

99001345

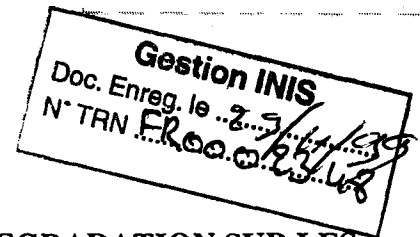
M 634

cea



FR0002348

Congrès Universitaire de Génie Civil
Concours Jeunes Chercheurs 1998



INFLUENCES COUPLEES DE LA FISSURATION ET DE LA DEGRADATION SUR LES TRANSFERTS DANS LES BETONS

Claire Tognazzi **+

* *Laboratoire Matériaux et Durabilité des Constructions, INSA-UPS, Complexe Scientifique de Rangueil, 31077 Toulouse Cedex*

° *C.E.A. Saclay, DCC/DESD/SESD, 91191 Gif-sur-Yvette*

+ *Projet GEO « Modélisation du couplage entre la fissuration d'origine mécanique et la dégradation chimique des bétons employés dans les stockages de déchets nucléaires »*

Introduction

Le béton est un matériau très utilisé dans les stockages de déchets nucléaires. En effet, afin d'isoler les déchets radioactifs tant qu'ils sont potentiellement dangereux, une série de barrières de confinement est interposée entre la biosphère et les déchets : enrobage, conteneur, structure, qui peuvent être en béton, géomembranes et couches d'argile. L'analyse de sûreté d'un tel stockage impose cependant de vérifier la durabilité de chacune des barrières indépendamment des autres, dans l'environnement probable le plus agressif. Dans le cas des stockages de surface, le béton doit avoir une durabilité égale à 300 ans au contact d'une eau de ruissellement peu chargée. Il convient donc de savoir estimer le pouvoir de confinement du béton, dans ces conditions d'agression, sur ces très longues durées largement supérieures à celles considérées habituellement en Génie Civil. Des études précédentes ont permis une bonne connaissance des phénomènes mis en jeu lors de la dégradation, et donc, d'une part la modélisation correcte de la dégradation chimique [ADE 92], [BOU 94], [GER 96], [FAU 97], et d'autre part la mise au point d'un test de dégradation accélérée [CAR 96].

Pour prédire correctement la durabilité de conteneurs en béton, il faut aussi être capable de prendre en compte l'influence de la fissuration sur la dégradation chimique. En effet, une fissuration préexistante du béton est pratiquement inévitable. Elle peut être due, par exemple, au retrait, au transport, à la manutention.

Ainsi, dans une première étape, nous avons étudié l'influence de la fissuration et de la dégradation chimique sur les propriétés de diffusion dans un mortier. Nous présentons ici d'une part la procédure de fissuration des éprouvettes de mortier en compression et les protocoles de dégradation chimique, et d'autre part l'influence de cette fissuration et de la dégradation chimique sur la diffusivité des bétons. Ces expériences s'insèrent dans un plan d'expérience plus complet défini dans le cadre du projet GEO « Modélisation du couplage entre la fissuration d'origine mécanique et la dégradation chimique des bétons employés dans les stockages de déchets nucléaires ».

Matériaux et fissuration

Le mortier étudié est à base de granulats siliceux (quartz) d'Hostun et de ciment Portland CPA CEMI 42,5 d'Origny, avec un rapport E/C de 0,4 et un dosage volumique en granulat voisin de 50 %. Sa dégradation chimique a déjà été étudiée [BOU 94].

La fissuration est créée sur des éprouvettes de diamètre $\phi = 113$ mm et de hauteur $h = 220$ mm par un chargement de compression contrôlé par la mesure de la circonférence de l'éprouvette en partie médiane [TOG 97]. Ceci permet de dépasser le pic d'effort avec un comportement postpic plus stable [GET 96], et de créer ainsi une fissuration importante et traversante.

