

# Connaissances générales sur la réaction sulfatique interne

## I. Introduction

La réaction sulfatique par formation d'ettringite secondaire ou par formation différée d'ettringite est considérée par le nombre et l'importance des ouvrages atteints comme la deuxième cause chimique provoquant le gonflement du béton, après la réaction alcali-silice. La présence des ions sulfates dans l'environnement extérieur, dans les granulats pouvant se dégrader, ou dans les parties constituant la matrice cimentaire provoque une réaction chimique progressive avec la portlandite. L'origine du gonflement est attribuée à la formation d'ettringite qui présente, sous certaines conditions thermodynamiques, des propriétés expansives. Dans ce chapitre nous allons présenter les différentes formes d'ettringite qui peuvent se former au cours de la vie du béton en nous concentrant sur la formation différée d'ettringite, responsable de la réaction sulfatique interne. On présentera la manifestation de cette pathologie à différentes échelles d'observation. On exposera les mécanismes de cette pathologie ainsi que les différents paramètres l'influençant.

## II. Formation d'ettringite dans la vie du béton

L'ettringite, ou trisulfoaluminate de calcium ( $3\text{CaO}\cdot\text{Al}_2\text{O}_3\cdot 3\text{CaSO}_4\cdot(30 \text{ à } 32)\text{H}_2\text{O}$ ), est un minéral cristallin de couleur blanche ou peu coloré par les impuretés, d'une apparence transparente et avec une surface vitreuse. Sa formation est due à la réaction entre les sulfates, les aluminates de calcium  $\text{C}_3\text{A}$  et de l'eau. La formation de l'ettringite s'effectue selon la réaction suivante :



Selon le processus de formation de l'ettringite, que ce soit dans la pâte, le mortier ou le béton, différents noms lui sont attribués. Les différents types d'ettringite qu'on peut rencontrer sont les suivants :

*L'ettringite bloquante* (Michaud et Suderman, 1999), elle se forme lors des premières minutes suivant le contact eau - ciment et une partie de l'ettringite, formée durant la période dormante, précipite sous forme d'aiguilles de très petites dimensions ne dépassant pas 0,25  $\mu\text{m}$  de largeur et 1  $\mu\text{m}$  de longueur (Metha, 1973). L'ettringite bloquante permet de retarder l'hydratation et assure, donc, la maniabilité du béton nécessaire pour sa mise en place.

*L'ettringite primaire* (Scott, 1997), La quantité maximale d'ettringite primaire est en général formée au bout de 24 heures (Odler, 1998). Elle précipite dans la solution interstitielle sous forme d'aiguilles de plus grande dimension que celles de l'ettringite bloquante. L'épaisseur des cristaux d'ettringite primaire est supérieure à 0,5  $\mu\text{m}$  alors que leur longueur est de 6  $\mu\text{m}$ . Des cristaux d'ettringite dont la longueur dépasse 120  $\mu\text{m}$  sont également rapportés dans la littérature (Midgley et Pettifer, 1971). Lors de l'hydratation « normale », à une température ne dépassant pas 60°C lors du pic de température dû au caractère exothermique de la prise du ciment et sous une pression atmosphérique, la majorité des ions  $\text{SO}_4^{2-}$  se trouve dans la structure cristalline de l'ettringite primaire.

*L'ettringite secondaire* : elle correspond à une ettringite qui cristallise dans le béton durci, à la faveur de circulations d'eau dans les bétons (phénomène de dissolution/recristallisation) et de sources de sulfates externes (sols, milieu marin...) ou internes (selon la quantité de sulfate dans les constituants du béton). Cette ettringite peut générer des gonflements internes pouvant conduire à l'apparition de désordres dans les ouvrages. Les ions  $\text{SO}_4^{2-}$  externes ou issus de dissolutions perturbent l'équilibre ionique préexistant et conduisent à une néoformation de gypse et d'ettringite *secondaire*.

*Formation différée de L'ettringite*: plus connue sous le nom de DEF – /Delayed ettringite formation/. Cette ettringite se différencie de l'ettringite secondaire essentiellement par l'origine des ions sulfate  $\text{SO}_4^{2-}$  nécessaire à sa formation. En effet, la source des sulfates pour l'ettringite secondaire peut être le milieu extérieur (sols, milieu marin...) alors que pour la DEF les ions  $\text{SO}_4^{2-}$  sont relâchés depuis la porosité inter-feuillets des C-S-H il s'agit d'une source interne au béton. La DEF est le sujet de notre recherche ; pour cela on examinera plus en détail sa manifestation aux différentes échelles d'observation, son mécanisme de formation et les différents paramètres intervenant dans ce phénomène. Cette analyse est faite dans la section suivante.

### **III. Formation différée de l'ettringite**

Les réactions sulfatiques internes (RSI) sont des pathologies attribuées à la formation d'ettringite dans un matériau cimentaire déjà durci, sans apport de sulfates par le milieu extérieur. Elles semblent nécessiter en général un apport suffisant en eau. L'étude de la réaction sulfatique interne principalement observée est la formation différée d'ettringite. Ce phénomène concerne uniquement certains bétons ayant subi, au jeune âge, une augmentation de température conduisant à une exposition suffisamment longue à une température supérieure à 65°C-70°C. Au-delà de ce seuil, l'ettringite déjà formée se décompose, tandis que la formation de nouvelle ettringite est empêchée en effet la forme stable des sulfates à cette température est le monosulfoaluminate éventuellement dissocié sous forme ionique. Les ions  $\text{SO}_4^{2-}$  sont alors principalement adsorbés dans les C-S-H, dont la formation est également accélérée. De telles conditions de température peuvent se produire au cours de traitements par étuvage souvent utilisés pour les éléments préfabriqués en usine, ou dans le cas de pièces massives en béton lors que la chaleur d'hydratation du ciment ne peut pas s'évacuer assez vite. Par la suite, des cristaux d'ettringite peuvent se former dans le béton durci, après retour à la température ambiante. Les ions  $\text{SO}_4^{2-}$  adsorbés dans les C-S-H, ainsi que ceux des monosulfates présents à l'intérieur du béton, servant de source de sulfates, sont ainsi susceptibles de provoquer des pressions de gonflement conduisant à des phénomènes

d'expansion. Ce processus nécessite la présence d'une humidité élevée et peut s'étaler sur plusieurs années.

