluer la diffusivité  $D_{mig}$  des chlorures dans le béton. Le coefficient de diffusion est calculé dans la zone où la concentration en chlorures du compartiment aval augmente linéairement en fonction du temps (régime permanent). Ceci permet d'éliminer en outre l'influence sur le coefficient de diffusion des interactions des chlorures avec la matrice ciment.

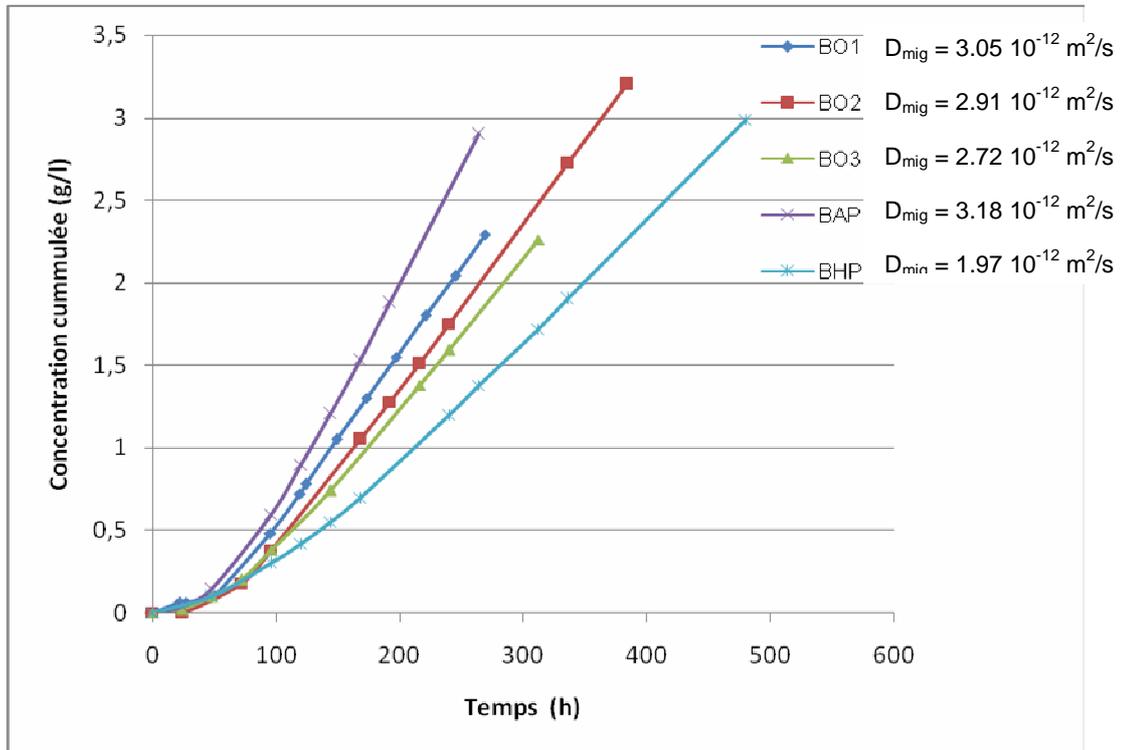
L'évolution de la concentration de la quantité de chlorures arrivant au compartiment anodique en fonction du temps est déterminée par dosage titrimétrique, la pente de la droite de cette variation avec le temps permet de déterminer le coefficient de diffusion effectif  $D_{mig}$  correspondant à chaque type de béton testé, le temps de retard  $T_{mig}$  correspond à l'abscisse de l'asymptote linéaire tracée sur la phase de régime permanent.

La figure V- 4 illustre les résultats obtenus pour les trois bétons à matériaux locaux testés. Chaque courbe présente deux régimes :

Le premier est un régime non stationnaire qui est défini par une variation non linéaire, la durée de ce dernier dépend de la nature du béton.

Le second est le régime stationnaire pour lequel le flux des ions chlorures devient constant.

A noter que le régime permanent a été considéré comme atteint pour un BO et BAP (respectivement pour un BHP) après environ 50 heures (respectivement 100 heures) d'essai, temps à partir de lequel les variations sur les points de calcul du flux sont inférieures à 5 %.



**Figure V- 4** : Evolution de la concentration des ions chlorures en fonction du temps dans le compartiment aval pour trois types de béton (BO,BAP,BHP).

Les valeurs des coefficients de diffusion mesurés, ainsi que les temps de retard sont reportées dans le tableau V-5.

**Tableau V – 5** : Comparaison entre les paramètres physiques des échantillons de bétons.

Echantillons bétons	BO1	BO2	BO3	BAP	BHP
$D_{mig} \cdot 10^{-12} (m^2/s)$	3.05	2.91	2.72	3.18	1.97
	$D_{mig} \text{ moyen} = 2.89^{[1]}$				
$T_{mig} (h)$	57.75	55.35	54.19	51.40	69.2
	$T_{mig} \text{ moyen} = 55.76$				