Nous nous sommes limités à 3 niveaux de chargement en compression : le niveau 0 (témoin non chargé) et 2 niveaux chargés différemment. Le premier niveau chargé, dit PIC correspond au pic d'effort. La fissuration obtenue est diffuse. Le deuxième niveau chargé, dit POSTPIC, se situe après le pic, dans la partie radoucissante du comportement du béton. La fissuration obtenue, visible à l'œil nu, est localisée, ouverte et traversante.

Des plaquettes de 10 mm d'épaisseur sont sciées dans la partie médiane des éprouvettes chargées mécaniquement. Les différentes tranches sont réparties entre les essais de diffusion du matériau non dégradé, et les essais de dégradation après lesquels la diffusivité du matériau est de nouveau mesurée.

Les plaquettes d'un même niveau de chargement présentent un faciès de fissuration identique.

Description des protocoles de dégradation

Le premier protocole permet de reproduire expérimentalement l'environnement probable le plus agressif des bétons d'un centre de stockage : le béton est au contact d'une solution agressive renouvelée - eau presque totalement déminéralisée, de composition constante dans le temps et homogène dans l'espace -. Le montage expérimental est schématisé à la figure 1. Un bullage d'azote permet d'éviter la carbonatation des échantillons. La dégradation obtenue est essentiellement une décalcification de la matrice cimentaire. Les mécanismes et les cinétiques mis en jeu lors de cette altération dite lixiviation simple ont été identifiés : la dégradation est régie par la diffusion dans la solution interstitielle et il y a équilibre chimique local entre les phases solides et la solution interstitielle.

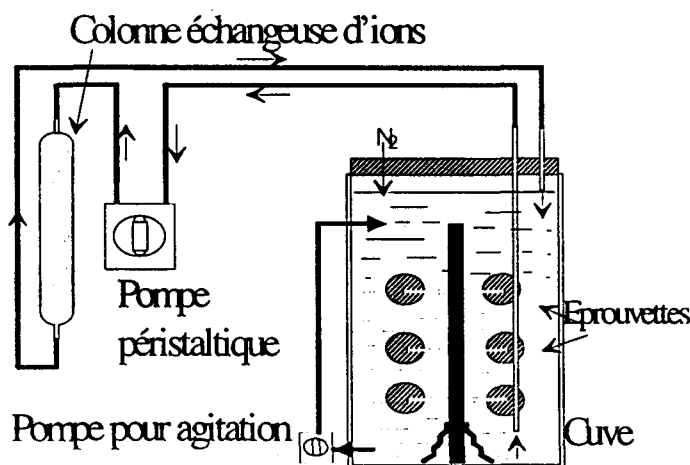


Figure 1 : Montage de lixiviation simple

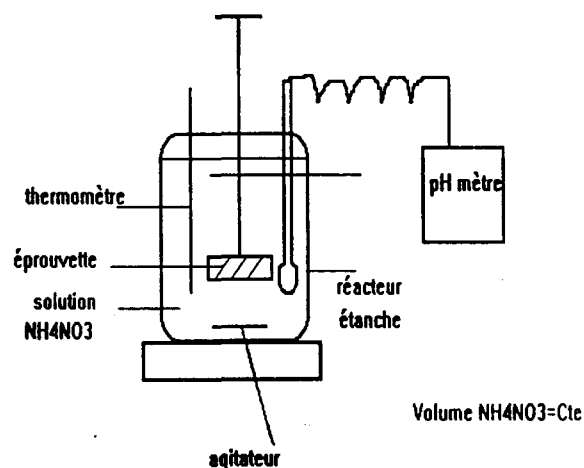


Figure 2 : Montage de dégradation accélérée

Le second protocole est un test de dégradation accélérée : les phénomènes mis en jeu et leur hiérarchie sont les mêmes que dans un essai de lixiviation simple, mais il y a une accélération d'un facteur 100 environ [CAR 96]. La solution agressive est à 6 mol/l de solvant de nitrate d'ammonium NH_4NO_3 . Le pH de cette solution est voisin de 5. La solution est renouvelée avant que le pH n'atteigne 9,5, c'est-à-dire toutes les 24 heures. Le montage expérimental est schématisé à la figure 2.

