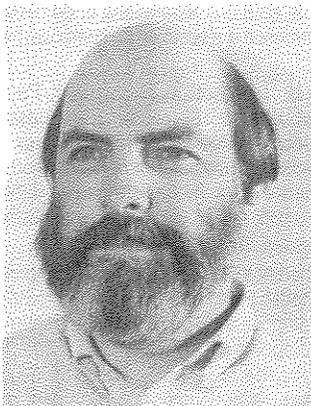


**Diffusion de gaz et durabilité du béton armé**  
**Gasdiffusion und Dauerhaftigkeit von Stahlbeton**  
**Diffusion of Gas and Durability of Reinforced Concrete**

**Yves F. HOUST**  
Chimiste  
Ecole Polytechnique Fédérale  
Lausanne, Suisse



Yves F. Houst, né en 1946, est diplômé de chimie de l'Université de Lausanne. Il travaille dans le domaine des matériaux de construction depuis 16 ans. Il est actuellement chef de la section chimie au Laboratoire des Matériaux de Construction de l'Ecole Polytechnique Fédérale de Lausanne.

**Folker H. WITTMANN**  
Professeur  
Ecole Polytechnique Fédérale  
Zurich, Suisse



Folker H. Wittmann, né en 1936, est gradué en physique. Il fut 4 ans professeur de matériaux de construction à l'Université technique de Delft (Pays-Bas) et 8 ans à l'Ecole Polytechnique Fédérale de Lausanne. Il est actuellement Professeur ordinaire de matériaux de construction à l'Ecole Polytechnique Fédérale de Zurich.

#### RÉSUMÉ

Une méthode de mesure du coefficient de diffusion des gaz à travers la pâte de ciment durcie est décrite. On peut surtout étudier l'influence de la teneur en eau et de la porosité sur la diffusion de l'oxygène et du gaz carbonique. Les premiers résultats sont indiqués.

#### ZUSAMMENFASSUNG

Es wird eine Methode zur Bestimmung der Gasdiffusionskoeffizienten von Zementstein beschrieben. Insbesondere der Einfluss des Feuchtigkeitsgehaltes und der Porosität auf die Diffusion von Sauerstoff und Kohlendioxid kann damit untersucht werden. Über erste Ergebnisse wird berichtet.

#### SUMMARY

A method to determine the coefficients of gas diffusion in hardened cement paste is described. The influence of moisture content and porosity on diffusion of oxygen and carbon dioxide in particular can be studied. Preliminary results are presented.



## 1. INTRODUCTION

La carbonatation du béton armé et ses conséquences sur la corrosion des armatures est un phénomène connu depuis longtemps. A titre d'exemple, on peut citer un article de B. Zschokke datant de 1916 [1] qui décrit déjà les causes de carbonatation du béton, la corrosion des armatures et les précautions à prendre pour limiter les dégâts. Jusqu'au moins au début des années soixante, les problèmes liés à la carbonatation du béton et à la corrosion des armatures n'ont que peu touché les ingénieurs constructeurs qui se sont plutôt concentrés sur de nouvelles méthodes de construction. Toutefois, ces deux dernières décennies, l'augmentation très rapide des dégâts, le coût des réparations et de l'entretien [2, 3] ont crû de telle façon que de nombreuses personnes ont commencé à s'occuper du comportement à long terme du béton armé et précontraint.

De nombreuses publications traitent de la carbonatation. Récemment, Parrott [4] a compilé une bibliographie sur la carbonatation du béton armé et recensé 182 articles datant essentiellement des vingt dernières années. Cependant, tous ces efforts ont certainement permis de mieux comprendre le phénomène de la carbonatation et les facteurs qui l'influencent, mais par contre les méthodes de prévision de la durée de vie des constructions nouvelles ou existantes ne sont actuellement pas fiables. Ainsi, il n'est pas possible de concevoir, entretenir ou réparer les structures avec toute l'efficacité souhaitable. Cette situation exige une recherche détaillée des différents processus impliqués.

Jusqu'à maintenant, l'essentiel des recherches a porté sur l'étude phénoménologique et empirique de parties d'un problème très complexe. Les méthodes traditionnelles ne permettent pas de faire la synthèse de toutes les connaissances acquises et de développer ainsi des méthodes capables de prévoir la durée de vie des structures de façon réaliste. Le développement de nouvelles méthodes devrait permettre de décrire quantitativement les effets de l'humidité, de la teneur en dioxyde de carbone, de la température, des chlorures, de la cure, du type de ciment, de la composition du béton, de revêtements protecteurs sur la carbonatation et la vitesse de corrosion de l'acier d'armature.

