

Mémoire de thèse de doctorat

Présenté pour l'obtention du grade de Docteur de l'Université Paris Est
Spécialité : Structures et Matériaux

Par :

Renaud-Pierre MARTIN

Analyse sur structures modèles des effets mécaniques de la réaction sulfatique interne du béton

Thèse préparée au Laboratoire Central des Ponts et Chaussées à Paris.

Présentée à Paris le 14 Décembre 2010 devant le jury composé de :

Denis DAMIDOT	Président du jury	Ecole des Mines de Douai
Benoît FOURNIER	Rapporteur	Université Laval
Alain SELLIER	Rapporteur	Université Paul Sabatier
Alain JEANPIERRE	Examineur	Electricité de France
Antonio SANTOS SILVA	Examineur	Laboratório Nacional de Engenharia Civil
Karen SCRIVENER	Examinatrice	Ecole Polytechnique Fédérale de Lausanne
Jonathan WOOD	Examineur	Structural Studies & Design Ltd
François TOUTLEMONDE	Directeur de thèse	Laboratoire Central des Ponts et Chaussées

Avertissement

Les travaux de cette thèse ont été financés conjointement par le Laboratoire Central des Ponts et Chaussées (LCPC) et Electricité de France (EDF) (contrat C455C60530). L'ensemble des données correspondantes constitue une base de données pouvant être utilisée pour le développement et/ou la validation d'outils de re-calcul de structures atteintes de RSI et sont la propriété commune du LCPC et d'EDF. Néanmoins, cette base de données est disponible gratuitement sur demande et après accord des deux organismes. Leur utilisation engage à la citation de la présente thèse comme source de données.

Résumé

La Réaction Sulfatique Interne (RSI) est une pathologie endogène du béton pouvant affecter les matériaux soumis à un échauffement au-delà d'une température d'environ 65°C (résultat d'un procédé de préfabrication ou d'un échauffement d'une pièce massive lors de l'hydratation du ciment). Elle consiste en une formation d'ettringite tardive dans le matériau durci à partir des sulfates initialement présents et conduit à un gonflement du béton. Il s'en suit une fissuration de celui-ci et une dégradation des performances mécaniques pouvant poser des problèmes d'intégrité structurelle à l'instar des effets de la Réaction Alcali-Granulat (RAG) à laquelle elle est fréquemment observée couplée *in situ*.

Lorsqu'un ouvrage est atteint, il convient de savoir diagnostiquer la pathologie, évaluer l'aptitude au service de celui-ci, prédire l'évolution mécanique de la structure et mettre en œuvre des méthodes de réparation. La réponse à ces objectifs nécessite une compréhension fine des effets de la RSI tant à l'échelle microscopique qu'à l'échelle de l'ouvrage. De nombreuses études expérimentales et théoriques ont été menées afin de déterminer les mécanismes physico-chimiques mis en jeu ainsi que les paramètres influençant la RSI. Néanmoins, la complexité des phénomènes sous-jacents peut rendre délicate la transposition de ces connaissances pour expliquer les effets structurels. Les approches macroscopiques semblent donc pouvoir apporter des éléments complémentaires de réponse à ces questions en se basant sur les connaissances déjà acquises et disponibles dans la littérature.

Afin de mettre au point de telles approches, il est nécessaire de développer une compréhension détaillée des effets de la pathologie à l'échelle du matériau. Ce mémoire décrit les résultats d'une étude de laboratoire mettant en œuvre des essais sur éprouvettes pour caractériser les couplages entre les gonflements et l'humidité, la température, et l'état de contraintes. Ces travaux ont également été l'occasion d'étudier plus en détail les couplages existant entre RAG et RSI. En parallèle, des suivis dimensionnels et hydriques de poutres armées ou non et soumises à des conditions d'exposition à l'humidité contrôlées ont permis de constituer une base de données des effets structurels de la RSI (couplée ou non à la RAG). La confrontation de ces recherches menées conjointement à l'échelle du matériau et de la structure fournit des données permettant d'une part de mettre au point des méthodes de re-calcul des ouvrages (en formulant notamment les lois de couplages nécessaires) et d'autre part de les valider en confrontant leurs prédictions aux résultats expérimentaux.

Ce mémoire propose tout d'abord une étude bibliographique faisant le point sur les principales connaissances disponibles sur la RSI. A l'aide de celles-ci, un programme expérimental a été défini et est décrit en détail. Une large partie de ces travaux est consacrée à l'étude des couplages entre humidité et expansion de RSI, couplée ou non à la RAG. Différentes histoires hydriques sont envisagées et sont confrontées aux cinétiques et amplitudes de gonflement correspondantes. Enfin, une analyse détaillée du fonctionnement de structures simples soumises à une réaction de gonflement est proposée. Après une description et une interprétation des résultats expérimentaux, une étude du fonctionnement structurel des corps d'épreuve dans le cadre de la théorie des poutres est proposée. De plus, un exemple d'application du module de re-calcul RGIB est proposé.

Mots Clés : RSI, béton, ettringite, gonflement, humidité, structure, couplages, suivi expérimental

Abstract

Delayed Ettringite Formation (DEF) is an autogenous reaction that can affect concretes heated at a temperature higher than about 65°C (precast concrete, massive structures). It leads to the precipitation of ettringite in the hardened material that induces swellings, cracking and decrease of the mechanical properties. In the field, this reaction is often observed acting simultaneously with Alkali Aggregate Reaction (AAR) whose macroscopic effects are similar.

For a structure manager, it is necessary to be able to diagnose the reaction, to assess the safety and serviceability of the structure, to predict its evolution and finally to determine repair methods. To answer these objectives, it is necessary to understand the effects in a precise way both at a microscopic scale and at the scale of a structure. In the literature, a lot of experimental and theoretical researches have been reported. They mainly deal with the chemo-physical mechanisms of the reaction. However due to the complexity of the underlying phenomena, these data can be quite difficult to use to explain the structural behaviour of the affected structures. In this context the macroscopic approaches seem to be well adapted to complement the explanation of these effects using the basic knowledge of the microscopic phenomena.

To develop such approaches, it is necessary on the one hand to finely understand the effects of the reaction at the scale of the material. This report describes the results of a laboratory study that aimed at providing data to reach this objective: tests were performed on small specimens to assess the couplings between the swellings and humidity, temperature and mechanical loadings. On the other hand, to understand the mechanical behaviour of structures affected by DEF, a dimensional and hydrous monitoring of reinforced and plain concrete beams (affected by DEF or both DEF and AAR) was performed. The combined use of these material and structural data gives the opportunity to develop macroscopic models by formulating and calibrating coupling laws and to validate them by comparing their predictions to the experimental results.

Firstly, a literature review is proposed to analyse the available knowledge concerning DEF. Secondly, the experimental programme defined in this study is described in details as well as the original experimental techniques developed in this work. Then, the study concerning the couplings between the swellings and the moisture conditions is given. The couplings between DEF and AAR are investigated in this part of the research as well. Finally, the experiments performed on structures are analysed. A theoretical approach based on the theory of the strength of materials is proposed to explain the structural behaviour of these specimens. Moreover, an application of the RGIB re-assessment method is proposed to illustrate the methodology developed at the LCPC.

Key words : DEF, concrete ettringite, swellings, humidity, structure, couplings, experimental monitoring

Avant-propos

Ces remerciements peuvent paraître longs mais illustrent le contexte collaboratif qui a été nécessaire à ces travaux. Il m'a tenu à cœur de citer de la manière la plus exhaustive possible les acteurs de ce projet (même si j'en oublierai très probablement certains) sans lesquels je n'aurais pu mener à bien cette thèse.

De nombreuses personnes ont participé au bon avancement de cette étude sur les plans techniques et administratifs. Je souhaite ici les remercier au titre du déroulement de ce programme de recherche partenariale :

- Au sein de la division Métrologie et Instrumentation du LCPC (Equipe de F. Derkx) :
 - E. Merliot (étude des plans d'instrumentation),
 - S. Buttigieg (conception, réalisation et entretien des réacteurs à 100 % d'humidité relative, prêt de machines pour entretien des dispositifs expérimentaux),
 - J.-L. Bachelier (assemblage des robots de mesures dimensionnelles, fabrication de pièces mécaniques),
 - M. Séverin (fabrication de pièces mécaniques),
 - G. Six (fabrication et maintenance des dispositifs électroniques pour robots de mesures dimensionnelles, aide au diagnostic des dysfonctionnements des banc de pesée et de gammadensimétrie, aide à la remise en état du circuit de seuil du banc de gammadensimétrie),
 - C. Nguyen Van Phu (programmation des robots de mesure),

- Au sein de la division Physico-Chimie des Matériaux du LCPC :
 - L. Divet (animateur de l'opération de recherche n°11N052, participation au comité de suivi de la thèse de R.-P. Martin),
 - A. Pavoine (coordination des essais en relation avec la division PCM, relecture des rapports d'essai),
 - F. Lespinasse (observations et analyses MEB),
 - C. Castella (observations et analyses MEB),
 - B. Zitoun (réalisation des analyses chimiques),
 - B. Giordano (réalisation des analyses chimiques, aide à l'approvisionnement en « consommables chimiques »),
 - S. Lavaud (aide à l'approvisionnement en « consommables chimiques »),
 - H. Letumier (préparation d'échantillons pour analyse chimique),

- Au sein de la division Béton et Composites Cimentaires du LCPC :
 - N. Roussel (aide à la formulation des bétons et à la prédiction de leur rhéologie),
 - C. Boulay (prêt des calorimètres Q_{AB} et aide à l'interprétation des mesures),
 - F. Le Maou (prêt du matériel de conditionnement des bâtis de fluage),
 - S. Ramanich et P. Fakhri (réservation des presses pour essais mécaniques),
 - P. Belin (formation à la mesure de porosité accessible à l'eau et mise à disposition du matériel),

J.-F. Bouteloup (prêts de matériels et formation à la mesure de porosité accessible à l'eau),

D. Simitambe, J. Carriat et F. Guirado (réalisation des premiers coulages de corps d'épreuve),

▪ Au sein de la division Exploitation, Signalisation, Eclairage du LCPC :

C. Périnelle (aide à la remise en état du circuit de seuil du banc de gammadensimétrie),

▪ Au sein de la section des Moyens Généraux du LCPC :

R. Gondran, C. Clomp, G. Couégnat, P. Mariette et M. Garnier (la gestion des locaux et du matériel mis en œuvre pour cette étude),

▪ Au sein de la Direction Technique « Ouvrage d'Art » du LCPC :

B. Godart (suivi des travaux de thèse et participation au comité de suivi de la thèse de R.-P. Martin),

V. Fournier (aide à la gestion de points administratifs et prêts de matériels),

▪ Au sein de la division Mécanique des Sols et des Roches et Géologie de l'Ingénieur du LCPC :

F. Martineau (mise à disposition des dispositifs de carottage, de sciage et de surfacage des éprouvettes, réalisation d'essais de fluorescence des ions uranyles),

J.-S. Guedon-Dubied (réalisation d'essais de fluorescence des ions uranyles),

▪ Au sein de la division Fonctionnement et Durabilité des Ouvrages d'Art (section Durabilité des Ouvrages d'Art) du LCPC : :

M. Cong (aide à la gestion de points administratifs),

V. Bouteiller (mise à disposition de locaux à température régulée et prêts de matériels),

A. Deman et J. Dauthuille (prêts de matériels),

▪ Au sein de la division Fonctionnement et Durabilité des Ouvrages d'Art (section Fonctionnement et Ingénierie des Ouvrages d'Art) du LCPC :

F. Toutlemonde (définition générale du programme expérimental, initiation des opérations, suivi régulier des travaux, participation au comité de suivi de la thèse de R.-P. Martin, relecture d'articles, encadrement de la thèse),

D. Siegert (participation à la mise au point du programme expérimental, participation à la mise au point du dispositif de traitement thermique, participation au comité de suivi de la thèse de R.-P. Martin et relecture d'articles),

P. Marchand (mise à disposition des moyens expérimentaux de la plate forme d'essai des structures et appui administratif),

S. Chartier (aide à la gestion de points administratifs [2006-2007]),

J. Haroun (aide à la gestion de points administratifs [2008-2009]),

H. Blazejewski (aide à la gestion de points administratifs [2009-]),

F. Karouia, stagiaire (participation à toutes les phases expérimentales d'Avril à Août 2007),

M. Champrobert et S. Radjani, stagiaires (participation à toutes les phases expérimentales d'Avril à Juillet 2008),

C. Dauvois, stagiaire (participation à toutes les phases expérimentales d'Avril à Juillet 2009),

M. Quiertant (relecture d'articles et répétition de présentation en congrès),

N. Baghdadi (aide aux modélisations numériques),

F. Gomes (assistance photographique lors des coulages),

R. Sadone (assistance photographique lors des coulages),

F. Baby (assistance photographique lors des coulages, aide à la mise en œuvre d'une acquisition de secours par système Catman),

O. Omikrine Metalssi (participation au comité de suivi de la thèse de R.-P. Martin, assistance photographique lors des coulages, participation à des fabrications, aide à la modélisation numérique),

R. Rousse (suivi dimensionnel des éprouvettes de gonflement sous contraintes à l'aide du robot),

D. Helix (suivi dimensionnel des éprouvettes de gonflement sous contraintes à l'aide du robot, suivis dimensionnels par extensométrie à pointeaux, préparation d'échantillons pour dosage des alcalins des bétons),

L'« équipe technique » de la dalle d'essai des structures et plus particulièrement :

F.-X. Barin (Fabrication des corps d'épreuve [coulage, mise en œuvre, carottage, surfaçage...], préparation des corps d'épreuve pour mesures d'extensométrie à pointeaux et réalisation de mesures, suivi et maintenance du matériel informatique, suivi général du programme...),

C. Bazin (aide à la gestion de points administratifs [2007-2008], fabrication de corps d'épreuve [coulage, mise en œuvre, carottage, surfaçage...], préparation des corps d'épreuve pour mesures d'extensométrie à pointeaux, suivi et gestion du programme d'essais de gonflement libre [extensométrie à pointeaux], réalisation de mesures diverses, fabrication des coffrages, gestion des commandes de matériel...),

J. Billo (Fabrication des corps d'épreuve [coulage, mise en œuvre, carottage, surfaçage...], fabrication des ferrillages, fabrication des coffrages, conception de dispositifs expérimentaux, suivi des capteurs dans le temps, essais mécaniques sur presse, suivis dimensionnels par extensométrie à pointeaux, maintenance des installations, rangements et aménagements, développement de matériels pour expérimentations, suivi général du programme...),

M. Estivin (fabrication des corps d'épreuve [coulage, mise en œuvre, carottage, surfaçage...], instrumentation des corps d'épreuve, suivi et mise au point des capteurs en milieu agressif (notamment jauges de déformation sur acier), suivis dimensionnels par extensométrie à pointeaux, conception de dispositifs expérimentaux, maintenance des installations, rangements et aménagements, développement de matériels pour expérimentations, suivi général du programme...),

L. Lauvin (fabrication des corps d'épreuve [coulage, mise en œuvre, carottage, surfaçage...], maintenance et mise en œuvre des moyens hydrauliques, essais mécaniques sur presse, conception de dispositifs expérimentaux, réalisation de plans pour pièces mécaniques, mise en œuvre des bâtis de fluage, approvisionnements en matériels, management de l'équipe technique, gestion des aspects « sécurité », suivi général du programme...),

C. Massotte (suivis dimensionnels par extensométrie à pointeaux, participation au suivi hydrique global des poutres par pesée),

J.-C. Renaud (fabrication des corps d'épreuve [coulage, mise en œuvre, carottage, surfacage...], étalonnages et mise au point des protections de capteurs (notamment Sensirion et jauges de déformation sur acier), conception, mise au point et maintenance des dispositifs d'instrumentation et d'acquisition [CV, pain de sucre, LVDT...], gestion des aspects métrologiques d'une manière générale, essais mécaniques sur presse, suivis dimensionnels par extensométrie à pointeaux, mesures dimensionnelles par robot, pesée des poutres, gammadensimétrie, traitement de données, suivi général du programme, approvisionnement en matériels d'instrumentation...),

- Au sein d'EDF :

E. Bourdarot, E. Grimal et A Jeanpierre (participation au comité de suivi de la thèse de R.-P. Martin, aide au financement des travaux de recherche).

- Au sein du LMDC :

S. Multon (participation au comité de suivi de la thèse de R.-P. Martin).

Je tiens également à mentionner le soutien de la société Dynaopt pour la remise en état des bancs de gammadensimétrie et de pesée ainsi que la fabrication des extensomètres à cordes vibrantes et de leur système de conditionnement et l'appui de la direction scientifique (J.-L. Clément) et de la direction des programmes (J. Bonny) pour faire face aux imprévus et faciliter le déroulement matériel des travaux (avenant au contrat C455C60530).

D'un point de vue professionnel, je souhaite tout d'abord remercier M. François Toutlemonde qui a assuré la direction de ces travaux et en a suivi la réalisation. Il a su m'accorder sa confiance en me chargeant de mener à bien ce programme expérimental. J'ai particulièrement apprécié l'autonomie qu'il a su me laisser, me permettant ainsi d'opérer mes propres choix. J'espère m'être montré à la hauteur de ses espérances. Je le remercie également de ses relectures approfondies (que ce soit de ce manuscrit ou des autres productions écrites rattachées à cette thèse) qui ont très largement contribué à améliorer la qualité des documents produits. Enfin, je le remercie également d'avoir permis le très bon déroulement de cette étude financièrement et administrativement. Je remercie par la même occasion M. Pierre Marchand qui a pris la succession de François à la tête de la Plate Forme d'Essais des Structures et a ainsi assuré la continuité de la faisabilité matérielle de ces travaux.

Mes remerciements vont également à M. Alain Sellier et M. Benoît Fournier pour avoir accepté d'être rapporteurs de ce travail. J'ai pu les rencontrer au cours de mes travaux et les discussions que j'ai pu avoir avec eux m'ont permis d'avoir une vision nouvelle sur mes recherches et ont contribué à les étoffer. Qu'ils en soient remerciés ici.