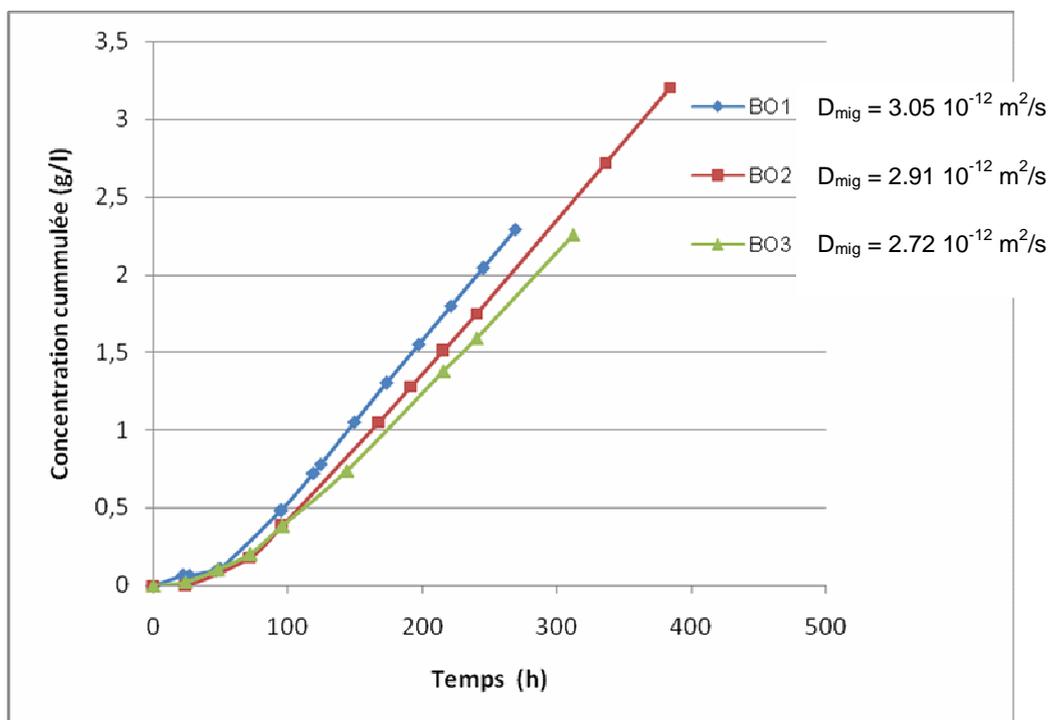
[1] dans ce qui va suivre quand on parle d'un résultat de béton ordinaire on parle de sa valeur moyenne.

### V.5.1.1 Validation du banc d'essai

Afin de valider notre banc d'essai conçu au sein de notre laboratoire, la mise au point et le protocole de mesure s'est appuyée sur une campagne d'essai de diffusion sur trois échantillons issu d'une même formulation de béton courant (BO1,BO2,BO3).

En fait, pour la reproductibilité des essais les bétons BO1 et BO2 ont subi des tests de diffusion avec notre cellule de migration. Dans le cadre de l'étude comparative, la mesure du coefficient de diffusion du béton BO3 au laboratoire GeM de l'IUT de Saint-Nazaire.

Pour ces expériences, les courbes de l'évolution de concentration des chlorures en fonction du temps (voir figure V-5), montrent une bonne reproductibilité des résultats obtenues entre les deux bancs d'essais sur les éprouvettes testées.



**Figure V- 5** : Evolution de la concentration des ions chlorures en fonction du temps dans le compartiment aval pour trois échantillons de béton ordinaire.

Les coefficients de diffusion calculés sur les deux bétons ordinaires BO1 et BO2 sont assez proches et suivent la même tendance que la valeur expérimentale déterminée pour le BO3.

La dispersion des résultats (inférieure à 7 %) n'est pas très importante entre les deux échantillons (BO1, BO2) testés au sein de notre laboratoire et l'échantillon BO3 testé au

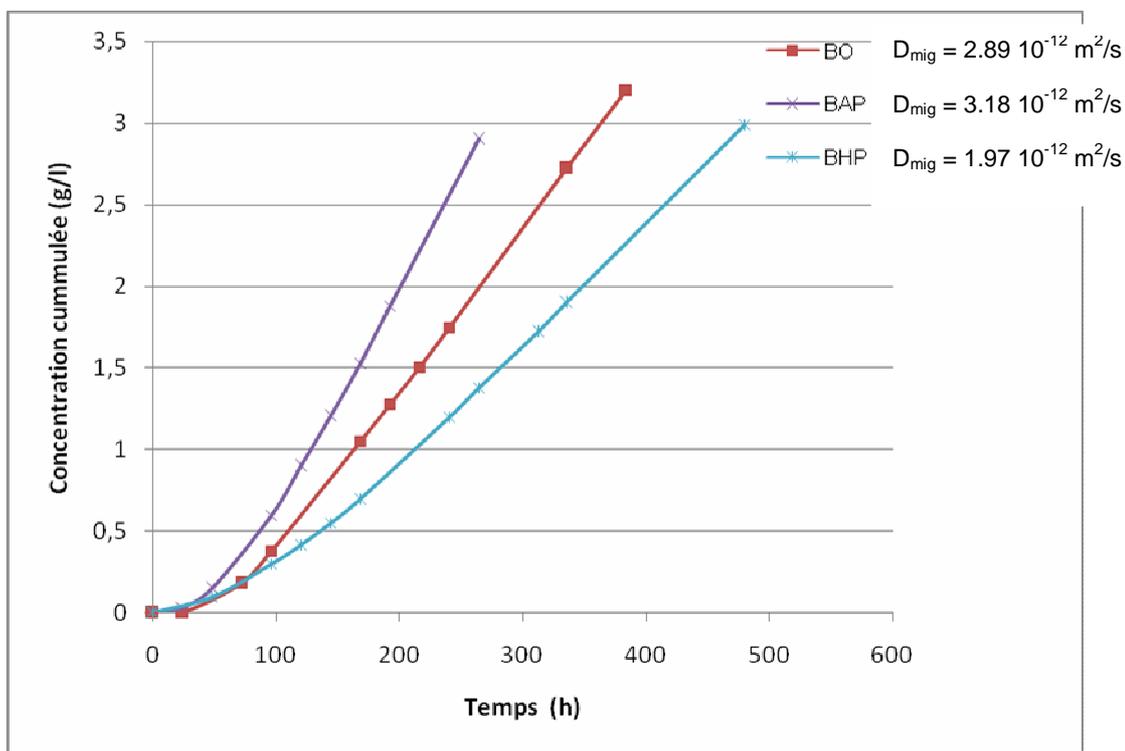
laboratoire GeM de l'IUT de Saint-Nazaire, cette concordance tend à valider notre banc d'essai.

