

Détermination par gammadensimétrie de profils de séchage et de carbonatation dans les bétons

Géraldine VILLAIN
Mickaël THIERY
Pierre ROUSSEL

Laboratoire Central des Ponts et Chaussées

RÉSUMÉ

La gammadensimétrie, fondée sur l'absorption par la matière de rayons gamma, permet d'ausculter des éprouvettes sans les détruire et de suivre l'évolution de leur densité en fonction de la profondeur et par rapport à un état de référence. Dans le domaine de la durabilité du béton, deux phénomènes en particulier conduisent à des variations de masse significatives : les pertes d'eau lors d'un séchage et la fixation de dioxyde de carbone lors de la carbonatation.

La méthode de détermination des profils de séchage et de carbonatation par gammadensimétrie est présentée et l'intérêt en est démontré.

Après une description de cette technique de mesure, on améliore la précision des profils de séchage en tenant compte de la variation du coefficient d'absorption en fonction de la teneur en eau. Le calcul direct de la porosité et du taux de saturation est ensuite présenté. Les profils de carbonatation obtenus pour différents bétons sont enfin validés, par comparaison avec l'analyse thermogravimétrique et la projection d'un indicateur coloré pH-métrique, et analysés.

DOMAINE : Ouvrages d'art.

ABSTRACT

DETERMINATION OF DRYING AND CARBONATION PROFILES WITHIN CONCRETES BY MEANS OF GAMMADENSITOMETRY

The technique of gammadensitometry, based on the phenomenon of gamma-ray absorption by matter, is used to auscultate specimens without their destruction and then monitor the evolution of their density vs. depth and with respect to a reference state. In the area of concrete durability, two phenomena in particular lead to significant mass variations: water loss during drying, and the fixation of carbon dioxide during carbonation.

The method employed to determine the drying and carbonation profiles by gammadensitometry is presented and its advantages highlighted.

Following a description of this measurement technique, the accuracy of drying profiles is improved by taking into account the variations of the absorption coefficient as a function of water content. The direct computation of porosity and saturation rate is then introduced. The carbonation profiles obtained for various concretes get validated and analyzed at the end of the article, in comparison with both the thermogravimetric analysis and the spraying of a pH-indicator.

FIELD: Structural engineering.

INTRODUCTION

La gammadensimétrie est une méthode d'essai non destructive, utilisée couramment pour contrôler la densité de matériaux de génie civil, par exemple sur des carottes de bétons bitumineux ou hydrauliques prélevées dans les chaussées ou, directement, en enfonçant une sonde dans les couches de chaussées à contrôler. Le rayonnement gamma est aussi utilisé pour le contrôle des ouvrages en béton armé ou précontraint, afin de visualiser par gammagraphie des défauts d'enrobage des armatures ou de remplissage des câbles de précontrainte (Guinez, 1991).

Le banc gammadensimétrique dont il est question ici permet d'ausculter des éprouvettes de laboratoire pour détecter la ségrégation de différents matériaux et déterminer les variations de densité au cours du temps, en particulier celles dues au séchage ou à l'absorption d'eau. Il a été conçu et amélioré au cours des années 1965-1975 dans le réseau des Laboratoires des Ponts et Chaussées (LPC) (Gabilly, 1965), (Radio-isotopes, 1966) et (Radio-isotopes II, 1970) pour les contrôles de densité et la détermination des variations de teneur en eau du béton (Gauthier, 1968), (Attolou, 1985). Plus récemment, le banc « gamma » de la division « Bétons et composites cimentaires » du LCPC a été dédié, d'une part, au suivi temporel de la ségrégation de coulis d'injection frais (Gelade, 2001) et, d'autre part, à la

mesure des gradients de teneur en eau dans des éprouvettes (Mensi *et al.*, 1988), (Baroghel-Bouny, 1994). Des chercheurs extérieurs au réseau des LPC ont aussi mené des recherches sur les teneurs en eau de différents matériaux de construction, tels que les enrobés, le bois ou le béton, par gammadensimétrie (Belaribi *et al.*, 1997), (Bougherra *et al.*, 1999), (Da Rocha *et al.*, 2001) ou (Bonnet, 1997). L'eau ayant en effet un fort coefficient d'absorption des rayons gamma (*cf.* ci-dessous), il est possible de détecter de faibles écarts de la teneur en eau du béton. Le suivi de cette évolution des gradients de teneur en eau est primordial pour comprendre le comportement et la dégradation des structures, puisqu'au jeune âge ils peuvent influencer l'hydratation, donc la microstructure, ou encore les retraits, qui diffèrent alors entre le cœur et la surface des structures (Khelidj *et al.*, 2002). Le suivi de la pénétration d'agents délétères ou du transfert d'eau est aussi fondamental pour la prévision de la durée de vie de ces structures, en particulier pour valider les modèles proposés : on citera notamment (Mensi *et al.*, 1988) et (Baroghel-Bouny *et al.*, 1999) pour le séchage. S. Multon (Multon *et al.*, 2003) utilise cette méthode pour obtenir des profils de séchage dans des poutres atteintes d'alcali-réaction afin de disposer dans l'avenir des données nécessaires au calage de modèles d'alcali-réaction. Pour obtenir des profils de chlorures, nous avons tenté sans succès d'utiliser la gammadensimétrie car la quantité d'ions chlorure ayant pénétré dans le béton semble trop faible pour être détectée. La variation relative de densité obtenue après trois mois de diffusion d'une solution saline dans un béton de $R_{C28} \approx 45$ MPa est en effet de l'ordre de grandeur de la précision de mesure (égale à 0,3 % ; *cf.* ci-dessous).

Par contre, on montre ici qu'il est possible de mesurer le dioxyde de carbone (CO_2) qui pénètre et se fixe dans le béton lors de la carbonatation afin d'obtenir des profils et aussi de suivre ce phénomène lors d'un essai de carbonatation accélérée en laboratoire. En effet, la quantité de CO_2 fixée, lors d'un essai accéléré comme lors d'une carbonatation naturelle, est suffisamment importante pour que l'absorption du rayonnement gamma en soit modifiée de manière significative (*cf.* Attolou, 1985 ; Villain *et al.*, 2000 et ci-dessous).

L'objectif de cet article est de montrer l'intérêt de la gammadensimétrie pour la détermination des profils de carbonatation des bétons et le suivi de leur évolution dans le temps sans détruire l'éprouvette. Comme cette réaction de carbonatation se produit dans un béton séché partiellement, il est essentiel de maîtriser, tout d'abord, les profils de séchage et d'évaluer la précision de la mesure. Une méthode permettant d'améliorer la précision des mesures des gradients d'humidité dans les bétons hydrauliques est donc décrite.

La première partie de cet article rappelle le principe de fonctionnement du gammadensimètre, présente la méthode utilisée pour augmenter la précision des mesures ainsi que différents exemples d'application. La deuxième partie est consacrée à la détermination des profils de séchage et au suivi de l'état hydrique interne du béton. Elle décrit aussi une méthode d'obtention des profils de taux de saturation et de porosité, ce qui est particulièrement intéressant dans l'étude de la carbonatation qui modifie la structure poreuse du béton et permet la libération d'eau auparavant liée à certains hydrates. Après un bref rappel du processus de carbonatation, la troisième partie présente des profils de carbonatation obtenus par gammadensimétrie sur différents bétons et une analyse critique de cette méthode en la comparant à d'autres méthodes reconnues pour caractériser l'état d'un béton carbonaté.

L'AUSCULTATION PAR GAMMADENSIMÉTRIE : UNE MESURE PRÉCISE ET NON DESTRUCTIVE

Principe et technique de mesure

La gammadensimétrie est fondée sur l'absorption, par la matière, des rayons gamma émis par une source radioactive de Césium 137. Cette absorption suit la loi de Lambert :

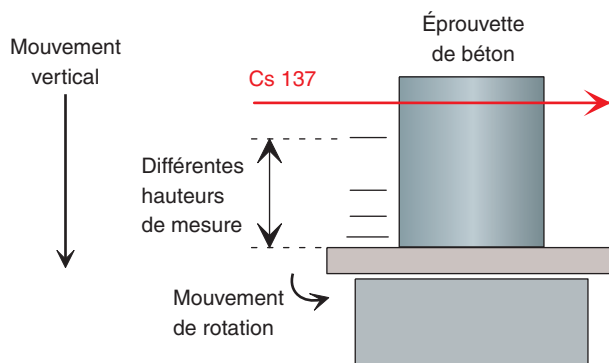
$$N = N_0 \exp(-\mu \rho l) \quad (1)$$

où N_0 est le nombre de photons incidents dans l'air et N le nombre de photons ayant traversé l'éprouvette d'épaisseur l (en cm) et de masse volumique ρ (en g/cm^3), et où μ (en cm^2/g) est le coefficient d'absorption massique du matériau ausculté.

Connaissant μ et mesurant N , N_0 et l , il est alors possible d'obtenir la densité du béton ρ (Radio-isotopes, 1966). On corrige systématiquement le taux de comptage $C = N/t$, où t est la durée de la mesure, par un coefficient θ caractérisant l'environnement, la chaîne de mesure et les caractéristiques de la source vieillissante. C est remplacé par $C/(1 + \theta C)$. Cette correction est calculée annuellement par calibrage sur un bloc étalon d'aluminium pur (Gabilly, 1970 et Mode opératoire, 2002).

Le dispositif (Fig. 1), utilisé dans cette étude, permet d'ausculter une éprouvette cylindrique à différentes hauteurs grâce au robot qui la déplace verticalement dans le faisceau du rayonnement gamma. Pendant la durée de la mesure à une hauteur donnée, l'éprouvette est posée au centre d'un plateau animé d'un mouvement de rotation autour de son axe : la mesure correspond alors à la moyenne sur une tranche de béton de hauteur égale au diamètre du faisceau, soit 6 mm pour ce dispositif.

La durée de la mesure est optimisée en fonction de la masse volumique attendue et de l'épaisseur de matériau traversée grâce à des abaques statistiques (Gauthier, 1968).

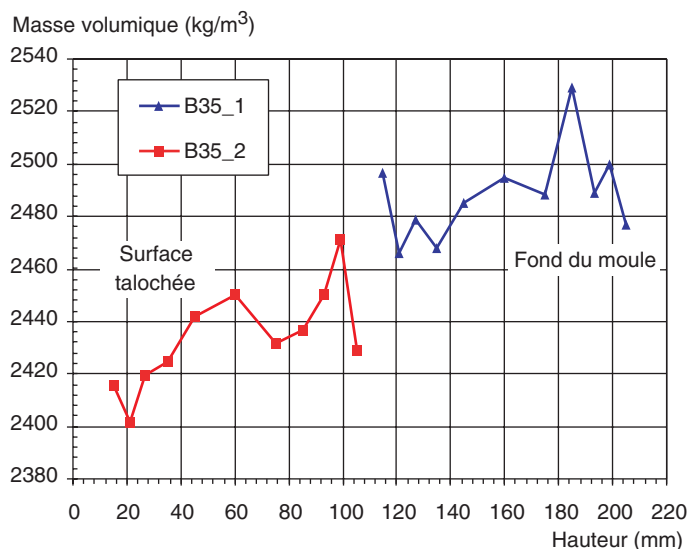


■ Fig. 1
Schéma du dispositif de gammadensimétrie.