Ma gratitude va également à M. Denis Damidot qui a accepté d'être examinateur de cette thèse. La lecture de ses nombreuses publications relatives à la RSI m'a permis de mieux comprendre la chimie de cette réaction et m'a initié à certaines notions qui m'étaient (malheureusement) inconnues.

Je remercie par ailleurs Mme Karen Scrivener, M. Antonio Santos Silva et M. Jonathan Wood d'avoir accepté d'être examinateurs de ces travaux. Chacune de nos

rencontres s'est également révélée très fructueuse et j'espère qu'il en sera ainsi encore longtemps.

Enfin, je tiens à remercier M. Alain Jeanpierre d'avoir accepté d'être examinateur de ces travaux. Les rencontres et discussions que j'ai pu avoir avec lui au cours de ces travaux se sont toujours révélées profitables. Qu'il en soit remercié ici.

Je remercie M. Bruno Godart de m'avoir fait participer à une réunion du comité technique TC 219 ACS de la RILEM. Cette première incursion dans une communauté scientifique internationale m'a été très profitable et certaines notions présentées dans ce mémoire n'auraient probablement pas vu le jour si je n'avais pas eu cette opportunité.

Par ailleurs, merci à M. Jean-François Seignol d'avoir partagé avec moi sa compétence technique dans le domaine des réactions de gonflement interne ainsi que sa sympathie. Toutes deux se sont révélées utiles au cours de ces travaux !

J'ai également su apprécier la convivialité de l'ensemble des membres du comité de suivi de cette thèse : Alain Jeanpierre, Eric Bourdarot, Loïc Divet, Etienne Grimal et Stéphane Multon. Tous ont su apporter leur pierre à cet édifice et ont contribué à maintenir ce projet dans le sens de la marche.

Je remercie enfin M. Othman Omikrine-Metalssi pour les échanges que nous avons pu avoir, pour son aide à la mise en œuvre des modélisations à l'aide du code aux éléments finis CESAR-LCPC mais aussi pour sa bonne humeur et sa serviabilité. Les calculs issus du module RGIB présentés dans ce mémoire lui doivent beaucoup. J'espère que les collaborations que nous avons déjà initiées perdureront dans le temps.

A mi-chemin entre le professionnel et le personnel, j'ai pu faire la connaissance de personnes ayant joué un rôle primordial dans ces travaux, tant d'un point de vue technique qu'humain : Valérie, Othman, Florent, Fernanda, Marc Q., Henriette, Pierre, Marco E., F.-X., Ludo, Jojo, Jean-Claude, Raphaëlle (et l'inséparable Rémi B.), Céline, Cyril, Romain, Dominique, Steph B., Steph L., Christophe, Claude, Fabrice, François M., Véronique B., Minh ... Tous ont su m'apporter quelque chose, d'une manière ou d'une autre. Qu'ils en soient remerciés ici.

J'ai particulièrement apprécié l'accueil qui m'a été réservé par l'équipe ainsi que l'implication dont elle a su faire preuve dans le cadre de ce projet pourtant long et délicat. Merci à Marco et Jojo de m'avoir fait profiter de leur expérience, de leur savoir-faire et de leur ingéniosité (et surtout de me les avoir enseignés !). Ces qualités se sont révélées être décisives en particulier pour la fabrication des corps d'épreuve et l'organisation pratique des opérations. D'autre part, je souhaite remercier tout particulièrement ma « force de frappe » comme j'aime à les appeler : Céline (qui a assuré la réalisation d'une grande partie des 16 000 pesées [soit environ 80 tonnes de béton] et des 140 000 mesures d'expansion sur éprouvettes réalisées dans le cadre des essais de gonflement libre présentés dans ce mémoire et qui a su rester motivée malgré les nombreuses difficultés rencontrées) et J.-C. (pour qui il serait difficile de lister de manière exhaustive l'ensemble des activités mais dont l'implication et le dynamisme à toute épreuve ont été pour moi bien plus qu'un soutien. Il a été notamment l'artisan du suivi des 330 voies interrogées toutes les 15 minutes pour le suivi des poutres depuis maintenant plus de deux ans – ce travail lui doit énormément). Je tiens également à remercier Ludo et F.-X. n'ayant pas pu participer à l'ensemble de ce projet mais dont le rôle a été également primordial et la contribution irremplaçable. Enfin, même si elle n'a pas participé « directement » à cette étude (bien que certains aspects administratifs lui doivent beaucoup), je remercie Valérie pour la bonne humeur et la gentillesse qu'elle apporte chaque jour. Toutes ces personnes sont les artisans

de ce projet et ont rendu possible la préparation de cette thèse. J'ai énormément appris à leur contact tant sur le plan technique qu'humain. Qu'ils soient assurés de ma profonde gratitude. Ils sont aujourd'hui des amis avant d'être des collègues et m'ont apporté plus qu'une aide professionnelle par le biais de nos sorties, repas, sorties VTT (trop rares au goût de certains...) ou séances de bricolage...

Je souhaite également remercier Raphaëlle Sadone qui a grandement facilité la finalisation de cette thèse en retardant certaines de ses activités afin de faciliter l'organisation de ces travaux. J'ai particulièrement apprécié ce geste.

Par ailleurs, je souhaite remercier M. Ali Mesbah que j'ai côtoyé à l'ENTPE et qui m'a toujours encouragé à faire une thèse.

Enfin sur un plan personnel, je souhaite remercier l'ensemble de ceux qui m'ont soutenu tout au long de cette thèse. Polo, Guigi, Jojo, Pyt, Augustin, Poussin, Gros, Nab, JB, les copains du rugby (Fushi, tripot...), Annelise, Mamat et Lilou, Seb, Hélène et Max, Clément (merci pour ces deux années de colocation), Virginie et bientôt Jean-Be, Anne-Laure, Fred, ma Wings, et tout ceux que j'oublie... Tous les bons moments passés avec eux ont contribué à garder ma motivation intacte.

Je n'oublie pas les anciens du FFB (Mathou, Kev, Viv, Arnaud, Oliv et Vinz) qui ont rythmé mes activités pendant deux ans et avec qui j'ai vécu une excellente aventure musicale. Ceci m'a permis de me changer les idées ce qui s'est révélé parfois (souvent ?) très utile.

Je remercie par ailleurs très amicalement Gregory Heinfling qui est en grande partie « responsable » du goût que j'ai développé pour le Génie Civil et de mon envie de poursuivre mon cursus par une thèse. J'ai beaucoup appris avec lui, professionnellement et humainement. Je n'oublie pas non plus Alexis Courtois avec qui j'ai eu grand plaisir à travailler. J'ai toujours plaisir à les revoir et j'espère pouvoir collaborer avec eux à nouveau à l'avenir.

Je tiens également à exprimer ma profonde gratitude à mes parents qui m'ont toujours soutenu et qui m'ont donné tous les moyens pour mener à bien mes projets durant toutes ces années. C'est grâce à eux si j'ai pu accomplir ces travaux. Qu'ils soient assurés ici de la place qu'ils prennent dans ma vie. J'ai également une pensée particulière pour mes sœurs (ainsi que Max), ma grand-mère et mes grands-parents et ma famille proche qui tous à leur manière m'ont soutenu.

Pour finir, ces remerciements seraient incomplets si je ne citais pas Maggie qui partage ma vie. Si elle n'est pas intervenue sur le plan technique dans ces travaux, elle est incontestablement celle qui m'a apporté le plus psychologiquement et humainement. Je la remercie pour la patience dont elle a su faire preuve, les sacrifices qu'elle a consentis tout au long de ces travaux et le calme qu'elle a su garder lorsqu'elle a dû supporter mon caractère au retour des journées difficiles. Elle a su me canaliser tout au long de cette thèse et ses précieux conseils se sont toujours révélés pertinents. Qu'elle soit assurée ici de ma gratitude et de l'importance du rôle qu'elle a joué (et qu'elle continue à jouer !) pour moi. Ich möchte auch ihren Eltern, ihrer Schwester und ihrem Schwager für die Unterstützung und Freundlichkeit danken.

Enfin, j'ai une pensée particulière pour mon grand-père Michel avec qui j'aurais souhaité pouvoir partager cette expérience. Je lui dédie ce travail.

Sommaire

RESUME	5
ABSTRACT	7
AVANT-PROPOS	9
INTRODUCTION	21
CHAPITRE 1 ETUDE BIBLIOGRAPHIQUE.....	25
1 Qu'est ce que la RSI ?	27
2 Ettringite : définition et propriétés des cristaux	29
2.1 Définition	29
2.2 Domaine de stabilité.....	30
2.3 Mécanisme de formation.....	36
2.4 Possibilités de formation d'ettringite tardive	37
2.5 Pressions de cristallisation	38
3 Mécanismes de gonflement	42
3.1 Gonflement de l'ettringite colloïdale	42
3.2 Phénomène de la double couche électrique.....	43
3.3 Gonflement en des zones localisées : interfaces pâte – granulat et extrémités des fissures	43
3.4 Gonflement homogène de la pâte.....	44
3.5 Mécanismes de gonflement « combinés ».....	48
3.6 Conclusions.....	50
4 Paramètres influençant la RSI	50
4.1 Les caractéristiques cimentaires.....	50
4.2 Les silicates de calcium hydratés	54
4.3 Le rôle des alcalins.....	58
4.4 Histoire thermique.....	60
4.5 Effets de l'humidité.....	66
4.6 Microstructure du matériau cimentaire	68
4.7 Action concomitante de la RSI avec d'autres mécanismes délétères	72
4.8 Effet des contraintes.....	76
4.9 Synthèse : conditions d'apparition de la RSI ?.....	77
5 Les effets de la RSI à l'échelle du matériau et de la structure.....	78
5.1 Effets à l'échelle du matériau	78
5.2 Effets à l'échelle de la structure	80
6 Disposer de méthodes de discrimination des matériaux susceptibles de RSI : un enjeu pour les constructions neuves	80
6.1 Approches analytiques	81
6.2 Approches performantielles	83
7 Diagnostic et prédiction de l'évolution structurelle : une nécessité pour la gestion des ouvrages atteints.....	86
7.1 Méthodes de diagnostic.....	87
7.2 Prédiction de l'évolution de l'état des structures	90

8	Conclusions	92
	CHAPITRE 2 PROGRAMME EXPERIMENTAL : DEFINITION, MISE AU POINT, QUALIFICATIONS ET FABRICATIONS.....	97
1	Définition du programme expérimental.....	99
1.1	Objectifs généraux du programme	99
1.2	Programme expérimental.....	100
2	Mises au point, qualification et méthodes	119
2.1	Matériaux.....	119
2.2	Potentiel de RSI d'origine thermique : application d'une cure thermique.....	125
2.3	Qualification des moyens expérimentaux.....	146
3	Retour d'expérience des fabrications	159
3.1	Fabrications des bétons.....	159
3.2	Traitement thermique.....	163
3.3	Conclusions	168
	CHAPITRE 3 CARACTERISATION DES COUPLAGES ENTRE HUMIDITE ET EXPANSIONS SUR DES REACTIONS DE GONFLEMENT INTERNE	171
1	Introduction	173
2	Modélisation mathématique des gonflements libres.....	173
3	Cas de la réaction sulfatique interne	175
3.1	Eprouvettes soumises à un apport d'eau.....	175
3.2	Eprouvettes soumises à un séchage à 30 % HR.....	177
3.3	Eprouvettes non soumises à des échanges hydriques	180
3.4	Conclusions	183
4	Cas du couplage entre RSI et RAG	183
4.1	Eprouvettes immergées.....	184
4.2	Eprouvettes conservées sous 100 % HR.....	186
4.3	Eprouvettes non soumises à un apport d'eau.....	205
4.4	Influence de la température de conservation.....	206
4.5	Conclusions	210
5	Influence de la composition du ciment : cas d'un ciment CEM I PM ES.....	212
5.1	Eprouvettes soumises à un apport d'eau.....	212
5.2	Eprouvettes non soumises à un échange hydrique.....	214
5.3	Eprouvettes soumises à un séchage à 30 % HR.....	215
5.4	Conclusions	216
6	Suivi d'un béton non réactif	217
6.1	Corps d'épreuve immergés	217
6.2	Corps d'épreuve soumis à un séchage	218
6.3	Conclusions	219
7	Comportement hydrique des matériaux : interprétations.....	220
7.1	Retrait de dessiccation	220
7.2	Cas d'une expansion : origine de la prise de masse ?	223
8	Essais d'expansion résiduelle et expansion complète reconstituée.....	232
8.1	Quantification des expansions et estimation des paramètres	232
8.2	Cohérence des essais d'expansion résiduelle et des essais de gonflement libre	233

8.3	Interprétations	235
9	Influence du mode de préparation des corps d'épreuve	236
9.1	Carottage et moulage	236
9.2	Répétabilité de fabrication	239
10	Effets d'une humidification ou d'un séchage tardifs	241
10.1	Cas de la réaction sulfatique interne	241
10.2	Influence de la réactivité du matériau	254
11	Evaluation des couplages entre contraintes et gonflements	266
11.1	Introduction	266
11.2	Eprouvettes susceptibles de RSI – formule R1	267
11.3	Comportement des corps d'épreuve en fonction de leur réactivité	268
11.4	Suspensions d'expansion	269
11.5	Conclusions	270
12	Conclusions	270
CHAPITRE 4 EFFETS DES REACTIONS DE GONFLEMENT SUR DES STRUCTURES SOUMISES A UN GRADIENT HYDRIQUE		277
1	Comportement hydrique de structures soumises à un gradient hydrique	281
1.1	Introduction	281
1.2	Suivi hydrique global	281
1.3	Suivi hydrique local	284
1.4	Détermination des mouvements hydriques dans les structures	287
2	Comportement mécanique des poutres non armées	300
2.1	Suivis dimensionnels de la poutre fortement réactive vis-à-vis de la RSI	300
2.2	Suivis dimensionnels de la poutre faiblement réactive vis-à-vis de la RSI	316
2.3	Suivis dimensionnels de la poutre réactive vis-à-vis de la RSI et de la RAG	321
2.4	Investigations complémentaires suite à la rupture spontanée des poutres non armées réactives	329
2.5	Synthèse du comportement mécanique expérimental des poutres non armées	339
2.6	Analyse mécanique des poutres non armées	340
2.7	Conclusions	355
3	Comportement mécanique des poutres armées	357
3.1	Suivi dimensionnel des structures	357
3.2	Analyse mécanique des poutres armées	384
3.3	Conclusions	394
4	Application d'une méthode de re-calcul au cas des poutres non armées	395
4.1	Introduction	395
4.2	Description de la méthode de re-calcul	396
4.3	Calculs hydriques – poutre P2	400
4.4	Calculs mécaniques – poutre P2	406
4.5	Influence de la réactivité – calculs mécaniques des poutres P1 et P5	412
4.6	Conclusions	414
5	Effets d'une humidification tardive en partie supérieure	415
6	Conclusions de l'analyse du fonctionnement de poutres soumises à des réactions de gonflement interne	417
CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES		421

REFERENCES	429
INDEX DES FIGURES.....	449
INDEX DES TABLEUX	457
ANNEXE 1 EXPÉRIMENTATIONS SUR POUTRES : DONNÉES ET PLANS	459
A1 Ferrailage des poutres.....	461
A2 Plans d'instrumentation.....	463
ANNEXE 2 FORMULATION DES BÉTONS.....	467
A1 Compositions cimentaires	469
A2 Granulométrie des granulats.....	470
A3 Formulation des bétons.....	470
ANNEXE 3 QUALIFICATION DES MOYENS DE MESURE	475
A1 Incertitude de mesure par extensométrie à pointeaux	477
A2 Evaluation des incertitudes de répétabilité des mesures par robot.....	478
A3 Qualification des jauges pain de sucre pour la réalisation de mesures dimensionnelles.	480
A4 Tests de jauges d'extensométrie pour aciers	482
A5 Qualification du banc de pesée.....	484
ANNEXE 4 SUIVI THERMIQUE DES POUTRES EN PHASE DE CURE THERMIQUE	485
A1 Poutre P1.....	487
A2 Poutre P2.....	488
A3 Poutre P3.....	489
A4 Poutre P4.....	490
A5 Poutre P5.....	491
A6 Poutre P6.....	492
ANNEXE 5 CARACTÉRISATION DES COUPLAGES ENTRE GONFLEMENTS ET HUMIDITÉ	493
A1 Remarques préliminaires.....	495

A2	Phase 1 : humidification et séchage précoces	496
A3	Phase 2 : humidification et séchage tardifs.....	513
ANNEXE 6 SYNTHÈSE DES RÉSULTATS DES ESSAIS DE GONFLEMENT SOUS CONTRAINTES		525
A1	Suivis dimensionnels – formule NR.....	527
A2	Suivis dimensionnels – formule R1.....	528
A3	Suivis dimensionnels – formule R2.....	529
A4	Suivis dimensionnels – éprouvettes L0T0_SC	530
A5	Suivis dimensionnels – éprouvettes L0T4_SC	531
A6	Suivis dimensionnels – éprouvettes L15T0_SC	532
A7	Suivis dimensionnels – éprouvettes L15T4_SC	533
ANNEXE 7 SYNTHÈSE DES ESSAIS SUR POUTRES.....		535
A1	Suivis dimensionnels de P1.....	537
A2	Suivis dimensionnels de P2.....	539
A3	Suivis dimensionnels de P3.....	544
A4	Suivis dimensionnels de P4.....	547
A5	Suivis dimensionnels de P5.....	550
A6	Suivis dimensionnels de P6.....	553
A7	Synthèse du suivi des flèches.....	556
A8	Synthèse du suivi massique global.....	557
ANNEXE 8 DÉTAIL DES CALCULS DE MODÉLISATION DES POUTRES		559
A1	Calcul d’incertitude des modélisations hydriques	561
A2	Modélisation RdM des poutres.....	564

Introduction

La Réaction Sulfatique Interne (RSI) est une pathologie endogène des matériaux cimentaires. Si la définition exacte de ce phénomène apparaît relativement complexe voire controversée (cf. Chapitre 1), il est généralement admis qu'il résulte de la mobilisation de sulfates initialement contenus dans le matériau pour former de l'ettringite suite à une élévation de température, le plus souvent induite par un procédé de préfabrication ou bien par la combinaison de l'exothermie de l'hydratation du ciment et de faibles conditions d'échange typiquement rencontrées pour des pièces massives (chevêtre, fondation...). Cet échauffement influe alors sur le mode de formation de l'ettringite, espèce chimique formée normalement durant la prise du ciment mais pouvant conduire à des phénomènes délétères lorsqu'elle précipite dans un matériau déjà durci. Macroscopiquement, il est alors possible sous certaines conditions d'observer une expansion du matériau induisant sa fissuration et une dégradation de ses performances mécaniques. De par la manière dont elle est provoquée, la RSI touche les ouvrages de manière localisée (parties préfabriquées ou parties massives).

