Approche multi-échelles pour modéliser la pénétration des ions chlorure dans le béton

Thai Quang Nguyen* - Véronique Baroghel-Bouny* Patrick Dangla **

* Laboratoire Central des Ponts et Chaussées 58 boulevard Lefèbvre, F-75732 Paris Cedex 15

thai-quang.nguyen@lcpc.fr

** Laboratoire des Matériaux et Structures du Génie Civil 2 allée Kepler, F-77420 Champs sur Marne

RÉSUMÉ. La corrosion induite par les ions chlorure est un risque majeur pour les structures en béton armé. Il est alors nécessaire de décrire la pénétration des chlorures par des modèles basés sur des paramètres physico-chimiques fondamentaux et non sur des paramètres empiriques. Dans une première phase, nous proposons dans cet article une prédiction du coefficient de diffusion effectif en utilisant une méthode d'homogénéisation. Ces estimations dépendent des paramètres morphologiques de la microstructure, qui représente la géométrie du domaine occupé par la phase diffusante. La comparaison des coefficients de diffusion calculés par la méthode proposée avec ceux obtenus expérimentalement montre une bonne cohérence permettant de valider cette méthode. Dans une deuxième phase, un modèle multiespèces pour prédire la pénétration des ions chlorures dans le béton est proposé, qui prend en compte quatre espèces ioniques principales dans la solution interstitielle. La pénétration des ions est modélisée en résolvant le système d'équations de Nernst-Planck/Poisson. Finalement, le modèle est validé en comparant les simulations numériques aux résultats expérimentaux obtenus sur différents matériaux testés.

ABSTRACT. Chloride-induced corrosion is a major challenge for reinforced concrete structures. It is then of crucial importance to describe chloride penetration through models based on fundamental physical-chemical relationships, thus avoiding the use of empirical parameters. The present papers propose to predict the effective diffusion coefficient by using the homogenization method. These estimates depend on the morphological parameters of the microstructure which represent the geometry of the domain occupied by the phase in which the diffusion process takes place. The comparison of the proposed theory with the test data exhibits reasonably a good correlation. Furthermore, a multi-species model has been developed, which takes into account four ionic species in the pore solution, along with their influence on chloride diffusion. The diffusion of the ions is modelled by solving the Nernst-Planck/Poisson set of equations. Finally, the model is validated by comparing the numerical simulations with experimental results obtained on various types of materials.

MOTS-CLÉS : durabilité, diffusion, chlorures, béton, homogénéisation, modélisation.

KEYWORDS: durability, diffusion, chloride ions, concrete, homogenization, modelling.

Revue. Volume X – n° x/année, pages 1 à X

1. Introduction

La durabilité des ouvrages en béton armé est liée à la pénétration d'agents agressifs tels que les ions chlorure qui contribuent à la corrosion des armatures. Les ions chlorures pénètrent dans le béton selon des processus qui fait intervenir la diffusion. Le coefficient de diffusion des ions chlorure est donc un paramètre fondamental de la durabilité du béton armé. L'évaluation de ce paramètre peut notamment aider au choix de formules de béton adaptées à l'environnement considéré ou contribuer au diagnostic d'ouvrages existants (Baroghel-Bouny et al., 2004a). Malheureusement, il n'existe pas encore de méthode d'essai normalisée pour déterminer ce coefficient de diffusion ; la mesure présente des difficultés. Dans la première phase de cette étude, une méthode d'homogénéisation pour prédire le coefficient de diffusion des ions chorure dans le béton est proposée. Ces estimations dépendent des paramètres morphologiques de la microstructure (zone d'interface entre les granulats et la pâte de ciment, microstructure de la pâte de ciment, morphologie des granulats), qui représentent la géométrie du domaine occupé par la phase diffusante. Une stratégie de simulation utilisant une approche multi-échelles est utilisée. La microstructure du béton est homogénéisée sur les différentes échelles (gel C-S-H, pâte de ciment, mortier, béton) avec l'utilisation des connaissances d'une échelle inférieure dans l'échelle supérieure. Un exemple de calcul est présenté, les résultats numériques sont ensuite comparés avec les données expérimentales.