Afin d'atteindre des épaisseurs dégradées importantes, l'essai de lixiviation simple a été mené pendant 7 mois, et l'essai accéléré au nitrate d'ammonium pendant 4 jours. Les épaisseurs dégradées sont respectivement de 2 mm et 4 mm environ sur chaque face de l'échantillon.

Influence de la fissuration sur la diffusion

L'étude de la diffusion d'une espèce à travers un matériau poreux saturé est réalisée à l'aide de cellules de diffusion qui permettent de créer un gradient de concentration constant entre les deux faces de l'échantillon à étudier. La face amont de l'échantillon est au contact d'une solution à la concentration C_0 et la face aval est au contact d'une solution de concentration nulle. Nous étudions la diffusion de l'eau tritiée, élément qui n'interagit pratiquement pas avec la matrice cimentaire, contrairement à des ions Chlore Cl^- par exemple. La mesure de la quantité cumulée $Q(t)$ de tritium diffusé dans le compartiment aval par unité de section permet de calculer le coefficient de diffusion effectif D_e de l'eau tritiée dans le matériau à partir de la première loi de Fick et de l'équation de conservation de la matière [OLL 96] :

$$\frac{Q(t)L}{C_0} = D_e t - \frac{\alpha L^2}{6} - \frac{2\alpha L^2}{\pi^2} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{(-1)^n}{n^2} \exp\left(-De \frac{n^2 \pi^2 t}{\alpha L^2}\right) \quad [1]$$

avec L = épaisseur de l'échantillon ;

$\alpha = p + (1-p)\rho_s \frac{\partial C_s}{\partial C}$, avec p : porosité du matériau, ρ_s : masse volumique sèche du solide et C_s : concentration en espèces fixées sur le solide rapportée à la masse de solide.

Il est alors possible de calculer le coefficient de diffusion effectif à partir de la pente du régime asymptotique de $Q(t)L/C_0$, mais aussi de simuler numériquement un essai de diffusion dans un matériau fissuré.

En effet, en supposant que le disque fissuré est assimilable à une partie saine de section A entourant une fissure de section S_f , on peut considérer que ces deux éléments sont en parallèle et que les quantités d'espèces diffusées s'additionnent :

$$A \cdot Q(t)_{\text{mortier fissuré}} = A \cdot Q(t)_{\text{mortier sain}} + S_f \cdot Q(t)_{\text{fissure}} \quad [2]$$

Il est donc possible de calculer la section S_f de la fissure en calant les résultats expérimentaux et les simulations numériques de SQL/C_0 (S : section de matériau ou de fissure). On peut aussi retrouver S_f à partir du régime permanent.

Soit D_e : le coefficient de diffusion effectif mesuré sur un disque de mortier sain,

D'_e : le coefficient de diffusion du matériau fissuré,

et D : le coefficient de diffusion de la même espèce dans l'eau.

$$\text{Il vient : } S_f = \frac{A(D'_e - D_e)}{D} \quad [3]$$

La diffusivité a été étudiée sur deux plaquettes de 10 mm d'épaisseur par niveau de chargement. La variation de la quantité SQL/C_0 en fonction du temps pour les différentes éprouvettes est représentée à la figure [3]. La pente des asymptotes permet de calculer le coefficient de diffusion grâce à l'équation [1].

