

Concept de Performance Equivalente appliqué aux bétons exposés à la lixiviation et aux attaques sulfatiques externes

Emmanuel Rozière

Institut de Recherche en Génie Civil et Mécanique (GeM) – UMR CNRS 6183
Ecole Centrale de Nantes – 1 rue de la Noé BP 92101 44321 Nantes Cedex 3

RESUME. L'application d'une approche performantielle à la durabilité des bétons passe par une définition précise des conditions d'exposition et des mécanismes de dégradation. Le contexte normatif des bétons et la demande de la profession évoluent dans ce sens. Cette étude propose des outils de démonstration de l'équivalence de performances de bétons soumis à la lixiviation, aux attaques acides et sulfatiques. La répétabilité de l'essai de lixiviation à pH constant semble être suffisante pour mettre en évidence des différences de comportement dues à des variations de compacité (rapport Eau efficace/Liant équivalent) ou de liant (ciment Portland, ciment et cendres, ciment composé). Un essai de qualification du liant compare les performances de deux ciments Portland garanti ou non résistants aux sulfates (au sens de la norme) et d'un ciment composé au laitier. Le liant à forte teneur en laitier (62 %) – ciment composé ou mélange reconstitué – semble assurer une bonne résistance à la lixiviation et aux attaques sulfatiques externes d'après les indicateurs proposés.

MOTS-CLÉS : Approche performantielle, lixiviation, attaques sulfatiques.

ABSTRACT. Performance based specifications may be given for durability of concrete provided that exposure conditions and mechanisms of degradation are accurately defined. This approach is to be used in standards and construction practice, and this study could provide designers with tools to show equivalent performances of concrete mixtures exposed to leaching and sulfate attacks. A pH-controlled leaching device has been shown to be repeatable enough to characterize behaviours resulting from changes in compactness (through water/binder ratio) and binder. Another testing procedure is used to compare the resistance of three cements (ordinary and sulfate resisting Portland cement, GGBFS blended cement) to external sulfate attacks. Blended cement or binder including high proportion of slag (GGBFS) both shows good resistance to leaching and sulfate attack through these testing procedures.

KEYWORDS : Performance based approach, leaching, sulfate attacks.

1. INTRODUCTION

La complexité de la formulation des bétons, et les progrès dans la connaissance de leur comportement, ont conduit à la recherche d'indicateurs plus pertinents que des valeurs limites de composition pour apprécier leur durabilité dans un environnement donné (Baroghel-Bouny, 2004, Hooton, Bickley, 2006). Ce passage d'une approche prescriptive à une approche dite performantielle nécessite cependant de bien définir les environnements et de mettre en évidence les mécanismes de dégradation associés, afin de donner pour chacun de ces mécanismes des grandeurs et des critères pertinents. Dans le même temps le contexte normatif a évolué dans ce sens. La nouvelle norme NF EN 206-1 sur les *Spécification, performances, production et conformité* du béton (AFNOR, 2004) insiste dès son intitulé et son introduction sur l'intérêt d'une approche performantielle de la durabilité, et définit des classes d'exposition, regroupées par types d'actions environnementales : carbonatation,

pénétration des chlorures, gel/dégel, environnements chimiquement agressifs. Cependant la définition des actions environnementales reste parfois imprécise, désignant en fait la combinaison de plusieurs mécanismes de dégradation, et la majorité des critères associés à ces actions sont prescriptifs. Ils consistent en des valeurs de rapports Eau efficace/Liant équivalent ($E_{\text{eff.}}/\text{Liant éq.}$) maximaux, de teneur en liant équivalent minimales, et de quantités maximales d'additions prises en compte dans le liant, et décrivent ainsi des solutions traditionnelles pour assurer la durabilité par rapport aux actions considérées. La raison de cette approche est que ces solutions sont admises, alors que certains critères performantiels souffrent d'un manque de confiance ou de fiabilité. Le travail exposé ici s'inscrit dans ce contexte. Il vise d'une part à traduire en données performantielles les prescriptions de la norme pour montrer l'intérêt d'une approche performantielle, et d'autre part à identifier des méthodes d'essais représentatives et sensibles destinées à qualifier des solutions innovantes par le *Concept de performance équivalente*. Ce concept, proposé par la norme en alternative à l'approche prescriptive, consiste à comparer la durabilité potentielle d'une composition de béton à qualifier par rapport à une composition de référence, conforme en termes de valeurs limites pour une classe d'exposition donnée.