Ce qui distingue la RSI des attaques sulfatiques externes, c'est que l'ettringite qui devrait se former durant l'hydratation est déstabilisée du fait d'une augmentation significative de sa solubilité consécutive à un échauffement important. Le phénomène est potentiellement réparti dans la pièce en béton, principalement à cœur, et ne connaît pas de gradient de développement associé à la diffusion d'ion sulfates en provenance de l'extérieur. La RSI est parfois qualifiée d'attaque sulfatique interne engendrée par un échauffement (Skalny et Thaulow 2002). Un échauffement tardif, par exemple celui appliqué par (Barbarulo 2002) (Barbarulo et al. 2005) (85°C pendant un mois, un an après le coulage), peut déstabiliser l'ettringite formée pendant la période de l'hydratation correspondant au durcissement du béton. Si elle a lieu, sous certaines conditions, la reprécipitation de cette ettringite déstabilisée peut aussi conduire à des dégradations.

### **1) Manifestation microscopique**

Les examens microscopiques du béton associés à une étude globale de la pièce concernée (environnement, formulation, procédure de mise en place ou de fabrication) permettent éventuellement de révéler la présence de produits délétères. Pour cela, le MEB est actuellement le meilleur outil qui puisse identifier la présence ou non d'une réaction sulfatique au sein du béton. Néanmoins, si cet outil apporte de nombreuses informations qualitatives, il n'est pas approprié pour quantifier l'ettringite observée.

A l'échelle microscopique, l'ettringite présente de nombreux faciès. Il est possible de distinguer l'ettringite tardive de l'ettringite d'hydratation précoce selon le faciès et la localisation de l'hydrate dans le matériau. L'ettringite primaire cristallise sous forme d'aiguilles intimement mêlées à la pâte de ciment durcie ou sous forme d'oursins dans les vacuoles (Louarn et Larive 1993). L'ettringite tardive, observée sur des échantillons issus de pièces en bétons dégradées, est principalement visible aux interfaces pâte-granulat, dans les vacuoles parfois comblées et dans les fissures. Elle présente un faciès massif caractéristique des conditions de sa formation dans un milieu déjà durci et de son caractère expansif. Elle est souvent localisée aux interfaces pâte-granulat. L'ettringite présente dans ce cas un aspect comprimé.

La formation d'ettringite aux interfaces pâte-granulat se justifie par les mécanismes réactionnels de la RSI proposés par (Diamond et al. 1996) et la nature particulière des hydrates formés dans ces zones. En revanche, le rôle joué par l'ettringite observée aux interfaces pâte-granulat dans les processus d'expansion ne fait pas l'objet d'un consensus. Sans données supplémentaires sur l'environnement auquel est exposé le matériau étudié, un examen classique au MEB ne permet pas de distinguer l'ettringite d'origine interne ou externe. Il faut dans ce cas réaliser une étude en profil de profondeur.

### **2) Manifestation mésoscopique :**

A l'échelle d'une éprouvette, la RSI peut engendrer plusieurs symptômes plus ou moins visibles selon l'amplitude des expansions. Ces symptômes sont classés en 3 catégories :

#### **i. Expansion :**

Les essais en laboratoire faits sur des éprouvettes atteintes de RSI montrent des courbes d'expansion de forme sigmoïdale (Lawrence1995-a) (Fu et Baudouin 1996) (Famy 1999). Vis-à-vis d'un gonflement potentiel d'origine sulfatique Brunetaud (Brunetaud 2005) a distingué trois catégories de béton: premièrement, les bétons ne montrant aucune expansion significative. Ce comportement se manifeste par des expansions très faibles, inférieures à 0,04 % à 700 jours. Une observation de leur microstructure au MEB ne montre aucune forme

d'ettringite aux interfaces pâte / granulats. Deuxièmement, les bétons au gonflement lent et linéaire. Les expansions de ces bétons sont significatives, c'est à dire supérieures à 0,04 %, mais la vitesse moyenne de gonflement reste lente. Troisièmement, les bétons au gonflement important et sigmoïde où les expansions dépassent 0,4 %. La courbe de gonflement de ces bétons peut être caractérisée principalement par la donnée de l'expansion et de la date du point d'inflexion.

Il faut noter que la RSI peut générer des expansions plus homogènes que la réaction alcali-silice (RAS), mais ces expansions peuvent être plus importantes (jusqu'à 2 % pour la RSI contre un maximum de 0,5 % pour les cas habituels de RAS (Larive 1998)).

#### ii. Variations de poids :

Une éprouvette en béton conservée en immersion dans l'eau après sa cure verra systématiquement son poids augmenter par reprise d'eau. Ce gain de poids peut atteindre rapidement 1 % à 28 jours mais habituellement se limitera au maximum à 2 % (Zhang et al. 2002). En cas d'expansion due à la DEF, ce gain peut atteindre 5 %, avec une cinétique similaire à celle de l'expansion.

Certains auteurs observent ainsi une relation de proportionnalité entre l'expansion mesurée et la prise de poids (Lewis 1996) mais cette corrélation diffère suivant les mortiers (Zhang et al. 2002). Il semble communément entendu que cette prise d'eau correspond à la fois à l'eau consommée pour former de l'ettringite et à l'eau piégée dans les fissures du matériau. Toute la difficulté est de connaître la proportion de chacun de ces deux phénomènes.