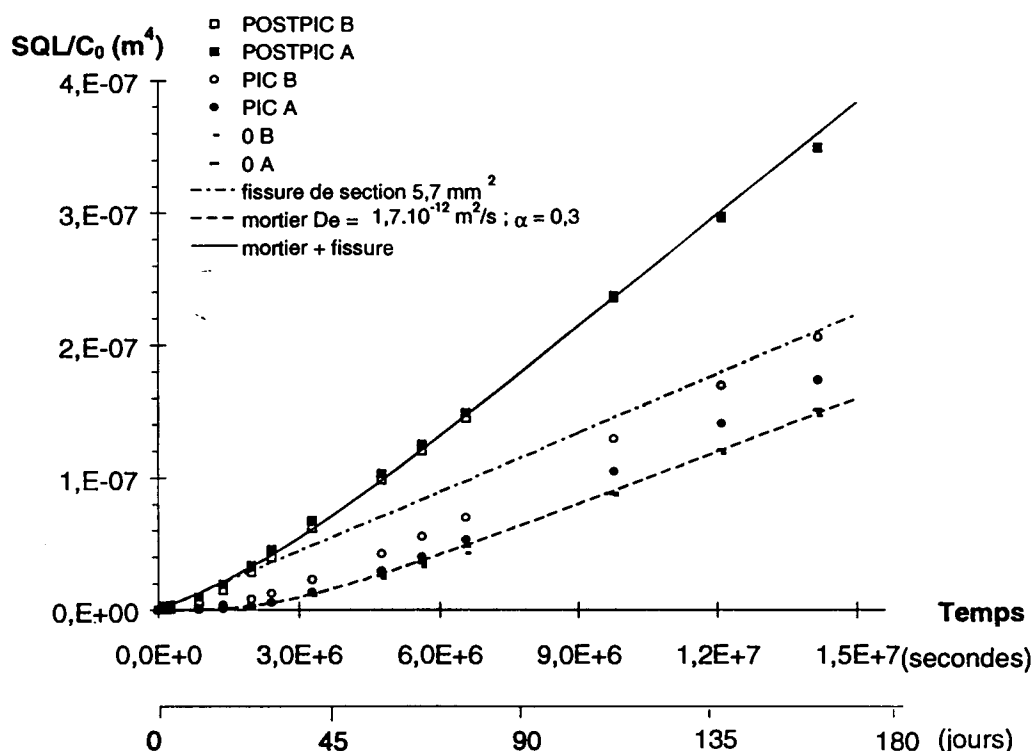


Figure 3. Variation de SQL/C_0 en tritium dans le compartiment aval (en m^4) en fonction du temps dans l'essai de diffusion : Points expérimentaux et courbes simulées numériquement

Le tableau 1 rassemble les coefficients de diffusion mesurés (incertitude relative : 12 % - cf. [RIC 92]), et les sections de fissuration S_f déduites à partir de la relation [3] ou des simulations numériques de l'équation [2] en prenant pour le coefficient de diffusion du tritium dans l'eau $2,2 \cdot 10^{-9} m^2 \cdot s^{-1}$.

On retrouve pour les plaquettes de niveau de chargement nul le coefficient de diffusion effectif mesuré antérieurement sur le même matériau et égal à $1,7 \cdot 10^{-12} m^2 \cdot s^{-1}$ [BOU 94]. On distingue les trois niveaux de chargement. Pour les plaquettes fissurées au niveau POSTPIC, le coefficient de diffusion effectif a été multiplié par un facteur 2, ce qui représente une évolution significative. Le calcul de la section de fissure donne alors $\approx 5,7 mm^2$. Cette valeur cumule les sections de la macrofissure et les sections de toutes les microfissures, en particulier celles créées au PIC.

Niveau de chargement	Numéro d'échantillon	Coefficient de diffusion effectif (en $m^2 \cdot s^{-1}$)	Section de fissuration S_f (mm^2)	Erreur relative sur S_f	D'_e / D_e
0	A	$1,7 \cdot 10^{-12} \pm 2 \cdot 10^{-13}$	0	-	-
0	B	$1,7 \cdot 10^{-12} \pm 2 \cdot 10^{-13}$	0	-	-
PIC	A	$2,2 \cdot 10^{-12} \pm 3 \cdot 10^{-13}$	$1,8 \pm 1,8$	100 %	1,3
PIC	B	$2,0 \cdot 10^{-12} \pm 2 \cdot 10^{-13}$	$1,1 \pm 1,4$	133 %	1,2
POSTPIC	A	$3,3 \cdot 10^{-12} \pm 4 \cdot 10^{-13}$	$5,7 \pm 2,1$	37 %	1,9
POSTPIC	B	$3,3 \cdot 10^{-12} \pm 4 \cdot 10^{-13}$	$5,7 \pm 2,1$	37 %	1,9

Tableau 1. Résultats des essais de diffusion de l'eau tritiée pour différents états de fissuration

Une meilleure interprétation de ces essais sera possible en confrontant les surfaces de fissuration ainsi estimées aux longueurs cumulées de fissures mesurées par analyse d'image [AMM 97]. On pourra ainsi mesurer l'ouverture des microfissures et des macrofissures vis-à-vis du transfert par diffusion. On pourra alors comparer ces "ouvertures efficaces" aux ouvertures estimées par analyse d'image.