Dans la deuxième phase, un modèle multi-espèces pour modéliser le processus de pénétration des ions chorure dans le béton saturé est développé. Ce modèle peut prendre en compte les principaux ions présents dans la solution interstitielle ainsi que leur influence sur le transfert des ions chorure. Les interactions ions-matrice considérées dans le modèle sont décrites par une isotherme d'interaction de type Freundlich (Bigas, 1996). Le système de l'équation de Poisson et des équations de conservation de la masse sont implémentés et résolus par la méthode de volume finis. Les coefficients de diffusion effectifs des ions estimés par la méthode d'homogénéisation proposée sont introduits dans le modèle comme paramètres d'entrée pour prédire des profils de concentration en chlorure. Ces profils numériques seront comparés aux résultats expérimentaux des essais de diffusion en régime non stationnaire menés en laboratoire sur pâte de ciment, mortier et béton.

2. Estimation du coefficient de diffusion par des méthodes d'homogénéisation

Considérons la diffusion des ions chorure à travers une solution. La diffusion devient différente lorsque cette solution est contenue dans les pores d'un milieu poreux, en raison de la géométrie de ces pores et donc de la tortuosité du milieu. Dans ce paragraphe, nous présentons des méthodes pour déterminer la tortuosité d'un milieu poreux. Les bétons sont des matériaux très complexes, ils comprennent des constituants aux propriétés différentes : eau interstitielle, matrice cimentaire, sable et granulat. Une analyse du coefficient de diffusion des ions chorure à différentes échelles est proposée pour étudier la propriété particulière de chaque échelle (cf. Fig.1). Tout d'abord, à l'échelle de la pâte, l'influence du degré d'hydration du ciment, du type de ciment et de la porosité capillaire sur le coefficient de diffusion des ions chorure a été étudiée. Ensuite, à l'échelle du mortier, l'effet de la présence des granulats de forme sphérique (sable) et de la zone de transition sur le coefficient de diffusion a été considéré. Finalement, à l'échelle du béton, la forme des granulats a été prise en compte.



Figure 1. Stratégie d'homogénéisation utilisée dans les simulations numériques.

2.1. Coefficient de diffusion effectif des ions chorure dans la pâte de ciment

La pâte de ciment peut être considérée comme un milieu biphasique qui se compose de deux phases : pore capillaire et phase solide (C-S-H, porlandite, produits non hydratés). Par conséquent, les coefficients de diffusion effectifs des ions chorure à travers une pâte de ciment Porland hydratée peuvent être calculés par la théorie composée. La diffusion des ions chorure dans la solution interstitielle et dans le gel C-S-H a été étudiée. Premièrement, à l'échelle du gel, le gel C-S-H, les grains de ciment non hydratés et les cristaux de portlandite ont été considérés, les deux derniers ne sont pas perméables. Pour déterminer le coefficient de diffusion des ions à travers ce mélange D_s , une méthode d'homogénéisation utilisant l'équation de Maxwell a été appliquée (Dormieux et al., 2000), avec des inclusions de grains de ciment non hydratés et de cristaux de portlandite :

$$D_{s} = D_{g} \frac{V_{\rm CSH}}{V_{\rm CSH} + 3(V_{CH} + V_{CM})}$$
[1]

dans laquelle, V_{CSH} , V_{CH} et V_{CM} sont les fractions volumiques des phases de C-S-H, de porlandite et de ciment non hydraté respectivement, qui sont calculées en fonction du degré d'hydratation du ciment. Ces valeurs numériques sont calculées selon la formule du matériau et un modèle d'hydratation (Mounanga, 2004 ou Papadakis et al., 2000 en présence d'additions minérales). D_{g} est le coefficient de diffusion des

4 Revue. Volume X – n° x/année

ions chorure dans le gel C-S-H. Dans le cas des ciments Portland, Bentz et al. dans (Bentz et al., 2000) a proposé une valeur pour D_g ($D_g = 4.6 \times 10^{-12} \text{ m}^2/\text{s}$) qui correspond à 1/400 du coefficient de diffusion des ions chorure dans l'eau.