In situ, on observe les premiers désordres après plusieurs années de service, la durée de la période de latence dépendant de nombreux paramètres tels que l'intensité de l'échauffement appliqué au matériau, les conditions d'exposition à l'humidité, le couplage à d'autres pathologies telles que la Réaction Alkali-Granulat (RAG) etc. Une fois déclarée, la réaction peut évoluer durant plusieurs années. En pratique, le suivi de l'évolution des phénomènes pathogènes est assuré par un suivi dimensionnel des parties atteintes et des déformations globales des ouvrages (permettant de caractériser les effets induits par les réactions de gonflement) et des inspections régulières.

La RSI a été mise en évidence sur des produits préfabriqués à la fin des années 80 (Heinz & Ludwig 1987). Par la suite, de nombreuses expertises ont été publiées dans la littérature parmi lesquelles (Tepponen & Ericksson 1987), (Shayan & Quick 1992) (cas d'une concomitance entre réaction alcali-granulat et formation différée d'ettringite), (Mielenz et al. 1995), (Thomas & Ramlochan 2002) ou bien encore (Santos Silva et al. 2008). En France, la réaction sulfatique interne a été identifiée sur plusieurs dizaines d'ouvrages coulés en place (Divet 1998, Divet 2001, Aubagnac & Wendling 2007, Kretz et al. 2007) mais également sur des produits issus de la préfabrication (Pavoine 2003). D'une manière générale, la réparation de ces ouvrages se révèle excessivement chère et nécessite parfois le remplacement de certaines parties d'ouvrage (Broquet 2007), justifiant ainsi les efforts de recherche développés pour traiter les ouvrages atteints d'une part et pour éviter l'apparition de cette pathologie dans des structures neuves d'autre part.

Dans le cadre de ses activités, la société Electricité de France (EDF) est amenée à gérer un parc d'ouvrages estimés particulièrement à risque que sont les barrages : leur caractère massif et leur époque de construction (à laquelle les recommandations concernant la RSI étaient quasi-inexistantes) ainsi que leurs conditions d'exploitation (rétention d'eau) les rendent particulièrement sensibles aux risques de RSI (mais également de RAG), justifiant ainsi l'implication d'EDF dans ce domaine et le co-financement des travaux qui vont être présentés dans ce mémoire. Cette implication fait d'ailleurs l'objet d'une attention spécifique des pouvoirs publics (Kert 2009).

Dans le cadre de la gestion d'un parc d'ouvrages, il convient tout d'abord de savoir identifier la pathologie responsable des désordres observés à l'échelle macroscopique.

Ainsi, des observations microscopiques et des essais en laboratoire se révèlent souvent (voire systématiquement) indispensables pour déterminer l'origine des dégradations. Une fois le diagnostic formulé, le gestionnaire d'ouvrage doit pouvoir répondre aux questions suivantes :

- Les performances de l'ouvrage sont-elles encore suffisantes à l'instant du diagnostic pour poursuivre son exploitation ?
- Comment l'état structurel de l'ouvrage va-t-il évoluer au cours du temps et combien de temps pourra-t-on garantir une exploitation sûre ?
- Quelles solutions de réparation doit-on (ou peut-on) mettre en œuvre ?

La réponse à ces interrogations nécessite de comprendre de manière fine les effets mécaniques de la réaction de dégradation à l'échelle de la structure.

De nombreuses recherches sur la RSI ont été menées à l'échelle microscopique et à celle du matériau afin de comprendre les conditions d'apparition de cette réaction ainsi que les causes des gonflements. Ces études ont mis en évidence de nombreux paramètres régissant la RSI ainsi que la complexité des mécanismes correspondants. Néanmoins, cette complexité rend délicate l'utilisation directe de résultats obtenus à l'échelle microscopique pour modéliser les effets macroscopiques de la pathologie sur une structure. Afin de s'affranchir (en partie) de cette complexité, les approches macroscopiques proposent d'établir des modélisations de tels phénomènes en englobant les informations disponibles à l'échelle microscopique dans les données d'entrée. De cette manière, on utilise les connaissances acquises à cette échelle pour définir des essais expérimentaux permettant d'intégrer les données microscopiques. Si cette approche se révèle a priori plus coûteuse lors de sa mise en œuvre (il est en effet nécessaire de réaliser des essais expérimentaux préalablement à la modélisation afin de disposer des données d'entrée adéquates), elle présente l'avantage de s'affranchir de l'écriture explicite des phénomènes complexes se déroulant à l'échelle microscopique en les intégrant implicitement aux données d'entrée par le biais des essais expérimentaux ayant pour objectif de recréer des conditions expérimentales représentatives de ce qui se déroule dans l'ouvrage que l'on souhaite étudier.

Les enjeux actuels sont d'apporter des réponses aux maîtres d'ouvrages devant gérer des structures atteintes de réaction(s) de gonflement interne d'une manière générale et de réaction sulfatique interne en particulier. Pour ce qui est de la RSI, certains outils de re-calcul ont été développés récemment (comme par exemple le module RGIB du code aux éléments finis CESAR-LCPC développé par [Baghdadi 2008]). Néanmoins, afin d'être pleinement opérationnels, ces moyens de gestion doivent être validés sur la base de cas expérimentaux bien documentés afin de valider et affiner les hypothèses de départ de ces travaux d'une part (parfois formulées en l'absence de preuves expérimentales par manque de données dans la littérature) et pour estimer la pertinence des prédictions des modèles par rapport à des données expérimentales précises d'autre part. Ceci nécessite la mise en œuvre de programmes expérimentaux complets permettant la compréhension des effets mécaniques d'une pathologie telle que la RSI mais également la quantification de ses effets afin de calibrer précisément les paramètres d'entrée des modèles.

L'étude expérimentale proposée dans ce mémoire s'inscrit dans ce contexte : en se basant sur les connaissances à l'échelle microscopique disponibles dans la littérature, une étude des effets mécaniques de la RSI est menée à l'échelle du matériau (en utilisant des éprouvettes de taille réduite pouvant être considérées comme représentative d'un béton donné) et à l'échelle de structures simples (basée sur des essais sur poutres). De cette

manière, on ambitionne d'une part de comprendre plus en détail les effets mécaniques de la pathologie ainsi que les couplages existant entre celle-ci et certains paramètres inhérents à la vie d'un ouvrage (température, humidité, état de contrainte...) et d'autre part de créer une base de données comprenant des données d'entrée potentielles pour un modèle macroscopique ainsi que des suivis structurels pouvant être utilisés pour valider les prédictions de ces outils numériques.

La RSI et la RAG étant souvent observées de manière concomitante *in situ*, une partie de ces travaux se consacre également à l'étude des couplages existant entre ces deux réactions.

Dans un premier temps, ce rapport propose une revue des connaissances concernant la RSI. L'objectif est ici de comprendre les causes de cette pathologie ainsi que les paramètres l'influençant à la lumière des données disponibles dans la littérature. Des méthodes de prédiction des gonflements sont également décrites ainsi que certains outils déjà disponibles pour l'évaluation de l'état structurel d'ouvrages atteints.

La seconde partie de ces travaux décrit de manière exhaustive le programme expérimental de cette étude ainsi que la qualification des moyens expérimentaux mis en œuvre. En particulier, la mise au point d'un procédé de cure thermique permettant de créer une histoire thermique comparable dans des corps d'épreuve de géométrie et de composition variables est détaillée.

La troisième partie caractérise les couplages existant entre le gonflement des matériaux mis en œuvre dans cette étude et l'humidité environnante. Basée sur les résultats d'essais de gonflement libre, cette partie propose une quantification des cinétiques et des amplitudes d'expansion pour différentes histoires hydriques et différents modes de préparation/conservation des corps d'épreuve. Un cas de concomitance entre RSI et RAG est étudié et un mécanisme de gonflement combiné est proposé. Par ailleurs, la modification du comportement hydrique des matériaux atteints est discutée sur la base d'une analyse comparative entre suivis dimensionnels et massiques. Des essais de gonflements sous contraintes ont également été entrepris et visent à établir une loi de couplage entre expansion et état de contrainte. Si ces essais sous scellement n'ont pas permis de mettre en évidence des expansions, ils constituent néanmoins un retour d'expérience intéressant. Par ailleurs, les techniques expérimentales mises en œuvre dans le cadre de ces essais peuvent être adaptées pour d'autres recherches.

La quatrième partie de ce mémoire retranscrit les résultats issus des essais sur structures. Les suivis hydriques et dimensionnels de poutres armées ou non et de réactivités différentes sont décrits et confrontés. Par ailleurs, une analyse du fonctionnement de ces structures est proposée sur la base de la théorie des poutres. En outre, cette partie propose une première application du module RGIB (Réactions de Gonflement Interne du Béton) du code CESAR-LCPC sur la base des données collectées au cours de cette étude. Les résultats correspondants sont confrontés aux résultats expérimentaux. Des pistes de développement de cet outil de calcul sont également proposées.

Enfin, les conclusions de ces travaux sont synthétisées dans une dernière partie énonçant également les perspectives de ces travaux, tant en termes de recherches expérimentales à mener que d'améliorations possibles à intégrer aux méthodes de calcul.

Les résultats présentés dans ce mémoire constituent une première partie des produits finaux de la collaboration entre le LCPC et EDF (contrat de partenariat C455C60530) qui s'achèvera en Décembre 2011. Leur présentation dans ce mémoire

permet une première interprétation qui sera complétée au moment de l'obtention des résultats finaux.

Chapitre 1 Etude bibliographique

1	Qu'est ce que la RSI ?	27
2	Ettringite : définition et propriétés des cristaux	29
2.1	Définition	29
2.2	Domaine de stabilité.....	30
2.2.1	Effets généraux de la température : seuil de déclenchement de la réaction	31
2.2.2	Stabilité de l'ettringite par rapport au monosulfate en fonction de la température	32
2.2.3	Effets de la composition du système sur la stabilité de l'ettringite	34
2.3	Mécanisme de formation.....	36
2.4	Possibilités de formation d'ettringite tardive	37
2.5	Pressions de cristallisation	38
2.5.1	Considérations théoriques.....	38
2.5.2	Confrontation aux résultats expérimentaux	40
2.5.3	Conclusions.....	42
3	Mécanismes de gonflement	42
3.1	Gonflement de l'ettringite colloïdale	42
3.2	Phénomène de la double couche électrique.....	43
3.3	Gonflement en des zones localisées : interfaces pâte – granulat et extrémités des fissures	43
3.3.1	Gonflement au droit de l'interface pâte – granulat	43
3.3.2	Gonflements au droit de la fissuration	44
3.4	Gonflement homogène de la pâte.....	44
3.4.1	Généralités et points de désaccord	44
3.4.2	Mécanisme détaillé	46
3.5	Mécanismes de gonflement « combinés ».....	48
3.6	Conclusions.....	50
4	Paramètres influençant la RSI	50
4.1	Les caractéristiques cimentaires.....	50
4.1.1	Teneurs en sulfates et en aluminates.....	50
4.1.2	Autres caractéristiques cimentaires.....	53
4.1.3	Effet des additions	54
4.2	Les silicates de calcium hydratés	54
4.2.1	Mobilisation des sulfates et des aluminates	54
4.2.2	Impacts sur la microstructure et les possibilités de gonflement.....	56
4.3	Le rôle des alcalins.....	58
4.3.1	Effets au jeune âge sur la formation d'ettringite d'hydratation précoce	58
4.3.2	Effets à long terme sur la formation différée d'ettringite.....	59
4.4	Histoire thermique.....	60
4.4.1	Les possibilités d'échauffement.....	60
4.4.2	Influence de la précure.....	61
4.4.3	Vitesses d'échauffement et de refroidissement.....	61
4.4.4	Température et durée de la cure thermique.....	62
4.4.5	Effets d'un échauffement tardif	64
4.4.6	Effets de la température de conservation	64
4.5	Effets de l'humidité.....	66
4.6	Microstructure du matériau cimentaire	68
4.6.1	Pâte de ciment.....	68
4.6.2	Nature des granulats et influence de l'interface pâte – granulat	70
4.6.3	Microfissuration.....	72
4.7	Action concomitante de la RSI avec d'autres mécanismes délétères.....	72

4.7.1	Mécanismes de dégradation d'une manière générale	72
4.7.2	Couplages réaction sulfatique interne (RSI) – réaction alcali – granulat (RAG).....	73
4.8	Effet des contraintes	76
4.9	Synthèse : conditions d'apparition de la RSI ?	77
5	Les effets de la RSI à l'échelle du matériau et de la structure.....	78
5.1	Effets à l'échelle du matériau	78
5.2	Effets à l'échelle de la structure.....	80
6	Disposer de méthodes de discrimination des matériaux susceptibles de RSI : un enjeu pour les constructions neuves.....	80
6.1	Approches analytiques.....	81
6.2	Approches performantielles.....	83
7	Diagnostic et prédiction de l'évolution structurelle : une nécessité pour la gestion des ouvrages atteints.....	86
7.1	Méthodes de diagnostic	87
7.1.1	Observations macroscopiques, carte d'identité du matériau et analyses microscopiques	87
7.1.2	Essais d'expansion résiduelle	88
7.1.3	Suivi des structures.....	89
7.1.4	Conclusions	89
7.2	Prédiction de l'évolution de l'état des structures	90
8	Conclusions	92

1 Qu'est ce que la RSI ?

La Réaction Sulfatique Interne (que nous noterons RSI) est une pathologie du béton mise en évidence à l'échelle de structures réelles à la fin des années 1980. (*Heinz & Ludwig 1987*) rapportent le cas d'éléments préfabriqués soumis à une cure thermique et faisant l'objet de dégradations conduisant à une diminution de leurs performances mécaniques. Les éléments affectés avaient été mis en service et soumis à un vieillissement climatique incluant une humidification fréquente. Les principaux effets de la pathologie notés lors de cette expertise consistaient en une fissuration des éléments affectés ainsi qu'en une dégradation de la cohésion entre pâte de ciment et granulats. La cause des dégradations fut attribuée à une formation tardive d'ettringite. Par opposition à l'ettringite d'hydratation précoce dont la formation est normale et nécessaire pour la régulation de la réaction de prise du ciment (cf. section 2.1), cette ettringite formée tardivement fut considérée comme responsable des désordres.

Dès lors, de nombreuses équipes de recherches se concentrèrent sur l'étude de ce phénomène afin d'en étudier les effets mais également les causes d'apparition. Ce domaine de recherche s'est révélé particulièrement actif depuis la fin des années 1990. Cette pathologie consiste en un gonflement du matériau conduisant à sa fissuration et à une dégradation de ses performances mécaniques (*Taylor et al. 2001, Brunetaud 2005*). *In situ*, les premiers désordres sont observés en général après une dizaine d'années (*Divet 2001, Thomas et al. 2008*). Historiquement, la majorité des cas de diagnostic rapportés dans la littérature concernent des éléments préfabriqués, parfois (voire souvent) atteints par la Réaction Alkali Granulat (RAG) de manière concomitante (citons par exemple *Shayan & Quick 1992, Mielenz et al. 1995 et Sahu & Thaulow 2004*). Néanmoins, des cas de structures massives atteintes de gonflements de RSI sont également rapportés (*Barbarulo 2002, Divet 2003, Pavoine 2003, Baghdadi et al. 2008-a*).

Toutefois, les effets particulièrement délétères de cette réaction ont conduit relativement fréquemment à une limitation des données publiées dans la littérature lorsque les ouvrages font l'objet d'expertises, comme le notent par exemple (*Shayan & Quick 1992*) et (*Diamond 2002*). Des travaux tels que ceux de (*Lawrence et al. 1999*) se voient ainsi contraints de ne pas renseigner certaines informations du fait de clauses de confidentialité imposées pour la gestion des litiges inhérents à l'expertise de telles dégradations. Ceci a conduit à accroître la difficulté de compréhension et de maîtrise de cette pathologie. Ainsi, encore aujourd'hui, des controverses subsistent même si ces années de recherche ont tout de même permis d'aboutir à certains consensus au sein de la communauté scientifique.

En pratique, les cas de structures atteintes de RSI semblent relativement moins importants que ceux de RAG, réaction de gonflement interne aux effets macroscopiques similaires (*Thomas & Ramlochan 2002*). Toutefois, pour certains auteurs, il se peut que de nombreux cas d'expertises aient abouti au diagnostic d'une RAG par erreur, du fait d'un manque de connaissance de la RSI (*Hime & Marusin 1999*).