Influence de la dégradation sur la diffusion

La modélisation de la dégradation (modèles Diffuzon [ADE 92] et Diffu-Ca [ADE 98] pour la lixiviation simple, validés expérimentalement sur des durées courtes) nécessite d'intégrer les équations d'équilibre aux équations de transport par diffusion. Il faut donc connaître l'évolution du coefficient de diffusion en fonction de la dégradation. Lors de l'altération chimique, la décalcification crée une porosité supplémentaire, et le coefficient de diffusion augmente. Pour les applications numériques des modèles, on utilise des relations empiriques permettant de déterminer les coefficients de diffusion de la zone dégradée à partir de la porosité et de la nature des phases solides présentes. La modélisation fait apparaître que le coefficient moyen de diffusion de la zone dégradée est constant quelle que soit l'épaisseur dégradée. Ainsi, les mesures de coefficient de diffusion après dégradation partielle du matériau peuvent permettre de valider la modélisation de dégradation.

En effet, on peut alors exploiter un modèle de diffusion en série dans des matériaux sains (au cœur) et dégradés (en surface) pour calculer le coefficient de diffusion de la zone dégradée.

Posons D_e le coefficient de diffusion du matériau sain,
 D_{ed} le coefficient de diffusion de la zone dégradée,
 D''_e le coefficient de diffusion du matériau partiellement dégradé.

Avec : l_T : l'épaisseur totale du matériau partiellement dégradé,
 l_d : l'épaisseur de la zone dégradée,

$$\text{il vient : } \frac{l_T}{D''_e} = \frac{l_d}{D_{ed}} + \frac{(l_T - l_d)}{D_e} \quad [4]$$

La sensibilité de cette formule aux épaisseurs dégradées et aux coefficients de diffusion mesurés est telle que seul un ordre de grandeur de D_{ed} peut être donné. Malgré tout, afin d'avoir la meilleure précision possible, on a cherché à avoir les épaisseurs dégradées les plus importantes : après 7 mois de lixiviation simple, l'épaisseur dégradée est d'environ 2 mm par face ; après 4 jours de dégradation accélérée, l'épaisseur dégradée est d'environ 4 mm par face. L'épaisseur totale des plaquettes est de 10 mm.

La variation de la quantité QL/C_0 en fonction du temps pour les différentes éprouvettes est représentée à la figure 4. La pente des asymptotes est directement le coefficient de diffusion.

L'influence de la dégradation sur la diffusion est très nette. Le tableau 2 rassemble les coefficients de diffusion mesurés, et l'ordre de grandeur du coefficient de diffusion de la zone dégradée D_{ed} , estimé à partir de l'équation [4].