Deuxièmement, pour prendre en compte l'influence de la porosité capillaire ϕ sur le coefficient de diffusion des ions chorure à travers une pâte de ciment D_P , la théorie de la percolation a été appliquée en utilisant la solution analytique cidessous (Oh et al., 2003) :

$$D_{p}(\phi) = D_{o} \left(m_{\phi} + \sqrt{m_{\phi}^{2} + \frac{\phi_{c}}{1 - \phi_{c}} \left(\frac{D_{s}}{D_{o}} \right)^{1/n}} \right)^{n}$$

$$\text{avec} \qquad m_{\phi} = \frac{1}{2} \left[\left(\frac{D_{s}}{D_{o}} \right)^{1/n} + \frac{\phi}{1 - \phi_{c}} \left(1 - \left(\frac{D_{s}}{D_{o}} \right)^{1/n} \right) - \frac{\phi_{c}}{1 - \phi_{c}} \right]$$

$$(2)$$

Dans l'expression [2], ϕ_c est le seuil de percolation, n est la puissance de percolation. Bentz et al. dans (Bentz et al., 1991) ont proposé une valeur de $\phi_c = 0,18$ en se basant sur les résultats du modèle d'hydratation par analyse d'images 3D. D'après Oh dans (Oh et al., 2003) n = 2,7 pour les pâtes de ciment Portland et n = 4,5 pour les pâtes de ciment additionnées de fumée de silice.

2.2. Coefficient de diffusion effectif des ions chorure dans le mortier

Le mortier est un matériau hétérogène constitué de sable et de pâte de ciment. Il existe à l'interface entre les grains de sable et la pâte de ciment une zone nommée «auréole de transition » ou « zone d'interface » qui a une structure et une texture différentes de celles de la pâte de ciment. La porosité de la zone d'interface est plus importante que celle de la pâte (Bourdette et al., 1995). Les zones d'interface constituent donc des chemins préférentiels pour la pénétration des agents agressifs tels que les ions chorure. À notre connaissance, il n'existe malheureusement pas dans la littérature de théorie pour prendre en compte l'influence de la présence des zones d'interface sur la diffusion des ions chorure dans le mortier. Pour simplifier le problème, nous avons supposé que la zone d'interface avait une épaisseur constante autour du grain de sable. Cette zone est caractérisée par une porosité ϕ_{IZT} qui est calculée en fonction de la porosité de la pâte de ciment ϕ_P selon la formule :

$$\phi_{IZT} = 1.5 \div 2.5 \phi_p \tag{3}$$

dans laquelle les valeurs de 2,5 et de 1,5 sont proposées par Garboczi et al. (Garboczi et al., 1998), et Bourdette et al. (Bourdette et al, 1995) respectivement. L'équation [2] peut être utilisée pour calculer le coefficient de diffusion des ions chorure dans la zone d'interface D_{IZT} en fonction de la porosité de la zone d'interface:

Approche multi-echelles 5

$$D_{IZT} = D_p(\phi_{IZT})$$
^[4]

Cette formule conduit à des valeurs du même ordre de grandeur que celles obtenues expérimentalement par Bigas (Bigas, 1996) et par Shane et al. (Shane et al., 2000). D'après Garboczi dans (Garboczi et al., 1998), l'épaisseur de la zone d'interface t_{ITZ} dépend du diamètre minimum des grains, qui est dans ce cas le diamètre d'un grain de ciment. Scrivener dans (Scrivener et al., 1996) a proposé une épaisseur de 20 µm sur la base de ses observations.

En appliquant le modèle de Hashin (Hashin, 2001) pour calculer le coefficient de diffusion équivalent D_{ITZs} à travers une sphère composite qui est formée d'un noyau sphérique de coefficient de diffusion nul (sable) et une zone d'interface, nous obtenons :

$$D_{IZTs} = 2\nu D_{ITZ}$$
^[5]

dans laquelle $v = 2t_{ITZ}/d$ est le rapport entre l'épaisseur de la zone d'interface t_{ITZ} et le rayon du grain de sable d/2. Il est donc nécessaire de déterminer un diamètre équivalent d pour tous les grains de sable homogénéisés. Ce diamètre est déterminé à partir des équations de conservation du volume de chaque phase de sable V_{agg} et de zone d'interface V_{ITZ} comme suit:

$$V_{agg} = N \frac{4\pi}{3} \left(\frac{d}{2}\right)^3; \qquad V_{ITZ} = N \frac{4\pi}{3} \left[\left(\frac{d}{2} + t_{ITZ}\right)^3 - \left(\frac{d}{2}\right)^3 \right]$$
[6]

où *N* est le nombre des grains de sable homogénéisés par m^3 de mortier. Ce système d'équations est complété par l'équation suivante proposée par Garboczi et al. (Garboczi et al., 1998) pour calculer le volume de la zone d'interface V_{ITZ} :

$$V_{ITZ} = 1 - e_V \left(t_{ITZ} \right) - V_{agg}$$
^[7]