D'autre part, la comparaison des résultats d'essai avec celles obtenus par d'autres équipes de recherche reste très difficile [1], Néanmoins, les valeurs des coefficients de diffusion calculées sur les bétons semblent dans un bon ordre de grandeur selon le projet de norme établi par Baroghel et col. (2004) ( $1.35 \cdot 10^{-12} \text{ m}^2/\text{s}$ ), et selon les résultats publiés par Djerbi et col. (2007) ( $1.92 \cdot 10^{-12} \text{ m}^2/\text{s}$ ).

### V.5.1.2 Influence de la nature du béton sur la diffusion

Dans le cadre de l'étude comparative de la durabilité des bétons, deux autres essais de diffusion ont portés sur un béton auto-plaçant (BAP) et un béton à haute performance (BHP).

La figure V-6 présente l'évolution de la concentration cumulée des ions chlorures en fonction du temps pour les trois types de béton.



**Figure V- 6** : Evolution de la concentration des ions chlorures en fonction du temps dans le compartiment aval pour trois types de bétons.

On constate que le flux des ions chlorures est plus important du BAP et BO que pour le BHP. A noter qu'on a obtenu respectivement pour le BAP et le BHP, des variations de l'ordre de 9 % et 30 % par rapport aux essais réalisés sur un béton ordinaire. Pour les temps de retards, ces écarts sont limités à une variation relative de 10 %.

[1] Ceci est du aux différences dans les matériaux utilisés (ciment, agrégats,..) les proportions de mélange, le mode de cure, la préparation des éprouvettes, les concentrations des solutions chimiques et les méthodes d'essais.

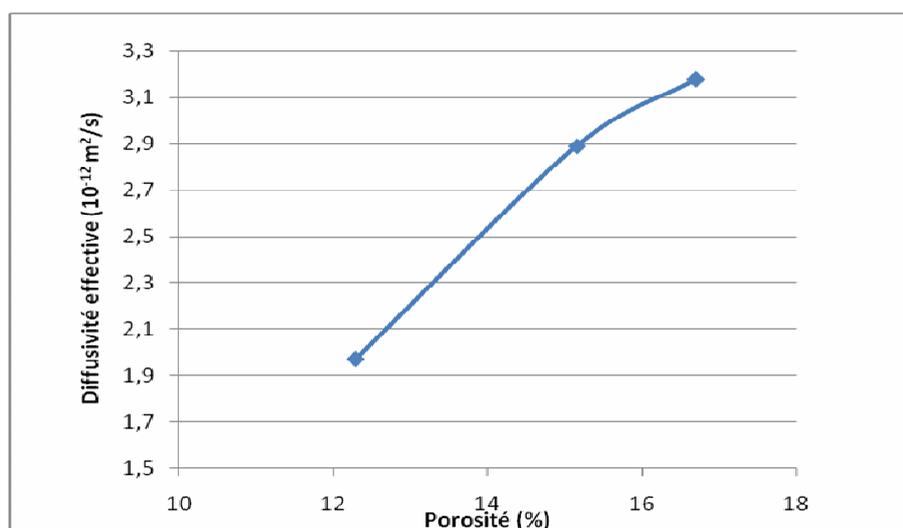
A noter que les temps de retard déterminés à partir des essais de migrations ne sont dus qu'à la vitesse de diffusion et aux interactions chimiques connues.

Il découle de ces résultats plusieurs conséquences qui nous paraissent essentielles à prendre en compte pour interpréter correctement les essais de migration.

#### V.5.1.2.1 Influence de la résistance à la compression et de la porosité

La diffusivité effective des chlorures diminue en fonction de la diminution de la résistance à la compression du béton. Pour les trois bétons étudiés, elle va de  $3.18 \cdot 10^{-12} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$  pour le béton BAP à  $1.97 \cdot 10^{-12} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$  pour le BHP.

Il a également été observé que la diffusivité est une fonction décroissante de la porosité accessible à l'eau du béton (figure V-7), pour l'ensemble de la gamme des matériaux testés. Ce résultat n'est pas surprenant étant donné que la porosité accessible à l'eau et résistance à la compression sont deux paramètres très bien corrélés entre eux (voir §V.2).



**Figure V-7** : Diffusivité effective des ions chlorure en fonction de la porosité accessible à l'eau; mesurées sur les bétons à l'âge de 28 jours.

Les propriétés mesurées des différentes formulations des bétons étudiés sont récapitulés dans le tableau V-6.

La série des valeurs du coefficient de diffusion effectif sont cohérentes entre elles. En outre le sens de variation est cohérent avec la formulation : le coefficient de diffusion augmente avec le rapport E/C.

Les compositions du BO et du BHP montrent que la différence entre ces deux types de béton est intrinsèque. Ce ci est du à la porosité plus élevée pour le BO (rapport E/C plus élevé) que pour le BHP.

**Tableau V-6** : Propriétés mesurées à l'âge de 28 jours sur la série de bétons étudiés.

Echantillons	BAP	BO	BHP
Rapport E/C	0,5	0,5	0,4
Résistance à la compression à 28 j (Mpa)	30,50	34,50	58,8
Porosité accessible à l'eau (%)	16,71	15,16	12,29
$D_{mig} 10^{-12} (m^2/s)$	3,18	2,89	1,97

En fait, le BHP contient des ajouts chimiques et notamment la fumée de silice, permettant l'amélioration de sa résistance mécanique (voir tableau V-6). Il est caractérisé par une faible porosité, une grande densité, et une durabilité accrue pour développer certaines caractéristiques, à savoir : la résistance mécanique, la résistance à la pénétration d'agents agressifs. Par ailleurs, plusieurs chercheurs reconnaissent que la fumée de silice réduit de façon significative la diffusivité d'un béton. L'effet le plus connu est le raffinement de la structure poreuse. Ce qui par conséquent a engendré par la suite une diminution du coefficient de diffusion du BHP d'un rapport de 1.5 par rapport au BO.