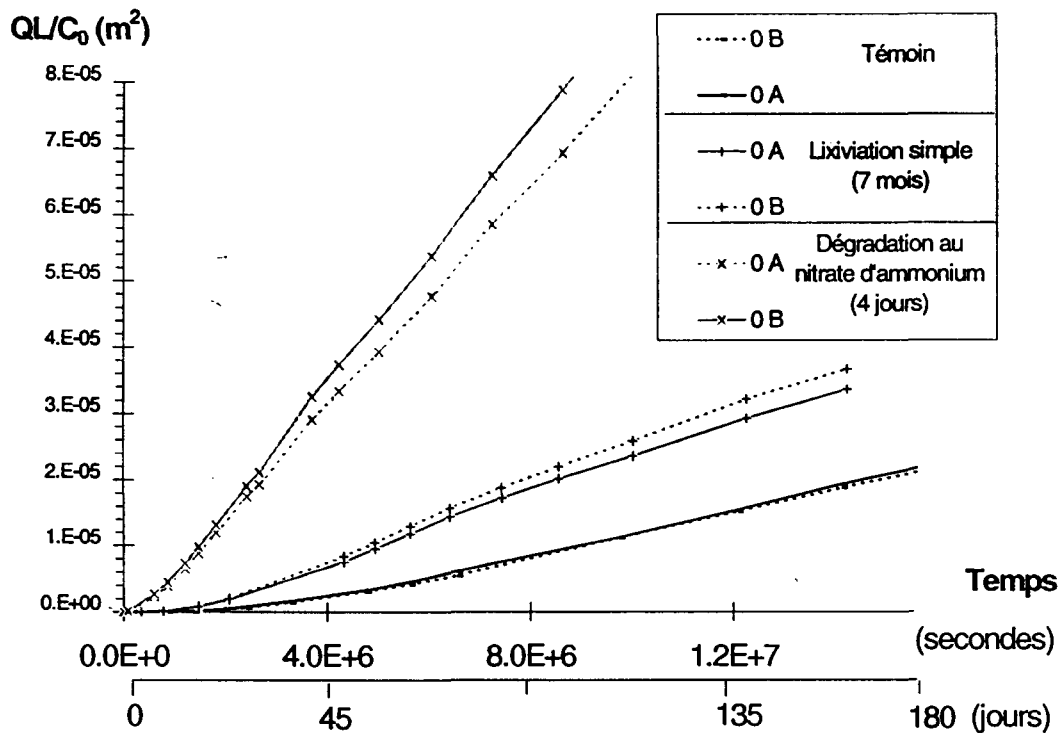


Figure 4. Variation de QL/C_0 en tritium dans le compartiment aval (en m^2) en fonction du temps dans l'essai de diffusion pour différents états de dégradation

Niveau de dégradation (fissuration nulle)	Numéro d'échantillon	Coefficient de diffusion effectif (en $m^2 \cdot s^{-1}$)	D''_e / D_e	Ordre de grandeur de D_{ed} (en $m^2 \cdot s^{-1}$)
0	A	$1,7 \cdot 10^{-12} \pm 2 \cdot 10^{-13}$	1	-
0	B	$1,7 \cdot 10^{-12} \pm 2 \cdot 10^{-13}$	1	-
Lixiviation simple 0	A	$2,5 \cdot 10^{-12} \pm 3 \cdot 10^{-13}$	1,5	10^{-11}
Lixiviation simple 0	B	$2,7 \cdot 10^{-12} \pm 3 \cdot 10^{-13}$	1,6	10^{-11}
Nitrate d'ammonium 0	A	$9,9 \cdot 10^{-12} \pm 1,2 \cdot 10^{-12}$	5,8	$> 2,2 \cdot 10^{-9}$
Nitrate d'ammonium 0	B	$8,8 \cdot 10^{-12} \pm 1,1 \cdot 10^{-12}$	5,2	$> 2,2 \cdot 10^{-9}$

Tableau 2. Résultats des essais de diffusion de l'eau tritiée pour différents états de dégradation

Le coefficient de diffusion est multiplié par 5 pour les éprouvettes dégradées au nitrate d'ammonium. Avec une épaisseur dégradée évaluée à 4 mm sur chaque face, soit 80 % de dégradation, le modèle de diffusion en série conduit à un coefficient de diffusion de la zone dégradée du même ordre de grandeur que celui de la même espèce dans l'eau.

Afin de mieux interpréter ces résultats, il faut mesurer plus précisément l'épaisseur dégradée (au microscope optique par exemple), et réaliser des expériences complémentaires avec différents taux de dégradation, jusqu'à une dégradation "totale" du matériau.

Couplage fissuration - dégradation

La variation de la quantité QL/C_0 en fonction du temps pour les différentes éprouvettes est représentée à la figure 5 (chaque courbe est la moyenne de deux essais). La pente des asymptotes est directement le coefficient de diffusion.