L'étude est menée à l'initiative de la Fédération Nationale des Travaux Publics et implique plusieurs laboratoires. Les actions environnementales considérées sont : la carbonatation (classes XC), la pénétration des chlorures (classes XD et XS), la lixiviation, les attaques acides et sulfatiques externes (classes XA). Dans chaque cas l'étude expérimentale consiste d'une part en la détermination de propriétés globales des matériaux, caractérisant essentiellement leur compacité, et d'autre part en l'utilisation ou le développement d'un essai performantiel, prenant en compte la réactivité du liant. Les paramètres de composition et de cure sont choisis de manière à faire varier la compacité et le liant, pour mettre en évidence des équivalences de performance, ou au contraire la variabilité des comportements pour un même ensemble de spécifications prescriptives. Les résultats présentés dans cet article concernent la lixiviation et les attaques acides, puis les attaques sulfatiques (classes XA).

2. PROGRAMME EXPERIMENTAL

2.1. COMPOSITIONS ET CONSERVATIONS DES BETONS

Les compositions ont été choisies de manière à évaluer la sensibilité des essais utilisés, par des variations de compacités (rapports $E_{\text{eff.}}/\text{Liant éq.}$) et de liants qui permettaient d'attendre un domaine de performances assez étendu (Tableau 1). Les bétons B4 et B5 sont conformes aux classes d'exposition XC3 et XC4, qui concernent les cas de risque élevé de carbonatation, et correspondent en pratique aux bétons de bâtiment en extérieur (façades). Les bétons S1 et S3 sont conformes aux classes d'exposition XA2 et XA3, cas les plus sévères d'environnements chimiquement agressifs. Les bétons S4 et S2 dérogent par les proportions d'addition – rapports $A/(A+C)$ – prises en compte dans le liant, qui sont respectivement limitées à 0,15 et 0. Pour chaque composition deux lots d'échantillons subissent deux conditions de cure, pour étudier l'effet du paramètre sur les indicateurs de durabilité : démoulage à 24 heures et conservation dans l'eau à 20°C jusqu'à 28 jours (« 24 h – Eau »), ou démoulage à 50 % de la résistance spécifiée puis conservation à 50 % d'humidité relative (« 50 % »). Les mortiers (Tableau 3) sont destinés à comparer la résistance de trois liants aux sulfates (Tableau 2). Ils ont été conçus sur la base du mortier normal ($E/C = 0,5$), à volume de pâte constant.

	XC3-XC4		XA2		XA3	
(kg/m³)	B4	B5	S3	S4	S1	S2
Granulats de référence Palvadeau						
12,5/20	-	-	374	358	372	366
8/12	-	-	275	264	274	269
4/8	-	-	421	403	419	412
Gravillons du Boulonnais						
12/20	541	561	-	-	-	-
4/12	416	432	-	-	-	-
Granulats de référence Palvadeau						
2/4	-	-	57	55	57	56
1/4	-	-	244	234	243	239
0,5/1	-	-	133	127	132	130
0,315/1	-	-	197	189	196	193
0/0,315	-	-	106	102	105	104
0/0,160	-	-	23	22	23	23
Sable du Boulonnais						
0/4	980	900	-	-	-	-
Ciment (C)						
CEM III 42,5 PM ES	-	-	-	-	385	-
CEM I 52,5 PM ES	-	-	352	280	-	-
CEM I 52,5 N	280	223	-	-	-	-
CEM I 52,5 R - 1	-	-	-	-	-	156
Additions (A)						
Cendres Cordemais (k = 0,6)	-	95	-	120	-	-
Laitier ECOCEM (k = 0,9)	-	-	-	-	-	254
Eau efficace (E_{eff.})	162	162	174	174	154	154
Superplastifiant	3,67	2,98	0,73	1,29	4,14	3,38
Liant équivalent (C+k.A)	280	280	352	352	385	385
E_{eff.}/(C+k.A)	0,58	0,58	0,49	0,49	0,40	0,40
A/(A+C)	0	0,30	0	0,30	0	0,62
Volume de pâte Vp (L/m³)	318	328	286	308	282	293

Tableau 1 : Compositions des bétons.