Maintenant, le mortier peut être considéré comme un mélange bi-phasique formé d'un milieu homogène (la pâte de ciment homogénéisée) et d'inclusions sphériques de diamètre constant (les sables homogénéisés). Un autre modèle proposé par Hashin (Hashin, 1962) a été utilisé pour déterminer le coefficient de diffusion des ions dans le mortier D_M comme suivant, avec V_{aggs} est le volume des grains de sable homogénéisés ($V_{aggs} = V_{agg} + V_{ITZ}$).:

$$D_{M} = D_{P} \left(1 + \frac{3V_{aggs} (D_{ITZs} - D_{P})}{3D_{P} + (1 - V_{aggs}) (D_{ITZs} - D_{P})} \right)$$
[8]

Un exemple de calcul sur différents mortiers constitués d'une même pâte de ciment mais de différentes tailles et fractions volumiques de sable est présenté dans

le tableau 1. Les caractéristiques des matériaux sont reportées dans l'article de Caré (Caré, 2003). Une comparaison entre les valeurs calculées par le modèle triphasique présenté ici et mesurées par Caré (Caré, 2003) des coefficients de diffusion des ions chorure est présentée dans le tableau 1. Une bonne concordance est notée. L'écart entre théorie et expérience dans le cas de la pâte de ciment est plus important que celui dans le cas du mortier. L'explication est que, dans le cas de la pâte, la porosité est le facteur dominant pour calculer le coefficient de diffusion. Un écart éventuel entre le calcul et la réalité va avoir une influence importance sur le coefficient de diffusion. Dans le cas du mortier, la présence de la zone d'interface est susceptible de diminuer cette influence. De façon évidente, plus il y a de sable dans le mortier, plus ce dernier est résistant à la pénétration des chlorures. D'où l'intérêt de travailler sur l'optimisation des courbes granulaires pour minimiser la quantité de pâte du mélange.

Matériaux	Р	M1C	M2C	M2M	M1F	M2F
α (%)	81,1	83,5	68,8	81,2	86,2	77,9
φ _{cap} (%)	18,6	14,9	11,0	12,0	16,2	13,0
V _{ITZ} (%)	-	1,8	3,6	10,3	8,0	15,4
V_{agg} (%)	-	25,0	50,0	50,0	25,0	50,0
t _{ITZ} (μm)	-	20	20	20	20	20
d (mm)	1	1,71	1,71	0,62	0,41	0,43
$N \times 10^9$	-	0,10	0,19	3,99	6,80	12,25
$D_s (\times 10^{-14} \text{ m}^2/\text{s})$	40	40	30	40	40	35
V _p (%)	100	73,2	46,4	39,7	67,0	34,6
φ _{ITZ} (%)	27,9	29,4	31,9	32,6	30,8	33,8
φ _P (%)	18,6	19,6	21,2	21,8	20,5	22,5
$D_P (\times 10^{-12} \text{ m}^2/\text{s})$	6,42	7,57	8,47	10,52	8,68	11,14
D_{ITZ} (×10 ⁻¹¹ m ² /s)	24,99	30,39	37,87	44,26	35,63	48,91
D _{ITZs} (×10 ⁻¹² m ² /s)	-	1,42	1,78	5,70	6,91	9,16
$D_{\text{calculé}}$ (×10 ⁻¹² m ² /s)	6,42	5,51	4,38	7,43	8,07	9,82
$D_{\text{mesuré}}$ (×10 ⁻¹² m ² /s) (Caré, 2003)	5,65	5,40	4,80	7,40	8,10	9,50

Tableau 1. *Exemple numérique de l'application du modèle triphasique pour prédire le coefficient de diffusion des ions chorure.*

2.3. Coefficient de diffusion effectif des ions chorure dans le béton



Figure 2. Structure en béton. Séparation des échelles et notations.