Calcul du coefficient d'absorption massique μ

Le coefficient d'absorption massique élémentaire est caractéristique de chaque élément chimique pour l'énergie de rayonnement du Césium 137. Il est donné dans des tables calculées par le Centre coordonnateur du réseau technique des LPC situé à Angers à partir de celles du US National Bureau of Standards, que l'on peut aussi trouver dans (Berger et al., 2000-2001). Ce coefficient est calculé à partir de l'analyse chimique de chaque constituant. Le tableau I montre un exemple de calcul pour le ciment CEM I 52,5 de Saint-Vigor. Dans l'analyse chimique élémentaire, le résidu insoluble est considéré comme de la silice. La perte au feu correspond à l'eau perdue par le gypse (calculée à partir de la teneur en SO_3) et au CO_2 présent dans le ciment.

Le coefficient d'absorption massique « initial » de chaque béton μ_{ini} , est calculé à partir de sa formulation (tableau II). Le tableau III en donne les valeurs pour les bétons présentés ici. Celles-ci sont utilisées pour calculer la densité des éprouvettes conservées pendant trois mois (voire six mois) en cure sous eau. On suppose alors que le ciment s'hydrate en conditions engogènes, sans échanges d'eau avec l'extérieur. La figure 2 illustre le type de résultats obtenus. On remarque notamment que cette gâchée de béton est sujette à la ségrégation, les gros granulats augmentant la densité mesurée en fond de moule.



■ Fig. 2
Densité du béton B35. Mesures réalisées sur deux cylindres de 10 cm de hauteur sciés dans une éprouvette (11 cm de diamètre, 22 cm de hauteur) après une cure sous eau de trois mois (μ_{ini}).

TABLEAU I
Calcul du coefficient d'absorption du ciment CEM I 52,5 PM ES de Saint-Vigor
en fonction de sa composition chimique

Ciment	CEM I 52,5 PM ES CP2 de Saint-Vigor (Lafarge)			
Analyse chimique élémentaire		Dosage (%)	Absorption élémentaire μ' (cm ² /g)	Part absorbée (%/T) · μ'
Silice soluble ou hydraulique	SiO ₂	21,39	0,0773	0,0165
Oxyde d'aluminium	Al ₂ O ₃	3,49	0,0759	0,0027
Oxyde de titane	TiO ₂	0,18	0,0771	0,0001
Oxyde ferrique	Fe ₂ O ₃	4,16	0,0746	0,0031
Oxyde de calcium	CaO	65,12	0,0777	0,0506
Oxyde de magnésium	MgO	0,82	0,0768	0,0006
Oxyde de sodium	Na ₂ O	0,12	0,0749	0,0001
Oxyde de potassium	K ₂ O	0,3	0,0760	0,0002
Anhydrite sulfurique	SO ₃	2,86	0,0774	0,0022
Chlore des chlorures	Cl ₂	0	0,0745	0,0000
Soufre des sulfures	S	0	0,0775	0,0000
Résidu insoluble	RI	0,31	0,0773	0,0002
Perte au feu à 1 000 °C totale PF = 1,10	PF (H₂O)	1,1	0,0857	0,0009
	PF (CO₂)	0	0,0772	0,0000
Oxyde de manganèse	MnO	0,09	0,0729	0,0001
Total des éléments dosés T (%)		99,94		
Coefficient d'absorption massique μ				0,0775

TABLEAU II
Calcul du coefficient d'absorption du béton M25 en fonction de sa formulation (μ_{ini})

Nom du béton : M25				
Formulation		Dosage (%)	Absorption élémentaire μ' (cm ² /g)	Part absorbée (%/T) · μ'
	(kg/m ³)			
Sable	899	38,60	0,0769	0,0297
Gravillons	1007	43,24	0,0769	0,0332
Ciment CEM I 52,5 Saint-Vigor	230	9,88	0,0775	0,0077
Eau totale	193	8,29	0,0857	0,0071
Total des éléments dosés T (%)	2329	100		
Coefficient d'absorption massique μ				0,07769

TABLEAU III
Coefficient d'absorption des différents bétons présentés en fonction de leur formulation (μ_{ini})

	M25	B35 (M40)	M50	BO
μ_{ini} (cm ² /g)	0,0777	0,0777	0,0777	0,0776

Précision des mesures

Mesure du diamètre de l'éprouvette

Les erreurs les plus fréquentes qui peuvent se produire sont, d'une part, celle de mesure du diamètre de l'éprouvette et, d'autre part, celle de repositionnement au centre de la cible. Le diamètre correspond à la valeur moyenne à mi-hauteur, mesurée au pied à coulisse. Les déformations éventuelles des moules de carton peuvent induire une erreur sur l'épaisseur de béton traversée, qui peut alors varier en fonction de la hauteur. Cette erreur a été évaluée à 0,1 % (soit 0,1 mm pour un diamètre de $2R = 110$ mm).

Intersection du faisceau et de l'éprouvette cylindrique et excentrement de l'éprouvette par rapport à l'axe du gammadensimètre

En raison de la géométrie du faisceau gamma (faisceau cylindrique de rayon $r = 3$ mm), l'épaisseur traversée par le rayonnement, dans le cas d'un centrage correct de l'éprouvette, n'est pas égale au diamètre $2R$ de l'éprouvette, mais est légèrement inférieure. Nous nous interrogerons, dans le calcul qui suit, sur la nécessité de tenir compte de la correction provenant de l'intersection du faisceau avec l'éprouvette cylindrique puis de celle due à l'excentrement.

Pour une éprouvette parfaitement positionnée, le repère (Ox, Oy, Oz) est défini par l'origine O à l'intersection de l'axe du faisceau (Oy) avec celui de l'éprouvette (Oz) et (Ox) qui est l'axe perpendiculaire au plan (Oy, Oz) (Fig. 3).

Le volume engendré par l'intersection du faisceau gamma (F), assimilé à un cylindre, et de l'éprouvette cylindrique de béton (E) est :

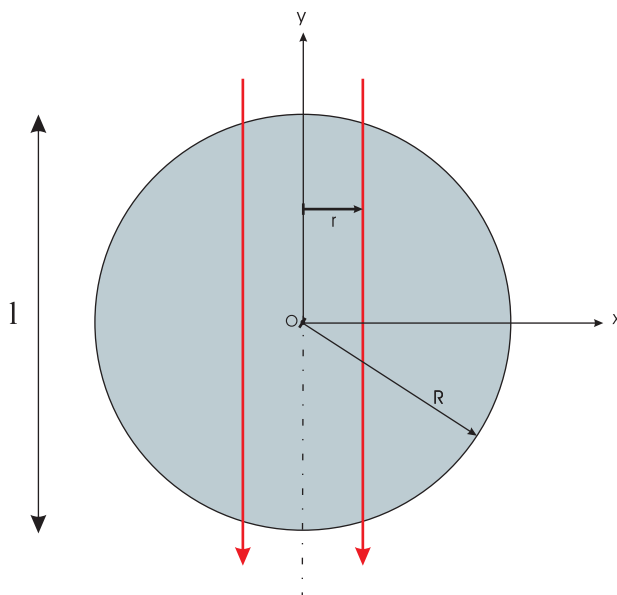
$$V = \iiint_{(E) \cap (F)} dx dy dz$$

L'équation du faisceau (F) est $x^2 + z^2 \leq r^2$ quel que soit y et pour x tel que $-r \leq x \leq r$. On démontre que le calcul du volume V se ramène à l'intégrale de surface suivante :

$$V = 2 \iint_{(E) \cap \{-r \leq x \leq r\}} \sqrt{r^2 - x^2} dx dy$$

De même, l'équation de l'éprouvette (E) est $x^2 + y^2 \leq R^2$ quel que soit z et pour x tel que $-R \leq x \leq R$. Ainsi :

$$V = 4 \int_{-r}^r \sqrt{R^2 - x^2} \sqrt{r^2 - x^2} dx$$



■ Fig. 3
Intersection entre l'éprouvette cylindrique de béton (rayon R) et le faisceau gamma (rayon r). Coupe par un plan perpendiculaire à l'axe de l'éprouvette (Oz).

En posant le changement de variable $x = rt$, on montre que V s'exprime aussi de la manière suivante :

$$V = 4Rr^2 \int_{-1}^1 \sqrt{1 - \frac{r^2}{R^2} t^2} \sqrt{1 - t^2} dt$$

L'épaisseur équivalente traversée par le faisceau est $l = V/(\pi r^2)$. Comme le rapport r/R est petit devant 1, on peut écrire un développement limité de $\sqrt{1 - \frac{r^2}{R^2} t^2}$ en r/R . Ainsi le calcul de l'épaisseur traversée se simplifie en :

$$l = \frac{4R}{\pi} \int_{-1}^1 \left(1 - \frac{r^2}{2R^2} t^2 \right) \sqrt{1 - t^2} dt \quad (2)$$

Après calcul de cette intégrale, on obtient :

$$l = 2R - \frac{r^2}{4R} \quad (3)$$

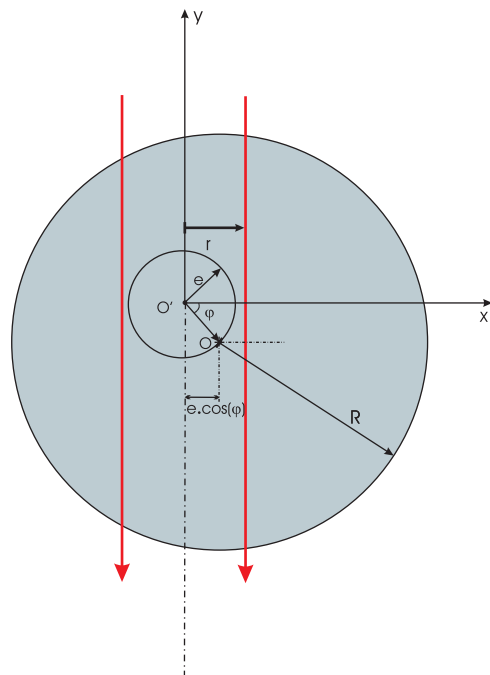
Il est également possible que l'éprouvette soit décalée par rapport à l'axe de l'éprouvette d'une valeur e . Le centre O de l'éprouvette décrit un cercle de centre O' (centre du plateau) et de rayon e (Fig. 4). À chaque instant, le centre O de l'éprouvette est dans une position telle que $O'O$ fait un angle φ avec $O'x$. φ varie linéairement avec le temps. La distance de O à l'axe du faisceau est donc $e \cdot \cos(\varphi)$. À un instant donné, on montre, en se plaçant dans le repère (Ox, Oy, Oz) , que l'épaisseur traversée par le faisceau gamma est :

$$l(\varphi) = \frac{4R}{\pi} \int_{-1}^1 \sqrt{1 - \left(\frac{rt - e \cdot \cos(\varphi)}{R} \right)^2} \sqrt{1 - t^2} dt$$

Lorsque φ varie entre 0 et 2π , l'épaisseur traversée équivalente correspond à :

$$l = \frac{1}{2\pi} \int_0^{2\pi} l(\varphi) d\varphi$$

Fig. 4
Intersection entre l'éprouvette cylindrique de béton (rayon R) et le faisceau gamma (rayon r) dans le cas où l'éprouvette est excentrée d'une distance e (coupe par un plan perpendiculaire à l'axe de l'éprouvette).