(kg/m³)	M1	M2	M3	M7	M8	M9
Sable normalisé	1484	1494	1490	1484	1494	1490
CEM III/A 42,5 N PM ES	495			419		
CEM I 52,5 N PM ES		498			420	
CEM I 52,5 R - 2			497			420
Eau (ajout)	247	249	248	272	273	273
Eau/Liant éq.	0,5	0,5	0,5	0,65	0,65	0,65

Tableau 2 : Composition des mortiers.

2.2. PROCEDURES EXPERIMENTALES

2.2.1. Indicateurs de compacité

Les indicateurs de compacité, aussi appelés indicateurs généraux de durabilité (Baroghel-Bouny, 2004) sont mesurés à 28 jours. Le résultat donné est une moyenne sur trois mesures. La porosité à l'eau est déterminée selon le mode opératoire AFPC-AFREM (1997) au Laboratoire Matériaux et Durabilité des Constructions (LMDC). La résistance en compression et la perméabilité au gaz ont été mesurées au GeM. La perméabilité intrinsèque est calculée à partir de mesures de perméabilité apparentes à 4 - 3,5 - 3 - 2,5 - 2 - 1 bar, selon l'approche de Klinkenberg (1941).

2.2.2. Coefficients de diffusion effectifs des ions chlorure

Le coefficient de diffusion effectif des ions chlorure, issu d'un essai de migration en régime permanent, peut être à la fois considéré comme un indicateur général caractérisant la compacité, et comme un indicateur spécifique pour les bétons exposés aux chlorures de l'eau de mer ou des sels de déverglaçage. Pour la première série de bétons (B4 et B5), il a été mesuré au LMDC selon le LMDC Test, et pour la deuxième série (S1, S2, S3 et S4) au GeM selon le même principe, mais par dosage des solutions du compartiment aval.

2.2.3. Essai de lixiviation à pH constant

L'essai utilisé reprend le principe de celui développé au CEA pour étudier les effets de la lixiviation et des sulfates sur les pâtes de ciment (Planel, 2006). A l'issue de la cure humide « 24 h – Eau », l'échantillon de béton est immergé pendant au moins 60 jours dans 1,5 L de solution régulée à pH = 5 par ajout d'acide nitrique (Figure 2). Tous les 30 ml d'acide ajoutés, la solution est renouvelée et dosée par spectroscopie d'absorption atomique (CERIB). Les quantités d'acide ajoutées et d'ions calcium passés en solution donnent accès aux cinétiques de lixiviation, et l'épaisseur dégradée peut être évaluée en fin d'essai après pulvérisation de phénolphthaléine sur une section de l'échantillon.

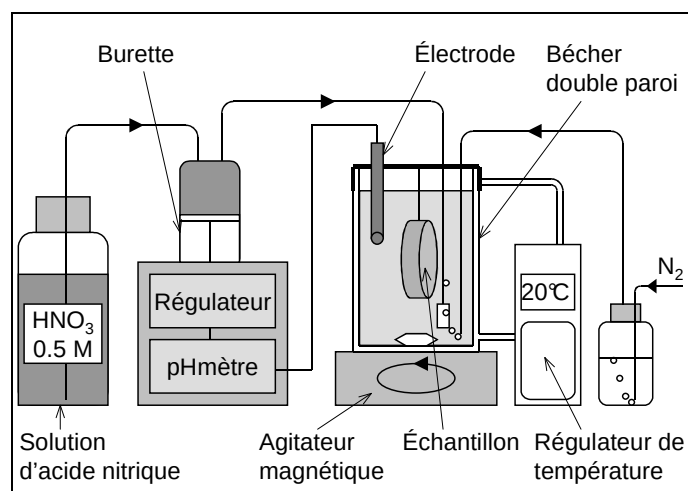


Figure 1 : Essai de lixiviation à pH constant.

2.2.4. Attaques sulfatiques externes : essai de vieillissement et qualification du liant.

La littérature et le contexte normatif ne fournissent pas d'essai permettant de caractériser assez rapidement les performances des bétons soumis aux attaques sulfatiques externes. Deux dispositifs ont été mis en place en parallèle. D'une part, des éprouvettes $7 \times 7 \times 28 \text{ cm}^3$ en béton ont été immergées après 28 jours de conservation initiale dans une solution de sulfate de sodium à 3 g/L en SO_4^{2-} , homogénéisée et régulée à pH = 7 par ajout d'acide sulfurique H_2SO_4 . D'autre part, des éprouvettes $4 \times 4 \times 16 \text{ cm}^3$ en mortier ont été immergées après 14 jours de cure, 14 jours de séchage à 40°C et saturation sous vide en solution de sulfate de sodium à 30 g/L en SO_4^{2-} , dans une solution de même composition, pour suivi des masses, module et déformations axiales. Ce dernier essai vise à caractériser le liant, et à mettre en évidence des effets d'une concentration élevée en sulfates sur le type de dégradation.