La première des controverses réside dans le nom à attribuer à cette pathologie. (*Heinz & Ludwig 1987*) introduisent la notion de « late ettringite formation » (littéralement formation tardive d'ettringite, par opposition à l'ettringite d'hydratation précoce). Par la suite, le terme de « Delayed Ettringite Formation » (DEF – littéralement formation d'ettringite retardée) fut largement employé (citons par exemple *Lawrence 1995-a, Scrivener et al. 1999, Taylor et al. 2001* ou *Diamond 2002*). D'autres terminologies telles que « Damaging Late Ettringite Formation » (DLEF – littéralement formation d'ettringite

tardive endommageante) furent également introduites (*Heinz et al. 1999*). La plus grosse controverse consiste en l'utilisation des dénominations « Delayed Ettringite Formation » et « Secondary Ettringite Formation » (SEF – littéralement formation d'ettringite secondaire). Pour (*Fu & Beaudoin 1996-a*), l'utilisation de ces dénominations de manière interchangeable conduit à une confusion. Pour ces auteurs, le terme de SEF peut correspondre à n'importe quel élément en béton soumis à des processus d'humidification et de séchage conduisant à la migration des sulfates dans les fissures, réagissant par la suite avec les phases aluminatées. Le terme de DEF se rattache en revanche à des éléments en béton soumis à un échauffement conduisant à un relargage tardif des sulfates du matériau probablement issus des silicates de calcium hydratés (que nous noterons CSH). Ces différences de mécanisme de mobilisation des sulfates conduisent à des cinétiques de développement des pathologies différentes, ce qui empêche d'utiliser ces deux terminologies pour un même phénomène. La confusion entre DEF et SEF est d'autant plus délicate que les effets macroscopiques des deux phénomènes sont semblables (*Batic et al. 2000*). A l'issue d'un séminaire du comité technique 186 ISA (Internal Sulfate Attack) de la RILEM (Réunion Internationale des Laboratoires d'Essais et de recherches sur les Matériaux de construction – International Union of Laboratories and Experts in Construction Materials, Systems and Structures), (*Skalny 2002*) et (*Scrivener & Skalny 2005*) proposent de définir le phénomène par le terme « Heat induced internal sulfate attack » (littéralement attaque sulfatique interne provoquée par un échauffement) associant ainsi clairement ce type de dégradation à un échauffement du matériau. Néanmoins, le terme de DEF étant largement diffusé dans la littérature, il est jugé peu adéquat de modifier son utilisation (*Scrivener 2002*).

Devant ces difficultés de dénomination, l'introduction d'une traduction française n'est pas aisée. La terminologie de Réaction Sulfatique Interne (RSI) est aujourd'hui largement adoptée, tant dans le milieu de la recherche (*Pavoine 2003, Baghdadi 2008*) que dans celui de l'ingénierie (*Kretz et al. 2007, Godart & Divet 2009*). La terminologie RSI peut correspondre à la dénomination anglophone Internal Sulfate Attack (ISA) et est donc une fois de plus différente du terme DEF (et implique dans la littérature des phénomènes physico-chimiques différents). Ainsi, certains auteurs utilisent le terme de DEF dans leur texte français pour ce phénomène (*Barbarulo 2002, Brunetaud 2005, Leklou 2008*). Dans ce rapport, nous utiliserons la terminologie de RSI (ou indifféremment DEF) car elle est la plus répandue en France.

Ces difficultés de dénomination sont souvent inhérentes à des divergences de point de vue sur la réaction. Ainsi, on trouve dans la littérature des définitions très différentes du phénomène de RSI. Selon (*Brunetaud et al. 2005*), la RSI correspond à la formation d'ettringite dans un matériau à base de ciment Portland, une fois la prise réalisée, sans apport de sulfate extérieur mais avec un apport d'eau. (*Diamond 2002*) attribue le terme de DEF à toute forme d'attaque sulfatique interne induite par un échauffement du matériau. Il propose de regrouper sous le terme ISA les phénomènes de DEF et de formation d'ettringite tardive dans des matériaux à très forte teneur en sulfates. (*Fu & Beaudoin 1996-a*), (*Famy & Taylor 2001*), (*Taylor et al. 2001*) et (*Thomas & Ramlochan 2002*) partagent ce point de vue sur la nécessité d'un échauffement pour attribuer les gonflements d'un matériau à la RSI. (*Taylor et al. 2001*) précisent néanmoins que cette dénomination suppose qu'aucun apport de sulfates extérieurs n'entre en jeu.

A l'inverse, Collepardi définit la RSI en tant que phénomène de dégradation issu de la formation d'ettringite tardive dans un milieu sans sulfates extérieurs, que le béton ait été soumis à un traitement thermique ou non (*Collepardi 1999, Collepardi & Ogoumagh Olagot 2002*). Cet auteur suggère que le terme de DEF soit utilisé indifféremment pour une

attaque sulfatique interne ou externe et correspond à une formation d'ettringite autre que l'ettringite primaire issue de l'hydratation du ciment. En l'absence de source de sulfate extérieure, cette formation d'ettringite « anormale » ne peut être le fruit que d'un échauffement du matériau ou d'une libération tardive des sulfates du matériau dans des conditions d'humidité importante (Collepari 2003). (Boenig et al. 2009) définissent la RSI comme une formation d'ettringite tardive issue de la décomposition de l'ettringite primaire ou imputable à des teneurs importantes en sulfures. De même, (Hime & Marusin 1999) qualifient de DEF tout développement délétère d'ettringite plusieurs mois ou années après avoir soumis un matériau à son environnement d'exploitation avec humidification fréquente, sans nécessité d'appliquer un traitement thermique. Ainsi, (Mielenz et al. 1995), dans le cadre d'une expertise, attribuent les dégradations de traverses de chemin de fer préfabriquées à une RSI bien qu'elles n'aient pas été traitées thermiquement. Les traverses dégradées ont en effet été fabriquées un vendredi et n'ont pas été soumises à un échauffement pour accélérer la prise, celle-ci pouvant se faire naturellement au cours du week-end. Les dégradations de RSI sont alors attribuées à une solubilité lente des sulfates du clinker conduisant à une formation tardive d'ettringite. Ce cas d'expertise fait néanmoins l'objet de controverses : (Scrivener et al. 1999) indiquent que les traverses expertisées ont en réalité été soumises à une cure thermique après que l'usine de préfabrication ait détecté des problèmes liés à l'absence de traitement thermique pour les éléments fabriqués en fin de semaine.

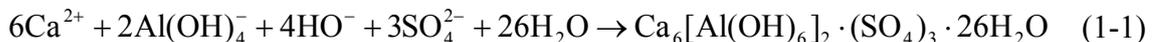
Finalement, (Scrivener 2002), (Skalny 2002) et (Scrivener & Skalny 2005) proposent de rattacher le terme de DEF (et par extension RSI) à toute attaque sulfatique interne induite par un échauffement. Le terme de Internal Sulfate Attack regroupe alors la RSI mais également les attaques sulfatiques internes issues d'un relargage de sulfates par le ciment ou par les granulats. Dans cette étude, nous adopterons cette définition de la RSI.

2 Ettringite : définition et propriétés des cristaux

2.1 Définition

L'ettringite est une espèce minérale de formule $\text{Ca}_6\text{Al}_2(\text{SO}_4)_3(\text{OH})_{12} \cdot 26\text{H}_2\text{O}$. Elle fut décrite par Lehmann en 1874 (Wikipedia 2010) et tient son nom d'Ettringen, ville d'Allemagne à proximité de laquelle elle fut découverte (Mineralogical Society of America 2001).

L'ettringite est un produit de l'hydratation des ciments Portland dont la réaction de formation est la suivante (Famy & Taylor 2001) :

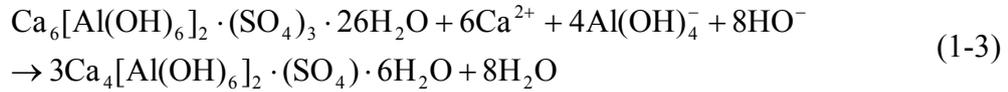


Cette espèce est un trisulfoaluminate de calcium hydraté ($\text{C}_3\text{A} \cdot 3\text{CS} \cdot 32\text{H}_2\text{O} = \text{C}_6\text{AS}_3\text{H}_{32}$ en notation cimentière [remarque : S et $\bar{\text{S}}$ désignent tous deux dans ce mémoire SO_3 d'après les notations cimentières) issu de la réaction entre les aluminates de calcium (C_3A en notation cimentière) et le gypse ($\text{CaSO}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ ou $\text{C}\bar{\text{S}}\text{H}_2$ en notation cimentière) et dont la formation a pour objectif de réguler la prise (Collepari 2003) ; une couche d'ettringite se forme alors autour des grains de ciment anhydres :



Il est à noter que les équations (1-1) et (1-2) sont identiques sur le plan chimique. L'équation (1-2) est écrite avec les conventions cimentières et cible plus les composants du ciment impliqués dans la formation d'ettringite primaire.

Par la suite, l'apport continu d'aluminates dans la pâte de ciment peut conduire à la conversion de l'ettringite en monosulfoaluminate de calcium hydraté (ou monosulfate C_4ASH_{12} en notation cimentière) (Famy & Taylor 2001) :



Néanmoins, l'observation d'ettringite dans un composite cimentaire âgé est fréquente et n'est pas pour autant synonyme de RSI : l'ettringite peut en effet persister durablement dans un système (Siedel *et al.* 1993).

L'ettringite est un cristal riche en molécules d'eau plus ou moins simples à évacuer par échauffement. (Scrivener *et al.* 1999) proposent une description de la structure de l'ettringite (cf. Figure 1-1). Sur les 32 molécules d'eau composant la structure de l'ettringite, deux sont présentes entre les colonnes de calcium et d'aluminium et sont facilement évacuables car faiblement liées. 24 molécules sont liées aux calciums, formant la « surface extérieure » de la molécule d'ettringite. Elles peuvent être progressivement évacuées par chauffage. Ce phénomène est partiellement réversible. Enfin, des ions hydroxydes sont situés entre le calcium et l'aluminium. Ces molécules sont les plus fortement liées et leur suppression à une température voisine de 120-130°C conduit à la destruction de l'ettringite.

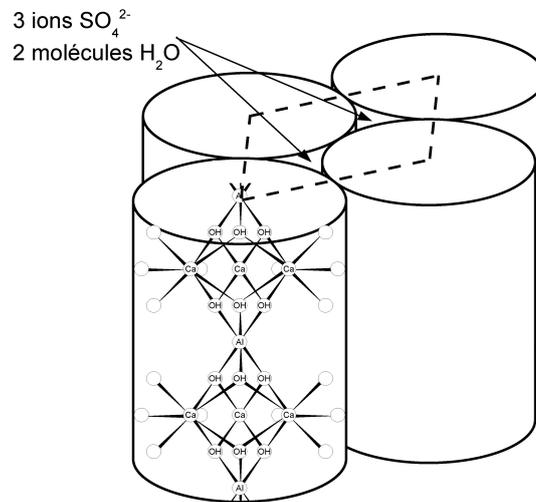


Figure 1-1 : représentation schématique de la structure cristalline de l'ettringite (d'après Scrivener *et al.* 1999)

2.2 Domaine de stabilité

Dans la littérature, les gonflements de RSI sont attribués à la formation d'ettringite de manière tardive, après que l'ettringite d'hydratation précoce ait été détruite ou n'ait pu se former lors de l'hydratation du ciment (Yan *et al.* 2001). Il apparaît donc primordial de connaître les propriétés de stabilité de cette espèce en fonction des conditions de

température, de la composition chimique du système, etc. Ainsi, de nombreuses recherches ont été menées sur ce plan.

2.2.1 Effets généraux de la température : seuil de déclenchement de la réaction

De par la définition qui lui a été donnée, la température de cure thermique semble être un élément déterminant vis-à-vis de la RSI, et donc vis-à-vis de la stabilité de l'ettringite primaire. Ainsi, dans la littérature, de nombreux seuils de température sont avancés en dessous desquels les risques de RSI sont estimés négligeables. La gamme des seuils de température annoncés s'étend ainsi de 65°C (*Fu & Beaudoin 1996-b, Scrivener et al. 1999, Petrov 2003*) à 70°C (*Diamond 1996, Meland et al. 1997, Collepari 2003, Ekelu et al. 2006, Hanehara et al. 2008-a*). Néanmoins, l'établissement d'un seuil de température précis en dessous duquel il n'y aurait aucun risque de RSI semble compliqué et fait l'objet de controverses comme l'indiquent (*Scrivener & Lewis 1999*). Ainsi, (*Ramlochan et al. 2003*) observent le gonflement de mortiers pour un traitement thermique de 60°C appliqué durant 12 heures. Les amplitudes et les cinétiques de ces gonflements sont néanmoins très faibles par rapport à des températures de traitement thermique plus élevées. Ainsi, les seuils de température définis ne doivent pas être considérés comme des valeurs exactes mais comme des ordres de grandeur appréciant le risque de développer la pathologie. (*Thomas & Ramlochan 2002*) résumant cette situation en indiquant que le seuil de température est fonction de la composition du ciment considéré. De même, (*Heinz et al. 1999*) avancent un seuil de 70°C tout en précisant qu'il peut se révéler trop élevé dans certains cas.

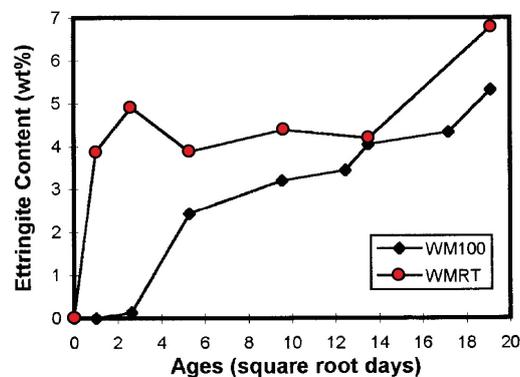


Figure 1-2 : évolution des quantités d'ettringite déterminées par méthode DRX dans un mortier non traité thermiquement (WMRT) et dans un mortier soumis à une cure thermique de 100°C durant 12 heures (WM100) (*Yang et al. 1999-a*)

Une des méthodes d'étude de la stabilité résiduelle de l'ettringite en cas d'élévation de la température consiste en une quantification de la teneur en $C_6AS_3H_{32}$ du matériau après application d'une cure thermique. (*Yang et al. 1999-a*) notent une différence de la quantité d'ettringite initiale pour un système traité thermiquement ou non (cf. Figure 1-2). Pour (*Diamond & Ong 1994*), 70 % de la quantité de sulfates du système qu'ils étudient sont présents sous forme d'ettringite au jeune âge pour un système non traité thermiquement. En revanche, l'application d'une cure thermique de 95°C durant 10 heures conduit à la disparition totale de l'ettringite qui réapparaît progressivement lors d'une conservation à long terme à température ambiante. Ce dernier phénomène est également observé par (*Odler & Chen 1995*) (à plus forte raison pour des matériaux conservés en eau)

et (Shimada & Young 2004). L'analyse aux rayons X de pâtes de ciment par (Collepari & Ogoumagh Olagot 2002) conclut à l'absence d'ettringite pour des températures supérieures à 80°C, le pic correspondant à cette dernière étant remplacé par un pic caractéristique du monosulfate. (Lothenbach et al. 2007) observent une diminution de la quantité d'ettringite formée dans un système conservé à 50°C par rapport à un système à température ambiante. Il semble que l'ettringite soit alors remplacée par le monosulfate C_4ASH_{12} . De même (Siedel et al. 1993) observent la disparition totale de l'ettringite du béton qu'ils étudient après une cure de 90°C appliquée durant une heure. Là encore, la présence de monosulfate est notée. Une tendance similaire est observée par (Lawrence 1995-a) et (Scrivener & Taylor 1993), ces derniers notant néanmoins une dépendance à la composition du ciment.

La température joue donc un rôle de premier ordre vis-à-vis de la persistance et/ou la formation d'ettringite dans un système cimentaire. (Gruszczinski et al. 1993) notent que la formation d'ettringite à haute température n'est pas un moyen efficace de régulation de l'hydratation du ciment : le C_3A est hydraté beaucoup plus rapidement dans ces conditions et la prise du matériau est largement accélérée. (Heinz & Ludwig 1987) observent la présence d'ettringite après cure thermique en cas de forte teneur en sulfates. Pour (Brown & Bothe 1993), l'augmentation de la température conduit à une diminution de la quantité d'ettringite formée mais n'exclut pas nécessairement sa possibilité de formation. Par ailleurs, (Scrivener & Skalny 2005) indiquent que l'ettringite en phase pure ne se décompose pas avant 114°C. Ainsi, il semble que la diminution voire l'absence d'ettringite dans un système cimentaire après cure thermique ne soit pas le fruit d'une décomposition thermique. Pour (Scrivener & Skalny 2005), elle est le fruit d'une redistribution des sulfates et des aluminates dans d'autres phases telles que les monosulfates, les CSH ou bien encore les hydrogrenats (forme d'hydrate de formule générale C_3AH_6). Dans ce contexte, (Barbarulo et al. 2007) notent une augmentation de la solubilité de l'ettringite avec l'augmentation de la température. Les sulfates correspondants sont alors supposés adsorbés par les CSH, conduisant à la non formation de l'ettringite à haute température.

L'absence d'ettringite après cure thermique semble donc plus liée à une cause de stabilité de cette espèce plutôt qu'à un mécanisme de dégradation thermique.

2.2.2 Stabilité de l'ettringite par rapport au monosulfate en fonction de la température

Selon (Glasser 2002), une phase est dite stable par rapport à une autre si son énergie libre est plus faible. Au concept thermodynamique de stabilité, il convient d'associer le concept de cinétique : une phase stable peut n'être observée qu'après une (très) longue période en raison de sa cinétique de formation. La phase thermodynamiquement instable correspondante peut alors persister dans le système : on parle alors de phase métastable. Cet effet peut être illustré par l'effet de pessimum de la durée de cure thermique noté par (Lawrence 1995-b) : cet auteur note que l'amplitude de gonflement de RSI d'un matériau cimentaire augmente avec la durée de cure thermique jusqu'à un certain point au delà duquel cette amplitude décroît. L'augmentation de la durée d'application de l'échauffement permet au delà d'un certain seuil la formation d'autres phases (mobilisant notamment des aluminates et des silicates) par effet de cinétique : de nouvelles espèces peuvent dans ce cas se former et mobiliser une part des réactifs nécessaires à la formation d'ettringite, diminuant ainsi le potentiel de gonflement d'origine chimique. Par conséquent, la stabilité d'une phase, sans notion de cinétique associée, ne

garantit pas son existence mais fournit néanmoins une indication sur sa possibilité de formation.