Un développement limité de $\sqrt{1 - \left(\frac{rt - e \cdot \cos(\varphi)}{R}\right)^2}$ en r/R et e/R , semblable à celui nécessaire à l'obtention de l'équation (2), permet d'écrire :

$$l = \frac{1}{2\pi} \int_0^{2\pi} \frac{4R}{\pi} \int_{-1}^1 \left[1 - \frac{1}{2} \left(\frac{rt - e \cdot \cos(\varphi)}{R} \right)^2 \right] \sqrt{1 - t^2} dt d\varphi$$

Après calcul, on obtient :

$$l = 2R - \frac{r^2}{4R} - \frac{e^2}{2R} \quad (4)$$

Pour $R = 5,5$ cm, $r = 0,3$ cm et $e = 0,1$ cm, l'épaisseur traversée équivalente l est égale à 10,995 cm. Pour ce banc gammadensimétrique et cette taille d'éprouvette, l'erreur relative que l'on commet sur l en prenant $l = 2R$ est de 0,045 % (soit 0,037 % provenant de l'intersection des deux cylindres et 0,008 % due à l'excentrement). Elle est négligeable par rapport à l'erreur relative commise sur la mesure du diamètre de l'éprouvette (0,09 %). En conclusion, pour toutes nos mesures, la correction de l'épaisseur traversée par r est prise en compte ; par contre, l'erreur due à l'excentrement est effectivement négligée.

Rayonnement aléatoire de la source de Césium 137

Le rayonnement est un phénomène aléatoire, dont l'enregistrement est caractérisé par le taux de comptage $C = N/t$ (Radio-isotopes, 66), (Radio-isotopes II, 70). Sur une durée suffisamment longue, il suit une loi normale de moyenne C et d'écart-type \sqrt{C} . La vraie valeur de C a la probabilité $P = 84$ % d'être dans l'intervalle :

$$C - \sqrt{2C} \leq C \leq C + \sqrt{2C}$$

Il est alors possible de calculer l'erreur commise sur les taux de comptage C et C_0 , sur le rapport C/C_0 et donc sur la mesure de densité. À l'erreur due à la nature aléatoire de l'émission des photons, doivent être ajoutées les erreurs absolues commises sur l'estimation de μ ($\Delta\mu = 0,0001 \text{ cm}^2 \cdot \text{g}^{-1}$) et du diamètre de l'éprouvette $2R$ ($\Delta(2R) = 0,1$ mm, correspondant à la précision de la mesure au pied à coulisse). Ainsi l'ordre de grandeur de l'erreur sur la densité ρ est :

$$\left| \frac{\Delta\rho}{\rho} \right| = \left| \frac{\Delta\mu}{\mu} \right| + \left| \frac{\Delta R}{R} \right| + \frac{\sqrt{2}}{\ln(C_0/C)} \sqrt{\frac{1}{tC} + \frac{1}{t_0 C_0}}$$

Compte tenu des caractéristiques de notre dispositif et des essais réalisés ($t_0 = t = 600$ s, $C_0 \approx 7\,600$, $C \approx 950$), on obtient les résultats reportés dans le tableau IV.

Les erreurs commises sur μ (a) et sur R (b) (cf. tableau IV) sont des erreurs systématiques, contrairement à l'erreur liée au caractère aléatoire du comptage (c). En effet, cette dernière exprime l'écart relatif sur la mesure de densité que l'on retrouverait si on auscultait une même éprouvette à deux reprises. La somme des erreurs systématiques et de l'erreur liée au comptage, c'est-à-dire (a) + (b) + (c), représente la différence relative entre la vraie valeur de la masse volumique et l'estimation qui en est faite à partir de cet essai. Elle avoisine 0,30 %.

TABLEAU IV
Évaluation des erreurs liées au calcul de la masse volumique par gammadensimétrie

Origine des erreurs	Contribution à $\left \frac{\Delta\rho}{\rho} \right $
(a) $\left \frac{\Delta\mu}{\mu} \right $	$\approx 0,13$ %
(b) $\left \frac{\Delta R}{R} \right $	$\approx 0,09$ %
(c) $\frac{\sqrt{2}}{\ln(C_0/C)} \sqrt{\frac{1}{tC} + \frac{1}{t_0 C_0}}$	$\approx 0,08$ %
(a) + (b) + (c) : écart relatif à la réalité	$\approx 0,30$ %

Pour vérifier expérimentalement l'erreur non systématique (c), le même essai a été répété quinze fois par deux opérateurs différents, l'éprouvette étant protégée de la dessiccation. L'erreur donnée dans le tableau V est liée essentiellement au phénomène aléatoire ; elle est faible et correspond à l'ordre de grandeur de l'erreur statistique précédente (c). L'essai est répétable.

Le même essai réalisé par un second opérateur donne le même résultat. On en déduit que cet essai est reproductible.

TABLEAU V
Répétabilité de la mesure de densité réalisée quinze fois sur une même éprouvette de béton B35 après une cure sous eau de six mois (μ_{ini})

B35_15B Hauteur (mm)	m Moyenne des densités (kg/m ³)	σ Écart-type (kg/m ³)	σ/m (%)
50	2 476,84	3,02	0,12
60	2 461,77	2,43	0,10

Protection des éprouvettes

La protection des éprouvettes par deux couches d'aluminium, qui évitent la dessiccation latérale et assurent des transferts gazeux unidirectionnels, n'intervient pas dans la détermination des variations de densité liées au séchage comme à la carbonatation, étant donné que, pour chaque hauteur, la masse d'aluminium est constante et indépendante de la teneur en eau ou en CO₂.

Prise en compte de la variation du coefficient d'absorption massique au cours des essais

Pendant le séchage

Le coefficient d'absorption massique de l'eau (0,0857 cm²/g) étant grand par rapport à celui du béton ($\approx 0,0777$ cm²/g), la variation de la teneur en eau durant le séchage modifie de manière significative le coefficient global d'absorption du béton. Pour obtenir une mesure précise de la perte relative de masse du béton, il n'est donc plus souhaitable d'utiliser μ_{ini} : il convient de recalculer le coefficient d'absorption modifié à chaque échéance de mesure et pour chaque hauteur d'auscultation. En effet, comme un séchage unidirectionnel est assuré par du papier d'aluminium adhésif sur le pourtour des éprouvettes cylindriques, la perte d'eau est plus importante près des surfaces exposées au séchage et la correction sur μ_y est donc plus importante.

Pour prendre en compte les variations du coefficient d'absorption massique dues au départ d'eau pour le calcul de la perte relative de masse entre deux étapes successives t et t' du séchage, on suppose que toutes les caractéristiques sur le comptage et sur le matériau sont connues à l'étape t. Cette échéance t peut correspondre, par exemple, à l'état de saturation du matériau après une cure humide. Les notations utilisées sont indiquées dans le tableau VI.

TABLEAU VI
Notations utilisées pour le calcul de la masse volumique par gammadensimétrie entre deux étapes de séchage successives (t et t') à la hauteur h

	Séchage (t)	Séchage (t')
Comptage à travers le matériau à la hauteur h	N	N'
Comptage à vide N ₀	N ₀	N ₀ '
Masse volumique à la hauteur h	r	$\rho'(h)$
Coefficient d'absorption massique à la hauteur h	m	μ'
Masse de la tranche auscultée à la hauteur h	M	m'

À l'étape t' , le coefficient d'absorption massique μ' s'exprime en fonction de la perte de masse d'eau de la tranche auscultée ($m - m' \geq 0$) pour chaque hauteur :

$$\mu' = - \frac{(m - m')}{m'} \mu_e + \frac{m}{m'} \mu$$

soit, en fonction des masses volumiques :

$$\mu' = \left(1 - \frac{\rho}{\rho'} \right) \mu_e + \frac{\rho}{\rho'} \mu$$

De plus, le rapport ρ/ρ' se calcule en fonction des comptages de la manière suivante :

$$\frac{\rho}{\rho'} = \frac{\mu' \ln\left(\frac{N_0}{N}\right)}{\mu \ln\left(\frac{N'_0}{N'}\right)}$$

En combinant les deux équations, on exprime μ' en fonction des caractéristiques du matériau à l'étape t et des comptages aux étapes t et t' , pour chaque hauteur :

$$\mu' = \frac{\mu_e}{1 + \frac{\mu_e - \mu}{\mu} \frac{\ln(N_0/N)}{\ln(N'_0/N')}} \quad (5)$$

La figure 5 illustre l'écart entre le coefficient d'absorption du béton B35 donné par sa formulation et celui obtenu après un séchage à 45 °C durant un mois et calculé avec la formule (5). Cette différence est, pour ce mode de séchage, au maximum de 0,0008 cm².g⁻¹ (au bord de l'éprouvette). Dans le cas d'un séchage plus fort (par exemple à 105 °C), cet écart avoisine 0,0008 cm².g⁻¹ sur toute la hauteur de l'éprouvette. Cette correction sur le coefficient d'absorption a un impact notable sur le calcul de la masse volumique comme l'indique la figure 6a, puisque l'écart entre la masse volumique calculée avec le μ corrigé par le départ d'eau et celle calculée en prenant pour μ la valeur donnée par la formulation dépasse l'incertitude de mesure totale (a) + (b) + (c) \approx 0,3 % (cf. tableau IV) (Thiery et al., 2003a).

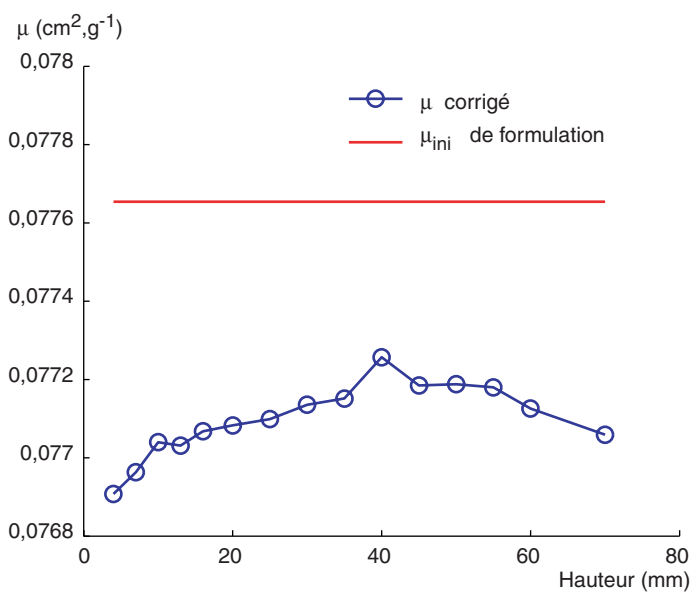
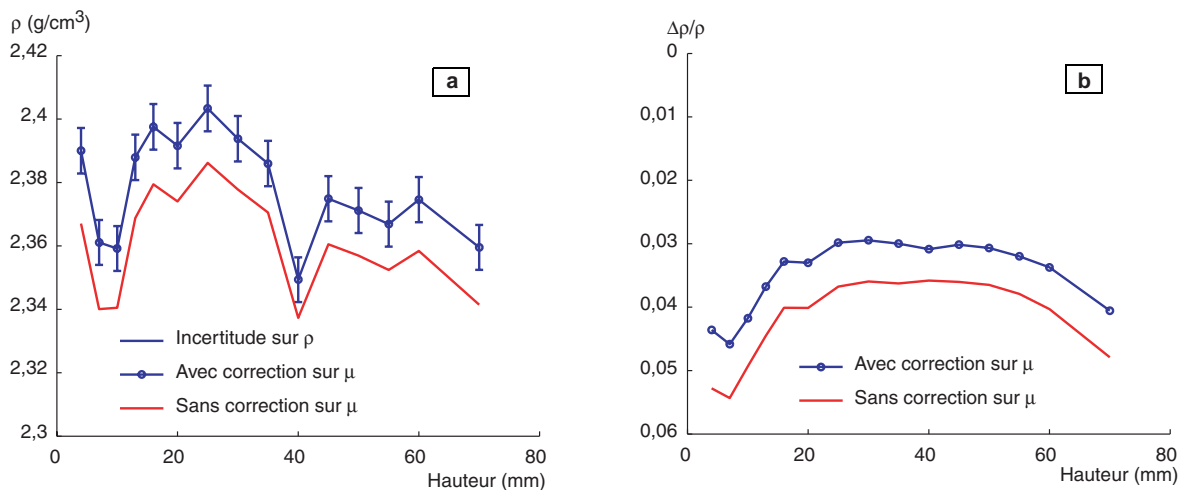


Fig. 5
Écart entre le coefficient d'absorption massique, homogène dans l'éprouvette, déterminé à partir de la formulation et le coefficient d'absorption massique calculé en prenant en compte le séchage de l'éprouvette pendant un mois à 45 °C.