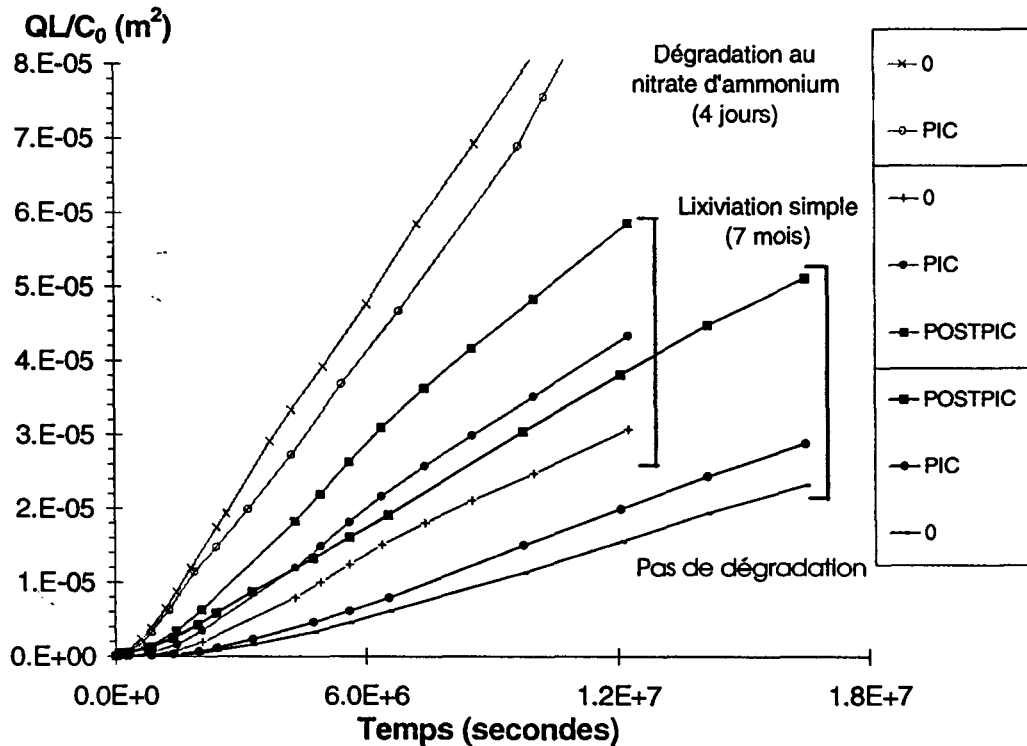


Figure 5. Variation de QL/C_0 en tritium dans le compartiment aval (en m^2) en fonction du temps dans l'essai de diffusion pour différents états de dégradation et de fissuration

Le tableau 3 rassemble les coefficients de diffusion mesurés, et les sections de fissuration S_f déduites à partir de la relation [3], en prenant pour D_e le coefficient de diffusion du matériau dégradé mais non fissuré.

Niveau de dégradation et de fissuration	Coefficient de diffusion effectif (en $m^2.s^{-1}$)	Section équivalente de fissuration S_f (mm^2)	Erreur relative sur S_f
0	$1,7.10^{-12} \pm 2.10^{-13}$	0	-
PIC	$2,1.10^{-12} \pm 2.10^{-13}$	$1,4 \pm 1,4$	100 %
POSTPIC	$3,3.10^{-12} \pm 4.10^{-13}$	$5,7 \pm 2,1$	37 %
Lixiviation simple 0	$2,6.10^{-12} \pm 3.10^{-13}$	0	-
Lixiviation simple PIC	$3,9.10^{-12} \pm 5.10^{-13}$	$4,6 \pm 2,8$	61 %
Lixiviation simple POSTPIC	$5,2.10^{-12} \pm 6.10^{-13}$	$9,2 \pm 3,1$	34 %
Nitrate d'ammonium 0	$9,3.10^{-12} \pm 1,1.10^{-12}$	0	-
Nitrate d'ammonium PIC	$8,0.10^{-12} \pm 1,0.10^{-12}$	0	-

Tableau 3 : Résultats des essais de diffusion de l'eau tritiée pour différents états de dégradation et de fissuration

Alors que la diffusion est sensible à la fissuration, malgré l'incertitude expérimentale, pour les échantillons non dégradés ou partiellement dégradés (jusqu'à 40 % en lixiviation simple), ce n'est plus le cas pour les échantillons fortement dégradés (80 % de dégradation au nitrate d'ammonium). En effet, lorsque le matériau est très fortement dégradé, son coefficient de diffusion est très fort et se rapproche donc de celui de la fissure. Celle-ci n'a donc plus autant d'influence. Son existence peut alors être masquée par les erreurs relatives sur D_e et sur l_d l'épaisseur dégradée.