Dans un système cimentaire, l'ettringite (notée également AFt dans la littérature : Aluminate Ferrite trisubstituée) et le monosulfate (noté également AFm : Aluminate Ferrite monosubstitué) sont deux phases souvent considérées comme instables lorsqu'elles sont présentes simultanément. Ainsi, selon (*Atkins et al. 1991*), le monosulfate est instable par rapport à l'ettringite dans le système $\text{CaO-Al}_2\text{O}_3\text{-SO}_3\text{-H}_2\text{O}$ à 25°C. Dans le même système, (*Albert et al. 2006*) arrivent aux mêmes conclusions. Néanmoins, ces auteurs observent que cette phase peut longuement persister comme espèce métastable. Pour (*Heinz & Ludwig 1987*), AFm est métastable en dessous de 70°C. En revanche, ils observent la présence de cristaux de monosulfate dans un composite cimentaire après application d'une cure thermique à 70°C, tout comme (*Odler & Chen 1995*) et (*Meland et al. 1997*). Cette instabilité du monosulfate par rapport à l'ettringite est attribuée par (*Kuzel 1996*) à la présence de CO_2 dans les systèmes étudiés. Pour cet auteur, en présence de CO_2 (ce qui est le cas dans les ciments commerciaux et lors d'une carbonatation), le monosulfate est converti en ettringite et en hémicarbonate (ou en monocarbonate). Cet effet est également noté par (*Famy & Taylor 2001*).

Afin de déterminer quelles sont les phases stables en fonction de la composition d'un système, il semble plus aisé de réaliser des études théoriques, les études expérimentales étant rendues complexes par les temps de formation de certaines espèces et la persistance d'espèces métastables (*Paul & Glasser 2000*). Ainsi, Damidot et Glasser ont mené de nombreuses études théoriques sur la stabilité de systèmes s'approchant de la composition de matériaux cimentaires. Les études développées ont consisté en l'utilisation de programmes de calcul basés sur des principes thermodynamiques et ayant entre autres pour données d'entrée les produits de solubilité des différents assemblages qu'il est possible de former au regard de la composition du système.

La Figure 1-3 représente les diagrammes de phases (échelles non linéaires) du système $\text{CaO-Al}_2\text{O}_3\text{-CaSO}_4\text{-H}_2\text{O}$ à des températures de 25°C (*Damidot & Glasser 1993*), 50°C et 85°C (*Damidot & Glasser 1992*). La complexité des systèmes étudiés peut rapidement rendre les diagrammes correspondants très complexes (*Damidot & Glasser 1995*). Chaque facette correspond à une phase stable. (*Glasser 2002*) indique que ces facettes ne doivent pas être interprétées en termes de surface mais en terme de disposition. A la lecture de ces diagrammes, on observe que, à 25°C, l'ettringite est stable pour une large gamme de concentrations en sulfates. En revanche, le monosulfate est toujours métastable par rapport aux autres assemblages (aucune facette ne correspondant au monosulfate). Ainsi, (*Damidot & Glasser 1993*) concluent que l'observation expérimentale de monosulfate à température ambiante correspond à un effet cinétique et non à un effet thermodynamique. A 50°C, la diminution de la solubilité de la Portlandite (ou hydroxyde de calcium $\text{Ca(OH)}_2 = \text{CH}$) conduit à l'apparition du monosulfate en tant que phase stable. L'augmentation de la température à une valeur de 85°C conduit à l'extension du domaine de stabilité du monosulfate. Ces considérations théoriques sont donc en accord avec les observations expérimentales mentionnées précédemment.

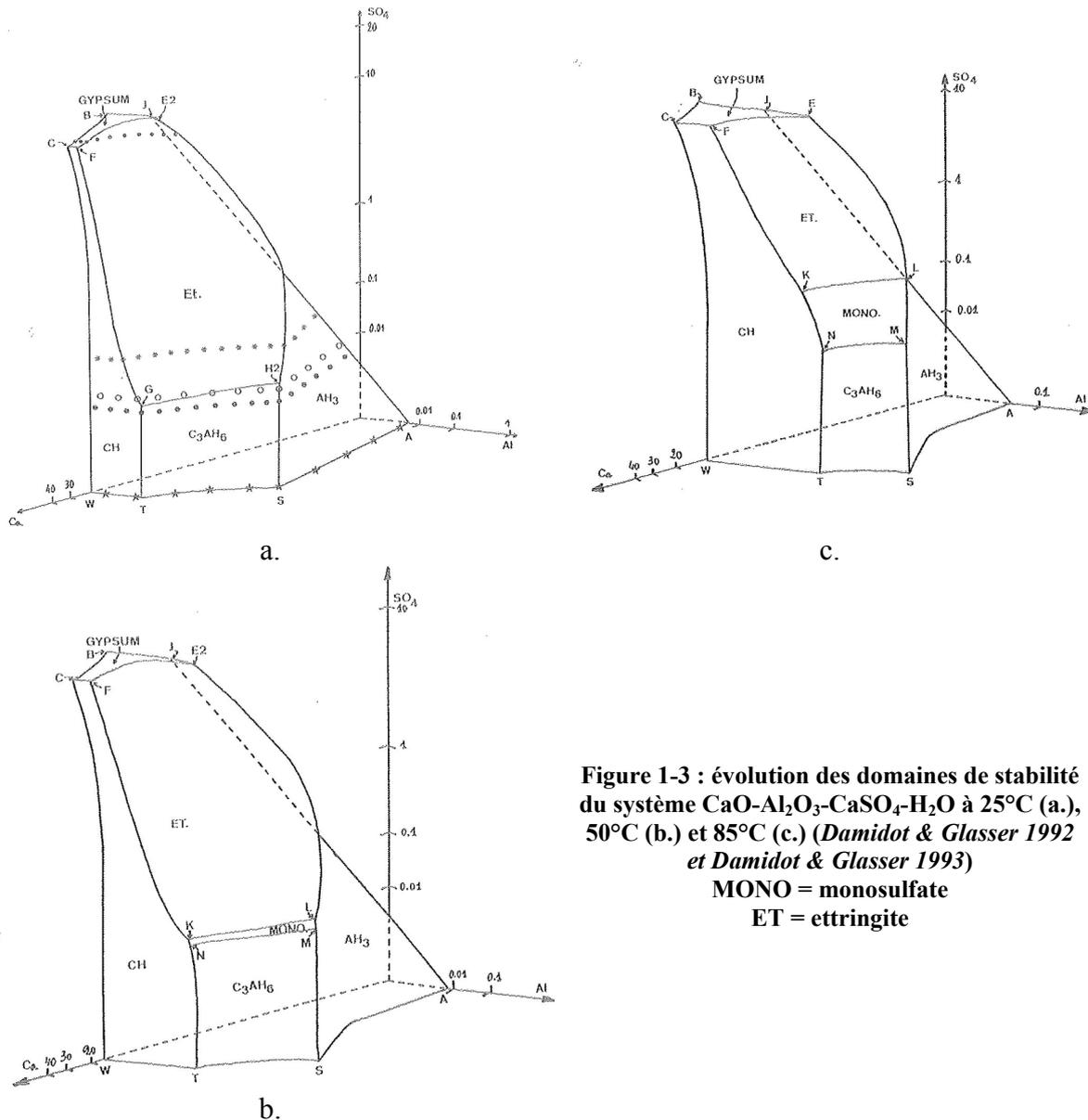


Figure 1-3 : évolution des domaines de stabilité du système $\text{CaO}-\text{Al}_2\text{O}_3-\text{CaSO}_4-\text{H}_2\text{O}$ à 25°C (a.), 50°C (b.) et 85°C (c.) (Damidot & Glasser 1992 et Damidot & Glasser 1993)
 MONO = monosulfate
 ET = ettringite

2.2.3 Effets de la composition du système sur la stabilité de l'ettringite

A température constante, l'introduction de nouvelles espèces dans un système donné conduit en général à des modifications importantes. La Figure 1-4 représente le diagramme de phase du système $\text{CaO}-\text{Al}_2\text{O}_3-\text{CaSO}_4-\text{H}_2\text{O}$ en l'absence et en présence de sodium (Damidot & Glasser 1992). L'ajout d'alcalins en quantité modérée ne conduit pas dans ce cas à l'apparition de nouvelles espèces mais modifie profondément les domaines de stabilité des différents assemblages. L'étude d'un système équivalent à haute température n'a pas été réalisée. Néanmoins, (Damidot & Glasser 1992) indiquent que dans ce cas, les tendances sont probablement similaires.

De même, la présence de carbonate de calcium (dans le cas de la carbonatation par exemple) modifie également le domaine de stabilité de l'ettringite (Damidot et al. 1994, Damidot et al. 1995). De très faibles modifications des concentrations en carbonates conduisent à des modifications importantes de la composition du système. Pour (Kuzel

1996), la présence de CO_2 semble même être une nécessité à la présence d'ettringite dans un système cimentaire : en l'absence de CO_2 , il note une persistance du monosulfate à température ambiante (ce qui peut résulter d'une stabilité thermodynamique ou d'un effet de cinétique important) ; en présence de CO_2 , le monosulfate est converti en ettringite à température ambiante.

Les différents systèmes qui viennent d'être passés en revue sont relativement simplifiés par rapport à un matériau cimentaire réel. Néanmoins, ils présentent l'avantage de mieux comprendre le fonctionnement du système en termes de thermodynamique tout en conservant une bonne lisibilité des résultats. L'étude de systèmes plus complets suivant cette méthode montre ainsi rapidement une grande complexification des résultats (impossibilité de représenter des diagrammes de phases complets dans le plan ou dans l'espace) issue de la prise en compte d'autres éléments dans le système (Damidot *et al.* 2004). Une meilleure compréhension des caractéristiques thermodynamiques de l'ettringite passe néanmoins inévitablement par ce type d'études.

Finalement, la simple connaissance de la composition chimique d'un ciment ne suffit pas à la détermination de la quantité d'ettringite formée dans un système cimentaire. La considération des domaines de stabilité et des cinétiques de formation des produits se révèle nécessaire. L'utilisation de ce type d'approche apparaît ainsi particulièrement pertinent pour étudier l'état d'un système à long terme (citons par exemple le cas de l'utilisation du béton pour la fabrication de colis de stockage de déchets radioactifs pour lesquels il est nécessaire de prédire le comportement durant plusieurs centaines d'années), sous réserve de disposer des données d'entrée adéquates (produits de solubilité). Néanmoins, la détermination d'une possibilité de formation d'ettringite se révèle être insuffisante pour prédire un gonflement, de nombreux autres facteurs entrant en jeu lors du développement d'expansions (cf. section 3).

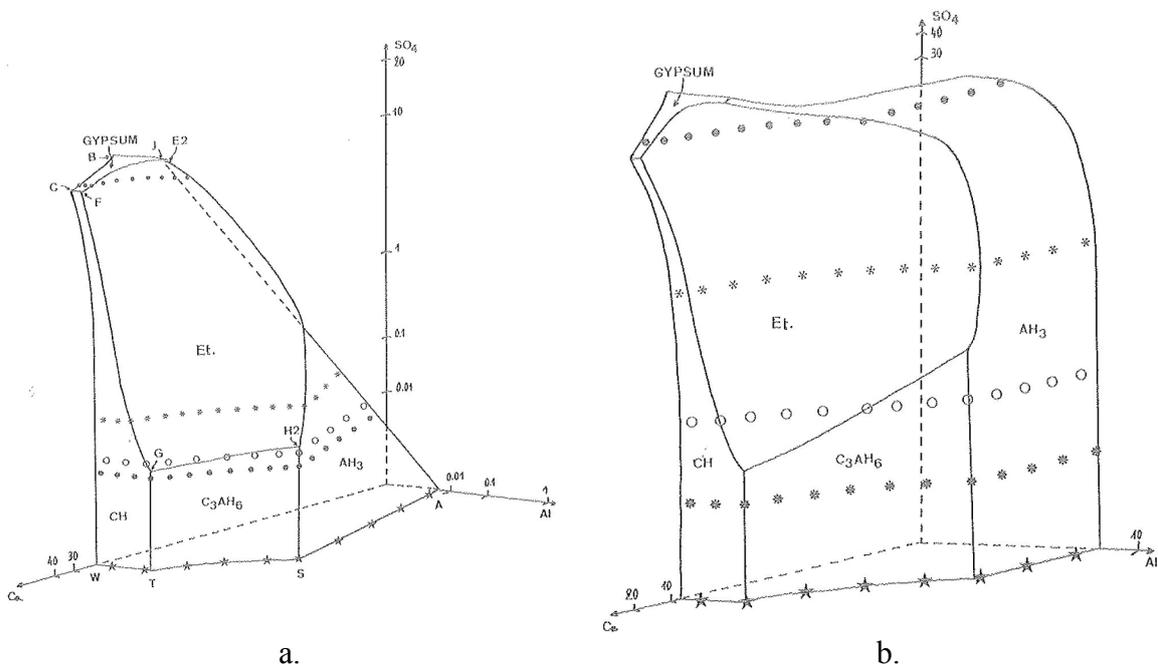


Figure 1-4 : évolution des domaines de stabilité du système $\text{CaO}-\text{Al}_2\text{O}_3-\text{CaSO}_4-\text{H}_2\text{O}$ à 25°C sans alcalins (a.) et avec une concentration en sodium de 0,05 mol/l (Damidot & Glasser 1992)

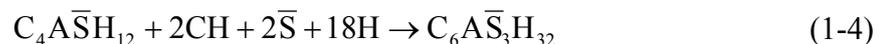
2.3 Mécanisme de formation

Pour un matériau non soumis à un traitement thermique (i.e. non susceptible de développer une RSI), on observe la formation d'une quantité importante d'ettringite au jeune âge sous les effets de l'hydratation du ciment. Cette quantité a par la suite tendance à diminuer au cours du temps, l'ettringite pouvant néanmoins subsister très longtemps dans le système (*Scrivener et al. 1999*). A basse température, la formation d'ettringite à partir des aluminates semble être un procédé piloté par des procédés de diffusion (*Gruszczinski et al. 1993*).

L'application d'une cure thermique peut modifier la répartition des espèces chimiques dans le matériau (par exemple, redistribution des sulfates et des aluminates comme indiqué par [*Scrivener & Skalny 2005*]). Ainsi, les mécanismes impliqués dans la formation d'ettringite tardive peuvent être différents.

- Conversion solide-solide :

Une première possibilité de formation consiste en une conversion solide – solide (i.e. un mécanisme topo-chimique). Cette hypothèse est évoquée par (*Deng & Tang 1994*) mais semble peu réaliste pour ces auteurs par manque d'éléments concrets dans la littérature appuyant cette théorie. (*Barbarulo 2002*) envisage la possibilité de formation d'ettringite par conversion du monosulfate suivant la réaction :



Le bilan volumique de cette réaction est positif (estimé à 286 cm³/mol par [*Barbarulo 2002*]) et pourrait expliquer les gonflements de RSI. Néanmoins, Barbarulo observe expérimentalement que des matériaux ayant déjà gonflé développent de nouvelles expansions suite à un échauffement tardif. Il en conclut que cette formation d'ettringite par conversion du monosulfate est peu probable : dans ce cas, l'application d'une nouvelle cure thermique ne devrait pas conduire au développement de gonflements, la conversion des monosulfates lors de la première cure ayant créé un vase d'expansion suffisant. A la lumière de ces observations, Barbarulo suppose donc que la formation d'ettringite est plus probablement le fruit d'un mécanisme de dissolution-reprécipitation.

- Mécanisme transsolution (*through-solution mechanism*) :

L'autre théorie avancée pour la formation d'ettringite tardive est la mise en jeu d'un mécanisme transsolution (*Mehta 1973, Heinz & Ludwig 1987, Deng & Tang 1994, Fu & Beaudoin 1996-b*). Pour ces derniers, la formation d'ettringite est issue de la désorption de sulfates contenus dans les CSH migrant ensuite vers la fissure la plus proche et engendrant alors la cristallisation de l'ettringite sous réserve que des conditions de supersaturation soient satisfaites (*Fu et al. 1995, Fu & Beaudoin 1996-c*). Lawrence attribue les temps de latence très long des réactions de gonflement aux phénomènes de diffusion régissant la formation d'ettringite (*Lawrence 1995-a, Lawrence 1999*). Les résultats de l'étude de la formation d'ettringite à haute température menée par (*Gruszczinski et al. 1993*) semblent en accord avec ceci. Selon (*Glasser et al. 1995*), ce mécanisme de formation n'est pas en opposition avec la conversion de phases solides contenant des aluminates par réaction avec la solution interstitielle exposée au paragraphe

précédant. Ces deux mécanismes pourraient tout à fait être mis en jeu de manière concomitante.

- Mécanisme de dissolution – reprécipitation : mûrissement d'Ostwald (*Ostwald ripening*) :

Un mécanisme de formation d'ettringite tardive semblant faire consensus au sein de la communauté scientifique est le mûrissement d'Ostwald : la formation de petits cristaux est instable par rapport à celle de gros cristaux car leur surface spécifique est importante. Ainsi, afin de stabiliser le système, ces petits cristaux ont tendance à se dissoudre et à migrer dans des espaces où ils peuvent précipiter plus librement sous la forme de gros cristaux plus stables. Ce mécanisme est mentionné entre autres par (*Scrivener & Taylor 1993, Barbarulo 2002, Hanehara et al. 2008-b*).

Enfin, le mécanisme de formation de l'ettringite suite à une cure thermique semble dépendre du lieu où elle précipite. Ainsi, (*Scrivener & Taylor 1993*) et (*Taylor et al. 2001*) notent que l'ettringite semble intimement mélangée aux CSH. (*Lothenbach et al. 2007*) notent pour leur part une diminution de la taille des cristaux d'ettringite lors de l'augmentation de la température de prise. De même, (*Siedel et al. 1993*) observent une dépendance de la morphologie des cristaux d'ettringite à la température. Enfin, les observations microscopiques de (*Batic et al. 2000*) semblent quant à elles indiquer que les cristaux d'ettringite adaptent leur géométrie au lieu où ils précipitent afin de minimiser les pressions développées.

2.4 Possibilités de formation d'ettringite tardive

Différentes possibilités de formation tardive d'ettringite sont envisagées dans la littérature :

- Adsorption des sulfates par les CSH :

Selon certains auteurs, les CSH semblent constituer un élément déterminant vis-à-vis des possibilités de formation tardive d'ettringite. Lors de l'application d'une cure thermique au jeune âge, les CSH sont susceptibles d'adsorber les sulfates présents dans la solution interstitielle. Par la suite, une fois le refroidissement effectué, la réversibilité de cette adsorption permet un relargage des sulfates dans la solution interstitielle, apportant ainsi une source de réactif pour la précipitation d'ettringite (*Divet & Randriambololona 1998, Barbarulo et al. 2007*). La formation d'ettringite d'une manière prolongée dans le temps est permise par la lente cinétique de désorption par rapport à celle de l'adsorption (*Fu et al. 1994-a*). De la même manière (*Yang et al. 1999-b*) notent que les hautes teneurs en sulfates des CSH peuvent être maintenues durant plusieurs mois voire plusieurs années.