Le BAP par sa porosité accrue est nettement déclassé par un coefficient de diffusion plus grand que les autres bétons. On enregistre donc une tendance différente dans ce cas de béton qui certainement, sa grande fluidité entraîne une porosité plus importante qui nuit à sa résistance vis-à-vis de la pénétration des ions chlorure (caractérisé par un  $D_{mig}$  plus élevé). Ce dernier point doit toutefois être vérifié par une étude spécifique.

#### **V.5.1.2 .2 Influence des paramètres de formulation**

L'influence d'une formulation de béton et notamment l'ajout cimentaire tel la fumée de silice a été étudié sur un béton BHP.

La figure V-6 indique que la durée de l'essai effectué sur le béton BO et/ou BAP est plus courte que dans le cas du béton à haute performance avec fumée de silice.

La pente de la droite en régime stationnaire, qui intervient directement dans le calcul de la diffusivité, est nettement différente entre les types de bétons. Entre le BO et le BHP, la diffusivité effective des chlorures passe de  $2.89 \cdot 10^{-12}$  à  $1.97 \cdot 10^{-12} m^2/s$ . on peut donc espérer une performance nettement supérieure de la formulation avec la fumée de silice en terme de durabilité dans un environnement contenant des chlorures. On retiendra que la diffusivité diminue quand on incorpore de la fumée de silice dans la formulation. Il faut toutefois

nuancer ce résultat dans la mesure où les bétons comparés ici avaient des résistances mécaniques différentes.

Nous constatons aussi, que les valeurs du temps de retard, révélateur des interactions entre les ions chlorure et le solide, augmentent avec la diminution du coefficient de diffusion. cette valeur passe de heures pour un BO à heures pour un BHP.

### V.5.1.2.3 influence de la relation porosité- tortuosité- diffusion

La porosité des bétons conditionne la pénétration des agents agressifs. De nombreux auteurs ont montré que la distribution de la taille des pores au sein des bétons est un paramètre influant à l'égard des phénomènes diffusifs. D'après [Roy, 1986] la diffusion aux ions chlorures peut être directement corrélée à la porosité des matériaux testés, mais aussi de la nature du liant donc de la distribution de la taille des pores. Des études ont montré que l'auréole de transition est un système poreux qui a une diffusivité supérieure à celle de la matrice de la pate de ciment qui l'entoure.

Il est possible aussi de mettre en évidence l'effet de tortuosité, tenant compte de cette structure poreuse qui est d'ailleurs fonction de la diffusivité du matériau qui est donnée par la relation (III-50) rappeler ici :

$$\tau = \frac{D_{mig}}{D_0} \quad (V- 2)$$

Avec :

$D_{mig}$  : le coefficient de diffusion des ions chlorures moyen dans un béton saturé, celui-ci est déterminé par essai de migration en régime stationnaire.

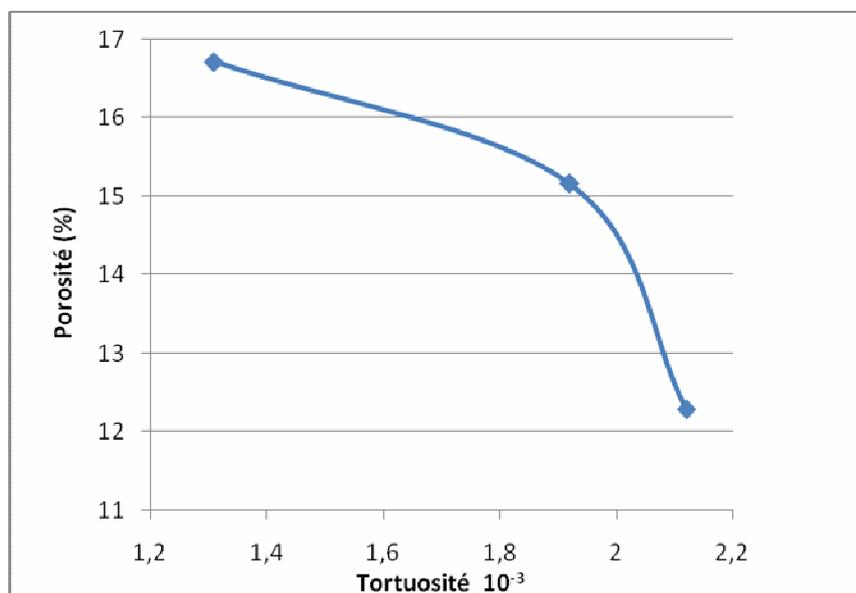
$D_0$  : le coefficient de diffusion des ions chlorures dans l'eau : égale à  $1.5 \cdot 10^{-9} \text{ m}^2/\text{s}$  (Nugue, 2002).

A l'issue de la campagne d'essai de migration sur les bétons étudiés BO, BAP, BHP; et on prenant en compte l'effet de la porosité. Le tableau V-7 récapitule l'ensemble des valeurs permettant d'accéder au calcul de la tortuosité.