#### iii. Modification des caractéristiques mécaniques :

L'une des manifestations de la RSI dans le béton est la réduction du module d'Young. (Zhang et al. 2002) et (Brunetaud 2005) ont montré qu'il était possible d'établir une bonne corrélation entre la baisse du module d'élasticité dynamique (mesuré par auscultation ultrasonique) et l'expansion des éprouvettes. On peut ainsi observer une baisse de 10 % du module dynamique voire 40 % pour des éprouvettes très endommagées (expansion : 1,7 %). La résistance à la compression est elle aussi affectée par la pathologie : (Pavoine 2003) a observé une chute de 75 % de la résistance à la compression pour des éprouvettes de béton ayant développé des expansions de 1,6 %.

(Brunetaud 2005) a remarqué que lors d'une expansion linéaire, le matériau ne s'endommage pas ou très peu et que lors d'une expansion sigmoïde, la vitesse d'expansion est d'abord fonction du module dynamique jusqu'à un seuil d'endommagement, généralement aux environs de 0,1 % d'expansion. A partir de cette valeur, le module commence à chuter tandis que la vitesse d'expansion augmente. Cette chute peut atteindre 30% du module d'Young initial.

(Brunetaud 2005) a pu constater une corrélation entre l'expansion engendrée par la RSI et la résistance en compression. Cette corrélation est présentée dans la figure 1-1.

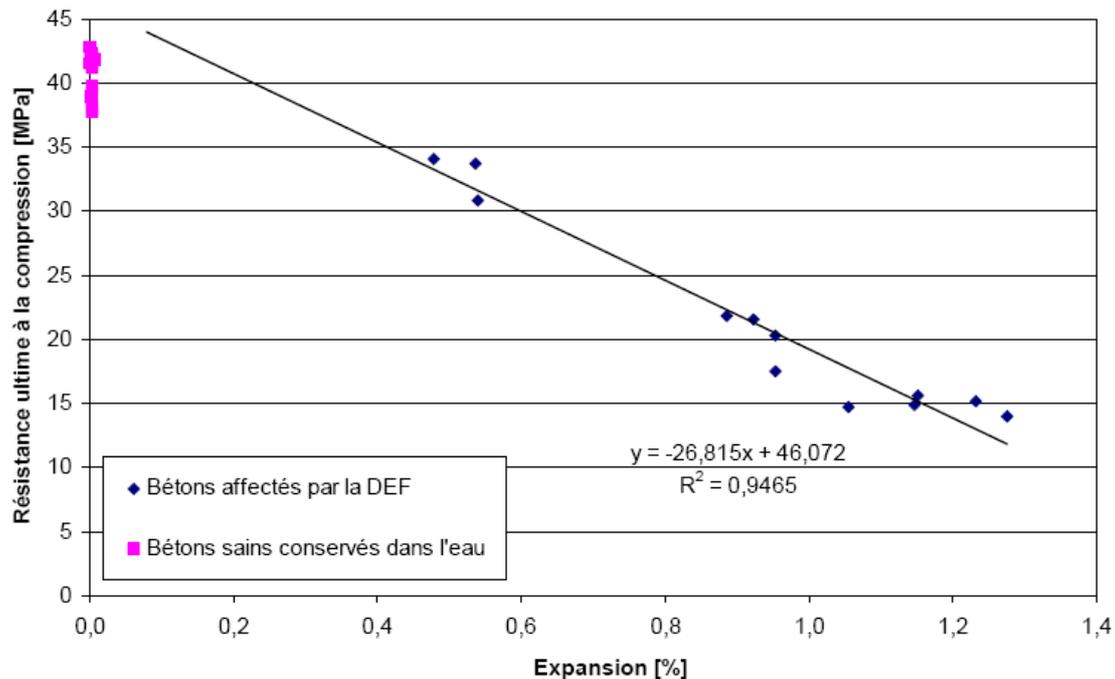


Figure 1-1 Effet de l'expansion à 700 jours sur la résistance en compression d'un béton affecté par la RSI (Brunetaud 2005)

La chute de la résistance de compression est de l'ordre de 50% pour les éprouvettes qui atteignent 1% d'expansion. Cette relation laisse a priori supposer qu'une expansion attribuable à la DEF inférieure à 0,20 % ne devrait pas se traduire par une baisse significative de la résistance à la compression (comme c'est d'ailleurs aussi le cas pour la RAS).

### 3) Effet macroscopique

Les structures ou composantes de béton atteintes par cette réaction délétère sont affectés dans toute leur masse (surface, cœur) ce qui les distingue essentiellement des pièces agressées par un environnement riche en sulfate (Divet 2001) puisque dans le second cas, l'attaque progresse de la surface vers le cœur. Le suivi des ouvrages malades est basé entre autres sur des examens visuels. Les dégradations sont caractérisées par de nombreuses fissures en surface qui apparaissent après plusieurs années. Les symptômes couramment observés sont proches de ceux constatés sous l'effet d'une réaction alcali-silice, à savoir une fissuration à mailles relativement larges (30 à 40 cm). Cette fissuration est parfois accompagnée d'un bombement de la surface. Les fissures observées au bout de quelques années peuvent atteindre une ouverture millimétrique. A l'origine, des dégradations ont été observées dans des cas spécifiques sur des éléments en béton ayant été durcis par traitement thermique.

## IV. Hypothèses sur les mécanismes de la RSI

Le mécanisme de la RSI constitue jusqu'à présent une source de divergence. Cette divergence montre bien que le phénomène de la RSI est assez complexe et nécessite encore beaucoup d'investigations.