3. RESULTATS ET DISCUSSION

3.1. INDICATEURS DE COMPACITE

Les valeurs données dans le tableau 3 correspondent aux conditions de cure « 24 h – Eau », qui sont celles des échantillons soumis à l’essai de lixiviation à pH constant.

	Résistance à 28 jours (MPa)	Porosité accessible à l'eau (%)	Porosité / Volume de pâte (%)	Perméabilité intrinsèque (10^{-17} m^2)	Coefficient de diffusion effectif des chlorures ($10^{-12} \text{ m}^2/\text{s}$)
B4	52,1	14,2	41,8	6,5	1,6
B5	52,7	14,2	44,0	3,1	1,3
S3	47,6	11,2	39,0	10,6	1,1
S4	42,8	-	-	-	-
S1	53,2	11,6	41,1	2,8	0,8
S2	55,2	10,6	36,2	5,9	-

Tableau 3: Propriété globales caractérisant la compacité des bétons.

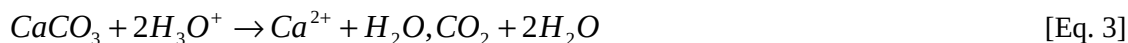
La résistance en compression est conforme aux spécifications des classes d'exposition mais ne permet de discriminer les différentes compositions. La résistance élevée des bétons B4 et B5, relativement au rapport $E_{\text{eff}}/\text{Liant éq.}$, est à relier à la finesse du ciment (CEM I 52,5 N) et à la proportion de fines du sable concassé (7 % d'éléments inférieurs à 63 μm), non prises en compte dans le liant. Rappporter la porosité accessible à l'eau au volume de pâte permet de prendre en compte les variations de ce paramètre, particulièrement importantes dans cette étude (cf. Tableau 1), dans la mesure où les dégradations étudiées se propagent dans la pâte du béton. Ainsi ces indicateurs font apparaître peu de différences significatives entre matériaux, d'où la nécessité de disposer d'indicateurs plus sensibles et qui prennent aussi en compte la réactivité du liant.

3.2. LIXIVIATION ET ATTAQUES ACIDES

Les paramètres des cinétiques de lixiviation peuvent être déduits des graphes donnant les quantités d'ions calcium et hydroxyde lixiviés en fonction du temps par une régression linéaire (Figure 6), en supposant qu'un régime permanent est atteint après environ 1 jour. Les paramètres donnés dans le tableau 4 correspondent à la relation suivante (équation 1) :

$$N(t) = a\sqrt{t} + b \quad [\text{Eq. 1}]$$

Les rapports des cinétiques $a_{\text{OH}}/a_{\text{Ca}}$ sont proches de 2. La lixiviation du béton proviendrait donc principalement de la dissolution de la portlandite $\text{Ca}(\text{OH})_2$ (équation 2). En réalité ces rapports sont supérieurs à 2, et une partie des ions calcium lixiviés pourrait provenir des CSH. Pour les bétons B4 et B5, la dissolution de la calcite n'est pas à exclure par cette analyse, car la libération d'un ion calcium à partir de la calcite CaCO_3 nécessite également l'apport de deux ions H_3O^+ de la solution (équation 3).