**Tableau V-7** : Valeurs des tortuosités calculées à partir des caractéristiques microstructurales des bétons.

Echantillons	BAP	BO	BHP
Rapport E/C	0,5	0,5	0,40
Résistance à la compression à 28 j (Mpa)	30,50	34,5	58,8
Porosité accessible à l'eau p (%)	16,71	15,16	12,29
Coefficient de migration $D_{mig}$ ( $\text{m}^2/\text{s}$ ) $10^{-12}$	3,18	2,89	1,97
Tortuosité $\tau$ ( $10^{-3}$ )	2,12	1,92	1,31

Les résultats de la relation tortuosité-porosité est présenté sur la figure V-8. Le facteur tortuosité est estimé autour de  $10^{-3}$  pour les bétons étudiés, qui est la valeur qu'indique Johannesson (2003) cité par Khitab (2005) pour les bétons de rapport E/C variant de 0.35 à 0.55 en conditions saturés.



**Figure V-8** : Relation tortuosité-diffusivité des bétons étudiés

A noter qu'il existe une autre manière d'évaluation de ce paramètre comme celle défini par certains auteurs (voir § III.4.5.2).

Il apparait que la tortuosité décroît quand le rapport E/C diminue. Cependant il est difficile de tirer des conclusions directes sur l'évolution des propriétés de transferts liées aux changements microstructuraux du matériau, car la mesure de la tortuosité dépend étroitement de la conductivité du fluide saturant le milieu poreux. A cet effet, il convient donc d'avoir recours à d'autres paramètres tels le facteur de formation, la constrictivité, la conductivité relative ou la tortuosité électrique.

On constate aussi que le coefficient de diffusion diminue avec le rapport E/C, Cette diminution devrait être normalement expliquée par une augmentation de la tortuosité du au cheminement poreux et par la présence dans ces trajets de régions constituées de gel hydraté microporeux, ce qui devrait se traduire par un phénomène physique de diffusion du à l'effet de la tortuosité qui devrait ralentir le processus de migration des ions chlorure dans la solution interstitielle.

Il convient de rappeler que la section utilisée pour calculer la tortuosité est la section ouverte et non la section totale de l'échantillon. On minimise donc le facteur de tortuosité et par conséquent le rapport  $D_{mig} / D_0$ . De plus, l'hypothèse d'une solution interstitielle équivalente à celle existante à l'aval a été effectuée, ce qui peut également influencer le résultat. A noter

que Tang (2001), ayant fait cette même hypothèse, a lui aussi obtenu, par l'utilisation de l'expression d'un facteur de formation, des résultats dépendant de la concentration en chlorures. Les essais réalisés à l'aide de la cellule de migration devraient permettre d'infirmer ou d'affirmer cette importante hypothèse concernant la composition de la solution interstitielle en fin d'essai.

Le but n'est pas ici d'effectuer une correction très précise des résultats mais d'en évaluer l'ordre de grandeur afin d'éviter de réaliser des conclusions biaisées.

En fait, la corrélation de la tortuosité est établie à partir de résultats d'essais de migrations pour un béton précis et ayant ses caractéristiques propres. L'utilisation de telle corrélation doit donc être faite très prudemment.

### **V.5.1.3 Conclusion**

La diffusivité ainsi calculée n'est toutefois qu'un coefficient « effectif ». En effet, le calcul est effectué avec un modèle de diffusion « pure », alors que des réactions chimiques sont susceptibles d'intervenir au cours du processus. Il est cependant important de préciser que cette approximation va dans le sens de la sécurité.

### **V.5.2 Etude des isothermes d'interactions**

Comme cela a déjà pu être évoqué au cours de ce mémoire, les chlorures, présents dans la solution interstitielle, peuvent interagir avec la matrice cimentaire. La détermination de l'interaction chlorure-matrice cimentaire possède un pouvoir explicatif important. Il permet, notamment, de réinterpréter certains phénomènes observés expérimentalement et donc d'approfondir la compréhension du comportement des bétons dans un environnement chloridrique pas toujours bien maîtrisés.

Dans ce paragraphe, une isotherme d'interaction des chlorures a été étudiée sur un béton ordinaire BO, Pour les délais impartis de ce mémoire, les échantillons BAP et BHP n'ont fait l'objet d'aucuns essais d'interactions.

#### **V.5.2.1 Détermination expérimentale des isothermes d'interactions**

De nombreux chercheurs se sont intéressés au développement de méthodes expérimentales de détermination des isothermes d'interaction : la plus répandue, consiste en la mesure des quantités d'ions chlore fixés à l'équilibre à partir des échantillons de béton broyés immergés dans diverses solutions chlorées de concentrations connues (voir § IV.4.4).

La cinétique d'évolution n'a pas été suivi pendant cet essai, vu que l'objectif est d'étudier les isothermes d'interactions chlorure-matrice, mais pas son évolution au cours du temps. Puisque la cinétique de fixation est pour la plus part des observations expérimentales (AFGC, 1997) pour un béton courant, un délai de deux mois est largement suffisant pour

considérer que l'équilibre de fixation est atteint. C'est à dire le temps ou la stabilisation de la quantité des chlorures fixés reste constante avec le temps.

Cependant, il a été montré que plus de 80% des chlorures liés le sont en moins dans les premiers jours d'essai (Francy, 1998). La cinétique de fixation présente une augmentation progressive, puis devenant très faible jusqu'à l'équilibre.