Le premier mécanisme d'expansion proposé est fondé sur l'hypothèse de la croissance d'un cristal à l'intérieur du milieu poreux (Heinz et Ludwig 1987 ; Heinz et al. 1989). Ces auteurs ont trouvé une relation entre l'expansion observée et le gain de masse enregistré ; des observations au microscope électronique à balayage (MEB) ont montré qu'il y a une croissance d'ettringite à l'interface pâte/granulat.

Plusieurs auteurs (Shayan et Quick 1991, 1992a, 1992b, 1994) ont associé la RSI à la RAS, ils ont estimé qu'un béton atteint de RAS et chauffé au jeune âge constitue la première cause de désordres dans le domaine du béton. (Johansen et al. 1993) montre que les fissures engendrées par la RAS peuvent se faire dans la pâte de ciment ou dans les granulats et pas à l'interface pâte granulat ainsi il est nécessaire de faire plus d'investigation sur les produits qui se forment sur cette interface. (Marusin 1993-a, 1993-b, 1994-a, 1994-b) a identifié ce produit comme de l'ettringite. L'association systématique entre RSI et RAS n'a pas duré longtemps, en effet les expérimentations faites par (Fu et al. 1997, Lawrence 1995-b, Odler et Chen 1995, 1996) ont montré qu'il peut y avoir de l'expansion sans utilisation de granulat réactif.

Par ailleurs, (Taylor et al. 2001), (Scrivener et al. 1999) et (Famy et al. 2001) ont proposé un mécanisme d'expansion fondé sur une description de la pâte de ciment hydraté. D'après cette description, la seule phase sulfoaluminate présente après l'échauffement est le monosulfoaluminate de calcium hydraté, principalement concentré dans les produits externes d'hydratation de type C-S-H sous forme de nano-cristaux. En fin de période d'échauffement, les C-S-H contiennent alors une quantité importante d' $Al_2O_3$  et de  $SO_3$ . Lors d'un retour à température ambiante, et sous la condition d'un apport suffisant en eau, les sulfates précédemment adsorbés sur les feuillets de C-S-H sont supposés se libérer pour précipiter sous forme d'ettringite en lieu et place du monosulfoaluminate. Scrivener et Taylor considèrent qu'une expansion homogène de la pâte produit des fissures à la fois dans la pâte et aux interfaces pâte/granulats (Scrivener et al. 2004).

(Diamond 1996) propose de prendre en compte une participation des granulats dans le mécanisme de dégradation de la RSI. En faisant l'interprétation des résultats expérimentaux trouvés par (Yang et al. 1999), Diamond a mis en évidence le rapprochement direct entre le type de granulats, la présence de bandes d'ettringite aux interfaces pâte/granulats et le déclenchement d'expansion. Ainsi il estime que la formation de ces bandes est une condition nécessaire et suffisante pour le déclenchement d'expansions significatives.

(Brunetaud 2005) a élaboré un mécanisme global de la dégradation s'appuyant sur la synthèse des expériences et observations réalisées. Ce mécanisme fait intervenir différents points clefs comme l'expansion homogène de la matrice cimentaire causée par la précipitation de l'ettringite dans les surfaces extérieures aux feuillets de C-S-H. Cette ettringite comprimée dans les C-S-H se dissout pour migrer vers les grains de Hadley et les interfaces pâte / granulat. Ces deux localisations de l'ettringite peuvent alors devenir la source de deux comportements vis-à-vis du gonflement mesurable : l'un linéaire (grain de Hadley), l'autre sigmoïde (interface pâte/granulats).

(Shimada et al. 2005) estime que l'augmentation de température favorise l'hydratation du ciment ce qui provoque une consommation de l'eau contenue dans les pores et une augmentation de la quantité d'alcalins dans la solution interstitielle. Quand la température du béton atteint  $55^{\circ}C$  à  $60^{\circ}C$  l'ettringite primaire se décompose partiellement formant du monosulfate ce qui provoque un excès de sulfates. Ceci provoque un déséquilibre dans la quantité de sulfates présents dans la solution interstitielle vis-à-vis du gypse. Ainsi (Shimada et al. 2005) montre que plus la température au jeune âge est importante plus la concentration en sulfate de la solution interstitielle est importante. Lors du retour à la température ambiante la quantité d'alcalins présentes dans la solution interstitielle favorise la reformation d'ettringite dans les pores et par conséquent elle amplifie l'expansion.

Une autre école de pensée est celle de (Metha 1973). Il estime que l'ettringite est expansive suite à des pressions de gonflement d'un gel. La solution sursaturée provoque la précipitation d'un gel colloïdal gonflant. Cette morphologie expansive de l'ettringite n'existe que si la solution est saturée en chaux. La nature colloïdale de l'ettringite est favorisée par les interactions électrostatiques importantes entre les molécules d'eau et la surface de l'ettringite.

Il est vraisemblable que ces théories se complètent et que l'expansion soit un résultat de la combinaison de ces différents processus de formation d'ettringite. La multitude des processus qui peuvent provoquer la RSI démontre bien la complexité du phénomène, ce qui augmente le nombre de facteurs qui influencent sa cinétique et son amplitude.

(Scherer 2004) s'est intéressé à la zone de précipitation de l'ettringite, il a mené une étude basée sur la théorie des pressions de cristallisation. (Scherer 2004) estime que l'ettringite aciculaire qui précipite dans les plus gros pores et dans les fissures ne peut pas développer des pressions de cristallisation significatives et n'est donc pas responsable de l'expansion. L'expansion est essentiellement causée par une précipitation de l'ettringite dans des pores beaucoup plus petits, de dimension nanométrique. Cette précipitation est favorisée par la sursaturation qui permet une pénétration de l'ettringite dans des pores de diamètre 15 nm.