■ Fig. 6

(a) Masse volumique du béton B35 mesurée après un mois de séchage à 45 °C, avec et sans correction du coefficient d'absorption liée au départ d'eau du matériau.

(b) Variation relative de masse volumique sur le même béton entre l'état saturé et le même état de séchage, avec et sans correction sur μ .

Pendant la carbonatation

La réaction de carbonatation, conduisant à la pénétration et à la fixation de CO₂ dans l'éprouvette de béton, modifie le matériau et donc ses propriétés d'absorption du rayonnement gamma. Une démarche, analogue à celle décrite pour prendre en compte la variation du coefficient μ pendant le séchage, peut être menée pour améliorer la précision de mesure de la variation de la teneur en dioxyde de carbone.

Les variations du coefficient d'absorption massique dues à la fixation du CO₂ par la matrice cimentaire sont calculées entre un état de référence ($t = t_0$) et une échéance de carbonatation accélérée ($t = t_c$), en faisant l'hypothèse que, pendant la phase de carbonatation accélérée, il n'y a pas de transfert d'eau dans le matériau (Villain et al., 2003 ; Thierry et al., 2003a). Les notations utilisées sont indiquées dans le tableau VII.

TABLEAU VII

Notations utilisées pour le calcul de la masse volumique par gammadensimétrie entre un état initial ($t = t_0$) et une échéance de carbonatation ($t = t_c$)

	Fin séchage (t_0)	Carbonatation (t_c)
Comptage à travers le matériau à la hauteur h	N^{t_0}	N^c
Comptage à vide N_0	$N_0^{t_0}$	N_0^c
Masse volumique à la hauteur h	ρ^{t_0}	ρ^c
Coefficient d'absorption massique à la hauteur h	μ^{t_0}	μ^c
Masse de la tranche auscultée à la hauteur h	m^{t_0}	m^c

En suivant le même raisonnement, on obtient pour chaque hauteur :

$$\mu^c = \frac{\mu_{CO_2}}{1 + \frac{\mu_{CO_2} - \mu^{t_0}}{\mu^{t_0}} \frac{\ln(N_0^{t_0} / N^{t_0})}{\ln(N_0^c / N^c)}}$$

Étant donné que le coefficient $\mu_{\text{CO}_2} = 0,0772 \text{ cm}^2/\text{g}$ du gaz CO_2 est très proche de celui des bétons étudiés, cette correction sur le coefficient d'absorption au cours de la carbonatation n'est pas significative, c'est-à-dire que la correction est plus petite que l'ordre de grandeur de la précision avec laquelle est donné généralement le coefficient d'absorption massique des différents éléments chimiques ($0,0001 \text{ cm}^2 \cdot \text{g}^{-1}$) qui constituent le béton.

PROFILS DE SÉCHAGE ET DE POROSITÉ

L'état hydrique conditionne la pénétration d'agents agressifs pour le béton armé (les ions chlorure, les ions sulfates, le CO_2 , etc.) et a des conséquences importantes sur sa durabilité. La gammadensimétrie est une méthode performante pour caractériser cet état hydrique.

La masse volumique saturée ρ_{sat} est mesurée à l'instant t_{sat} correspondant à l'état saturé, la masse volumique sèche ρ_{sec} à l'état sec (t_{sec}) après un séchage à 105°C et, enfin, ρ à un instant quelconque t . Le séchage à 105°C a pour but d'évaporer toute l'eau non chimiquement liée.

Paramètres de suivi du séchage

L'état hydrique interne d'un matériau peut être exprimé par la perte relative de masse volumique entre l'état initial saturé d'eau et le temps t :

$$\frac{\Delta\rho}{\rho_{\text{sat}}} = \frac{\rho_{\text{sat}} - \rho(t)}{\rho_{\text{sat}}}$$

ou bien par la teneur en eau w :

$$w = \frac{\rho(t) - \rho_{\text{sec}}}{\rho_{\text{sec}}}$$

ou, encore, par le taux de saturation S , paramètre représentant le volume d'eau sur le volume des pores, utilisé par les modélisateurs :

$$S = \frac{\rho(t) - \rho_{\text{sec}}}{\rho_{\text{sat}} - \rho_{\text{sec}}}$$

La perte relative de masse volumique présente surtout l'avantage de ne pas nécessiter la connaissance de la masse volumique sèche donc d'éviter d'avoir à sécher le matériau complètement. En effet, soit ce séchage est très long à obtenir dans un dessiccateur contenant du gel de silice ($\text{HR} \approx 3\%$) ou dans une étuve à des températures modérées, soit il risque d'endommager les hydrates par une exposition à une température excessive de 105°C . Cette dernière méthode définit l'état sec selon (AFPC-AFREM, 97).

Mesure directe du taux de saturation et de la porosité

Pour obtenir le taux de saturation S d'une éprouvette de béton à une échéance t donnée ou la porosité ϕ accessible à l'eau, on peut s'affranchir du calcul du coefficient μ aux différentes échéances de mesures en utilisant la méthode directe présentée dans ce paragraphe (Thiery et al., 2003a). La méthode de calcul est schématisée sur la figure 7.

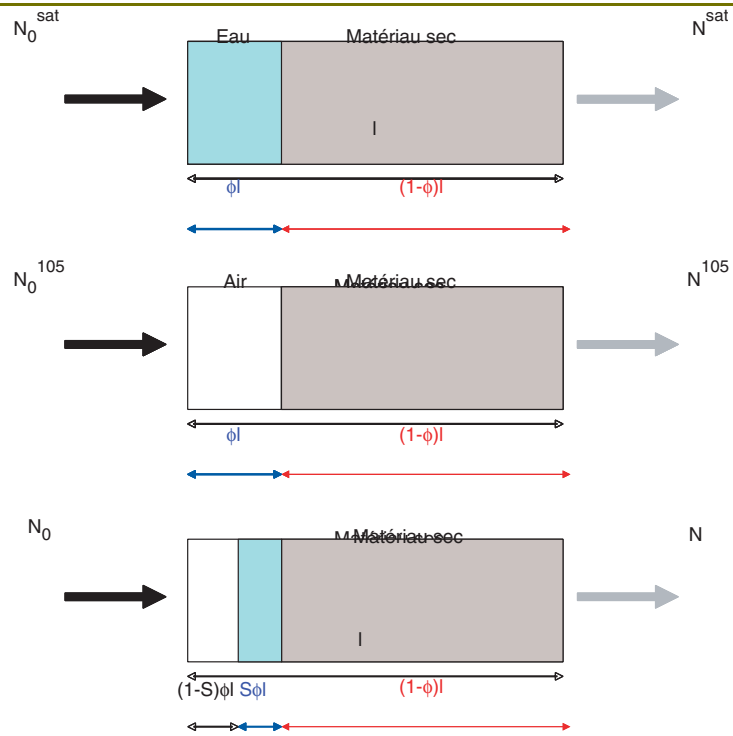
L'absorption du rayonnement gamma à travers une éprouvette de béton saturée d'eau liquide est due à son atténuation par le matériau sec d'une part et par l'eau d'autre part. On note $l_e = \phi \cdot l$ l'épaisseur équivalente d'eau traversée par le faisceau gamma et $l_{105} = (1 - \phi) \cdot l$ celle de la phase solide du matériau sec (Fig. 7). Ainsi, l'absorption à travers le matériau saturé d'eau s'écrit :

$$\ln\left(\frac{N_0^{\text{sat}}}{N^{\text{sat}}}\right) = \rho_{105}\mu_{105}(1 - \phi)l + \rho_e\mu_e\phi l \quad (6)$$

ρ_e est la masse volumique de l'eau. ρ_{105} est la masse volumique absolue de la phase solide, qui diffère de ρ_{sec} , masse volumique apparente du matériau après le séchage à 105°C , englobant les pores. L'absorption du rayonnement gamma à travers le matériau sec se traduit par :

$$\ln\left(\frac{N_0^{105}}{N^{105}}\right) = \rho_{105}\mu_{105}(1 - \phi)l \quad (7)$$

■ **Fig. 7**
Schéma explicatif du calcul direct du taux de saturation et de la porosité.



En combinant (6) et (7), on exprime la porosité en fonction des comptages sur le matériau saturé et le matériau sec pour chaque hauteur :

$$\phi = \frac{1}{\rho_e \mu_e l} \ln \left(\frac{N_0^{\text{sat}} N^{105}}{N^{\text{sat}} N_0^{105}} \right)$$

Pour une éprouvette de béton non saturé, l'épaisseur équivalente d'eau traversée par le rayonnement gamma est $\phi S l$, où S est le taux de saturation. L'absorption du rayonnement gamma se décompose alors de la manière suivante :

$$\ln \left(\frac{N_0}{N} \right) = \rho_{105} \mu_{105} (1 - \phi) l + \rho_e \mu_e S \phi l \quad (8)$$

En regroupant les équations (6), (7) et (8), on obtient une expression directe du taux de saturation en fonction des comptages, pour chaque hauteur :

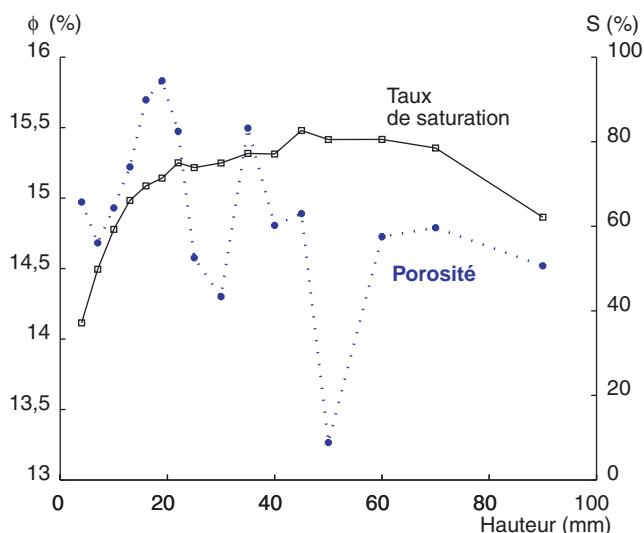
$$S = \ln \left(\frac{N_0 N^{105}}{N N_0^{105}} \right) / \ln \left(\frac{N_0^{\text{sat}} N^{105}}{N^{\text{sat}} N_0^{105}} \right)$$

Exemples de profils de porosité et de taux de saturation et utilité de ces paramètres

À partir d'un profil de porosité (Fig. 8), il est possible de définir une porosité moyenne comme l'indique la formule :

$$\phi = \frac{1}{H} \int_0^H \phi(h) dh$$

Cette porosité moyenne obtenue par gammadensimétrie est comparée à la valeur de porosité globale accessible à l'eau (AFPC-AFREM, 1997). Ces deux méthodes sont fondées sur le même principe, qui est la détermination du volume des pores à partir de la masse d'eau évacuée lors d'un séchage à 105 °C. Elles fournissent ainsi des résultats semblables (tableau VIII).