Actuellement, la simulation numérique permet de traiter quantitativement des processus interactifs complexes. C'est ce que nous allons tenter de montrer dans cet article, en décrivant brièvement quelques modèles. On montrera également qu'il est nécessaire d'étudier certaines propriétés des matériaux et donnera à titre d'exemple, la mesure du coefficient de diffusion de l'oxygène et du dioxyde de carbone à travers des pâtes de ciment en fonction de l'humidité.

## 2. EFFETS DE LA CARBONATATION SUR LA DURABILITE DU BETON ARME

La carbonatation du ciment est la réaction de neutralisation de ses composés basiques <sup>par</sup> le dioxyde de carbone ou gaz carbonique présent dans l'air. Cette réaction atteint tous les composés hydratés à l'exception du gypse. Dans certaines conditions, même les composés anhydres peuvent réagir. Du point de vue pratique, ce sont essentiellement l'hydroxyde de calcium,  $\text{Ca(OH)}_2$ , et les silicates de calcium hydratés qui jouent un rôle important. La carbonatation de ces derniers composés conduit à la formation de carbonate de calcium ( $\text{CaCO}_3$ ), de silice ( $\text{SiO}_2$ ) et d'eau. Les mécanismes chimiques sont décrits plus en détail dans une autre communication à ce même symposium [5]. La carbonatation dépend d'un grand nombre de paramètres. Les influences les plus importantes sont décrites dans la publication de Parrott déjà mentionnée [2].

On trouve dans la littérature deux concepts de base qui décrivent mathématiquement l'avancement du processus de carbonatation. La plus ancienne théorie est basée sur une loi en  $\sqrt{t}$  qui est une solution de l'équation de diffusion. Les valeurs empiriques montrent toutefois que l'exposant du temps est un peu inférieur à 0.5 et diminue légèrement pour de longues durées. Schiessl [6] a introduit un facteur de retardement qui conduit à un maximum de profondeur de carbonatation fini pour  $t = \infty$ . Cette conclusion ne peut être absolument correcte. Cette approche peut toutefois être réaliste pour des durées de vie des constructions de 80 à 100 ans.

Lorsque le béton directement en contact avec les armatures se carbonate, l'eau des pores subit une forte baisse du pH. Dans ces conditions nouvelles, l'acier ne bénéficie plus de la protection que lui assurait un pH élevé. Dans certaines conditions, notamment avec une humidité relativement élevée, l'acier peut se corroder

à une vitesse qui dépend de nombreux paramètres [7]. Il faut en particulier avoir à disposition suffisamment d'oxygène qui doit également diffuser depuis la surface du béton en contact avec l'atmosphère. La présence de chlorures, provenant essentiellement des sels de déverglaçage ou d'adjuvants, supprime la protection dont bénéficie l'acier dans un milieu à pH élevé.

### 3. MODELISATION

La modélisation de problèmes de durabilité a été étudiée au Laboratoire des Matériaux de Construction (LMC) de l'Ecole Polytechnique Fédérale de Lausanne (EPFL) selon plusieurs approches. Denarié [8] a montré comment développer une méthode tenant compte des incertitudes inhérentes au phénomène (approche probabiliste) qui permet d'évaluer l'état présent d'une construction et de calculer sa durée de vie probable. Un processus stochastique a été utilisé pour évaluer la distribution de la profondeur de carbonatation dans le temps et une distribution normale pour la couverture des armatures. La comparaison des résultats obtenus par le calcul de la probabilité de défaillance, à partir des distributions de valeurs théoriques et mesurées, montre le bien fondé des approximations faites. Enfin, cet auteur propose d'utiliser un système expert de diagnostic et d'analyse pour reprendre la démarche effectuée afin de fournir de véritables outils d'étude d'ouvrages endommagés.

Dans une première étude, Brieger et Wittmann [9] ont décrit le processus de carbonatation au moyen d'un système d'équations aux dérivées partielles, qui leur ont permis d'étudier les facteurs les plus importants, ainsi que divers mécanismes. La résolution des équations a été effectuée par voie numérique. Une autre approche a été faite par Brieger et Bonomi [10] qui ont été inspirés de modèles de la dynamique des fluides pour construire un modèle discret en temps et en espace d'automate cellulaire probabiliste. Cette méthode laisse entrevoir d'intéressants développements.