## **V. Facteurs déterminants de la formation différée de l'ettringite**

Plusieurs études expérimentales ont été faites pour définir les différents paramètres qui interviennent dans la formation différée d'ettringite (Lawrence 1995-a, Famy 1999, Heinz et Ludwig 1987, Odler et Chen 1996, Fu et al 1997, Collepari et Olagot 2004...). Les conclusions de ces études ont montré que la RSI n'est susceptible de se produire à long terme que dans certaines conditions spécifiques, que nous pouvons regrouper en 3 groupes à savoir :

### **1) Influence de la température au jeune âge**

La température au jeune âge a été reconnue comme le facteur le plus influent dans les phénomènes de RSI. (Famy et al. 2002) a conclu que le risque d'expansion de RSI ne peut pas être évité uniquement en jouant sur la composition de ciment, mais peut être éliminé en limitant la température interne du béton. Il est maintenant admis que pour qu'un matériau cimentaire développe une expansion liée à une attaque sulfatique interne, celui-ci doit avoir été porté à une température supérieure à 65°C environ pendant son hydratation (Odler 1996, Fu et al. 1997, Yang et al. 1999, Kelham 1999, Lawrence 1999).

A ce jour, la RSI n'a pas été observée sans exposition, au jeune âge ou après prise, à une température supérieure à 60°C pendant une durée significative. (Hime 1996) a recommandé, dans le cadre de la prévention contre les risques de la RSI, de limiter la température de cure à 70°C ou de préférence à 60°C. Cette démarche de limitation de la température est également à la base des recommandations (LCPC 2007).

Les résultats des expérimentations (Hime 1996) (Brunetaud 2005) (Famy 2002) montrent l'existence d'un seuil de température à partir duquel il y a un risque de RSI. Cette température seuil dépend de plusieurs paramètres comme la composition du ciment, la formulation du béton et il n'y a pas été mis en évidence jusqu'à maintenant de relation entre ces paramètres.

(Heinz et Ludwig 1989) ont montré qu'une augmentation de durée de traitement thermique de quatre heures à trois jours engendre un début d'expansion plus rapide mais réduit l'amplitude des gonflements. (Lawrence 1993) a observé la même chose en augmentant la durée du traitement thermique de 3 heures à 6 heures. (Lawrence 1995a, 1995b) a expliqué cette atténuation d'expansion par l'augmentation de l'adsorption des ions d'aluminium par les C-S-H ce qui empêche la recristallisation de l'ettringite. En contradiction avec ces résultats et interprétations, (Famy 1999) a observé une augmentation de l'expansion en augmentant la durée du traitement thermique de 6 heures à 12 heures. En revanche elle a noté qu'il n'y avait pas d'expansion après 10 jours de traitement, dans ces éprouvettes il a été observé une formation de composés libres riches en aluminates  $C_2ASH_8$  au lieu du monosulfate. (Famy 1999) a conclu qu'une durée modérée d'échauffement augmente le potentiel d'expansion. (Brunetaud 2005) est arrivé à la même conclusion en chauffant des éprouvettes à 85°C pendant 2 heures, 6 heures, 2 jours et 10 jours. En effet les éprouvettes chauffées pendant 2

jours ont développé une expansion plus importante que celles chauffées à 2 heures, 6 heures et 10 jours.

(Fu et al. 1997, Famy 1999, Lawrence 1995-b) estiment qu'une température de cure plus élevée augmente les expansions finales observées. (Fu et al. 1997) ont observé qu'un mortier chauffé à 90°C développe plus d'expansion que celui chauffé à 80°C. Dans la figure 1-2, on présente un extrait de ces résultats expérimentaux.

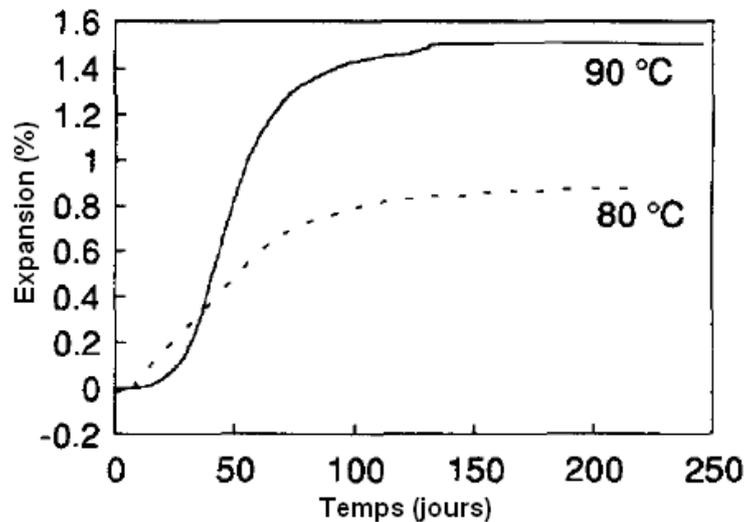


Figure 1-2 Expansion d'un mortier chauffé pendant 12 heures à 90°C et 80°C (Fu et al. 1997)

Après prise du béton à chaud, un retrait gêné peut aussi se produire en raison des gradients thermiques, lors du refroidissement, induisant de ce fait des contraintes mécaniques qui peuvent conduire à la fissuration des ouvrages. Cette fissuration de la matrice est reconnue comme augmentant la cinétique d'une expansion due à la DEF : la période d'induction est notamment fortement réduite (Petrov et Tagnit-Hamou 2004) (Collepari et Olagot 2004) (Fu et Baudoin 1996), ce qui peut être dû à la hausse de perméabilité et donc de l'apport d'eau dans la matrice (Soroushian et al. 2004). Cette microfissuration n'est par contre pas considérée comme un paramètre déclenchant vis-à-vis de la DEF et peut même réduire l'amplitude finale d'expansion voire totalement l'annuler (Petrov et Tagnit-Hamou 2004).