- Stockage des sulfates dans la solution interstitielle :

Selon (*Shimada & Young 2004*), bien qu'une partie des sulfates puisse être adsorbée dans les espaces inter-feuillets des CSH, il semble que la majorité des ions sulfates dans le système à l'issue d'une cure thermique soit présente dans la solution interstitielle. Cette dernière constitue alors le réservoir principal en sulfates pour la formation d'ettringite tardive. De même, (*Hanehara et al. 2008-b*) notent une forte

concentration en sulfates de la solution interstitielle à l'issue de la cure thermique. Ces auteurs proposent ainsi de juger de la réactivité d'un matériau sur la base de cette concentration en sulfates à l'issue de la cure (cf. section 6.2).

- Relargage tardif des sulfates du ciment :

Selon (*Collepari 1999*), une possibilité de formation tardive d'ettringite est le relargage tardif de sulfates contenus dans le clinker ou dans le ciment. Il convient toutefois de noter que, même si cette formation tardive d'ettringite peut être délétère, elle ne peut néanmoins pas être attribuée à la RSI au sens où elle a été définie dans ce mémoire (cf. section 1). Cette formation d'ettringite après la prise du ciment peut être le fruit d'une teneur importante en sulfates du ciment (présence de gypse ou d'anhydrite par exemple) ou du clinker (sulfates piégés dans la bélite). Pour ce dernier cas, la présence de sulfates peu solubles peut provenir de l'utilisation de sources alternatives de combustible lors de la production du clinker.

2.5 Pressions de cristallisation

La présente section fait le point sur la possibilité que se développent des pressions au sein du matériau cimentaire considéré lors de la cristallisation de l'ettringite.

2.5.1 Considérations théoriques

Dans ses travaux, (*Glasser 1996*) cite un résultat de (*Mather 1969*) indiquant que la formation de cristaux d'ettringite peut conduire au développement d'une pression de 350 MPa. Ce phénomène correspond au concept de pression de cristallisation développé dans la littérature et détaillé ci-après. (*Scherer 2002*) met en évidence que le cristal n'applique pas de pression de manière directe à la paroi du pore dans lequel il cristallise : il existe un film d'eau (d'épaisseur nanométrique) permettant d'alimenter la cristallisation et assurant la poursuite de la croissance du cristal. Les pressions sont alors le fruit de champs électrostatiques (ou de forces de Van der Waals dans le cas de la glace).

(*Ping & Beaudoin 1992-a*) proposent une démonstration des principes thermodynamiques conduisant à l'écriture de la pression de cristallisation. Pour ces auteurs, les gonflements sont le fruit de la conversion d'une énergie chimique en travail mécanique. La démonstration est basée sur l'écriture des potentiels chimiques des réactifs et des produits lorsque la réaction atteint son équilibre. En écrivant ces potentiels comme une fonction de la température et de l'activité de l'espèce, il vient l'expression (1-5).

$$\left\{ \begin{array}{l}
 p_c = \frac{R_g \cdot T}{v_c} \cdot \ln\left(\frac{Q}{K}\right) = \frac{R_g \cdot T}{v_c} \cdot \ln(\Omega) \\
 p_c = \text{pression de cristallisation} \\
 R_g = \text{constante des gaz parfaits} \\
 T = \text{température absolue} \\
 v_c = \text{volume molaire du cristal} \\
 Q = \text{produit de solubilité du cristal} \\
 K = \text{produit de solubilité à l'équilibre} \\
 \Omega = \text{degré de sursaturation}
 \end{array} \right. \quad (1-5)$$

Cette relation indique qu'il est nécessaire de maintenir la sursaturation pour maintenir la pression de cristallisation. Pour (Scherer 1999), Q vaut K lorsque la solution est en équilibre avec un cristal macroscopique. Lorsque Q est supérieur à K, la solution est dite sursaturée et le cristal va croître pour consommer cette sursaturation jusqu'à ce que Q devienne égal à K. Il est à noter que p_c est la pression de cristallisation et non la pression p du cristal : l'expression (1-5) s'affranchit de la pression de la phase liquide p_l généralement égale à la pression atmosphérique (en d'autres termes, $p = p_l + p_c$ [Scherer 1999]). L'interprétation de cette relation par (Scherer 2004) conduit ainsi à la conclusion que l'application d'une pression mécanique à un cristal conduit à une augmentation de sa solubilité. De la même façon, (Johansen & Thaulow 1999) indiquent qu'un cristal sous pression est plus soluble qu'un cristal libre, ce qui favorise la précipitation en des lieux libres de toute contrainte. (Famy & Taylor 2001) résumant cette situation en indiquant qu'un cristal ne se forme pas en un point où il doit exercer une pression s'il peut le faire de la même façon en un point libre de toute contrainte.

(Scherer 2004) réécrit la relation (1-5) ou équation de Correns (Correns 1949) en tenant compte des énergies de surface de la nature du cristal soumis à la pression de cristallisation, aboutissant ainsi à la relation (1-6). (Scherer 1999) définit la condition physique (1-7) permettant à un cristal de déplacer une particule.

$$\left\{ \begin{array}{l}
 \gamma_{CL} \cdot \kappa_{CL} = \frac{R_g \cdot T}{v_c} \cdot \ln(\Omega) \\
 \gamma_{CL} = \text{énergie d'interface entre le cristal et le liquide environnant} \\
 \kappa_{CL} = \frac{1}{r_1} + \frac{1}{r_2} = \text{courbure du cristal} \\
 r_1 \text{ et } r_2 = \text{rayons principaux de courbure}
 \end{array} \right. \quad (1-6)$$

$$\left\{ \begin{array}{l}
 \gamma_{CS} > \gamma_{CL} + \gamma_{SL} \\
 \gamma_{CS} = \text{énergie d'interface cristal / particule} \\
 \gamma_{CL} = \text{énergie d'interface cristal / liquide} \\
 \gamma_{SL} = \text{énergie d'interface particule / liquide}
 \end{array} \right. \quad (1-7)$$

Ainsi, les pressions développées lors de la formation d'un cristal en général et de l'ettringite en particulier sont fonctions de la sursaturation du liquide, de la taille des pores

et de l'importance des forces répulsives entre le cristal et la surface des pores avoisinante. Selon (Scherer 1999), la borne supérieure de la pression de cristallisation est déterminée par le degré de sursaturation. En revanche, la borne inférieure est déterminée par la valeur de l'énergie d'interface et la taille des pores. Dans ce contexte, (Scherer 2004) estime que, dans le cas d'un degré de sursaturation de l'ordre de 30 (estimé représentatif du cas de la formation d'ettringite lors d'un refroidissement post cure thermique, en régime stationnaire [Flatt & Scherer 2008]), la pression développée est de l'ordre de 6 MPa, valeur supérieure à la résistance en traction d'un béton ordinaire. En revanche, la taille des cristaux responsables des gonflements est estimée à 15 nm, les rendant ainsi indétectables par les techniques d'investigation classiques.

L'intervention dans la relation (1-6) de la courbure du cristal considéré permet d'expliquer la stabilité des gros cristaux par rapport aux petits : des cristaux de petite taille possèdent une courbure élevée (valeur des rayons de courbure principaux faible) ; la sursaturation nécessaire pour équilibrer la relation (1-6) est donc plus élevée dans le cas d'un petit cristal que dans le cas d'un gros. Il existe donc une compétition entre la formation de petits cristaux dans des mésopores et la formation de gros cristaux dans des macropores. Les considérations théoriques semblent néanmoins indiquer que seuls les premiers sont responsables de gonflements. Ainsi, la limitation des vitesses de transport des espèces ioniques permet d'envisager des degrés de saturation importants dans les plus petits pores impliquant ainsi des pressions de cristallisation importante (Flatt & Scherer 2008). Néanmoins, le développement de ce type de pression de manière localisée ne semble pas suffisant au développement de gonflements : la résistance d'un matériau tel que le béton est régie par les défauts existant à l'échelle microscopique. Pour que la contrainte issue de la pression de cristallisation se ressente à l'échelle macroscopique, il est nécessaire que le volume d'influence de celle-ci touche des zones représentatives de ces défauts. En d'autres termes, le développement de pression de manière très localisée ne peut aboutir à des gonflements (Scherer 1999).

Les degrés de sursaturation nécessaires au développement de pressions importantes semblent donc nécessairement élevés. Néanmoins, (Diamond 1996) indique qu'il conviendrait d'adjoindre à ces considérations thermodynamiques des critères issus de la mécanique de la rupture introduisant une majoration de la contrainte de traction fonction des caractéristiques du milieu, ce qui induirait une possibilité de gonflement pour des degrés de supersaturation moins importants.

Finalement, toutes ces considérations sont formulées dans le cadre d'un régime stationnaire. Toutefois, (Scherer 2002) indique que dans le cadre d'un régime de cristallisation transitoire (par exemple lors d'un séchage), des degrés de sursaturation élevés peuvent se développer y compris dans les macropores et ainsi engendrer des pressions de cristallisation importantes.

2.5.2 Confrontation aux résultats expérimentaux

Sur la base de ces considérations théoriques, (Barbarulo et al. 2002) estiment qu'un système CSH + ettringite initialement à l'équilibre à 85°C puis placé à 20°C développe des degrés de sursaturation suffisants pour permettre des pressions de l'ordre de 8 à 20 MPa durant un mois. De même, pour le ciment Portland qu'ils étudient, (Deng & Tang 1994) estiment qu'il est thermodynamiquement possible de développer une pression de l'ordre de 55 MPa à 25°C.

Les considérations formulées dans le cadre de la théorie de la pression de cristallisation indiquent que la précipitation de l'ettringite n'est pas une condition suffisante au développement de gonflements. Pour (Ping & Beaudoin 1992-b), la contrainte appliquée à un matériau lors du développement de pressions de cristallisation n'est pas égale à cette pression mais est modulée par les caractéristiques du lieu de cristallisation (fraction surfacique du cristal en contact avec le milieu environnant). Pour (Scherer 2004), le développement des gonflements a probablement une durée faible en comparaison de la durée de précipitation de l'ettringite en raison de la compétition entre formation de petits cristaux dans des mésopores responsables des pressions et de gros cristaux précipitant librement dans de gros pores. Les expansions ne sont développées que durant la phase initiale de formation de petits cristaux.

Ceci est confirmé expérimentalement par les travaux de (Scrivener & Lewis 1999) qui notent une poursuite de l'augmentation de la quantité d'ettringite formée dans le mortier étudié alors que les gonflements du matériau sont stabilisés (cf. Figure 1-5). De même, pour (Scrivener et al. 1999), la formation différée d'ettringite n'est pas nécessairement synonyme de gonflements. Par ailleurs, (Odler & Colan-Subauste 1999) notent qu'une même quantité d'ettringite peut conduire à des gonflements très différents. (Siedel et al. 1993) réalisent des mesures de teneur en ettringite (mesures comparatives entre analyse thermique différentielle [DTA] et diffraction des rayons X [DRX]) sur des corps d'épreuve soumis ou non à une cure thermique puis soumises à un traitement « accélérateur » (conservation en eau durant deux mois puis application de cinq cycles de gel/dégel puis conservation en air durant un mois). Leurs conclusions indiquent qu'il n'existe pas de différence nette en termes de quantité d'ettringite formée entre ces deux types de corps d'épreuve. En outre, (Odler & Chen 1996) mettent en évidence que la quantité d'ettringite nécessaire au développement de gonflements est bien moins importante dans le cas d'un matériau traité thermiquement que dans le cas d'un ciment trop riche en sulfates. Finalement, il ne semble pas exister de relation simple entre la quantité d'ettringite formée et les gonflements mesurés ce qui semble indiquer qu'une fraction de l'ettringite formée n'a pas d'effets délétères (Colleparadi & Ogoumagh Olagot 2002, Famy et al. 2001, Taylor et al. 2001). Néanmoins, ces derniers notent une tendance générale à l'augmentation des gonflements avec l'augmentation de la quantité d'ettringite.

(Yang et al. 1999-a) observent une formation d'ettringite bien avant l'initialisation des gonflements : ceci semble appuyer le fait que l'ettringite précipite dans un premier temps préférentiellement dans des zones où le développement de pressions n'est pas nécessaire. Par ailleurs, les observations microscopiques de (Siedel et al. 1993) et (Batic et al. 2000) indiquent que la morphologie de l'ettringite semble s'adapter à l'espace dont elle dispose pour cristalliser afin d'éviter de développer des pressions.

L'étude cinétique de la consommation des sulfates par (Pavoine 2003) indique une consommation rapide de ces réactifs jusqu'à une valeur limite ne correspondant pas néanmoins à la stabilisation des gonflements du matériau. Pour Pavoine, cette consommation brutale de sulfates correspond à une formation rapide d'une partie de l'ettringite du système, appliquant alors des pressions au matériau. La poursuite des gonflements après stabilisation de la mobilisation des sulfates correspond à la réponse différée du matériau à la pression de cristallisation de l'ettringite.

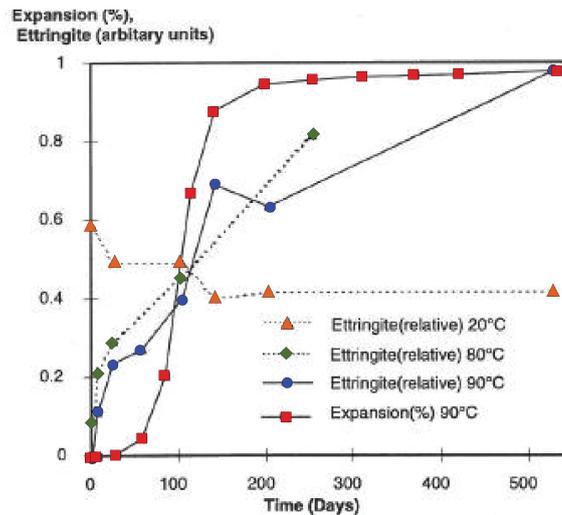


Figure 1-5 : comparaison de l'évolution de la quantité d'ettringite mesurée par analyse semiquantitative RX dans un mortier et gonflements associés (Scrivener & Lewis 1999)

Certains résultats expérimentaux semblent néanmoins ne pas être en accord avec les considérations thermodynamiques de la théorie de la pression de cristallisation : d'après (Grattan-Bellew *et al.* 1998), la vitesse de gonflement (assimilée à la pente de la partie linéaire de la courbe de gonflement libre en fonction de la racine carrée du temps dans cette étude) est proportionnelle à la quantité d'ettringite formée.

2.5.3 Conclusions

Les considérations théoriques et expérimentales rapportées dans la littérature font état de la possibilité de développer des pressions lors de la cristallisation de l'ettringite dans un matériau cimentaire. Sous réserve que la précipitation de cette espèce se fasse dans un espace restreint et pour des degrés de sursaturation suffisants, les contraintes qu'il est thermodynamiquement possible de développer peuvent conduire à un gonflement. Ceci n'est néanmoins possible que si les champs de contrainte développés en chaque site de cristallisation touchent des régions volumiques représentatives des défauts de microstructure régissant la résistance du matériau considéré.

3 Mécanismes de gonflement

Les mécanismes mis en jeu lors du développement de gonflements de RSI font l'objet de nombreuses controverses dans la littérature. Cette section tente de synthétiser les différentes théories énoncées et les confronte, en indiquant les points d'accord et de désaccord au sein de la communauté scientifique.

3.1 Gonflement de l'ettringite colloïdale

Cette théorie a été proposée par (Mehta 1973). L'ettringite est supposée se former suivant un mécanisme transsolution. Dans ce cas, en présence de $\text{Ca}(\text{OH})_2$, l'ettringite prend un aspect colloïdal, sous les effets notamment de la diminution du taux d'hydratation

des aluminates (*Cohen 1983*). Cette ettringite colloïdale présente des facultés d'adsorption de molécules d'eau. L'arrangement de ces dernières conduit au développement de forces répulsives conduisant à l'apparition de pressions importantes sans modification de la structure cristalline de l'ettringite.

Ce mécanisme de gonflement semble cohérent pour (*Odler & Colan-Subauste 1999*) : l'observation de gonflements plus importants pour des matériaux conservés en eau par rapport à ceux conservés dans des atmosphères saturées semble indiquer que la mobilisation d'eau par l'ettringite pourrait être la cause des gonflements.

A l'heure actuelle, peu de travaux disponibles dans la littérature semblent considérer ce mécanisme comme le plus plausible lors d'expansions liées à la RSI.

3.2 Phénomène de la double couche électrique

Les considérations thermodynamiques indiquent que les petits cristaux d'ettringite sont instables par rapport aux cristaux de plus grande taille (cf. section 2.5). Selon (*Deng & Tang 1994*), ces petits cristaux présentent la propriété de pouvoir adsorber les ions présents à proximité afin de diminuer leur énergie de surface. Ces adsorptions conduisent au développement de répulsions électriques potentiellement responsables de gonflements. Néanmoins, les effets expansifs de ce phénomènes semblent relativement limités.

3.3 Gonflement en des zones localisées : interfaces pâte – granulat et extrémités des fissures

3.3.1 Gonflement au droit de l'interface pâte – granulat

Une des principales théories avancée pour expliquer les gonflements de RSI est la formation d'ettringite au droit des interfaces pâte – granulat jugée responsable des expansions par développement de pressions de cristallisation. De nombreuses observations expérimentales semblent en accord avec ce mécanisme et font état de la présence de bancs d'ettringite dite comprimée au droit des granulats, sans nécessairement encercler chaque particule (*Heinz & Ludwig 1987, Yang et al. 1996, Shao et al. 1997, Leklou et al. 2008, Aubert et al. 2009*). Néanmoins, pour certains auteurs, l'observation d'ettringite aux interfaces pâte – granulat n'est qu'une conséquence d'un autre mécanisme de gonflement (*Barbarulo et al. 2005* ou *Brunetaud 2005* par exemple) : le gonflement homogène de la pâte (cf. section 3.4). Pour certains auteurs, les interstices formés aux interfaces pâte – granulat sont même considérés initialement vides puis remplis d'ettringite par phénomène de dissolution – reprécipitation sans effet délétère (*Taylor et al. 2001*).