Dans une première tentative, Houst et al. [11] ont tenté d'étudier la carbonatation au moyen d'un modèle numérique. Tous les paramètres utilisés peuvent être reliés à des propriétés mesurables qui sont définies pour une composition du béton et un environnement donnés. Cet exemple nous paraît intéressant, car il permet clairement de montrer le genre de paramètre à déterminer expérimentalement.

Les équations (1), (2) et (3) suivantes permettent d'étudier l'interaction mutuelle du séchage et de la diffusion du dioxyde de carbone sur la carbonatation.

Le béton jeune peut être considéré comme un matériau poreux saturé d'eau. Le séchage peut être décrit par une équation de diffusion. Pour un tel béton, la carbonatation se superpose au séchage. Pendant ce processus de l'eau est libérée dans le béton. Il faut donc ajouter un terme à l'équation de diffusion pour tenir compte de la libération d'eau :

$$\frac{\partial w}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x} D_w \frac{\partial w}{\partial x} + \alpha_1 \frac{\partial c}{\partial t} \quad (1)$$

Dans cette équation,  $w$  représente l'eau évaporable et  $D_w$  le coefficient de diffusion de vapeur d'eau. Ce coefficient dépend de la teneur en eau.  $c$  représente la quantité de carbonate formé et  $\alpha_1$  est un paramètre du matériau qui tient compte du dosage en ciment et du rapport  $e/c$ . Dans l'étape suivante, il faut décrire la pénétration du dioxyde de carbone dans le système poreux du béton. En première approximation, on peut à nouveau utiliser l'équation générale de la diffusion. La réaction de carbonatation consomme du dioxyde de carbone. En tenant compte de cette perte, on peut écrire l'équation différentielle (2) suivante :

$$\frac{\partial g}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x} D_g \frac{\partial g}{\partial x} - \alpha_2 \frac{\partial c}{\partial t} \quad (2)$$

Dans cette équation,  $D_g$  est le coefficient de diffusion du  $\text{CO}_2$ . Il dépend de la teneur en humidité.  $\alpha_2$  est à nouveau un paramètre du matériau qui dépend essentiellement de la composition du béton.



La vitesse de carbonatation dépend du degré de carbonatation, de la concentration en  $\text{CO}_2$  et finalement de la teneur en eau du béton. En admettant que l'on puisse combiner ces trois influences majeures sous forme de facteurs, on obtient :

$$\frac{\partial c}{\partial t} = \alpha_3 \cdot f_1(c) \cdot f_2(g) \cdot f_3(w) \quad (3)$$

$\alpha_3$  est à nouveau un paramètre du matériau qui tient compte de la composition du béton et du degré d'hydratation. Un développement plus détaillé de ce modèle est donné dans [11].

En résolvant les équations (1), (2) et (3) on peut étudier l'interaction mutuelle du séchage et de la diffusion du  $\text{CO}_2$  sur la carbonatation. Un modèle numérique basé sur ces trois équations a été développé et la méthode des différences finies utilisée pour résoudre les équations du modèle numérique.

Actuellement, les valeurs des paramètres du modèle sont loin d'être toutes connues. L'étude de ces paramètres peut être relativement complexe, comme l'exemple donné dans la partie suivante nous le montre.

Toutefois, soit à l'aide de valeurs de paramètres tirées de la littérature, soit estimées, une solution numérique du système de trois équations différentielles donné précédemment, a permis de déterminer la profondeur de carbonatation de deux types de béton en fonction du temps. Les résultats obtenus à l'aide du modèle montrent qu'après une carbonatation initiale rapide, l'avancement de la carbonatation suit approximativement une loi en  $\sqrt{t}$ . Ces résultats, comparés à des mesures effectuées in situ, se sont avérés tout à fait réalistes.