■ Fig. 8
Exemple de profils de porosité et de taux de saturation obtenus sur béton M50. Le taux de saturation est donné après un mois de séchage à 45 °C.

TABLEAU VIII

Comparaison de valeurs moyennes de porosité obtenues par gammadensimétrie avec les porosités globales accessibles à l'eau (selon (AFPC-AFREM, 1997)) sur la même éprouvette, pour des bétons carbonatés (C) et non carbonatés (NC)

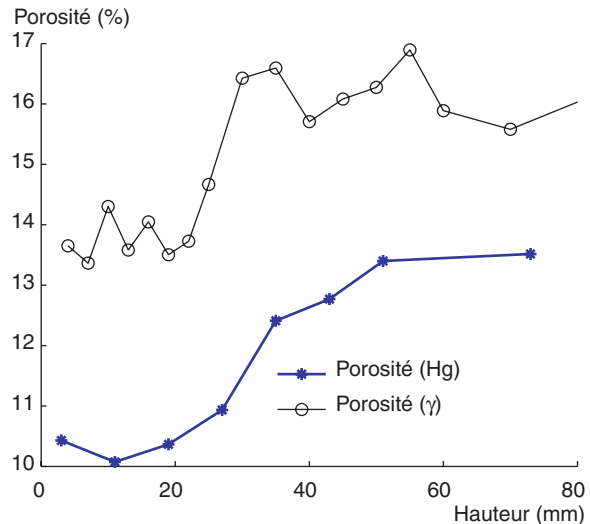
Essais	Porosité accessible à l'eau ϕ (%)	Gammadensimétrie ϕ (%)
M25-NC	15,1	15,8
M25-C	13,7	14,1
B35-NC	14,7	15,4
B35-C	11,1	11,2
M50-NC	13,6	13,9
M50-C	9,7	9,1

La gammadensimétrie fournit, contrairement à la mesure de la porosité accessible à l'eau, l'évolution locale de la porosité du matériau, mettant ainsi en évidence l'effet de la ségrégation ou de la présence de bulles d'air sur la porosité. Les bulles d'air et les granulats ont une influence notable sur la porosité, visible sur la figure 8 : la porosité varie entre 13,5 et 14,8 % selon les hauteurs auscultées. De plus, cette méthode renseigne sur la progression de la carbonatation dans les bétons via la chute de porosité induite (Fig. 9).

Enfin, soulignons que la mesure de porosité est fortement conditionnée par la technique de mesure. Ainsi, la figure 9 permet de comparer deux profils de porosité, traduisant la progression de la carbonatation dans un béton, obtenus par gammadensimétrie et par porosimétrie par intrusion de mercure (Thiery *et al.*, 2003a). Si la même tendance est enregistrée (réduction de la porosité en zone carbonatée), la valeur de porosité mesurée par intrusion de mercure est systématiquement inférieure à celle mesurée par gammadensimétrie. Cela constitue un résultat classique que l'on explique par le fait que seuls les pores de rayon compris entre 1,4 nm et 60 μ m sont accessibles avec le porosimètre au mercure, alors qu'avec l'eau tous les pores sont accessibles. Les mesures par intrusion de mercure sous-estiment le volume des vides de grande dimension, d'une part, et les pores de faible rayon relatifs aux silicates de calcium hydratés ne sont que très partiellement accessibles, d'autre part.

Disposer de profils de taux de saturation trouve son intérêt dans l'étude de la durabilité des bétons. Tout d'abord, certaines propriétés comme la perméabilité aux gaz des bétons sont fortement influencées par le taux de saturation du béton. Comme il est difficile de sécher rapidement et correctement un béton de manière homogène, il est nécessaire de disposer d'une méthode non destructive de

Fig. 9
 Profils de porosité modifiés par la carbonatation et obtenus par deux méthodes différentes (gammadensimétrie et porosimétrie au mercure) sur une éprouvette de béton M25 carbonatée pendant 14 jours (Thiery et al., 2003a).



mesure des profils de taux de saturation pour contrôler l'état du matériau et la variabilité due aux gradients d'humidité entre le cœur et les surfaces exposées aux conditions extérieures (Fig. 10). Pour étudier l'influence du taux de saturation du béton sur la perméabilité aux gaz, le suivi des profils de séchage est indispensable (Villain et al., 2001). La mesure de ces gradients d'humidité, corrélée à celle des retraites de séchage, notamment, montre les effets mécaniques du séchage sur des éprouvettes voire des structures en béton (Khelidj et al., 2002).

Ensuite, la détermination du profil de taux de saturation par gammadensimétrie (cf. Fig. 8) est aussi particulièrement intéressante pour la modélisation de la carbonatation des bétons. Le taux de saturation est en effet un paramètre essentiel qui conditionne le transfert du CO_2 . Déterminé avant carbonatation accélérée, ce type de profil représente l'état hydrique initial du matériau, qui sert de donnée d'entrée dans les modèles (Thiery et al., 2003b).

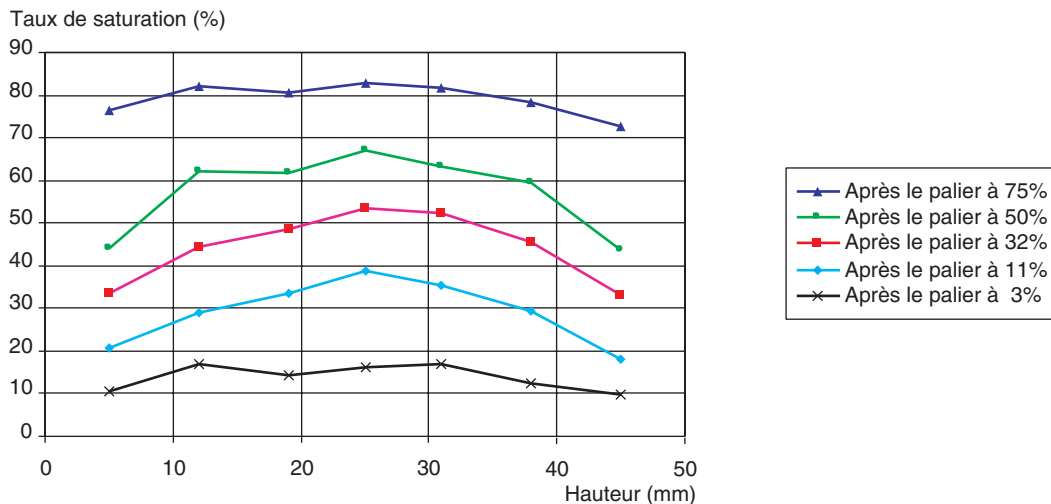
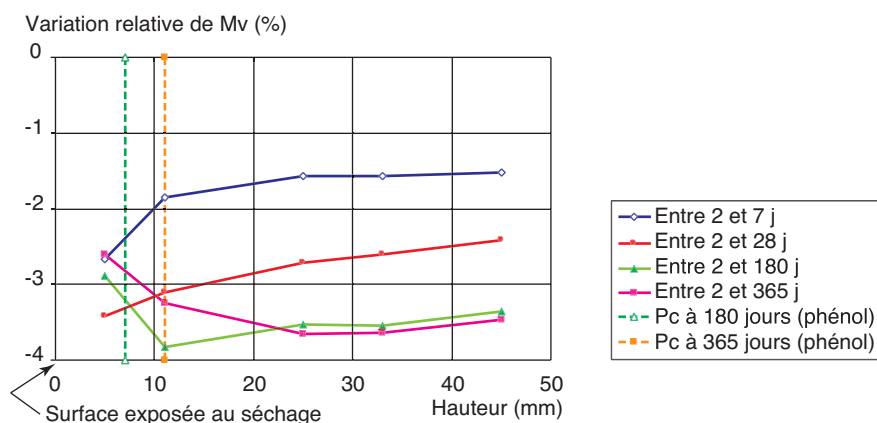


Fig. 10
 Suivi du séchage d'une éprouvette de béton BO à différentes humidités relatives (Villain et al., 2001).

PROFILS DE CARBONATATION

Il s'agit ici de présenter une nouvelle utilisation de la gammadensimétrie comme méthode permettant de quantifier la progression de la carbonatation dans les bétons. Au cours d'expériences de séchage de matériaux cimentaires très poreux, une carbonatation a été observée (A. Attolou, 1985) ou

(Villain et al., 1999) ; celle-ci s'est produite à une faible teneur en dioxyde de carbone, celle de l'atmosphère, voisine de 0,035 %. La figure 11 illustre ainsi ce phénomène de carbonatation « naturelle » pour une éprouvette de mortier soumise à un séchage dans une salle ventilée et climatisée à une humidité relative de 65 %, à 20 °C et à la teneur en CO₂ atmosphérique. La diminution de la masse volumique correspond au séchage, qui prédomine jusqu'à l'âge de 28 jours. Par contre, aux échéances de six mois et d'un an, la masse volumique augmente au niveau de la surface exposée au séchage, ce qui correspond à la fixation de CO₂. Cette augmentation progresse dans le matériau au cours du temps pour atteindre une profondeur supérieure à 11 mm à l'âge d'un an. Une pulvérisation de phénolphtaléine, indicateur coloré de pH, sur des éprouvettes similaires fendues, a indiqué une profondeur de carbonatation de 7 mm après six mois et de 11 mm après un an, ce qui confirme l'explication.



■ Fig. 11

Carbonatation « naturelle » d'un mortier en cours de séchage (salle de laboratoire climatisée à $HR = 60\% \pm 5\%$ et $T = 20^\circ \pm 1^\circ C$) à une teneur en CO₂ environ égale à 0,035 %.

L'étude des profils de carbonatation qui suit s'est limitée au cas des essais accélérés en laboratoire, dans une enceinte contenant une forte teneur en CO₂, régulée par des bouteilles de mélange de 50 % de CO₂ et 50 % d'azote, dans des conditions thermohygrométriques contrôlées à $T = 20^\circ \pm 1^\circ C$ et $HR = 53 \pm 3\%$. Les éprouvettes subissent un séchage préalable pour atteindre un état hydrique interne optimal (cf. annexe 1) et faciliter ainsi la diffusion du CO₂.