Le béton est considéré comme un mélange d'une matrice homogène de mortier perméable et des granulats imperméables. Le processus d'homogénéisation est similaire à celui du cas des mortiers. Cependant, puisque la diffusion des ions dans le béton est fortement influencée par la morphologie des granulats, il est nécessaire d'améliorer la méthode utilisée pour la prendre en compte. Une étude asymptotique formelle a été utilisée, basée sur la méthode des échelles multiples. Une modélisation macroscopique du phénomène de diffusion peut être développée à partir d'un changement d'échelles, sur la base d'une hypothèse de morphologie périodique du réseau poreux (Dormieux et al., 2000). L'idée principale du processus d'homogénéisation est le passage d'une description du phénomène de l'échelle microscopique (l'échelle du VER), où les équations gouvernant le processus de diffusion des ions sont établies, au problème équivalent à l'échelle macroscopique qui donne le comportement moyen du milieu. Dans notre contexte, le béton est considéré à l'échelle microscopique, comme un milieu à deux phases : la matrice en mortier homogène perméable et les granulats imperméables. L'hypothèse fondamentale est l'existence d'un VER du milieu considéré qui soit suffisamment petit par rapport à l'échelle macroscopique (Auriault et al., 1996). Cette condition est équivalente à une séparation d'échelle.

Dans un milieu périodique aléatoire, le VER représente la cellule périodique élémentaire du milieu. *l* désigne la longueur caractéristique du VER ou de la cellule périodique élémentaire à l'échelle microscopique. *L* est la longueur caractéristique de l'échelle macroscopique. La séparation d'échelle est assurée par une variable ε qui définie par le rapport entre la taille du VER et celle de l'échelle macroscopique est très petite. Considérons un volume élémentaire Ω (Fig. 2), Ω_m et Ω_a sont les volumes de mortier et de granulat respectivement. Γ_a est la frontière entre les granulats et la matrice. Deux variables *x* (variable à l'échelle macroscopique) et *y* = x/ε (variable à l'échelle microscopique au niveau de la cellule périodique élémentaire) ont été utilisées. La solution du problème de diffusion est écrite sous forme d'un développement asymptotique, puis introduite dans les équations décrivant le même phénomène à l'échelle microscopique. On en déduit la formule suivante du coefficient de diffusion homogénéisé à l'échelle macroscopique :

$$D_B^{ij} = D_M \tau_{ij}$$
 où $\tau_{ij} = \frac{D_M}{\Omega} \int_{\Omega_M} \left(\delta_{ij} + \frac{\partial w_i}{\partial y_j} \right) d\Omega$ [9]

dans laquelle, D_B^{ij} sont les composantes du tenseur de coefficient de diffusion des ions chorure dans le béton. $w_k(y)$ est la solution des équations suivantes:

$$\frac{\partial}{\partial y_i} \left[\left(\delta_{ik} + \frac{\partial w_k}{\partial y_i} \right) \right] = 0 \quad \text{dans } \Omega_{\text{m}} \quad \text{et } N_i \left[\left(\delta_{ik} + \frac{\partial w_k}{\partial y_i} \right) \right] = 0 \quad \text{sur } \Gamma_{\text{a}} \quad [10]$$

où N_i sont les composantes du vecteur normal unitaire de Γ_a . Ces équations ont été résolues par la méthode des éléments finis. La solution $w_k(y)$ dépend de la distribution des granulats dans le volume élémentaire (cf. Fig. 3a et 3b).

Un exemple de calcul est présenté dans ce qui suit. En supposant que la taille maximum des granulats est de 10*mm*, la taille du volume élémentaire représentatif est supérieure ou égale à 5 fois cette taille. Trois morphologies différentes de granulat (sphérique, triangulaire et rectangulaire) ont été étudiées. Pour chaque forme de granulat, trois fractions volumiques des granulats dans le béton ont été étudiées (0,3; 0,4 et 0,5). Les figures 3a et 3b représentent également les valeurs des composantes w_1 et w_2 du vecteur w pour les trois formes de granulats. Les composantes du tenseur de tortuosité sont calculées par un programme aux éléments finis en utilisant l'équation [9]. Par exemple, les tenseurs de tortuosité pour les morphologies circulaire et triangulaire se calculent :

$$\tau_{\text{circulaire}} = \begin{bmatrix} 0,324 & 5,6\times10^{-3} \\ 5,6\times10^{-3} & 0,310 \end{bmatrix} \qquad \tau_{\text{triangulaire}} = \begin{bmatrix} 0,259 & 3,2\times10^{-3} \\ 3,2\times10^{-3} & 0,247 \end{bmatrix}$$
[11]