## 2) Influence des conditions de conservation

Les conditions de conservation post-cure modifient les expansions induites par la DEF. En effet, l'eau est le milieu réactionnel nécessaire au déroulement de la réaction sulfatique. Il intervient aussi bien dans les processus de transfert que dans la formation des produits de réaction.

Les travaux de (Heinz et Ludwig 1987) ont montré l'importance de l'humidité relative du milieu de conservation par des mesures de poids, de fréquence de résonance, d'expansion. Pour les éprouvettes de mortier conservées soit dans des enceintes d'humidité variable (60, 70, 80, 90 et 100 %) soit dans l'eau, seuls les échantillons conservés dans l'eau ont gonflé. Les réactions de dégradation ont commencé 28 jours après le gâchage de ces échantillons alors que les autres sont restés stables pendant un an.

Dans le même contexte (Lawrence 1995-b, Odler 1996, Famy 2001) ont montré qu'aucune expansion n'était observée en dessous de 90 % d'humidité relative. Au contraire une humidité relative supérieure à 90 % permettait le développement d'expansion après un an d'induction. Les expansions finales sont plus élevées et les temps d'induction plus courts lorsque les échantillons sont conservés dans l'eau plutôt qu'à 100% d'humidité relative. Les résultats des expansions de ces expérimentations sont montrés dans la figure 1-3.

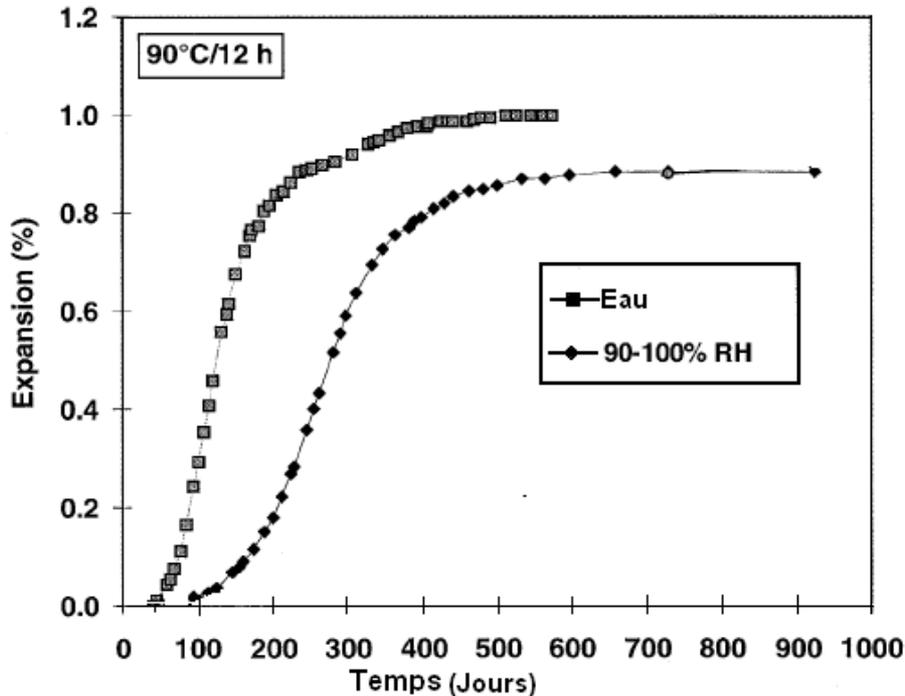


Figure 1-3 Expansion d'un béton conservé dans l'eau et entre 90% - 100% d'humidité (Famy et al. 2001)

(Graf-Noriega 2007) a mené des expérimentations afin de montrer l'effet exact de l'humidité sur les expansions de barres de mortier. Pour cela, il a mis des éprouvettes à 100 %, 97 %, 92 %, 90 %, 84 %, 80 %, 75 % et totalement immergées dans l'eau. Les résultats de cette étude sont représentés dans la figure 1-4.

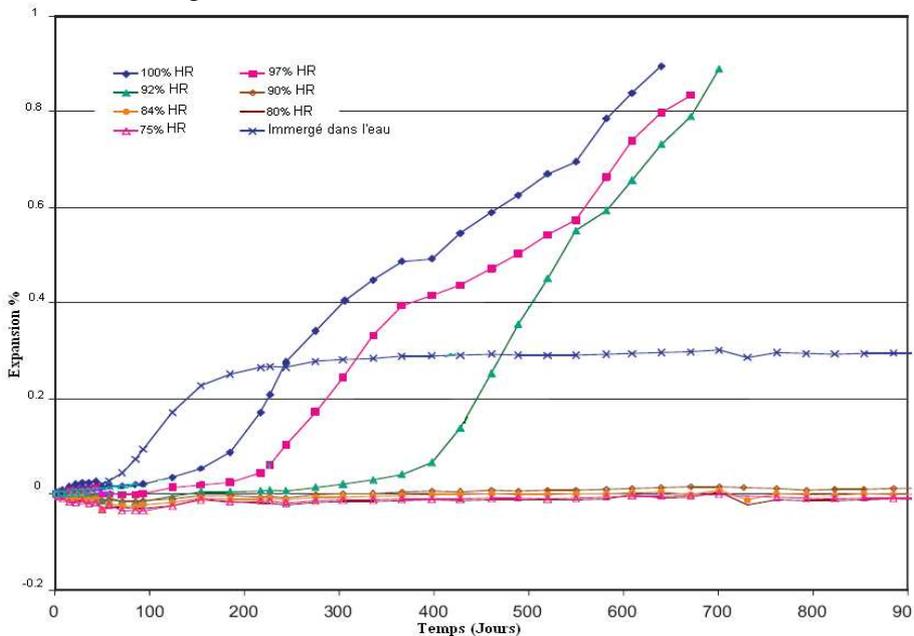


Figure 1-4 Variation de l'expansion selon le degré d'humidité (Graf-Noriega 2007)