La quantité d'ions liés est calculée à partir de l'équation (IV-9) que nous rappelons ici pour chacune des concentrations  $C_0$  utilisées, elle est alors définie par :

$$C_b = \frac{35,453 \cdot V \cdot (c_0 - c_f)}{M} \quad (V-3)$$

Où,

$C_b$  : quantité de chlorures fixés dans le matériau (g/g de béton )

V : volume de solution dans les conditions initiales, égale à 400 ml

$C_0$  : concentration en chlorures initiale de la solution d'immersion (mol/l)

$C_f$  : concentration de la solution obtenue à l'équilibre (mol/l)

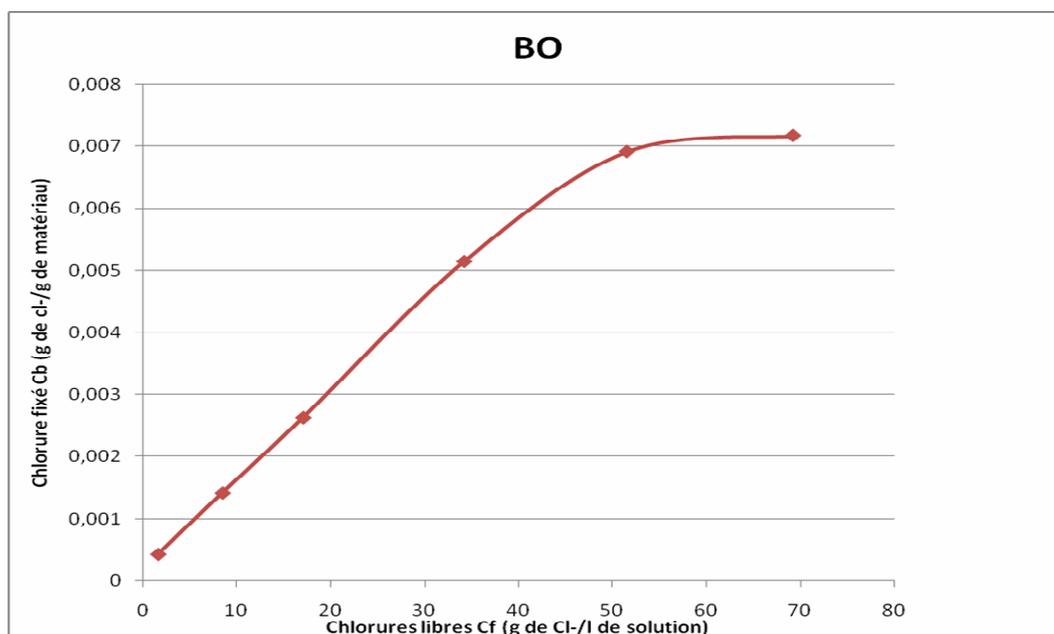
M : masse de poudre sèche (g)

Le tableau V-8 représente les valeurs de l'essai d'immersion réalisé sur le béton BO. A noter que les mesures reportées sur le tableau sont les moyennes obtenues pour 3 prélèvements de solution.

**Tableau V-8** : Détermination de l'isotherme d'interaction des ions chlore sur le BO.

Concentration initiale $C_0$ (mol Cl <sup>-</sup> /l)	Concentration initiale $C_0$ (g Cl <sup>-</sup> /l)	Concentration à l'équilibre $C_f$ (mol Cl <sup>-</sup> /l)	Concentration à l'équilibre $C_f$ (g Cl <sup>-</sup> /l)	Masse de l'échantillon (gr)	Quantité fixée $C_b$ (g de Cl <sup>-</sup> /g de béton)
0,05	1,775	0,04701877	1,66695652	100	0,00043217
0,25	8,87	0,24018278	8,5152	100	0,0014192
0,5	17,75	0,48211978	17,0925926	100	0,00262963
1	35,5	0,96507861	34,2149321	100	0,00514027
1,5	53,25	1,45327541	51,522973	100	0,00690811
2	71	1,952117203	69,20841121	100	0,007166355

Cette expérience, nous permet alors de tracer l'isotherme d'interaction de l'espèce chimique considérée ( $\text{Cl}^-$ ) (voir figure V-9), elle correspond à l'évolution des quantités fixées en fonction des concentrations à l'équilibre.



**Figure V-9** : Tracé de l'isotherme d'interaction du béton BO.

La courbe démontre une non-linéarité de la relation qui décrit la capacité de fixation des ions chlorures dans la matrice cimentaire. Il a été constaté par plusieurs auteurs que cette courbe ne dépend pas seulement de la teneur en ciment dans le matériau mais encore du rapport E/C et de l'âge du matériau (Quang, 2007). Autrement dit, la capacité de la fixation des chlorures dépend de la teneur des hydrates dans le matériau.

Nos résultats, obtenus par la méthode d'essai d'isotherme d'interaction de L. Tang et L.O. Nilson (1993), montrent aussi que la fixation des chlorures augmente avec la concentration des chlorures dans la solution initiale, ce qui confirme entre autres les résultats de la littérature, notamment de K. Byfors (1995) cité par Nguyen (2006), Dhir (1996) et Djerbi (2007).

Si on compare les résultats obtenues à celles de la littérature pour un béton ordinaire, notamment ceux de Djerbi (2007), nous constatons une bonne reproductibilité avec nos mesures. Aussi, l'existence d'un palier dans la gamme des plus fortes concentrations ( $C_0 > 50 \text{ g Cl}^- / \text{l}$ ) a été observé.

Nous considérons maintenant la gamme des concentrations de 10 à 35 g/l, ce qui correspond aux concentrations des chlorures dans l'eau de mer.

D'après Byfors (1995), la fixation des chlorures pour les grandes concentrations ( $> 600 \text{ mol/m}^3$  ou 20 g/l approximativement) se déroule suivant un processus d'adsorption

multicouche tandis qu'aux petites concentrations, Byfors suppose qu'on a un phénomène d'adsorption monocouche. La fixation des chlorures dans le matériau BO augmente avec la concentration des chlorures dans la solution d'essai du fait d'un phénomène d'adsorption multicouche [1].