L'observation du résultat [11] montre que, d'une part, les termes diagonaux du tenseur de tortuosité sont très grands par rapport aux autres termes. Le tenseur de tortuosité est donc presque diagonal. Cela peut être expliqué par le fait que les granulats sont aléatoirement distribués dans le béton, il n'y a aucune direction privilégiée de tortuosité dans le matériau. Par conséquent, pour différentes morphologies, il a été choisi de prendre la valeur moyenne des diagonales comme valeur de tortuosité du milieu. La figure 3c représente les valeurs de tortuosité τ pour différentes fractions volumiques des granulats. D'autre part, il est montré que la tortuosité dans le cas des granulats triangulaires est 25% plus faible que la tortuosité dans le cas des granulats circulaires.



Figure 3. Distribution des granulats dans le volume élémentaire (faction volumique de 50%). Résultas numériques obtenus sur différentes formes de granulats.

3. Modélisation de la pénétration des ions chorure dans un matériau cimentaire

Les ions sont des particules chargées électriquement qui interagissent sous l'action de forces électrostatiques. Les ions en solution n'ont en effet pas tous la même mobilité. Ceci implique que pour préserver l'électroneutralité, les ions qui se déplacent rapidement sont ralentis par les ions les plus lents et inversement, le mouvement de ces derniers étant accéléré par les ions les plus rapides. La pénétration des chlorures dans le béton est modélisée par un modèle multi-espèces qui tient compte des ions principaux dans la solution interstitielle (Cl⁻, OH⁻, Na⁺, K⁺). Le transport de chaque ion est décrit par l'équation de Nernst-Planck à l'échelle macroscopique avec des paramètres calculés à la même échelle (Samson et al., 1999; Truc et al., 2000) :

$$J_{i} = -D_{i} \left[\operatorname{grad} c + \frac{c_{i} z_{i} F}{RT} \operatorname{grad} \psi \right]$$
[12]

dans laquelle c_i est la concentration de l'espèce i, ψ le potentiel électrique local créé par les autres ions, F la constante de Faraday, R la constante des gaz parfaits, T la température absolue, z_i la valence ionique et D_i le coefficient de diffusion effectif de l'espèce i. Ces coefficients sont estimés par les techniques d'homogénéisation présentées en section 2.

La prédiction du profil de concentrations en chlorures à travers le béton se fait à partir de la loi de conservation de la masse. Pour compléter le système d'équations, une autre relation est nécessaire pour prendre en compte le potentiel électrique provoqué par les différentes mobilités des ions. La valeur numérique de ce potentiel est déterminée à partir de l'équation de Poisson :

$$\operatorname{div}(\operatorname{grad}\psi) + \frac{F}{\varepsilon} \left(\sum_{i=1}^{i=N} z_i c_i\right) = 0$$
[13]

Après pénétration dans le matériau poreux, les ions chlorure peuvent se fixer sur la matrice par adsorption sur les parois solides (C-S-H) ou par réaction chimique avec certains composés du ciment pour donner un nouveau produit chimique (le sel de Friedel). Ici, ces interactions complexes ions-matrice sont décrites par une isotherme non linéaire de type Freundlich (Bigas, 1996; Francy, 1998).

Le principe consiste à résoudre, par la méthode des volumes finis, un système d'équations établi à partir de la loi de la conservation de la masse pour chacune des espèces ioniques et à partir de l'équation de Poisson, permettant le couplage des différents flux ioniques. Soulignons que le rapport du coefficient de diffusion d'un ion *i* sur celui de l'ion chlorure dans le milieu poreux est égal à ce rapport dans la solution diluée : $D_i/D_{Cl} = D_i^o/D_{Cl}^o$.