Un des principaux arguments allant à l'encontre de la théorie d'un gonflement d'abord localisé à l'interface pâte – granulat est basé sur les éléments thermodynamiques inhérents au développement des pressions de cristallisation.

Pour (*Scherer 1999*), les considérations thermodynamiques montrent que l'ettringite se formerait dans ces conditions sous forme de cristaux aciculaires orientés parallèlement à l'interface pâte – granulat. Le développement de ces aiguilles conduirait alors à la consommation de la sursaturation sans développement de pressions (cf. section 2.5.1).

Par ailleurs, devant les forts degrés de sursaturation nécessaires au développement de gonflements, il est peu probable que les interfaces pâte – granulat soient le siège du

développement de fortes pressions de cristallisation (*Famy & Taylor 2001*). En outre, (*Odler & Chen 1995*) mettent en évidence la possibilité de gonflement pour une pâte de ciment (néanmoins avec des cinétiques beaucoup plus lentes), indiquant ainsi que la présence de granulat n'est pas nécessaire à l'apparition d'expansions.

Cependant, devant l'influence de la nature des granulats sur le développement des expansions (cf. section 4.6.2), (*Lawrence 1999*) juge comme incomplets les mécanismes de gonflement ne faisant pas intervenir le rôle de l'interface pâte – granulat. Pour (*Lawrence 1995-a*), la microfissuration présente en ces lieux (et potentiellement imputable à des dilatations thermiques différentielles entre les deux composants du matériau cimentaire) peut se révéler être un site de nucléation préférentiel de l'ettringite et/ou un moyen de transport des espèces ioniques.

(*Yang et al. 1999-a*) observent avant gonflement la présence d'une couche de Portlandite à la surface des granulats. Après gonflement, cette couche de Portlandite est localisée à la surface de la couche d'ettringite qui s'est formée à l'interface pâte – granulat, conduisant les auteurs à la conclusion que c'est cette ettringite qui est responsable des expansions.

(*Diamond 1996*) propose de tenir compte de la mécanique de la rupture pour étayer le mécanisme de gonflement de l'interface pâte – granulat. Ainsi, des coefficients de majoration de la contrainte de traction qui sont fonction des caractéristiques du milieu de cristallisation et des potentiels défauts déjà existants sont introduits. La prise en compte de tels effets permet ainsi d'envisager la propagation de défauts pour des degrés de sursaturation beaucoup plus faibles que ceux envisagés par la théorie « classique » de la pression de cristallisation.

3.3.2 Gonflements au droit de la fissuration

Dans le prolongement de la théorie du gonflement de l'interface pâte – granulat, (*Fu et al. 1994-b*) établissent qu'il est thermodynamiquement plus facile pour l'ettringite de précipiter à la pointe d'une fissure préexistante. Les conditions énergétiques y sont en effet plus favorables. La propagation de la fissure se produit sous réserve que l'énergie apportée par la cristallisation de l'ettringite dépasse une énergie de fracture. Dans ce cas, l'énergie du système chute brutalement et il devient nécessaire de reformer un cristal d'ettringite plus près de la pointe de la fissure pour la propager à nouveau. Les considérations théoriques développées par (*Fu et al. 1994-b*) indiquent que l'énergie de propagation est d'autant plus faible que la fissure est grande, et qu'à pression de cristallisation égale, une fissure large se propage plus qu'une fissure étroite. Sous réserve que la condition de sursaturation soit maintenue, ce mécanisme peut se poursuivre jusqu'à dégradation complète du matériau. Cette sursaturation peut être maintenue par la désorption des sulfates contenus dans les CSH puis migrant vers la fissure la plus proche (*Fu & Beaudoin 1996-c*).

3.4 Gonflement homogène de la pâte

3.4.1 Généralités et points de désaccord

Par opposition à la théorie du gonflement localisé à l'interface pâte – granulat, certains auteurs suggèrent que les gonflements de RSI sont le fruit d'une expansion

homogène de la pâte de ciment. Ce mécanisme est appuyé par les observations expérimentales faisant état de la formation d'interstices aux interfaces pâte – granulat, vides dans un premier temps puis se remplissant d'ettringite aux propriétés non délétères résultant d'un phénomène de dissolution – reprécipitation (observations relatées par exemple dans *Pavoine 2003*). Une des caractéristiques de ces interstices est qu'ils présentent une largeur proportionnelle à la taille du granulat considéré, signe caractéristique d'un gonflement homogène de la pâte de ciment (*Johansen et al. 1993, Johansen & Thaulow 1999, Johansen & Osbaeck 2002*). Ce type d'interstices est également observé par d'autres auteurs comme (*Brunetaud 2005*), avec par la suite un remplissage au moins partiel par de l'ettringite. Ce mécanisme est souvent supposé issu de la conversion en ettringite du monosulfate intimement lié aux CSH à l'issue de la cure thermique. Ce phénomène est permis par la libération des sulfates contenus dans les CSH (*Glasser et al. 1995, Meland et al. 1997, Famy et al. 2001, Barbarulo et al. 2007*). Cette conversion se faisant dans un espace restreint, la théorie de la pression de cristallisation laisse penser que des contraintes pourraient être développées de cette manière. Ainsi, les conclusions de (*Scrivener & Skalny 2005*) à l'issue du séminaire du TC 186 de la RILEM indiquent que les gonflements sont issus de la formation d'ettringite dans la pâte de ciment à une échelle submicrométrique. Ces auteurs notent toutefois que ce point ne fait pas l'unanimité au sein du comité technique.

Certaines observations expérimentales semblent en effet aller à l'encontre de ce mécanisme de gonflement.

En effet, les résultats de (*Diamond 1996*) montrent que les interstices formés autour des granulats ne sont pas forcément continus, ce qui va selon lui à l'encontre d'un gonflement homogène de la pâte. En outre, les réseaux de fissures observés ne semblent pas non plus cohérents avec ce mode de gonflement. (*Diamond 2002*) réalise des observations similaires, les interstices n'étant pas présents de manière systématique. Cet auteur n'observe pas d'interstices vides. Selon lui, l'observation d'interfaces vides résulte d'une erreur d'interprétation des images de microscopie.

Par ailleurs, (*Fu et al. 1995*) et (*Diamond 2002*) n'observent que très peu (voire pas) de monosulfates dans les matériaux étudiés à l'issue de la cure, ce qui semble aller à l'encontre de gonflements issus de la conversion de monosulfate en ettringite.

En outre, la théorie du gonflement homogène de la pâte ne semble pas expliquer l'influence de la nature des interfaces pâte – granulat (*Lawrence 1995-b*) : quelle que soit la nature du granulat considéré, un gonflement homogène de la pâte conduirait toujours à l'estimation d'un même gonflement ce qui n'est pas observé expérimentalement. Il semble nécessaire, selon ces auteurs, de prendre en compte la nature des interfaces (nature chimique, poreuse, coefficient de dilatation thermique, différents d'un type de granulat à un autre) pour décrire correctement les expansions.

Enfin, dans le cadre de son étude de l'influence de la quantité d'air entraîné sur les gonflements de RSI, (*Petrov 2003*) observe que l'initialisation des gonflements est fonction de la quantité d'air entraîné présente dans le matériau. Selon lui, ceci est incohérent avec un gonflement homogène de la pâte qui devrait au minimum aboutir à une initialisation des gonflements simultanée, quel que soit le cas considéré, la quantité d'air entraîné n'intervenant a priori pas sur le comportement expansif de la pâte de ciment.

3.4.2 Mécanisme détaillé

(*Taylor et al. 2001*) proposent un mécanisme de gonflement de la pâte. Selon ces auteurs, les analyses microscopiques indiquent la présence de monosulfate finement dispersé dans les CSH formés en des points initialement occupés par la solution interstitielle (conformément à la littérature, nous appellerons ce type de CSH « outer CSH » par opposition aux « inner CSH » qui sont les hydrates formés directement au contact des grains de ciment anhydres) comme illustré par la Figure 1-6. Sur ces figures, les zones grisées représentent les CSH. Les zones noircies représentent les cristaux présents à chaque instant considéré dans le mécanisme. L'application de la cure thermique conduit à la formation de zones de outer CSH d'autant plus denses que la zone d'observation est choisie proche de l'interface avec les inner CSH. Ainsi, ces produits d'hydratation présentent une porosité particulièrement fine et donc propice au développement de pressions de cristallisation importantes selon les considérations théoriques exposées en section 2.5. Les pressions développées sont donc d'autant plus élevées qu'elles s'exercent à proximité des inner CSH. Lors du relargage des sulfates, les monosulfates présents dans la microporosité des outer CSH sont convertis en ettringite, conduisant alors au développement de pression par cristallisation dans des espaces restreints.

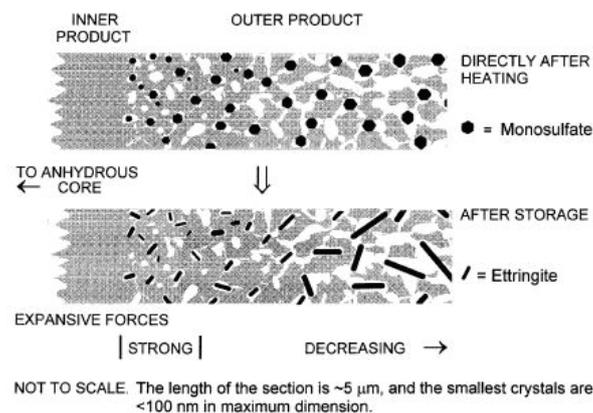


Figure 1-6 : mécanisme de gonflement proposé par (*Taylor et al. 2001*) issu de la conversion en ettringite des monosulfates dispersés dans les outer CSH en fin de cure

Sous réserve que les monosulfates soient distribués de manière homogène dans le matériau, cette conversion en ettringite dans des volumes restreints conduit au développement d'un gonflement homogène de la pâte. Sous les effets de ce gonflement, des interstices s'ouvrent aux interfaces pâte – granulat (et éventuellement des fissures sous les effets de possibles hétérogénéités du champ de déformation généré – cf. ci-après). La Figure 1-7 représente un matériau soumis à ce mécanisme de gonflement avant tout phénomène de dissolution – reprécipitation (grossissement moins important que pour la Figure 1-6). Cette figure illustre le phénomène de conversion du monosulfate en ettringite et les effets mécaniques microstructuraux de celle-ci. A ce stade, les interstices formés autour des granulats sont vides. Par la suite, le phénomène de dissolution – reprécipitation est mis en jeu et conduit à la précipitation d'ettringite dans les vides créés par le gonflement de la pâte. L'ettringite formée au cours de cette seconde phase n'a aucun effet délétère (cf. Figure 1-8).

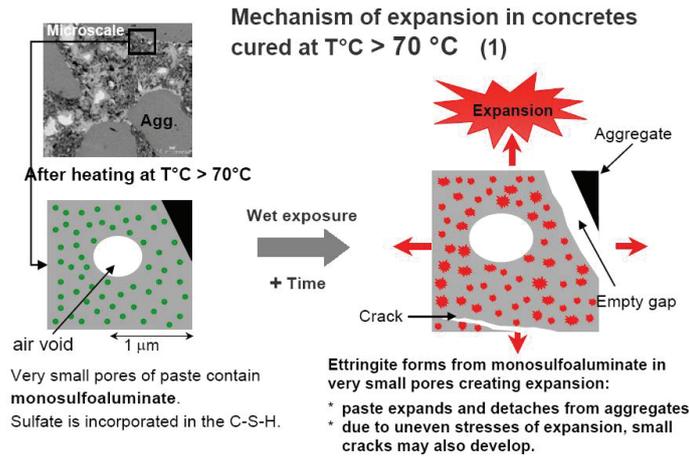


Figure 1-7 : matériau suite à un gonflement homogène de la pâte issu d'une conversion de monosulfate en ettringite avant dissolution – réprécipitation de l'ettringite (Famy et al. 2002-a) – en vert, monosulfate, en rouge, ettringite

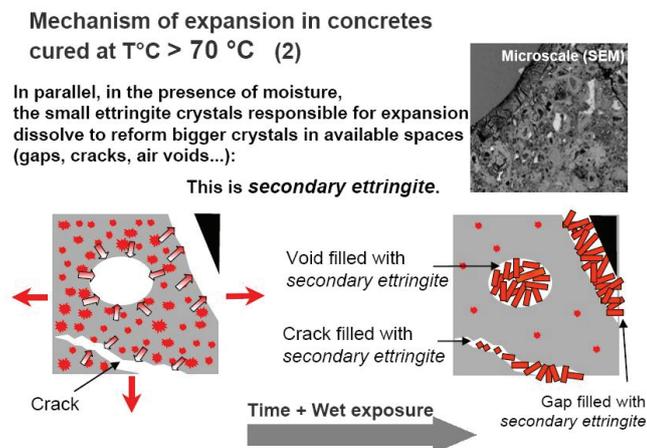


Figure 1-8 : matériau suite à un gonflement homogène de la pâte issu d'une conversion de monosulfate en ettringite après dissolution – réprécipitation de l'ettringite (Famy et al. 2002-a) – en rouge, ettringite

Ce type de mécanisme semble en accord avec les principes thermodynamiques de la théorie de la pression de cristallisation exposés en section 2.5.1. En effet, les cristaux jugés responsables des plus fortes pressions sont supposés de petite taille (a priori, indétectables par les techniques de microscopie conventionnelles car leurs dimensions sont de l'ordre de quelques dizaines de nanomètres) comme le remarquent (Scherer 1999), (Famy & Taylor 2001) ou (Flatt & Scherer 2008). Ceci est confirmé par les observations expérimentales de (Scrivener & Lewis 1999) qui mesurent des gonflements avant de détecter de l'ettringite par analyse aux rayons X (résolution de la méthode d'analyse trop faible pour détecter les cristaux de taille submicrométrique).

Afin d'expliquer un gonflement généralisé du matériau, le développement de pressions en des lieux séparés n'est pas suffisant. Il est nécessaire que le volume d'influence du champ de pression développé en un point intercepte une zone représentative des défauts de microstructure régissant la résistance du matériau. (Johansen & Thaulow 1999) et (Scherer 2002) proposent une explication similaire pour le développement d'un gonflement généralisé : pour que l'expansion ait lieu, il est nécessaire que les champs de contrainte développés lors de la formation des différents cristaux percolent (i.e. les champs doivent s'interpénétrer jusqu'à ce que leur ensemble affecte une zone géographique représentative de l'étendue des défauts intrinsèques au matériau cimentaire considéré).

Un gonflement homogène de la pâte conduit a priori à une ouverture d'interstices aux interfaces pâte – granulat dont la largeur est proportionnelle à la taille de l'inclusion considérée (*Brunetaud et al. 2005*). Néanmoins, certains auteurs n'observent pas ce type d'interstices dans les matériaux étudiés (e.g. *Diamond 2002*). Afin d'expliquer ces phénomènes dans le cadre de la théorie d'un gonflement homogène de la pâte, il est suggéré que, même si les gonflements peuvent être considérés comme uniformes localement, ils sont superposés à des forces hétérogènes liées notamment à la présence d'armatures, à une organisation hétérogène de la matrice et des granulats, à l'existence de gradients hydriques ou à l'existence de microfissures issues du traitement thermique ou d'un chargement mécanique (*Scrivener et al. 1999, Famy & Taylor 2001*) et conduisant aux modifications de faciès de fissuration notées par certains auteurs. (*Garboczi 1997*) propose une modélisation d'un système formé d'une inclusion sphérique, d'une zone correspondant à une pâte de ciment et d'une interface entre les deux. Les modes de fissuration déterminés par ce modèle montrent qu'un gonflement homogène de la pâte conduit bien à l'ouverture d'un interstice à l'interface pâte – granulat. Néanmoins, cet auteur indique que la prise en compte d'un plus grand nombre d'inclusions de tailles différentes peut effectivement conduire à une complexification du faciès de fissuration. (*Scrivener et al. 2002*) proposent une modélisation d'un système contenant plusieurs inclusions sphériques dont la pâte est soumise à un gonflement homogène. Ce modèle montre que, pour le système considéré considérablement simplifié par rapport à un composite cimentaire réel, le faciès de fissuration développé semble totalement aléatoire malgré le gonflement imposé homogène de la pâte et l'initiation des fissures au droit des interfaces pâte – granulat, justifiant ainsi les observations expérimentales de certains auteurs.

3.5 Mécanismes de gonflement « combinés »

Certains auteurs estiment que les mécanismes de gonflement mentionnés dans les sections 3.3 et 3.4 ne sont pas nécessairement incompatibles. Il s'en suit l'élaboration de mécanismes de gonflements que nous qualifierons de combinés.

(*Brunetaud et al. 2005*) proposent un mécanisme de gonflement en quatre phases :

1. Phase initiale

Cette phase consiste en la déstabilisation de l'ettringite d'hydratation précoce. Elle se caractérise par une adsorption des sulfates sur les CSH (phénomènes décrits plus en détail en section 4.2) et par une éventuelle substitution de Si par Al dans les CSH. Cette phase prend fin une fois la cure thermique achevée, le refroidissement conduisant à une sursaturation de la solution interstitielle vis-à-vis de l'ettringite.

2. Phase latente

Durant cette phase, on observe une précipitation de l'ettringite sans contrainte mécanique jusqu'à génération de pressions fonctions du degré de sursaturation et de l'espace disponible pour la cristallisation. Cette sursaturation est également fonction de la vitesse de diffusion des ions dans le matériau (diminution importante de la sursaturation en cas de diffusion rapide). En considérant ce phénomène de manière répartie dans toute la pâte, l'observation de gonflements de la pâte est alors envisageable, conduisant ainsi à l'ouverture des interfaces pâte – granulat. (*Brunetaud 2005*) évoque également la possibilité de sites d'expansion ponctuels au niveau des grains de Hadley (grains de ciment

ayant totalement réagi, laissant alors une coque de CSH vide remplie par la suite d'ettringite) dans le cadre de ce gonflement homogène. Le processus de mûrissement d'Ostwald (dissolution – reprécipitation de l'ettringite) conduit par la suite au remplissage des interfaces pâte – granulat et simultanément à un retrait de la pâte (suppression des pressions appliquées à l'échelle microscopique du fait de la dissolution des microcristaux) pouvant conduire à la formation de fissures radiales. La déformation atteinte à la fin de cette phase peut atteindre une valeur de l'ordre de 0,3 % selon (*Brunetaud et al. 2005*).