A la fin de l'essai, l'épaisseur dégradée EDpH est mesurée en utilisant le front de coloration donné par une solution de phénolphthaléine à 1 %. Les mesures, reportées dans le tableau 4, montrent que cett

épaisseur est faible, au regard de la précision de la mesure (0,5 mm) et de l'épaisseur de l'échantillon (25 mm). Cela conduit à la recherche d'un critère plus sensible : l'épaisseur dégradée équivalente ED_{Éq.}, définie par le rapport suivant :

$$ED_{Éq.} = \frac{\text{Quantité_totale_d'ions_calcium_lixiviés}}{\text{Teneur_initiale_en_calcium_du_liant}} \quad [\text{Eq. 4}]$$

La quantité totale d'ions calcium lixiviés est donnée par les quantités cumulées d'ions calcium passés en solution, et la teneur initiale en calcium est calculée d'après les données sur les constituants du liant. L'épaisseur dégradée équivalente peut également être définie en ne prenant en compte que le calcium présent dans le ciment. Les valeurs obtenues (Tableau 4) sont cohérentes avec les valeurs mesurées, excepté pour les bétons à granulats calcaires, B4 et B5, pour lesquels il y aurait bien eu dissolution de la calcite. Dans ces cas, et dans le cadre de la normalisation de l'essai, il est envisagé d'utiliser l'indicateur pH, de doubler la durée de l'essai et de tenir compte d'un éventuel recul d'interface. Des analyses de la microstructure d'échantillons dégradés selon le même mode opératoire ont montré que l'épaisseur dégradée équivalente pouvait sous estimer l'épaisseur dégradée, dans la mesure où la couche de béton altérée ne serait pas complètement décalcifiée, contrairement à l'hypothèse faite pour le calcul (Rougeau 2006). L'épaisseur ED_{pH} peut surestimer l'épaisseur dégradée, car la baisse du pH peut ne pas correspondre à une altération avancée du matériau.

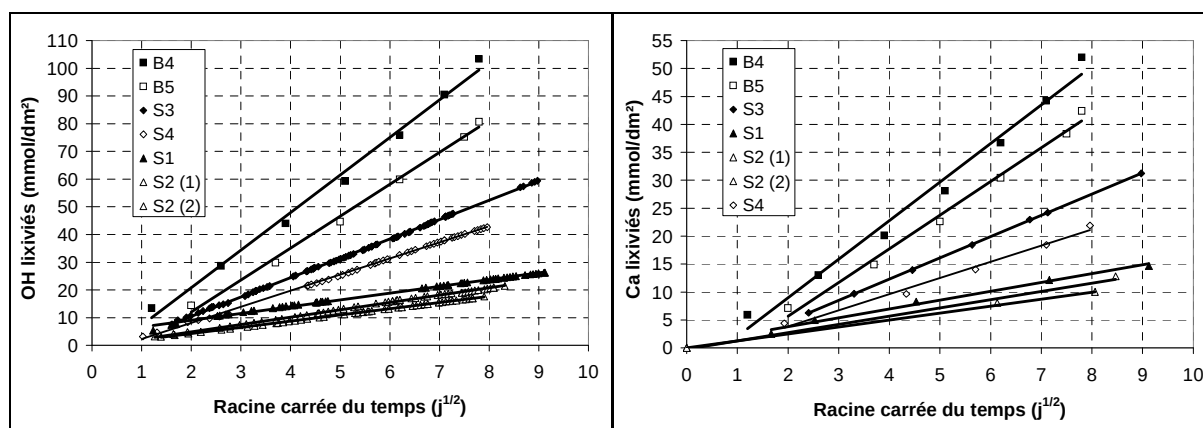


Figure 2 : Essai de lixiviation à pH constant : quantités d'ions hydroxyde et calcium lixiviés.

		B4	B5	S3	S4	S1	S2(1)	S2(2)
OH (mmol/dm²/j¹/²)	a	13,56	11,50	6,97	5,82	2,45	2,64	2,23
	b	-6,34	-10,94	-3,44	-3,59	4,19	-0,35	-0,15
Ca (mmol/dm²/j¹/²)	a	6,90	6,03	3,81	2,90	1,59	1,47	1,24
	b	-4,83	-6,40	-2,95	-1,97	0,58	-0,21	0
Quantité totale d'ions calcium lixiviés à 60 jours (mmol/dm²)		52,0	42,4	26,6	21,0	12,9	11,3	9,1
Teneur initiale en calcium du liant (mol/dm³)		3,19	2,61	4,08	3,33	3,47	3,65	3,65
Epaisseur dégradée équivalente ED_{Éq.} (mm)		1,63	1,63	0,65	0,62	0,37	0,31	0,26
Epaisseur dégradée – pH, phénolphthaléine ED_{pH} (mm)		1	0,5	1	1	< 0,5	< 0,5	< 0,5

Tableau 4 : Paramètres des cinétiques de lixiviation et épaisseurs de béton dégradées en fin d'essai.