4. Exemple numérique et comparaison avec les résultats expérimentaux

Le modèle est testé sur trois matériaux : pâte de ciment CN, mortier MN1 et béton BO (E/C = 0.5; 0.43; 0.49 respectivement) préparés avec un même ciment CEMI-52.2. Le premier paramètre d'entrée du modèle, l'isotherme d'interaction ions-matrice, est déterminée par l'essai d'immersion selon (Tang et al., 1993). Les courbes obtenues par Chaussadent et al. (Chaussadent et al., 2000) pour CN et MIN sont présentées sur la figure 4. Nous avons supposé que la présence des granulats n'avait pas d'influence sur la capacité de fixation des ions chorure sur la matrice cimentaire. Les résultats présentés sur la figure 4 confirment cette supposition.

En traçant la quantité des chlorures fixés sur la teneur en ciment dans le matériau en fonction de la concentration en chlore libre. les courbes d'interaction obtenues sur le mortier et sur la pâte de ciment se coincïdent. Par conséquent, la courbe d'isotherme d'interaction du béton peut être déterminée en multipliant celle de la pâte de ciment avec la fraction massique de ciment dans le béton. Le deuxième paramètre d'entrée, le coefficient de diffusion effectif des ions chorure, est estimé selon



Figure 4. Isotherme d'interaction ions-matrice

la méthode d'homogénéisation proposée et basant sur la formule du matériau. Pour prendre en compte de la morphologie des granulats, ce coefficient est pris égal au moyen des coefficients de diffusion obtenus sur les granulats de forme circulaire et de forme triangulaire. Une valeur de coefficients de diffusion calculée de cette façon sur le béton BO de $1,35 \times 10^{-12}$ m²/s a été obtenue, ce qui concorde bien avec celle obtenue expérimentalement par Baroghel-Bouny et al. (D_{CI} = $1,24 \times 10^{-12}$ m²/s) dans (Baroghel-Bouny et al., 2004b). Avec les paramètres d'entrée déterminés, le modèle multi-espèces a été utilisé pour simuler l'essai de diffusion en régime non-stationnaire. Les résultats obtenus sont ensuite comparés avec les données expérimentales dans la littérature (cf. Fig. 5). La concordance théorie-expérience valide le modèle proposé.

5. Conclusions

Nous avons proposé dans cette étude une méthode pour prédire le coefficient de diffusion des ions chorure dans le béton. L'approche proposée peut prendre en compte de la présence des granulats, de leur morphologie et de la microstructure du

béton y compris des pores capillaires, des produits hydratés du ciment (C-S-H et porlandite) et les zones d'interface. Dans une deuxième phase, un modèle multiespèces pour modéliser la pénétration des ions chorure dans le béton a été proposé, qui peut prendre en compte des interactions électrostatiques ions-ions et les interactions entre les ions et la matrice cimentaire. En utilisant le coefficient de diffusion des ions estimé comme un paramètre d'entrée, le modèle multi-espèce permet de prédire les profils de concentration en chlore dans le béton à un instant précis ou de simuler des essais de diffusion en laboratoire. Par conséquent, ce modèle peut être considéré comme un outil efficace pour l'estimation de la durée de vie des ouvrages en béton armé. Le modèle proposé a été validé sur les données expérimentales obtenues dans la littérature.



Figure 5. Profils de concentration en chlore totaux. Comparaison entre théorie et expérience sur: (a) pâte de ciment CN (Caré et al., 2000) ; (b) mortier MN1 (Francy, 1998) ; (c) béton BO (Baroghel-Bouny et al., 2004b)