Pour que la gammadensimétrie constitue un moyen d'obtention des profils de carbonatation permettant de mesurer la quantité de dioxyde de carbone ayant pénétré dans le milieu poreux, il faut supposer qu'aucun départ d'eau par séchage ne se produit pendant la carbonatation. Ainsi l'augmentation de densité sera uniquement due au CO₂, comme nous le montrons plus loin. Pour tracer ces profils l'état de référence est l'état à la fin du séchage (temps t_0 de carbonatation).

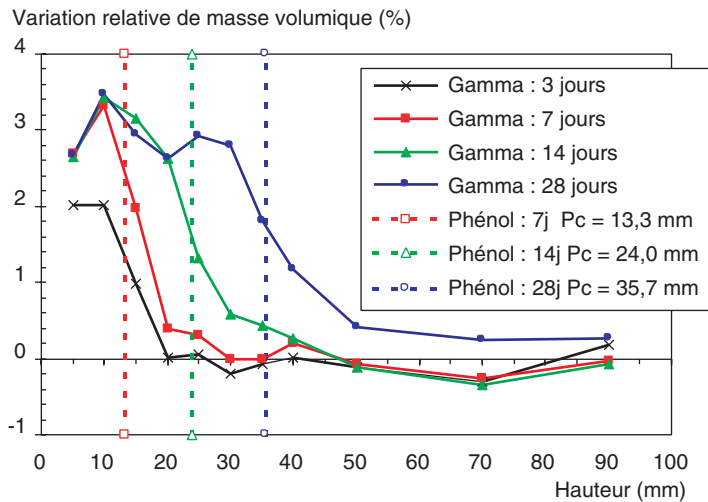
Analyse de profils de carbonatation de différents bétons, évolution au cours du temps

L'analyse des profils obtenus sur les différents bétons étudiés conduit aux observations suivantes.

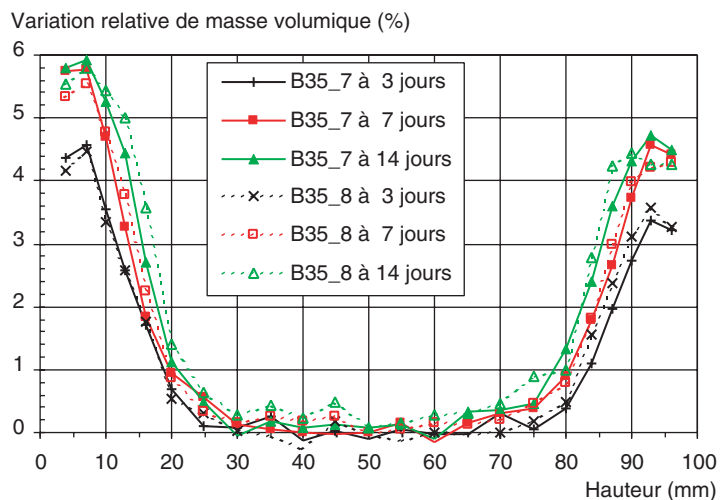
La variation relative de masse volumique en surface, entre t_0 et les différentes échéances de carbonatation, est très significative : elle est égale à 3 % pour le béton M25 (Fig. 12), et à 4 à 5 % pour le béton B35 (Fig. 13).

Au cours du temps, l'augmentation de densité progresse avec la profondeur de carbonatation mesurée par l'indicateur coloré de pH ; elle progresse donc avec la pénétration du dioxyde de carbone qui réagit avec les différents ions de la solution interstitielle du béton (cf. Fig. 9, 10, 11 et 13). Les deux essais donnent des résultats cohérents, mais la gammadensimétrie indique que la carbonatation agit plus profondément que ne le montre la phénolphtaléine.

■ **Fig. 12**
 Profils de carbonatation et profondeurs de carbonatation du béton M25, pendant un essai de carbonatation accélérée aux échéances de 3, 7, 14 et 28 jours.



■ **Fig. 13**
 Reproductibilité de la mesure par gammadensimétrie : comparaison de profils de carbonatation à trois échéances différentes, pour des éprouvettes de la même gâchée (béton B35).

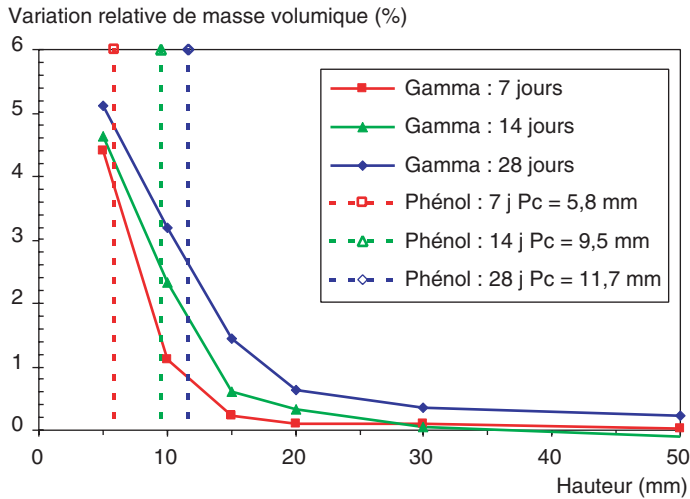


L'auscultation non destructive des éprouvettes permet de suivre au cours du temps l'avancée de la pénétration du dioxyde de carbone dans le milieu poreux.

Un « phénomène de saturation en CO_2 » se produit près de la surface d'exposition pour les bétons les plus poreux, par exemple pour le béton M25 sur la figure 12. Entre 7, 14 et 28 jours, la densité ne varie plus aux profondeurs de 5 et 10 mm bien que le CO_2 continue de pénétrer dans le milieu poreux. On peut donc supposer que la teneur maximale en CO_2 pouvant se fixer a été atteinte. Ce phénomène de « saturation en CO_2 » n'a pas été observé sur le béton M50, le moins poreux, au bout de 28 jours de carbonatation accélérée (Fig. 14).

Une fois la « saturation en CO_2 » atteinte, aucune variation de densité n'est décelable en surface jusqu'à l'échéance finale de carbonatation, notamment pour le béton M25 à la profondeur de 5 mm entre 7 et 28 jours. Par conséquent, l'hypothèse affirmant qu'aucun séchage ne perturbe la mesure de la quantité de CO_2 fixé est justifiée dans ces conditions et pour le béton le plus poreux. *A fortiori*, pour les autres bétons moins poreux, ni l'humidité encore présente dans les pores à l'issue du préconditionnement, ni celle libérée par la réaction de carbonatation ne migrent vers l'extérieur (à la précision de 0,2 % près).

Les écarts faibles entre les profils obtenus pour deux éprouvettes différentes de la même gâchée et la même campagne expérimentale nous semblent plus dus aux hétérogénéités du matériau (bulles, granulats) qu'à la méthode. La figure 13 en donne un exemple.



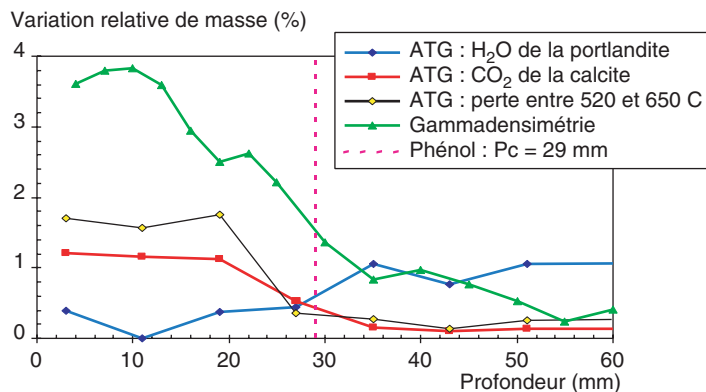
■ **Fig. 14**
Profils de carbonatation et profondeurs de carbonatation du béton M50, pendant un essai de carbonatation accélérée aux échéances de 7, 14 et 28 jours.

Validation de la méthode gammadensimétrique par analyse thermogravimétrique

Afin de s'assurer de la pertinence de la gammadensimétrie pour obtenir un profil de carbonatation, cette méthode a été comparée avec une analyse thermogravimétrique (ATG) complétée par une analyse chimique après attaque acide. Cette méthode, mise au point par Gérard Platret (Platret *et al.*, 1994), permet de mesurer les quantités de portlandite et de carbonate de calcium présentes dans un échantillon de béton broyé (Villain *et al.*, 2003). Après 14 jours de carbonatation accélérée, une éprouvette, auscultée par rayonnement gamma, a été sciée à différentes hauteurs et une ATG réalisée. La figure 15 donne un exemple de résultat pour le béton M25. Même si les valeurs mesurées diffèrent, les profils ont une allure similaire. La prise de masse enregistrée par gammadensimétrie est localisée dans la zone d'épuisement de la portlandite et de formation de carbonate de calcium observée par ATG.

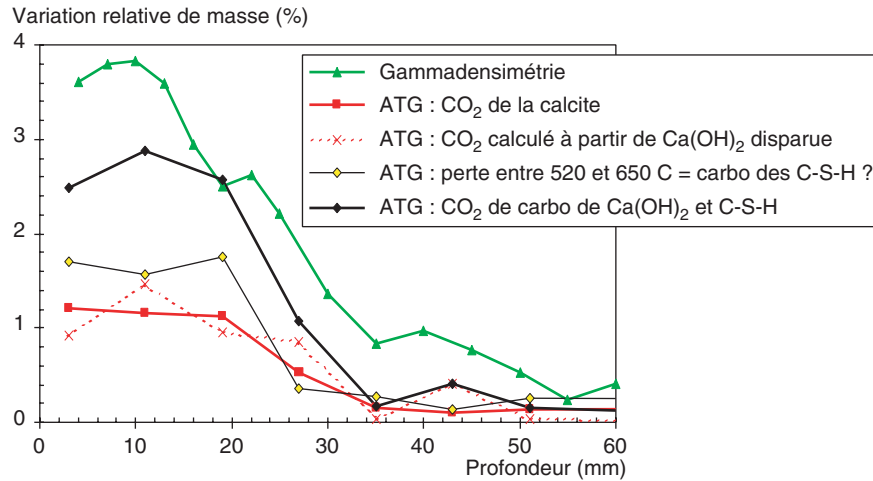
Les différences peuvent être expliquées. La gammadensimétrie comptabilise en effet tout le CO_2 ayant pénétré dans le béton sans faire de distinction, que celui-ci ait réagi avec la portlandite, les C-S-H et d'autres hydrates (ettringite, aluminates, etc.) ou soit adsorbé dans les pores du béton. Par contre, l'ATG quantifie le carbonate de calcium issu de la carbonatation de la portlandite. En outre, on suppose que cette dernière méthode a la possibilité de quantifier aussi des carbonates d'origine différente, comme ceux provenant de la carbonatation des C-S-H (Villain *et al.*, 2003). Cette hypothèse reste toutefois à vérifier (Fig. 16).