#### 4. MESURE DE LA DIFFUSION D'UN GAZ

##### 4.1. Préparation des échantillons

Afin de déterminer le coefficient de diffusion  $D_g$  du modèle décrit ci-dessus, nous avons été amené à préparer des échantillons qui devaient être suffisamment minces pour pouvoir être complètement carbonatés et équilibrés à différentes humidités relatives dans un temps relativement court. Pour cela, nous avons confectionné des cylindres de pâte de ciment de diamètre 160 mm qui après au moins six mois de cure dans l'eau ont été coupés en disques de 1 à 2 mm d'épaisseur. Comme il n'est pas possible de varier le rapport eau/ciment de pâtes de ciment de façon notable sans avoir de décantation, nous avons dû maintenir les grains de ciment en suspension en faisant tourner le cylindre jusqu'à ce que la prise évite toute décantation, ce qui nous a permis de varier le rapport e/c entre 0.3 et 0.8. Pour cela, nous nous sommes inspirés de la méthode décrite par Sereda et Swenson [12], mais nous avons dû y apporter certaines modifications étant donné le grand diamètre de nos échantillons par rapport à ceux de Sereda et Swenson ( $\varnothing$  32 mm). Lors de la carbonatation naturelle le gaz diffuse dans un matériau carbonaté. Nous avons donc carbonaté artificiellement nos échantillons et les avons équilibrés dans le climat correspondant à l'h.r. à laquelle nous effectuons la mesure.

##### 4.2. Mesure des coefficients de diffusion de $\text{O}_2$ et $\text{CO}_2$

Comme la disponibilité d'oxygène à proximité de l'armature susceptible de se corroder est un facteur important et que la mesure de la diffusion d'oxygène n'entraînait pas de complication particulière, nous avons développé un système de mesure. Le cœur de ce système est une cellule de mesure séparée en deux chambres par le disque du matériau à tester. Avant les mesures, on purge les deux chambres avec de l'azote pur contenant la quantité de vapeur d'eau nécessaire à l'obtention de l'h.r. désirée. Au début de la mesure, on fait pénétrer dans la chambre supérieure un mélange de gaz artificiel (78%  $\text{N}_2$ , 20%  $\text{O}_2$ , 2%  $\text{CO}_2$ ) dont l'h.r. est la même que celle de l'azote utilisé pour la purge du système. Ce gaz est régulièrement renouvelé dans la chambre supérieure où la concentration des différentes espèces est constante peu après le début des mesures. Au cours du temps, on analyse la concentration en  $\text{O}_2$  et  $\text{CO}_2$  dans la chambre inférieure par un analyseur en circuit fermé. Dans cette chambre, la concentration en  $\text{O}_2$  varie donc de 0 à 20 % et celle en  $\text{CO}_2$  de 0 à 2 %. Les coefficients de diffusion de  $\text{O}_2$  et  $\text{CO}_2$  peuvent être calculés à partir

des courbes de concentration de ces gaz en fonction du temps. Le système a d'abord été testé avec du béton cellulaire autoclavé. Les résultats obtenus, ainsi qu'une description plus détaillée du système de mesure figurent dans [13].

## 5. RESULTATS ET DISCUSSION

La diffusion des deux gaz a été mesurée à travers des échantillons équilibrés à deux différentes h.r. Les résultats sont donnés dans la table. Les valeurs moyennes et l'écart type y sont indiqués. Le nombre de mesures individuelles est donné par n. Toutes les valeurs sont reprises dans la figure.

Comme on pouvait s'y attendre le coefficient de diffusion augmente sensiblement avec le rapport eau/ciment. Dans le domaine de nos mesures le coefficient de diffusion ne dépend pas de la teneur en eau. Des mesures à des h.r. plus élevées sont maintenant en route. On peut s'attendre à ce que le coefficient de diffusion diminue lorsque les capillaires de la pâte de ciment durcie se remplissent progressivement d'eau.

Humidité relative	e/c = 0.4		e/c = 0.8	
	$D_{O_2}$ [ $\text{cm}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ ]	$D_{CO_2}$ [ $\text{cm}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ ]	$D_{O_2}$ [ $\text{cm}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ ]	$D_{CO_2}$ [ $\text{cm}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ ]
48 %	$(7.6 \pm 2.1) \cdot 10^{-5}$ (n = 4)	$(5.8 \pm 2.1) \cdot 10^{-5}$ (n = 4)	$(1.8 \pm 0.5) \cdot 10^{-3}$ (n = 8)	$(1.4 \pm 0.5) \cdot 10^{-3}$ (n = 8)
55 %	$(7.7 \pm 1.9) \cdot 10^{-5}$ (n = 7)	$(5.6 \pm 1.6) \cdot 10^{-5}$ (n = 7)	$(2.1 \pm 0.6) \cdot 10^{-3}$ (n = 6)	$(1.6 \pm 0.5) \cdot 10^{-3}$ (n = 6)

Table : Coefficient de diffusion D de  $O_2$  et  $CO_2$  mesuré sur deux pâtes de ciment (e/c: rapport eau/ciment lors du gâchage, n= nombre de mesures).