Le début de l'expansion est observé sur les éprouvettes totalement immergées dans l'eau. Ce gonflement se stabilise vers 0,27 %. Après un certain temps, les éprouvettes soumises à 100 %, 97 % et 92% ont fait successivement de l'expansion pour atteindre 0,9 % après 600 jours. Les éprouvettes soumises à 90 %, 84 % et 80 % n'ont pas gonflé. A partir ce travail on peut

tirer deux conclusions. Premièrement, plus le taux d'humidité du milieu de conservation est élevé plus il y a de l'expansion. Deuxièmement, la conservation dans l'eau provoque une diminution de l'expansion, ce deuxième point est contradictoire avec (Lawrence 1995-a, Odler 1996, Famy 2001), ainsi il est nécessaire de faire plus d'investigation sur l'effet de l'apport en eau sur l'expansion induite par la RSI. Les conditions expérimentales mises en œuvre par les différents auteurs et les ambiguïtés entre contrôle de l'humidité relative, de l'immersion ou de la saturation, ne permettent en effet pas toujours de dissocier l'effet de l'eau de celui de la teneur en alcalins au sein de la solution interstitielle.

La température de conservation des matériaux influe sur la cinétique l'expansion finale. Ainsi, (Famy 1999) a montré que des prismes de mortier à 20°C préalablement soumis à une cure à la vapeur développaient des expansions après un temps d'induction. (Pavoine 2003) a de même conclu qu'une température de conservation de 23°C est plus favorable à l'apparition de DEF que 38°C. Comme pour les alcalins, la température est un paramètre majeur vis à vis des équilibres chimiques, qui se traduit par des modifications de la cinétique et des mécanismes mis en jeu lors de la DEF.

### 3) Paramètres liés à la formulation du béton

#### i. L'influence de la composition du ciment

Les sulfates et les aluminates interviennent directement dans le mécanisme réactionnel pour former de l'ettringite. Par conséquent la RSI n'est possible que si le ciment utilisé contient suffisamment d'aluminate tricalcique ( $3\text{CaO}\cdot\text{Al}_2\text{O}_3$  ou  $\text{C}_3\text{A}$ ) et de sulfates  $\text{SO}_3$ .

Aussi la teneur en alcalins a une grande influence sur l'évolution de la RSI. (Heinz et al. 1999) (Hime et Marusin 1999) ont donné un seuil d'alcalin équivalents égale à 1% au-delà de laquelle le ciment présente un risque de RSI.

(Lewis et al. 1995) a étudié l'impact de la teneur en alcalin sur le comportement macroscopique d'un mortier. On présente dans la figure 1.5 l'expansion d'une éprouvette fabriquée avec et sans ajout d'alcalin.

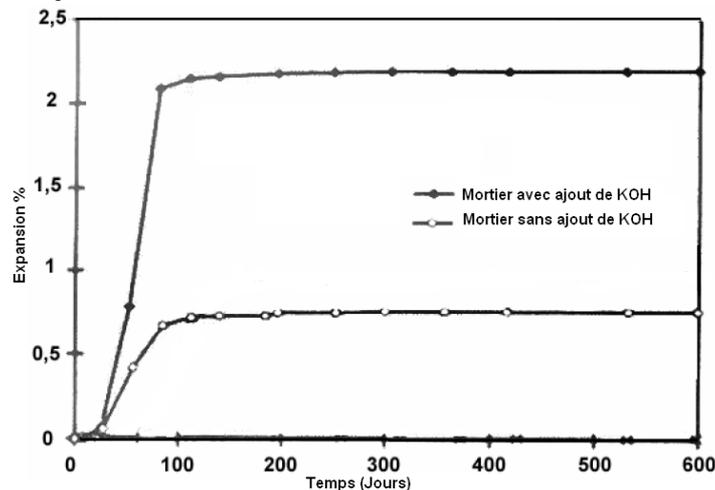


Figure 1-5 Expansion de mortier avec et sans ajout d'alcalin (Lewis et al. 1995)

On remarque qu'une éprouvette de mortier avec un ajout d'alcalin a une expansion finale trois fois plus importante qu'une éprouvette sans ajout d'alcalin.

Plusieurs chercheurs se sont intéressés à établir une corrélation entre le taux d'alcalin, la teneur en sulfates et l'expansion observée. (Heinz 1986) a estimé que le rapport  $\text{SO}_3/\text{Al}_2\text{O}_3$  peut être un critère pour étudier la réactivité d'un ciment vis-à-vis de la RSI, (Day, 1992) montre que l'utilisation de ciments ayant un rapport  $\text{SO}_3/\text{Al}_2\text{O}_3$  supérieur à 0,7, pour certains

traitements thermiques et conditions d'exposition, peut aboutir à la formation d'ettringite expansive et donc à la détérioration du béton. (Zhang et al. 2002) montre que il y n'a pas de RSI si le rapport  $\text{SO}_3/\text{Al}_2\text{O}_3$  est inférieur à 0,8 et qu'il y a au contraire un grand risque si ce rapport est dans le domaine optimal autour de 1,1.

(Heinz et al., 1989) (Lawrence 2002) utilisent par la suite le rapport  $(\text{SO}_3)^2/\text{Al}_2\text{O}_3$ , où la quantité d'alumine est celle contenue uniquement dans l'aluminate tricalcique, pour déterminer l'amplitude de l'expansion. Ils suggèrent un rapport  $(\text{SO}_3)^2/\text{Al}_2\text{O}_3$  de sécurité de 2. En dessous, les ciments ne sont pas sujets à la formation différée de l'ettringite. Au-delà d'un rapport  $(\text{SO}_3)^2/\text{Al}_2\text{O}_3$  de 2, l'expansion augmente fortement puis diminue à nouveau à partir de rapports très élevés. En d'autres termes, il existe une valeur de pessimum pour le rapport  $(\text{SO}_3)^2/\text{Al}_2\text{O}_3$ .