6. Bibliographie

- Auriault J. L, Lewandowska J., (1996), Diffusion, adsorption, advertion in porous media: homogenization analysis, Eur. J. Machanics. 15(4) 681-704.
- Baroghel-Bouny V., et al. (2004a) Conception des bétons pour une durée de vie donnée des ouvrages - Maîtrise de la durabilité vis-à-vis de la corrosion des armatures et de l'alcaliréaction - Etat de l'art et guide pour la mise en ouvre d'une approche performantielle et prédictive sur la base d'indicateurs de durabilité, Documents Scientifiques et Techniques de l'Association Française de Génie Civil (AFGC, Bagneux), 252 p.
- Baroghel-Bouny V., Belin P., Castellote M., Rafaï N., Rougeau P., Yssorche-cubaynes M.P. (2004b), Which toolkit for durability evaluation as regards chloride ingress into concrete? Part I: Comparison between various methods for assessing the chloride diffusion coefficient of concrete in saturated conditions, in Proceedings of the 3rd Int. RILEM Workshop "Testing and modelling chloride ingress into concrete", sept. 9-10, 2002, Madrid, Spain (Ed. by C. Andrade &J. Kropp, RILEM Publ), PRO 38, pp 105-136.
- Bentz D. P, Jensen O.M. (2000), Influence of silica fume on diffusivity in cement-based materials, Cem. Concr. Res. 30, pp. 953-962.
- Bigas, J.P. (1996), La diffusion des ions chlore dans les mortiers, PhD thesis, Génie civil, Toulouse, (in French).
- Bourdette B., Ringot E., Ollivier J.P. (1995), Modelling of the transition zone porosity, Cem. Concr. Res. 25, p. 741-751.
- Care S., Richet C. et Lovera P., (2000) Transferts dans les bétons et durabilité des ouvrages. Détermination du coefficient de diffusion effectif des ions chlorure dans les pâtes de ciment en régimes transitoire et permanent. Rapport LCPC / CEA (Thème de Recherche OA9 - Sujet n° 3 - Programme 3.1), 35 p.
- Caré S. (2003), Influence of aggregates on chloride diffusion coefficient into motar, Cem. Concr. Res. 33, p. 291-299.
- Chaussadent T., Baroghel-Bouny V., Care S., Perrin B., Bonnet S., François R., Franço O., (2000), Transferts dans les bétons et durabilité des ouvrages. Analyse des interactions physico-chimiques entre les chlorures et le béton, Thème de Recherche OA9 Sujet n° 3 Programme 3.1, Rapport de synthèse LCPC/LETHEM/LMDC, 41 p.
- Dormieux L., Lemarchand E. (2000), Modélisation macroscopique du transport diffusif, Oil & Gas Science and Technology, 55, p. 15–34.
- Francy, O. (1998), 'Modélisation de la pénétration des ions chlorures dans les mortiers partiellement saturé en eau', PhD thesis, Génie civil, Paul Sabatier, Toulouse, (in French).
- Garboczi E.J., Bentz D. P (1998), Multi-scale analytical/numerical theory of the diffusivity of concrete, Adv. Cem. Based Mater, 8, pp. 77–88.
- Hashin Z., Shtrikman S. (1962), A variational approach to the theory of the effective magnetic permeability of multiphase materials, J. Appl. Phys., pp. 3125-3131.
- Hashin Z. (2001), Thin interphase/imperfect interface in conduction, J. Appl. Phys., p. 2261-2267.

- Mounanga, P., Khelidj, A., Loukili, A., Baroghel-Bouny, V. (2004), Prediction Ca(OH)₂ content and chemical shrinkage of hydrating cement pastes using analytical approach, Cem. Concr. Res. 34, p. 255-265.
- Oh B.H., Jang S.Y. (2003), Prediction of diffusivity of concrete based on simple analytic equation, Cem. Concr. Res. 34, pp. 463-480.
- Papadakis, V.G (2000), Effect of supplementary cementing materials on concrete resistance against carbonation and chloride ingress, Cem. Concr. Res. 30, pp. 291-299.
- Samson E., Marchand J., Beaudoin J.J. (1999), Describing ion diffusion mechanisms in cement-based materials using the homogenization technique, Cement and Concrete Research, 29, pp. 1341–1345.
- Shane J.D., Mason T.O., Jennings H.M. (2000), Effect of the interfacial transition zone on the conductivity of Porland cement mortar, J. Am. Ceram. Soc. 83, pp. 1137-1144.
- Tang J.L., Nilsson L.O. (1993), Chloride binding capacity and binding isotherm of OPC paste and motars, Cement and Concrete Research, 23, pp. 247–253.
- Truc, O., Ollivier, J.P., Nilsson, L.O. (2000), 'Multi-species transport in saturated cementbased materials', Proc. of the 2nd RILEM Workshop, RILEM Publ., pp. 247-259.