### V.5.2.2 Modélisation des isothermes d'interaction

Plusieurs équations de la fonction  $C_b = f(C_f)$  ont été proposées dans la littérature pour passer d'une isotherme expérimentale de matériau à une modélisation de celle-ci. (Tang, 1993) (Francy, 1998) ont établi que, les phénomènes d'interaction chlorures/matrice étaient décrits par une isotherme de fixation non linéaire sur une large gamme de concentration en chlorures libres (0-100 kg.m<sup>-3</sup>).

La relation la plus couramment utilisée à une expression de type Freundlich, il suffit d'effectuer nos calculs avec la formule suivante (voir § III.4.9.1) :

$$C_b = \alpha C_f^\beta \quad (V - 4)$$

avec  $0 \leq \beta \leq 1$ , pour des concentrations supérieures à 0,01 mol/l.

Où  $\alpha$  et  $\beta$  sont des coefficients empiriques et représentent des paramètres relatifs à la nature de l'espèce chimique et la matrice absorbante.

L'isotherme de Freundlich traduit une relation exponentielle entre la quantité adsorbée et la concentration dans la phase gazeuse. Cette isotherme permet de caractériser l'hétérogénéité de surface (plus le coefficient  $\beta$  y est proche de 1, plus la surface est homogène).

Maintenant, si les deux isothermes (expérience et théorie) sont voisines, cela confortera la pertinence de la réinterprétation de notre essai. On pourra alors expliquer qualitativement s'il y aura lieu de décalage entre les deux méthodes d'obtention des isothermes par l'existence du phénomène des interactions ions-matrice.

Ainsi, pour le besoin de nos calculs, et pour passer d'une isotherme exprimée en [g.g<sup>-1</sup> de matériau sec] en [mol.g<sup>-1</sup> de matériau sec] avec une expression de type Freundlich, il suffit d'effectuer le changement de variable suivant :

➤ Si  $C_f$  est exprimé en [g.m<sup>-3</sup> de solution] et  $C_b$  en [g.g<sup>-1</sup> de matériau sec] :

$$C_b = \alpha' C_f^\beta \quad (V - 5)$$

➤ Ou lorsque  $C_f$  est exprimé en [mol.m<sup>-3</sup> de solution] et  $C_b$  en [mol.g<sup>-1</sup> de matériau]:

$$C_b = \alpha C_f^\beta \quad (V - 6)$$

---

[1] Présence des charges électriques sur les surfaces des hydrates, notamment les C-S-H qui sont à l'origine de formation d'une double couche (Stern, Gouy), dans laquelle il existe un certain nombre de sites d'échanges. (Quang, 2007).

On a alors :  $\alpha' = \alpha \cdot (M_{cl^-} \cdot 10^{-3})^{\beta-1}$

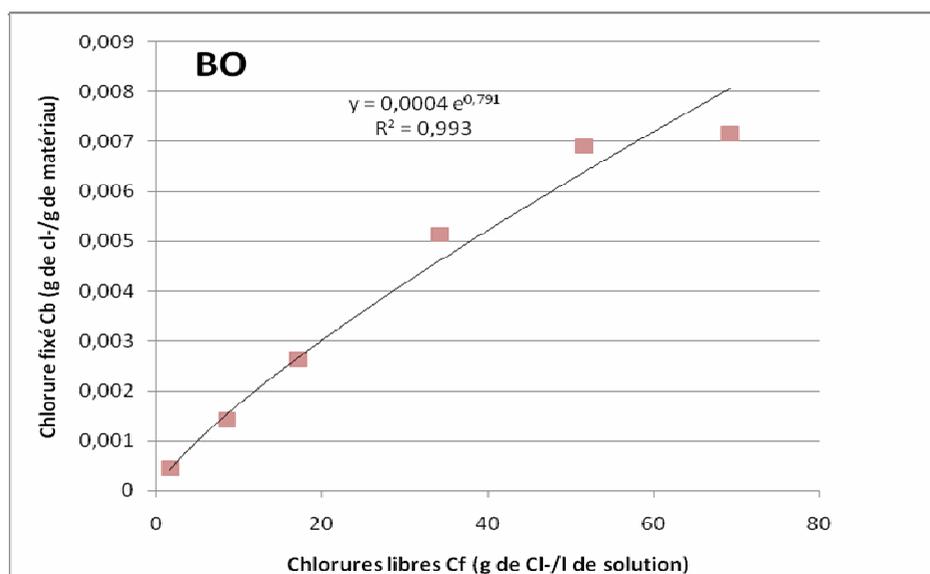
$$\beta' = \beta$$

Où  $M_{Cl^-}$  est la masse molaire du chlore.

L'isotherme modélisée pour notre béton ordinaire est la suivante :

$$C_b = 4.10^{-4} C_f^{0.791} \quad (V - 7)$$

La figure V- 10 présente l'isotherme d'interaction des chlorures obtenue pour notre BO. Les points expérimentaux ont été calés par une ligne continue avec les coefficients de corrélation  $R^2$  supérieur à 0.993.



**Figure V - 10** : Isotherme d'interaction expérimentale et modélisée selon Freundlich obtenue pour le béton BO.

L'isotherme d'interaction expérimentale pour le BO montre une capacité maximale de fixation qui est de l'ordre de 1 % et présente une certaine analogie avec l'isotherme de Freundlich. D'un point de vue pratique, cela signifie que les interactions sont légèrement surestimées par le modèle d'isotherme d'interactions.

Néanmoins, l'isotherme de Freundlich déterminé dans ces conditions fait clairement apparaître les observations précédentes (Figure V- 9) puisque, plus la concentration augmente, plus l'écart relatif entre l'isotherme obtenue par simulation est sensible (variation relative de 5% pour  $0.05 \text{ mol.l}^{-1}$  à 25 % pour  $71 \text{ mol.l}^{-1}$ ).