En surface, lorsque la carbonatation est suffisamment importante, la quantité de CO_2 fixée, mesurée à 5 mm, est toujours plus faible que celle mesurée à 10 mm, que ce soit par gammadensimétrie ou par ATG. Les essais d'ATG permettent d'éliminer l'hypothèse d'une carbonatation « naturelle » pendant le séchage. En effet, cette méthode mesure la quantité totale de CO_2 fixée alors que la gammadensimétrie



■ **Fig. 15**
*Comparaison des profils de carbonatation obtenus par gammadensimétrie et par ATG, à l'échéance de 14 jours (béton M25) (Villain *et al.*, 2003).*

métrie ne donne que la quantité de CO₂ fixée entre l'état de référence (t₀) et l'échéance de mesure. Une autre explication plausible est une modification des surfaces d'exposition pendant le sciage sous eau. Un colmatage des pores par les débris ou une lixiviation de la portlandite et d'autres hydrates pourraient en effet réduire la capacité de carbonatation. Des essais sur éprouvettes fendues à sec permettront de vérifier cette seconde hypothèse.

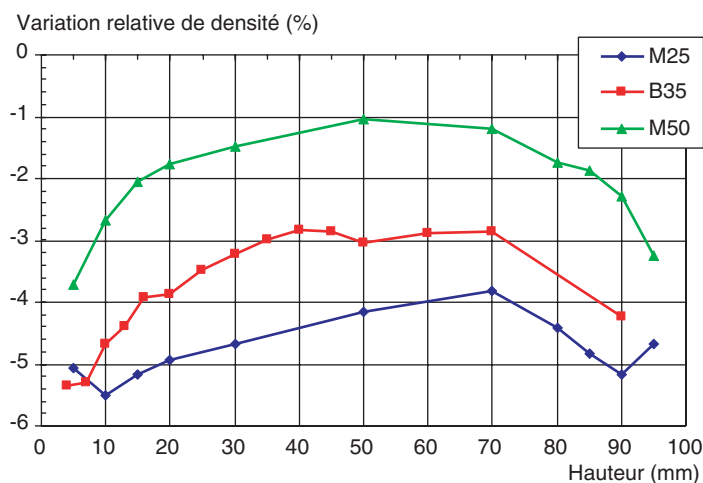


■ Fig. 16

Comparaison des profils de carbonatation obtenus par gammadensimétrie et par ATG tenant compte de l'hypothèse sur l'origine des carbonates (béton M25).

Détermination de l'influence du taux de saturation sur le profil de carbonatation

Lors de la phase de séchage de cette campagne expérimentale, on a cherché à atteindre un état hydrique optimal vis-à-vis de la carbonatation, le plus homogène possible. Comme le séchage du béton est très long même en augmentant la température de séchage, on n'atteint pas une perte d'eau homogène, en particulier pour les bétons les moins poreux (B35 ou M50 sur la figure 17).



■ Fig. 17

Comparaison des profils de séchage à l'échéance t₀ pour les bétons M25, B35 et M50.

Cela est sans doute la raison pour laquelle la « saturation » en CO_2 fixé pour ces bétons peu poreux ne correspond pas à une constante si l'on utilise comme état de référence ρ_0 la densité atteinte à t_0 à la fin du séchage (Fig. 18). L'eau encore présente dans les pores les plus fins en réduit l'accessibilité au dioxyde de carbone.

Par ailleurs, le phénomène de carbonatation libre des molécules d'eau (cf. l'annexe 2) (cf. remarque ci-dessus). Afin d'examiner l'influence de l'humidité interne, l'éprouvette de béton qui avait subi 56 jours de carbonatation a été resaturée puis séchée à 105°C . L'éprouvette a été systématiquement auscultée à t_0 , t_{56j} , $t_{56j+\text{sat}}$ et $t_{56j+\text{sec}}$. Grâce à la mesure de porosité réalisée sur une autre éprouvette carbonatée, la masse volumique sèche a aussi été calculée. Il est alors possible de calculer les variations relatives de masse volumique :

- (1) entre t_0 et t_{56j} ,
- (2) entre t_{sat} et $t_{56j+\text{sat}}$
- (3) entre t_{sec} (avec ρ_{sec} estimée) et $t_{56j+\text{sec}}$

représentées sur la figure 19.

Cette démarche permet de faire apparaître, d'une part, l'eau libérée lors de la carbonatation (écart entre (1) et (3)) et, d'autre part, la différence de porosité entre le béton non carbonaté et le béton carbonaté (écart entre (2) et (3)). On peut aussi noter qu'à l'eau libérée peut s'ajouter le CO_2 ayant pénétré mais n'ayant pas réagi et pouvant s'échapper par chauffage. On estime cependant que ce dernier est extrêmement faible.

La variation de densité entre t_0 et t_{56j} (1) évalue donc bien tout le CO_2 qui a pénétré dans le milieu et qui a essentiellement réagi. Le séchage à 105°C permet d'évaluer la quantité d'eau libérée lors de la carbonatation et la re-saturation de mesurer l'augmentation de porosité (cf. ci-dessus).

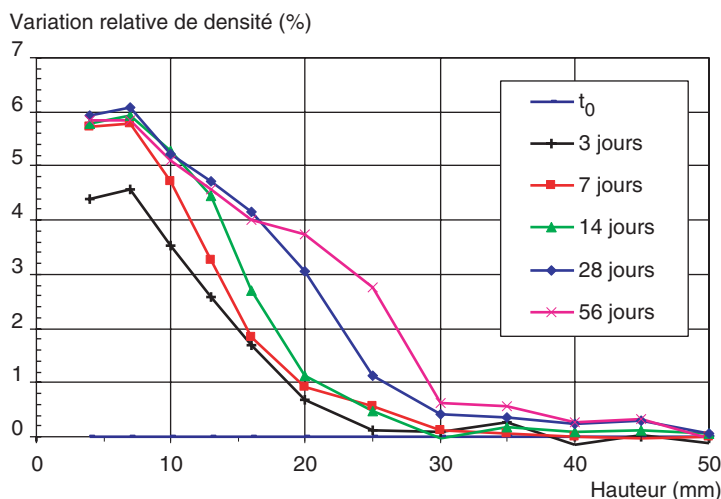


Fig. 18
Évolution des profils de carbonatation jusqu'à l'échéance de 56 jours pour le béton B35, en prenant la référence à t_0 , début de la carbonatation.

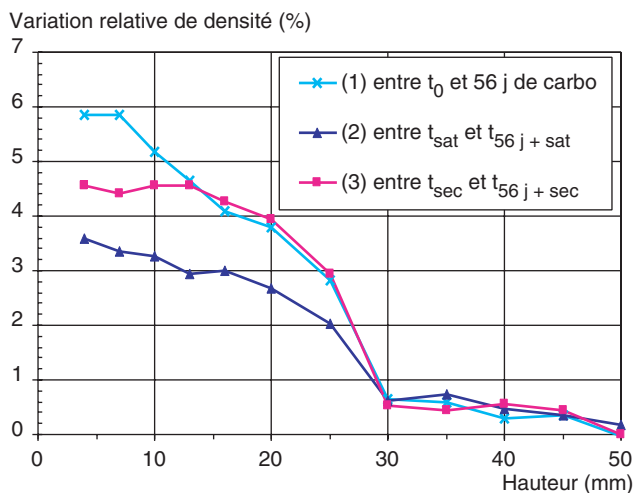


Fig. 19
Influence de l'humidité relative interne sur le profil de carbonatation.

CONCLUSIONS

On a montré que la gammadensimétrie est une méthode non destructive très intéressante pour déterminer les profils de séchage, de porosité et de carbonatation.

Par la prise en compte dans le calcul du coefficient d'absorption massique du départ d'eau, on améliore la précision du paramètre caractérisant l'humidité interne du béton (perte relative de densité, teneur en eau, etc.). Ce calcul étant relativement complexe quand les paramètres font appel à plusieurs mesures de densité (saturée, sèche ou à un stade intermédiaire), il est nettement préférable d'utiliser un calcul direct pour la porosité et le taux de saturation.

La gammadensimétrie permet de suivre le séchage d'une éprouvette de béton et d'en contrôler l'homogénéité. Atteindre un état d'équilibre avec le milieu extérieur étant très difficile, la connaissance de l'état hydrique interne de l'éprouvette testée permet de moduler les résultats d'autres essais au regard de l'influence de l'humidité interne sur les phénomènes analysés. Enfin, le profil de séchage obtenu sur une éprouvette de laboratoire ou une carotte d'ouvrage est une donnée primordiale pour les modèles de durabilité et de transport d'eau ou d'agents agressifs.

Pour l'étude de la carbonatation, la gammadensimétrie est vraiment une technique très avantageuse puisqu'elle donne accès à différents profils : porosité, taux de saturation et teneur en CO₂ ayant pénétré dans l'éprouvette en fonction de la distance à la surface exposée à une atmosphère riche en CO₂. Ce dernier profil est appelé « profil de carbonatation déterminé par gammadensimétrie ».

Les profils de porosité et de taux de saturation sont obtenus à l'issue de la carbonatation accélérée. Comme il est nécessaire de saturer de nouveau l'éprouvette puis de la sécher à 105 °C, le matériau est endommagé et l'éprouvette ne peut donc pas être réutilisée pour des essais complémentaires. La gammadensimétrie évite essentiellement un travail long et fastidieux de sciage en tranches et d'essais multiples tranche par tranche, ainsi que les risques d'erreurs cumulées.

Par contre, le profil de carbonatation est obtenu par auscultation sans trop perturber l'état hydrique et les réactions chimiques puisque l'essai accéléré n'est interrompu que pendant quelques heures. Par conséquent, cette méthode non destructive permet de suivre l'évolution du phénomène au cours du temps, aux échéances choisies. La seule contrainte est l'obligation de disposer d'un état de référence, ce qui implique qu'elle ne peut être utilisée sur carottes d'ouvrage. En effet, la carbonatation se produit dans une zone superficielle où plusieurs causes (effet de peau, dessiccation précoce perturbant l'hydratation) rendent délicate l'interprétation des effets de la carbonatation.

Les profils de carbonatation permettant de mesurer la quantité de dioxyde de carbone fixée dans le milieu poreux que constitue le béton, peuvent être corrélés aux profils obtenus par des ATG complétées par des analyses chimiques. Le suivi de la progression du gaz au cours du temps peut être mis en parallèle avec les profondeurs de virage d'indicateurs colorés du pH. Dans l'avenir, des analyses complémentaires ainsi que des modèles physico-chimiques pourront aider à définir clairement des valeurs de correspondance entre ces différentes méthodes expérimentales.