Ces différents indicateurs, et en particulier les cinétiques de lixiviation des ions calcium et hydroxyde, permettent de mettre en évidence des différences significatives de comportement. Les deux valeurs des cinétiques des essais S2(1) et S2(2) effectués en parallèle sur le même matériau, diffèrent de 8,4 % de la valeur moyenne, $2,44 \text{ mmol/dm}^2/\text{j}^{1/2}$. La répétabilité de l'essai, évaluée à 10 % par le CERIB, qui a mis en place le même dispositif, est donc suffisante pour pouvoir conclure sur des écarts significatifs entre les matériaux étudiés.

La résistance à la lixiviation semble augmenter avec la diminution du rapport $E_{\text{eff.}}/\text{Liant eq.}$, ce qui peut être relié aux variations correspondantes de porosité et de coefficients de diffusion. Cependant, pour la même valeur de ce rapport, et pour des valeurs de porosité proches (Tableaux 3 et 4), des comportements différents apparaissent, à la fois en termes d'épaisseurs dégradées et de cinétiques de lixiviation. Ainsi l'incorporation de 30 % de cendres (bétons B4/B5 et S3/S4) peut permettre d'améliorer la résistance à la lixiviation, ou tout au moins de la conserver, tout en réduisant le coût et l'impact environnemental. Les indicateurs issus de cet essai permettent également de conclure, dans le cas de l'étude, sur l'équivalence de performances entre le ciment CEM III 42,5 PM ES et le liant recomposé CEM I 52,5 R + Laitier de même proportion en addition (62%).

3.3. ATTAQUES SULFATIQUES EXTERNES

Les résultats de l'essai de qualification du liant sont destinés à être confrontés à l'essai à plus long terme mené sur bétons. Après 90 jours d'essai, ils font apparaître des différences significatives de comportement. L'augmentation du rapport Eau/Ciment avait pour but d'accélérer la dégradation, en augmentant les coefficients de diffusion. Cette tendance est bien observée, mais avec des rapports différents selon le liant. En effet, un autre paramètre majeur pour ce type de dégradation est la teneur du liant en aluminat tricalcique, C_3A , susceptible de se combiner avec le sulfate de calcium pour former de l'ettringite expansive – le sulfate de calcium (gypse) étant le produit de la dissolution de la portlandite en présence d'ions sulfates. Le taux de C_3A du ciment CEM I 52,5 R – 2 utilisé (mortiers M3 et M9) est en effet de 10,6 %, sachant que ce taux varie entre 2 et 11 % sur l'ensemble de la gamme des ciments commercialisés, et les déformations observées pour les mortiers correspondants sont donc cohérentes avec cette explication du phénomène. En outre les cristallisations en aiguilles observées au microscope électronique à balayage (MEB) peuvent correspondre à de l'ettringite, mais

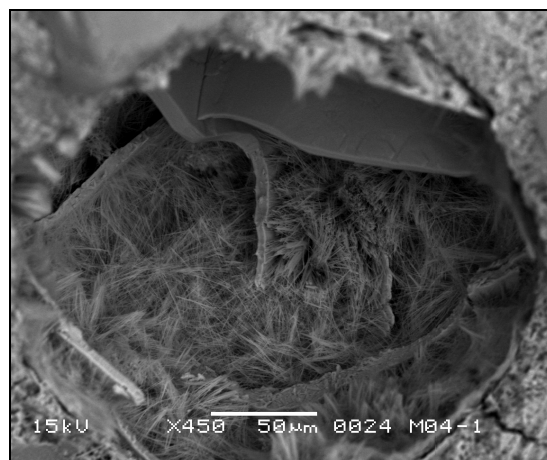
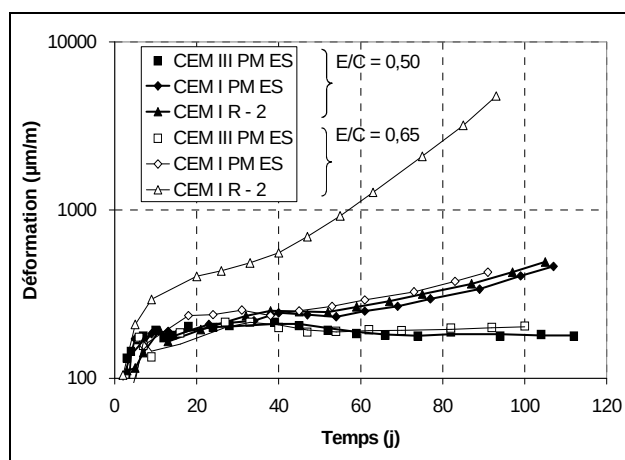


Figure 3 : déformations des éprouvettes $2 \times 2 \times 16 \text{ cm}^3$ immergées dans la solution à haute teneur en sulfates.