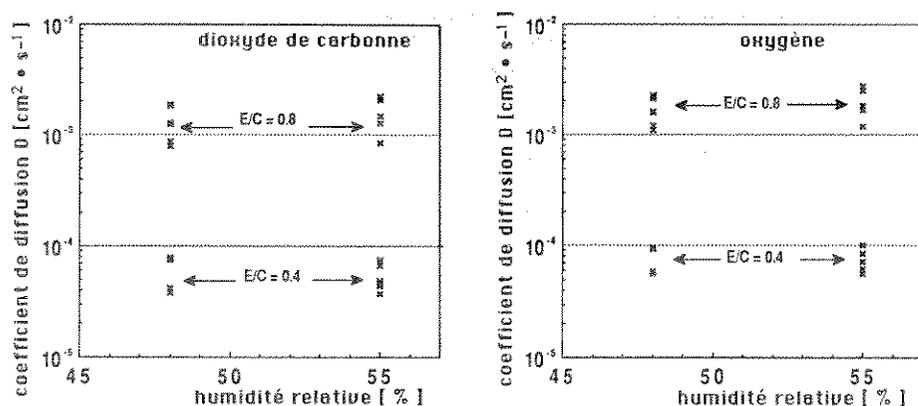


Fig. Coefficients de diffusion de  $CO_2$  et  $O_2$  dans la pâte de ciment durcie mesurés à 48 et 55 %.

## 6. CONCLUSIONS

Nous avons développé une méthode qui nous permet de déterminer le coefficient de diffusion du gaz carbonique et de l'oxygène dans la pâte de ciment durcie en fonction de la teneur en eau.

Le coefficient de diffusion dépend fortement du rapport eau/ciment.



Dans le béton ce n'est que la pâte de ciment durcie qui subit la carbonatation. Il est pratiquement impossible cependant de mesurer les coefficients de diffusion directement sur des échantillons en béton. Il faut encore développer un modèle d'un matériau composite qui permette de transposer les résultats obtenus et décrits ici au béton.

#### BIBLIOGRAPHIE

1. ZSCHOKKE B., Über das Rosten der Eiseneinlagen im Eisenbeton, Schweiz. Bauzeitung, LXVII (1916) 285-289.
2. PARROTT L.J., A review of carbonation in reinforced concrete, Cement and Concrete Association, Wexham Springs (1987).
3. WITTMANN F.H., Structure et durabilité du béton armé in Durabilité du béton armé, documentation SIA 89, SIA, Zürich (1985) pp. 7-14.
4. PARROTT L.J., Carbonation in reinforced concrete: A bibliography, Cement and Concrete Association, Wexham Springs (1987).
5. HOUST Y.F. et WITTMANN F.H., Le retrait de carbonatation, communication à ce symposium.
6. SCHIESSL P., Zur Frage der zulässigen Rissbreite und der erforderlichen Betondeckung im Stahlbetonbau unter besonderer Berücksichtigung der Karbonatisierung des Betons, Deutscher Ausschuss für Stahlbeton, Heft 255, Wilhelm Ernst & Sohn, Berlin-München-Düsseldorf (1976).
7. SCHIESSL P., Korrosion der Bewehrung im Stahlbeton, Bausanierung und Bautenschutz, Sonderheft (1983) pp. 64-71.
8. DENARIE E., Carbonatation - Durée de vie de bâtiments en béton armé, Chantiers/Suisse, 19 (1988) 89-92 et 149-151.
9. BRIEGER L.M., WITTMANN F.H., Numerical simulation of carbonation of concrete, in (F.H. Wittmann Ed.), Material Science and Restoration, Technische Akademie Esslingen, Ostfildern (1986) 635-640.
10. BRIEGER L.M., and BONOMI E., A cellular automaton model of diffusion and reaction in a porous medium: Concrete, Supercomputing Review, november 1988, pp. 3-4.
11. HOUST Y.F., ROELFSTRA P.E., and WITTMANN F.H., A model to predict service life of concrete structures, in (F.H. Wittmann Ed.), Material Science and Restoration, Ed. Lack + Chemie, Filderstadt (1983) 181-186.
12. SEREDA P.J., and SWENSON E.G., Apparatus for preparing portland cement paste of high water-cement ratio, Mat. Res. & Standards, Z (1967) 152-154.
13. HOUST Y.F., and WITTMANN F.H., The diffusion of carbon dioxide and oxygen in aerated concrete, in (F.H. WITTMANN Ed.) Materials Science and Restoration, Technische Akademie Esslingen, Ostfildern (1986) 629-634.