L'isotherme de Freundlich pour le BO possède une grande capacité maximale de fixation et présente une certaine analogie avec l'isotherme d'interaction expérimentale. D'un point de vue pratique, cela signifie que les interactions sont légèrement surestimées par le modèle d'isotherme d'interactions. De ce fait, il convient donc de relativiser le décalage pouvant être

observé entre les isothermes obtenues expérimentalement et des simulations associées avec interactions.

Cependant, les interactions toujours modélisées par une isotherme d'interaction qui est une relation entre la quantité de chlorures fixés et celle en solution, cette isotherme ne donne pas d'indications sur les mécanismes de fixation ou ne considère pas l'influence d'autres espèces ioniques. De plus, le tracé de l'isotherme aux concentrations supérieures à  $1 \text{ g.l}^{-1}$  présente des difficultés insurmontables (Quang, 2007).

L'absence de gradient de concentration lors d'essais d'interactions sur poudre comparativement à l'essai de diffusion, pourrait conduire, selon Bigas, à un moindre accès à la microporosité. Cela pourrait donc également expliquer le fait que l'isotherme obtenue théoriquement simulés (Figure V - 9) soit située en dessus de l'isotherme obtenue à partir des essais expérimentaux (Figure V - 10).

Aussi, les conditions physico-chimiques de détermination de l'isotherme d'interaction sont spécifiques et sa validité n'est plus assurée en dehors de ces conditions. Une seule courbe d'isotherme ne permet pas d'identifier le processus responsable de la fixation des ions chlorures : réactions chimiquement ou physiquement adsorbé.

De plus, différentes études montrent que les isothermes obtenues dépendent fortement de la nature de la solution mise en contact avec le matériau cimentaire. Ces études montrent que le pourcentage de chlorure lié est plus grand lorsque les chlorures proviennent du  $\text{CaCl}_2$  que du  $\text{NaCl}$  (Delagrave, 1996). Autrement dit, les isothermes dépendent également du cation associé : les chlorures sont fixés en plus grande quantité avec du chlorure de calcium qu'avec du chlorure de sodium. Une des explications à ce phénomène est l'action du  $\text{CaCl}_2$  qui diminue la solubilité de la portlandite et, par conséquent, le pH de la solution. Dans ces conditions, les ions  $\text{OH}^-$  offrent une moins grande compétition aux chlorures sur les sites d'adsorption à la surface des gels de C-S-H et dans la structure du  $\text{C}_4\text{AH}_{13}$  menant à la formation des sels de Friedel (Suryavanshi, 1996).

### **V.5.2.3 Conclusion**

Comme on a pu le constater ici, les phénomènes d'interaction sont loin d'être totalement éclaircis et davantage de travaux de recherches sont nécessaires pour mieux comprendre ces mécanismes. Il est donc nécessaire d'étudier les phénomènes d'interaction entre les chlorures et les hydrates à partir des notions d'équilibre thermodynamique.

Il n'en reste cependant pas moins vrai que l'isotherme de départ utilisée dans cet essai (figure V - 9) est une méthode d'immersion de broyats, qui caractérise un matériau déstructuré qui ne présentera donc jamais tout à fait les même caractéristiques physiques d'accessibilité des chlorures vers les hydrates qu'un même matériau non divisé.

## **V.6 CONCLUSIONS**

Le but de ce chapitre était de comparer et interpréter les résultats obtenus pour les essais liés à la durabilité, particulièrement les essais en cellule de migration ou nous tentons de valider ce banc d'essai

La comparaison nous a permis de tirer les enseignements suivants :

➤ Les matériaux étudiés, différents d'un point de vue microstructure (BO, BAP, BHP), ont des comportements assez similaires en termes d'évolution de porosité ou même de coefficients de migration.

➤ La perméabilité qui est fortement dépendante du réseau poreux et de sa connectivité, ne peut être exploitée par un seul essai, néanmoins le résultat trouvé pour un BO représente une indication significative.

➤ L'essai de référence, matérialisé par la cellule de migration, semble donc, pour le moment, le plus adapté à l'étude des phénomènes liés à la pénétration des ions chlorure. En fait, les valeurs de  $D_{mig}$  de l'ordre de  $10^{-12}$  m<sup>2</sup>/s concordent avec ceux obtenus expérimentalement dans la littérature (Baroghel et col., 2004) (Djerbi, 2007) et montre une bonne cohérence permettant de valider notre dispositif expérimental.

➤ L'étude de la diffusion des chlorures avec une cellule de migration sous champ électrique visant à évaluer un coefficient de migration en régime permanent concorde bien avec ceux proposés en projet de normalisation ( $< 10^{-12}$  m<sup>2</sup>/s) (Baroghel et col., 2004).

➤ Outre la comparaison des isothermes d'interaction proposé pour un BO, les résultats obtenus ont permis d'appréhender la complexité des phénomènes mis en jeu. Aussi les résultats expérimentaux peuvent être simulés par des expressions mathématiques du modèle de Frenlich.

➤ Les résultats expérimentaux exposés précédemment mettent en évidence que le BHP à une microstructure particulièrement dense. Il présente une porosité faible. Ces caractéristiques sont le résultat notamment d'un faible rapport E/C et de l'incorporation de la fumée de silice. Ce béton présente une durabilité « potentielle élevée » et en particulier une très bonne résistance aux agents agressifs d'origine externes tels que les ions chlorures. Néanmoins le BO et le BAP présentent également de bonnes propriétés qui garantissent une bonne durabilité aux ouvrages en fonction de leur durée de vie et du type d'environnement, ces deux bétons présentent une durabilité « potentielle moyenne » (Baroghel, 2004).

## CONCLUSION GENERALE