Figure 4 : Photo MEB d'une éprouvette de mortier M9, après 90 jours d'immersion.

sans qu'il soit possible de conclure, à ce stade de l'analyse, sur le caractère expansif de cette formation, dans la mesure où ce produit peut aussi se former pendant l'hydratation du ciment. Cependant le début de gonflement observé pour les mortiers à base de CEM I 52,5 PM ES est plus surprenant, car ce ciment est résistant aux environnements sulfatiques (ES) au sens de la norme XP P 15-319 (teneur en C_3A de 2,0 %). Ce comportement serait à relier au taux de C_3S – ou au rapport C_3S/C_2S – plus élevé pour ces ciments, or la phase C_3S libre plus de portlandite, susceptible de former du gypse qui peut être à l'origine de la déformation observée (Neville, 2004, Sahmaran, 2007).

4. CONCLUSIONS

L'étude présentée dans cet article vise à proposer des indicateurs de durabilité potentielle spécifiques aux modes de dégradation considérés, c'est-à-dire la lixiviation et les attaques sulfatiques externes. Les résultats de l'essai de lixiviation à pH constant semblent montrer que le couplage entre les caractéristiques du réseau poreux et la chimie du liant induit un comportement propre à chaque liant. Les résultats présentés sur les attaques sulfatiques externes visent à proposer l'essai pour la qualification du liant. Il est cependant nécessaire d'étudier les influences respectives des caractéristiques du liant et de la compacité sur le comportement du béton : par l'essai à long terme, et des travaux de modélisation, qui sont actuellement en cours, en utilisant dans une première étape les travaux de Tixier et Mobasher (2003) et en incluant ensuite des outils de la micromécanique. Le bon comportement des mortiers et bétons à base de liant à forte proportion en laitier moulu de haut fourneau dans les deux types de dégradation rappelle que la lixiviation joue un rôle important dans le mécanisme de dégradation par les attaques sulfatiques externes. Ce type de matériau cimentaire induit en effet une structure particulière du réseau poreux (Moon *et al.*, 2005) – favorable à la durabilité dans les mécanismes de dégradation où la diffusion intervient – et réduit la vulnérabilité du liant par la réduction de la quantité de portlandite, susceptible d'être dissoute dans les cas d'attaques acides et sulfatiques. Dans le cadre de l'approche performantielle de la durabilité, ce travail porte sur des outils qui pourront être utilisés dans la démonstration de l'équivalence de performances – l'essai de lixiviation à pH constant est en cours de normalisation – qui a pu être appliquée à quelques bétons.

5. BIBLIOGRAPHIE

- Baroghel-Bouny V. et al. (2004) « *Conception des bétons pour une durée de vie donnée des ouvrages* », Association Française de Génie Civil.
- Bickley J.A., Hooton R.G., Hover K.C. (2006) « Performance specifications for durable concrete », Concrete International, September 2006, p. 51-57.
- Planel D., Sercombe J., Le Bescop P., Adenot F., Torrenti J.-M. (2006) « Long-term performance of cement paste during combined calcium leaching – sulfate attack : kinetics and size effect » *Cement and Concrete Research*, vol. 36, n° 12, p. 137-143.
- Badoz C., Francisco P., Rougeau P. (2006) « A performance test to estimate durability of concrete products exposed to chemical attacks », *Proceedings of the 2nd FIB Congress*, June 5-8, 2006.
- Sahmaran M., Kasap O., Duru K., Yaman I.O. (2007) « Effects of mix composition and water-cement ratio on the sulfate resistance of blended cements » *Cement and Concrete Composites*, vol. 29, n° 12, p. 159-167.
- Moon H.Y., Kim H.S., Choi D.S. (2006) « Relationship between average pore diameter and chloride diffusivity in various concretes » *Construction and Building Materials*, vol. 20, p. 725-732.