Conclusion

Des essais de diffusion ont été menés sur des tranches de mortier préalablement fissurées et/ou dégradées chimiquement. Par rapport à des mortiers témoins non dégradés, l'influence d'une fissuration traversante est nette : un modèle de diffusion en parallèle dans le mortier et dans la fissure permet d'expliquer les résultats obtenus et d'évaluer la section de fissuration efficace vis-à-vis de la diffusion. La dégradation chimique du matériau, en créant une porosité supplémentaire par décalcification des hydrates, augmente sa diffusivité. L'influence de la fissuration est alors plus faible et peut être masquée expérimentalement.

Ces résultats expérimentaux, qui doivent être affinés par des mesures plus précises des épaisseurs dégradées et des longueurs de fissuration, peuvent permettre de valider la relation empirique utilisée dans les équations de transport des modèles de dégradation chimique. L'intégration de ces modèles dans un code Eléments Finis est en cours et permettra de prendre en compte la fissuration [TOR 98].

Bibliographie

- [ADE 92] Adenot F., "Durabilité du béton : Caractérisation et modélisation des processus physiques et chimiques de dégradation du ciment", thèse d'Université, Orléans, 1992.
- [ADE 98] Adenot F., Aspart A., "Modélisation de l'influence du débit de renouvellement de la solution agressive sur la cinétique de dégradation d'une pâte de ciment", Sciences des matériaux et propriétés des bétons : Premières rencontres Internationales de Toulouse, 1998.
- [AMM 97] Amouche A., "Quantification de la fissuration des bétons par analyse d'images - Application à différents mécanismes de dégradation", XV Journées de l'AUGC, Strasbourg, 1997.
- [BOU 94] Bourdette B., "Durabilité du mortier; prise en compte des auréoles de transition dans la caractérisation et la modélisation des processus physiques et chimiques d'altération", thèse de l'INSA de Toulouse, 1994.
- [CAR 96] Carde C., "Caractérisation et modélisation de l'altération des propriétés mécaniques due à la lixiviation des matériaux cimentaires", thèse de l'INSA de Toulouse, 1996.
- [FAU 97] Faucon P., "Durabilité du béton : physico-chimie de l'altération par l'eau", thèse de l'Université de Cergy Pontoise, 1997.
- [GER 96] Gérard B., "Contribution des couplages mécanique-chimie-transfert dans la tenue à long terme des ouvrages de stockage des déchets radioactifs", thèse de l'E.N.S. de Cachan, 1996.
- [GET 96] Gettu R., Mobasher B., Carmona S., Jansen D.C., "Testing of concrete under closed-loop control", *Advn. Cem. Bas. Mat.*, vol. 3, p.54-71, 1996.
- [OLL 96] Ollivier J.P., J. Marchand, L.O. Nilsson, "Méthodologie de prévision de la pénétration des ions chlore par diffusion dans le béton", congrès Béton : du matériau à la structure, Arles, 1996.
- [RIC 92] Richet C., "Etude de la migration des radioéléments dans les liants hydrauliques - Influence des vieillissement des liants sur les mécanismes et la cinétique des transferts", thèse de l'Université d'Orsay, 1992.
- [TOG 97] Tognazzi C., Ollivier J-P., Carcasses M., Torrenti J-M., "Couplage fissuration - dégradation chimique des matériaux cimentaires : premiers résultats sur les propriétés de transfert", *GEO*, vol. 2, 1997.
- [TOR 98] Torrenti J-M., Adenot F., Tognazzi C., Danese S., Poyet S., "Application du modèle de dégradation du béton au cas des milieux fissurés et qu couplage avec la mécanique", Sciences des matériaux et propriétés des bétons : Premières rencontres Internationales de Toulouse, 1998.