(Colleparidi et Olagot 2004) suggère qu'un taux élevé de sulfates (supérieur à 2%) dans le clinker accélère d'une façon considérable l'expansion. (Lawrence 1993) a suivi des éprouvettes faites de 41 dosages de béton différents, il est arrivé à la conclusion que le taux de  $\text{SO}_3$ ,  $\text{CaO}$ ,  $\text{MgO}$  et  $\text{Na}_2\text{O}$  sont des paramètres importants pour la prédiction de l'expansion finale et que l'augmentation du taux de  $\text{C}_3\text{A}$  diminue l'expansion. (Taylor 1994) affirme que  $\text{Na}_2\text{O}_{\text{eq}}$ ,  $\text{Na}_2\text{O}$ ,  $\text{SO}_3$  et  $\text{MgO}$  sont les paramètres critiques pour les expansions et les valeurs seuils sont respectivement égales à 0,83%, 0,22%, 3,6% et 1,6 %.

(Kelham 1996) a examiné l'effet de la finesse du ciment sur l'expansion finale, il a conclu qu'une augmentation de la surface spécifique engendre une augmentation de l'expansion.

Plusieurs modèles ont été présentés dans la littérature pour prédire le risque ou l'amplitude de l'expansion, nous présentons ces modèles dans le chapitre 3 « modélisation chimico-mécanique des effets de la RSI ».

## ii. La nature des granulats

Dans le cas de la réaction alcali-silice, les granulats jouent un rôle principal car ils apportent de la silice réactive. Dans le cas de la RSI, ce rôle n'est pas encore parfaitement identifié. Certaines études montrent l'impact de la nature des granulats (siliceux ou calcaires) sur les expansions liées à la RSI. (Grattan-Bellew et Beaudoin 1998), (Lawrence 1993), (Lawrence 1995-b) (Duszak et Kurdowski 2002), (Lewis 1996) ont étudié l'effet de la composition des granulats sur l'expansion observée, ils concluent de ces recherches que l'utilisation de granulats calcaires en substitution de granulats siliceux atténue l'amplitude de l'expansion observée, mais leur rôle inhibiteur ou retardateur qui pourrait être associé à une meilleure compacité de l'interface pâte-granulats n'est pas clair.

La dimension des granulats joue aussi un rôle important sur les expansions, (Fu et al. 1997) a remarqué que des barres de mortier fabriquées avec du sable siliceux fin font une expansion plus importante qu'un mortier fabriqué à partir d'un gros sable calcaire. (Grattan-Bellew et Beaudoin 1998) a remarqué que les expansions sont inversement proportionnelles à la taille des granulats siliceux. Ainsi une augmentation de la surface des granulats favoriserait la formation d'ettringite aux interfaces, ce qui augmente le taux d'expansion.

Le coefficient de dilatation thermique des différents types de granulats peut aussi avoir une influence sur l'expansion. (Grattan-Bellew et Beaudoin 1998) a remarqué une expansion uniquement dans du béton fait avec des granulats de quartz et non pas avec des granulats de calcaire, granite ou basalte. En effet, le coefficient de dilatation thermique du quartz ( $11 \cdot 10^{-6}/^\circ\text{C}$ ) est supérieur à celui du basalte ( $7,8 \cdot 10^{-6}/^\circ\text{C}$ ), du granite ( $5,8 \cdot 10^{-6}/^\circ\text{C}$ ) et du calcaire ( $4,2 \cdot 10^{-6}/^\circ\text{C}$ ). Lors du traitement thermique le quartz cause des déformations suffisantes pour créer des microfissurations dans le béton, ce qui favorise la pénétration d'eau et accélère la réaction.

(Brunetaud 2005) a fait les mêmes constatations en étudiant la différence entre les coefficients de dilatation des granulats siliceux, calcaire et de la pâte de ciment. Vu que le coefficient de

dilatation des granulats siliceux est supérieur à celui de la pâte, au retour à la température ambiante, il y a une probabilité significative de création d'un léger vide à l'interface de la pâte de ciment et du granulat, ceci ne peut pas se produire pour les granulats calcaires dont le coefficient est inférieur à celui de la pâte de ciment.

### iii. Le rapport E/C

Le rôle exact par lequel le rapport E/C intervient dans le développement de la formation différée de l'ettringite ne fait pas encore l'unanimité. Les observations des différents auteurs sont parfois contradictoires. (Heinz, 1986 ; Heinz et Ludwig 1987,1989) étaient les premiers à étudier l'effet du rapport E/C en faisant varier ce rapport de 0,4 à 0,7. Ils n'ont pas remarqué une relation entre ce rapport et les expansions observées mais ils suggèrent qu'une faible porosité engendre une diminution des expansions. (Odler 1995) a remarqué la même chose en faisant varier E/C de 0,5 à 0,4. (Ouyang et al. 1988) observent une diminution des expansions avec une diminution du rapport E/C et attribuent cet effet à la baisse des transferts hydriques et ioniques. A l'opposé, les résultats de Lawrence (Lawrence 1995-b) tendent à montrer qu'abaisser le rapport E/C ralentit de manière importante les expansions induites par la RSI mais augmente l'amplitude finale d'expansion. De même, (Stark et al.1992) concluent qu'abaisser le rapport E/C augmente les expansions, et attribuent cet effet à la diminution du volume des vases d'expansions.