Annexe 1 Description de la campagne expérimentale

Dans le tableau IX, sont données les formulations des bétons cités dans cet article. Ils font partie d'une campagne expérimentale de carbonatation. Après trois mois de cure sous eau, les éprouvettes 11 × 22 sont sciées en échantillons de hauteur 10 cm puis saturées en eau sous vide. Elles sont ensuite séchées pendant un mois à 45 °C en étuve puis un mois à 20 °C dans une enceinte dont l'humidité relative est contrôlée et égale à environ 53 %. Le but est, d'une part, de se rapprocher le plus possible d'une humidité relative interne proche de celle d'équilibre et la plus homogène possible et, d'autre part, d'être dans les conditions les plus favorables à la carbonatation, l'optimum étant compris entre 40 et 70 % d'humidité relative (Chaussadent, 1999). Pendant les phases de séchage et de carbonatation, le pourtour des cylindres est recouvert de deux couches d'aluminium adhésif afin d'assurer des échanges unidirectionnels avec l'extérieur par les faces planes sciées. Pour les bétons les plus poreux, le béton M25 en particulier, une des faces sciées est aussi protégée à la fin de séchage et au début de la carbonatation (c'est-à-dire à l'instant t_0). La carbonatation est conduite dans une enceinte à $T = 20 \pm 2$ °C, à $HR = 53 \pm 5$ % et à une teneur en CO_2 de 45 ± 5 %. L'enceinte est ouverte à 7, 14 et 28 jours voire parfois à 3 et 56 jours. À chaque échéance, un essai de gammadensimétrie est effectué sur les cylindres et des mesures de profondeur de carbonatation par fendage et pulvérisation de phénolphthaléine ou de thymolphthaléine sont réalisées sur des éprouvettes prismatiques ayant subi les mêmes conditions d'essais. Un cylindre est utilisé après 14 jours de carbonatation pour réaliser un profil de carbonatation par analyse thermogravimétrique (ATG) selon la méthode mise au point par Gérard Platret (Platret et al., 1994) et améliorée pour les bétons (Villain et al. 2003).

TABLEAU IX
Caractéristiques des différents bétons cités dans cet article

		M25	B35 (M40)	M50	BO
Sable 0/4 (seine)		446	445,1	400	372
Sable 0/5 (boulonnais)		453	452,1	406	372
Gravier 4/12,5 (boulonnais)		388	385,6	428	415
Gravillon 12,5/20 (boulonnais)		619	615,2	509	777
Ciment CEM I 52,5 PM ES (Lafarge Saint-Vigor)	kg/m ³	230	300	410	0
Ciment CEM I 52,5 PM ES (Lafarge Le Teil)	kg/m ³	0	0	0	353
Eau	kg/m ³	193	187,4	197	172
E/C	-	0,84	0,62	0,48	0,49
Résistance moyenne à la compression à 28 jours R_{c28}	MPa	26,9	40,7	54,7	58,6
Porosité à l'eau à 90 jours	%	14,34	14,36	14,10	11,58
Porosité au mercure à 90 jours	%	16,46	11,74	11,70	10,98

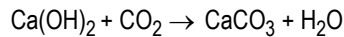
Annexe 2

La carbonatation et ses conséquences sur le béton (CHAUSSADENT, 1999)

Le processus de carbonatation des bétons comprend plusieurs phénomènes :

- la diffusion du dioxyde de carbone (CO₂) de l'air dans les pores du béton,
- la dissolution de ce gaz dans la solution interstitielle,
- la dissolution d'hydrates (Ca(OH)₂, C-S-H, etc.)
- la formation de carbonates de calcium.

Les réactions globales de bilan données ci-dessous sont les principales :



Lors de la carbonatation, la portlandite (Ca(OH)₂) et les silicates de calcium hydratés (C-S-H) conduisent à la précipitation de carbonate de calcium (CaCO₃) et à la libération d'eau auparavant constitutive des hydrates. Par ailleurs, le CO₂ étant un acide faible, le pH de la solution interstitielle diminue progressivement. Cette baisse du pH est préjudiciable aux armatures du béton armé qui sont passivées donc protégées en milieu fortement basique, mais ne le sont plus dans le béton carbonaté. Elles sont alors susceptibles de se corroder. La carbonatation provoque aussi une réduction de la porosité du béton (exception faite des bétons contenant des laitiers) car les produits de cette réaction occupent des volumes molaires plus importants que les hydrates.

RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES

AFPC-AFREM, Détermination de la masse volumique apparente et de la porosité accessible à l'eau, Méthodes recommandées pour la mesure des grandeurs associées à la durabilité, *CR des Journées Techniques AFPC-AFREM « Durabilité des bétons »*, Toulouse, 11 et 12 décembre 1997, pp. 121-124.

ATTOLOU A., *Étude du séchage du béton par gammadensimétrie*, Rapport interne du LCPC, 1985, 16 pages.

BAROGHEL-BOUNY V., CHAUSSADENT T., CROQUETTE G., DIVET L., GAWSEWITCH J., GODIN J., HENRY D., PLATRET G., VILLAIN G., *Caractéristiques microstructurales et propriétés relatives à la durabilité des bétons - Méthode de mesure et d'essais de laboratoire*, Méthode d'essai 58 dans *Techniques et Méthodes des laboratoires des Ponts et Chaussées*, LCPC, février 2002, 87 pages.

BAROGHEL-BOUNY V., MAINGUY M., COUSSY O., Isothermal drying process in weakly permeable cementitious materials - Assessment of waterpermeability, *Materials science of concrete special volume : Transport in cement-based materials, International conference on ion and mass transport in cement-based materials*, Toronto, Canada (ed. by J. Marchand et al.), 4-5 octobre 1999.

BAROGHEL-BOUNY V., *Caractérisation des pâtes de ciment et des bétons, Méthodes, Analyse, Interprétations*, LCPC, 1994, 468 pages.

BELARIBI N., PONS G., PERRIN B., Delayed behaviour of concrete : Influence of additions and aggregate characteristics in relation to moisture variations, *Cement and Concrete Research*, vol. 27, 9, 1997, pp. 1429-1438.

BERGER M.J., HUBBELL J.H., *Photon attenuation coefficient*, In *Handbook of Chemistry and Physics*, 81st edition, 2000-2001, pp. 10.207-10.211.

BOUGHERRA A., SALLÉE H., DE BARQUIN F., DHEILLY R.M., QUENEUDEC, M., Isothermal moisture properties of wood-cementitious composites, *Cement and Concrete Research*, vol. 29, 3, 1999, pp. 339-347.

BONNET S., *Influence du chlore sur les propriétés à l'équilibre et sur les propriétés de transfert des matériaux de génie civil*, Thèse de l'INSA de Toulouse, décembre 1997, 265 pages.

CHAUSSADENT T., *État des lieux et réflexions sur la carbonatation du béton armé*, Études et Recherches des LPC, série Ouvrages d'Art, OA29, Edited by LCPC, septembre 1999, 80 pages.

CHINCHON J.S., BARO J., TENT J., ELVIRA J.J., Quantification of high alumina cement content in concrete by means of gamma ray spectrometry, *Materials and Structures*, vol. 27, 171, 1997, pp. 399-400.

DA ROCHA M. C., DA SILVA L. M., APPOLONI C. R., PORTEZAN FILHO O., LOPES F., MELQUIADES F. L., DOS SANTOS E. A. et al., Moisture profile measurements of concrete samples in vertical water flow by gamma ray transmission method, *Radiation Physics and Chemistry*, vol. 61, Issues 3-6, june 2001, pp. 567-569.

GABILLY Y., Portique d'essai LCPC aux rayons gamma, *Bulletin de Liaison des Laboratoires Routiers des Ponts et Chaussées*, 11, janvier-février 1965, pp. 1-15-17.

GABILLY Y., Le banc d'essais à rayonnement gamma, *Numéro spécial P, Bulletin de Liaison des Laboratoires Routiers des Ponts et Chaussées*, « Radio-isotopes II », sous la direction de J.-P. Chevrier, octobre 1970, pp. 7-20.

- GAUTHIER C., *Optimisation des mesures de rayonnement – Application aux mesures de masse volumique*, Document interne LCPC, 1968, 45 pages.
- GELADE P., *Stabilité et comportement rhéologique des coulis d'injection pour gaines de précontrainte*, Thèse de Paris VII, 2001, 177 pages.
- GUINEZ R., Contrôle non destructif des ouvrages d'art par gammagraphie, radiographie et radioscopie, *Bulletin de liaison des Laboratoires des Ponts et Chaussées*, 171, février 1991, pp. 83-93.
- KHELIDJ A., BAROGHEL-BOUNY V., BASTIAN G., GODIN J., VILLAIN G., *Transferts dans les bétons et durabilité des ouvrages. Détermination expérimentale des gradients résultant d'une interaction hydratation-séchage dans une dalle en béton*, Études et Recherches des LPC, série Ouvrages d'Art, OA39, 2002, 84 pages.
- MENSI R., ACKER P., ATTOLOU A., Séchage du béton : analyse et modélisation, *Materials and Structures*, vol. 21, 121, 1988, pp. 3-12.
- Mode opératoire et consignes : essais sur le banc gamma*, Version 1, Document interne LCPC, janvier 2002, 16 pages.
- MULTON S., MERLIOT E., JOLY M., TOUTLEMONDE F., Water distribution in beams damaged by alkali-silica reaction : Global weighing and local gammadensitometry, *Materials and Structures* (à paraître).
- PERRIN B., BAROGHEL-BOUNY V., CHEMLOUL L., Méthodes de détermination de la diffusivité hydrique de pâtes de ciment durcies, *Materials and Structures*, vol. 31, 208, may 1998, pp. 235-241.
- PLATRET G., DELOYE F.-X., Thermogravimétrie et carbonatation des ciments et des bétons, *Actes des Journées des Sciences de l'Ingénieur*, Giens, France, vol. 1, 1994, pp. 237-243.
- PREISS K., Measuring the thickness of a concrete slab by gamma ray transmission, *Journal of the American Concrete Institute*, vol. 63, 7, july 1966, pp. 743-748.
- Radio-isotopes, *Numéro spécial G*, *Bulletin de Liaison des Laboratoires Routiers des Ponts et Chaussées*, sous la direction de M. Duquesne, Paris, octobre 1966, 271 pages.
- Radio-isotopes II, *Numéro spécial P*, *Bulletin de Liaison des Laboratoires Routiers des Ponts et Chaussées*, sous la direction de J.-P. Chevrier, Paris, octobre 1970, 132 pages.
- REIJONEN H., PIHLAJAVAARA S.E., On the determination by neutron radiography of the thickness of the carbonated layer of concrete based upon changes in water content, *Cement and Concrete Research*, vol. 2, 5, 1972, pp. 607-615.
- (a) THIERY M., VILLAIN G., PLATRET G., Effect of carbonatation on density, microstructure and liquid water saturation of concrete, *Proceedings of the Engineering International Conference Advances in Cement and Concrete IX : Volume changes, Cracking and Durability*, Copper Mountain, Colorado, august 10-14 2003, 10 pages.
- (b) THIERY M., DANGLA P., VILLAIN G., PLATRET G., Modélisation du processus physico-chimique de carbonatation des bétons, *Actes des Journées des Sciences de l'Ingénieur du réseau des LPC*, Dourdan, France, 9-11 décembre 2003, pp. 403-408.
- VILLAIN G., BAROGHEL-BOUNY V., KOUNKOU C., HUA C., Mesure de la perméabilité aux gaz en fonction du taux de saturation des bétons, *Revue Française de Génie Civil*, « Transferts dans les bétons et durabilité », vol. 5, 2-3, 2001, pp. 251-268.
- VILLAIN G., BAROGHEL-BOUNY V., KOUNKOU C., Comparative study on hydration, drying and induced deformations of self compacting and ordinary mortars, *Proceedings of the 1st RILEM International Symposium on Self-Compacting Concrete*, Stockholm, 13-15 september 1999, pp. 131-142.
- VILLAIN G., PLATRET G., Comparison of two experimental methods to determine carbonation profiles in concrete, of *Proceedings Supplementary Papers of the 6th CANMET/ACI International Conference on « Durability of Concrete »*, Thessaloniki, Greece, june 1-7 2003, pp. 179-194.