3. Phase de détérioration accélérée

Sous certaines conditions, notamment en cas de manque d'eau, cette phase peut ne jamais être atteinte. Dans le cas contraire, cette phase s'explique par une accélération marquée des phénomènes expansifs. (*Brunetaud et al. 2005*) expliquent cette accélération par une potentielle percolation de la fissuration accélérant brutalement l'apport d'eau d'une part et par la possibilité d'un potentiel de formation d'ettringite suffisamment important pour que la totalité de la phase aqueuse soit dans des conditions de sursaturation d'autre part. En outre, le matériau étant déjà en partie dégradé, le développement d'un gonflement donné ne nécessite pas autant d'effort que pour le matériau initialement sain.

4. Phase d'équilibre

Cette phase correspond à l'arrêt des gonflements correspondant à un état d'équilibre vis-à-vis de la désorption des sulfates contenus dans les CSH.

(*Kurdowski 2002*) considère la possibilité d'un mécanisme de gonflement combiné faisant intervenir la formation d'ettringite microcristalline d'une part et la formation de bancs d'ettringite aux interfaces pâte – granulat et dans la matrice d'autre part. De même, pour (*Taylor et al. 2001*) l'intervention de ces deux mécanismes de manière coordonnée n'est pas à exclure.

(*Mielenz et al. 1995*) proposent un mécanisme différent (on gardera à l'esprit que pour ces auteurs, les gonflements de RSI peuvent être attribués à des relargages tardifs de sulfates dans le matériau, sans nécessité de traitement thermique). Dans un premier temps, les auteurs considèrent la formation de « nids » d'ettringite dans la pâte de ciment visibles uniquement à de très forts grossissements par microscopie et conduisant au développement de fissures radiales dans la matrice. Par la suite, on observe une croissance de l'ettringite et un gonflement de la pâte conduisant à l'ouverture d'interstices aux interfaces pâte – granulat et à l'apparition de fissures macroscopiques à la surface du matériau. Ces fissures sont ensuite remplies d'ettringite. Ce remplissage est également observé pour les interfaces pâte – granulat et aboutit alors au développement d'une fissuration importante.

Enfin, (*Petrov 2003*) présente un mécanisme de gonflement relatif aux bétons avec air entraîné. Dans un premier temps, il est considéré une précipitation d'ettringite dans les bulles d'air. Cette formation de cristaux conduit à la mise en route d'une « pompe » de sulfates et d'aluminates : à mesure que la concentration de ces espèces s'amointrit localement, on assiste à leur diffusion afin d'homogénéiser leurs champs de concentration au sein du matériau. Si ce phénomène se poursuit jusqu'à épuisement des réactifs, aucun gonflement n'est observé et l'ettringite peut précipiter sans effets délétères. En revanche, si les vides disponibles finissent par être comblés, le gonflement est déclenché par précipitation d'ettringite dans un espace restreint. Par conséquent, dans le cadre de ce mécanisme, les gonflements sont fonction de la porosité, du volume de vides total du matériau et du facteur d'espacement des vides.

3.6 Conclusions

On a récapitulé ici les principaux mécanismes de gonflement proposés dans la littérature afin d'expliquer la RSI. Les deux principales théories avancées sont la théorie du gonflement de l'interface pâte – granulat et la théorie du gonflement homogène de la pâte. Pour chacune d'entre elles, des résultats expérimentaux semblent valider les hypothèses formulées par les différents auteurs. Néanmoins, des contre-arguments peuvent également être formulés dans chaque cas. Toutefois, le phénomène de pression de cristallisation est impliqué dans les deux cas de figure. Selon certains auteurs, un mécanisme n'exclut pas forcément l'autre et l'hypothèse d'une action coordonnée des deux procédés ne semble pas à éliminer. Il semble alors possible que les gonflements soient initiés au niveau des interfaces pâte-granulat, générant alors un endommagement suffisant pour accélérer les expansions. La fissuration créée peut par la même occasion faciliter l'entrée d'eau dans le matériau et ainsi favoriser les expansions.

4 Paramètres influençant la RSI

4.1 Les caractéristiques cimentaires

La composition et certaines caractéristiques cimentaires telles que la finesse ont une influence marquée sur le comportement expansif d'un matériau (*Grattan-Bellew et al. 1998*). Selon (*MacDonald 1998*) et (*Collepari 1999*), l'évolution des compositions cimentaires au cours des dernières décennies pourrait expliquer la recrudescence des cas de RSI diagnostiqués au cours de ces dernières années : l'augmentation de la teneur en sulfates des ciments est jugée responsable de ce phénomène. En outre, certains types de ciment (comme les ciments Portland CEM I à prise rapide ou les ciments ASTM type III par exemple [*Fu & Beaudoin 1996-c*]) semblent être plus susceptibles vis-à-vis de la RSI que d'autres (les ciments PM ES notamment sont réputés peu aptes à RSI [*Kelham 1996, Heinz et al. 1999*]). Ainsi, il convient de comprendre les effets des différentes caractéristiques physiques et chimiques des ciments sur le développement des gonflements afin de mieux analyser et prévenir les risques d'occurrence de cette pathologie et éventuellement pour mettre au point des méthodes prédictives des risques de gonflement (cf. section 6.1).

4.1.1 Teneurs en sulfates et en aluminates

De par la nature de l'ettringite, la teneur en sulfates est un paramètre déterminant vis-à-vis du risque de RSI. Certains auteurs estiment qu'il existe un risque de RSI dans le cas d'un relargage tardif de sulfates peu solubles contenus dans le ciment ou dans le clinker, présents sous forme d'anhydrite ou de sulfates piégés dans la bélite (C₂S) (*Collepari 1999, Hime & Marusin 1999, Lawrence et al. 1999*). Selon (*Kurdowski 2002*), l'enrichissement de certains ciments en alcalins peut conduire à une accélération de l'hydratation du C₂S et ainsi favoriser un relargage tardif de sulfates responsable de la formation d'ettringite dans un matériau déjà durci. Selon (*Glasser 2002*), l'existence dans un composite cimentaire de formes de sulfates très lentement solubles telles que l'anhydrite peut créer des conditions favorables à la persistance d'un potentiel de formation

d'ettringite. Néanmoins, il est à noter que cette formation d'ettringite n'est pas considérée comme un cas de RSI au sens où elle est définie dans cette thèse.

Pour de nombreux auteurs, les risques de gonflement sont accrus par l'augmentation de la teneur en sulfates (*Odler & Chen 1995, Odler & Chen 1996, Fu & Beaudoin 1996-c, Fu et al. 1997, Kelham 1999, Collepardi & Ogoumagh Olagot 2002, Diamond 2002, Thomas & Ramlochan 2002, Barbarulo et al. 2005, Tosun 2006, Hanehara et al. 2008-a, Hanehara et al. 2008-b, Leklou 2008*). (*Heinz et al. 1999*) proposent de limiter la teneur maximale en sulfate à 3 % pour éviter un risque de RSI. Toutefois, certaines études montrent qu'une forte teneur en sulfates n'est pas un critère suffisant pour développer des gonflements (*Zhang et al. 2002-a*). En outre, la nature de la source en sulfates de calcium ne semble pas avoir d'influence sur le comportement expansif d'un matériau (*Kelham 1999*). Selon (*Kelham 2002*), aucune corrélation entre la teneur en sulfates du clinker et les gonflements n'est observée. Au contraire, (*Collepardi & Ogoumagh Olagot 2002*) notent que les clinkers plus riches en sulfates conduisent à une expansion plus précoce des bétons.

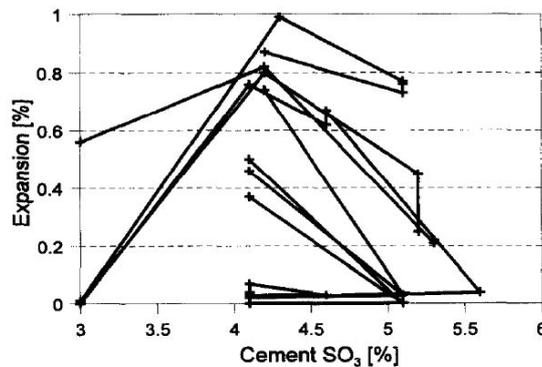


Figure 1-9 : effet de la teneur en SO₃ du ciment sur l'amplitude des gonflements (cure de 90°C/12 h) (*Kelham 1996*)

Bien que cette notion ne fasse pas l'objet d'un consensus (*Diamond 2002*), certains auteurs notent l'existence d'une teneur en sulfates pessimum vis-à-vis des gonflements de RSI. Ainsi, pour un ciment donné, (*Glasser et al. 1995*) déterminent que le potentiel d'expansion est maximal pour une teneur en sulfates proche de 4 %. Néanmoins, ces auteurs précisent que cette valeur pessimum n'est a priori valable que pour le ciment étudié et que le calcul mené dans leurs travaux doit être réitéré dans le cas de l'étude d'un autre matériau. (*Kelham 1996*) et (*Kelham 1999*) observent expérimentalement ce pessimum pour une teneur en sulfates de l'ordre de 4 % (cf. Figure 1-9). Néanmoins, il semble que cette valeur augmente avec la teneur en alcalins du ciment (*Kelham 1996*). (*Zhang et al. 2002-b*) ne notent pas l'existence de ce pessimum.

De même, la teneur en aluminates, un des composants principaux de l'ettringite C₆AS₃H₃₂, semble être un paramètre déterminant vis-à-vis du risque de RSI. Ainsi, pour certains auteurs, plus la teneur en aluminates est élevée, plus les risques de RSI sont importants (*Odler & Chen 1995, Odler & Chen 1996, Fu & Beaudoin 1996-c, Hanehara et al. 2008-a, Hanehara et al. 2008-b*). Pour d'autres, ce paramètre ne semble pas limitant (*Leklou 2008*).

Pour certains auteurs, les teneurs en sulfates et en aluminates doivent être confrontées pour juger du risque de RSI. En effet, l'ettringite (C₆AS₃H₃₂) et le monosulfate

(C₄ASH₁₂) utilisent les mêmes réactifs mais dans des proportions stoechiométriques différentes. Ainsi, en fonction de la composition du système, et même en présence abondante de réactifs, l'ettringite n'est pas nécessairement la phase stable ce qui influe sur le risque de gonflement (cf. section 2.2).

Le rapport SO₃/Al₂O₃ est proposé par certains auteurs pour juger du risque de RSI (Heinz & Ludwig 1987, Grabowski et al. 1992, Odler & Chen 1996, Heinz et al. 1999, Zhang et al. 2002-b). (Heinz & Ludwig 1987) suggèrent une valeur seuil de ce ratio égale à 0,55 en dessous de laquelle aucun gonflement ne se développe. Il semble qu'il existe un effet de pessimum des amplitudes de gonflement vis-à-vis du ratio SO₃/Al₂O₃. Selon (Heinz et al. 1999), il semble que ce pessimum soit observé pour un ratio massique de 0,8 (cf. Figure 1-10.a). (Grabowski et al. 1992) et (Zhang et al. 2002-b) observent ce pessimum pour un ratio molaire de 1 (équivalent à un rapport massique de 0,8) comme indiqué par la Figure 1-10.b.

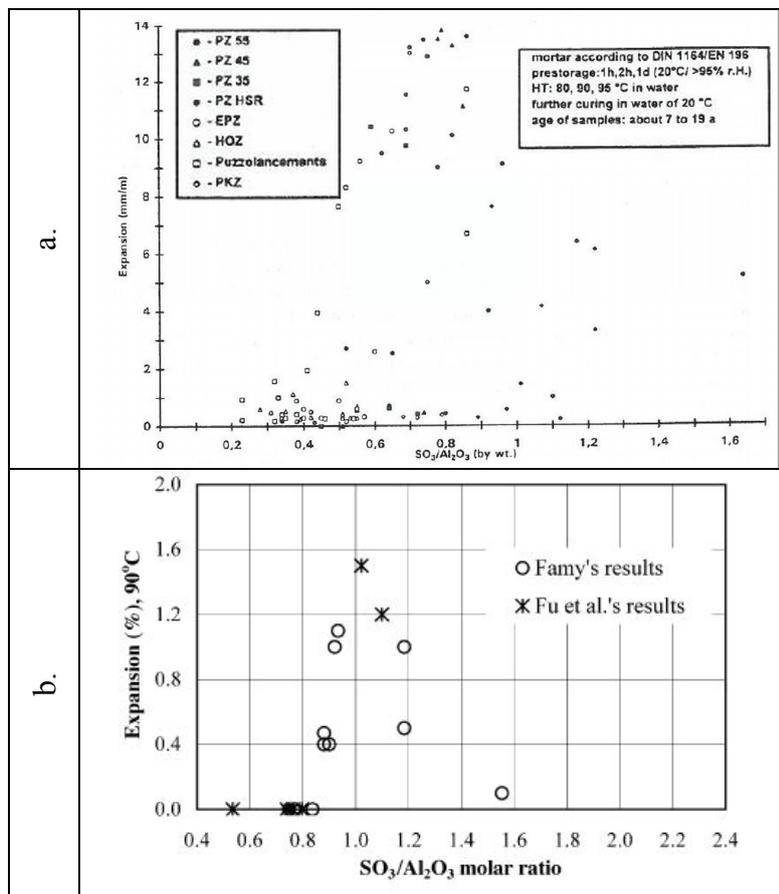


Figure 1-10 : effet de pessimum du ratio SO₃/Al₂O₃ selon a. (Heinz et al. 1999) b. (Zhang et al. 2002-b)

(Heinz et al. 1989) introduisent le ratio (SO₃)²/(Al₂O₃ actif) (Al₂O₃ actif correspond aux aluminates contenus dans le C₃A) pour juger de la réactivité d'un ciment. Il semble exister pour ce paramètre une valeur seuil de 2 en dessous de laquelle aucun gonflement ne se développe. Cette notion a été reprise par la suite par (Lawrence 1995-a).

Selon (Odler & Chen 1995), il semble plus pertinent de considérer les teneurs en sulfates et en aluminates de manière séparée que combinée par la prise en compte de tels ratios. Pour (Tosun 2006), ces considérations de ratio entre SO₃ et Al₂O₃ semblent insuffisantes pour prédire les gonflements.

4.1.3 Effet des additions

L'addition de fumée de silice présente des effets réducteurs voire supprimeurs des gonflements (*Ramlochan et al. 2003*). Ces effets sont d'autant plus importants que le taux de substitution du ciment est élevé (*Ramlochan et al. 2003, Santos Silva et al. 2010*). Il semble que dans ces conditions, le monosulfate remplace l'ettringite dans les pâtes hydratées (*Meland et al. 1997*). (*Ramlochan et al. 2004*) notent pour leur part que les sulfates sont moins présents dans la solution interstitielle et semblent plus mobilisés dans les monosulfates pour des matériaux contenant de la fumée de silice. Selon (*Ping & Beaudoin 1992-b*), l'ajout de fumée de silice conduit à une diminution de la concentration en Ca^{2+} défavorable à la précipitation de l'ettringite. Selon (*Ramlochan et al. 2003*), l'utilisation de fumée de silice conduit en outre à une densification de la microstructure induisant une limitation de la lixiviation des alcalins défavorable à la désorption des sulfates (cf. section 4.2).

L'utilisation de métakaolins ou de laitier de haut fourneau conduit à une réduction très importante voire à une suppression des gonflements pour de faibles taux de substitution. Pour les métakaolins, l'efficacité semble déterminée par leur teneur en aluminates déterminant le positionnement du système dans une configuration plus ou moins défavorable à la précipitation d'ettringite (cf. section 4.1.1) (*Ramlochan et al. 2003, Santos Silva et al. 2006*). (*Ramlochan et al. 2004*) notent la formation d'une phase similaire à l'hydrogrenat et mobilisant une partie des aluminates. (*Santos Silva et al. 2006*) notent également que l'utilisation de telles additions permet de diminuer la chaleur d'hydratation et ainsi limiter les risques de RSI dans le cas de structures massives.

L'utilisation de cendres volantes peut se révéler efficace dans certaines conditions. Leur aptitude à contrôler les gonflements semble essentiellement fonction de leur teneur en CaO (*Ramlochan et al. 2003*). (*Santos Silva et al. 2006*) n'observent pas de corrélation entre la consommation de Portlandite dans les bétons étudiés et la réduction des gonflements de RSI. Ils attribuent les effets réducteurs de cette addition à sa teneur en aluminates, paramètre déterminant vis-à-vis de la possibilité de formation d'ettringite (cf. section 4.1.1).

Enfin, la mise en œuvre de filler calcaire peut avoir un effet sur le développement de gonflements en diminuant la porosité du matériau pour des taux de substitution bien choisis (*Kurdowski & Duszak 2002, Schmidt et al. 2009*). (*Santos Silva et al. 2010*) mettent en évidence une augmentation des gonflements lors de l'utilisation de fillers calcaires. Ce phénomène est attribué à l'accélération de la formation de CSH, les fillers constituant des sites de nucléation supplémentaires pour les CSH.

4.2 Les silicates de calcium hydratés

4.2.1 Mobilisation des sulfates et des aluminates

Les silicates de calcium hydratés (CSH) semble jouer un rôle déterminant dans le développement des gonflements. Ces espèces présentent en effet des facultés de mobilisation des sulfates et des aluminates lors de la cure thermique qui seront ensuite réutilisés pour la formation d'ettringite tardive (*Yang et al. 1996*). Il convient donc de comprendre le mode d'action des CSH afin d'interpréter de la manière la plus pertinente possible les comportements expansifs des matériaux.

Lors de l'application d'une cure thermique, la consommation des sulfates est le fruit de la compétition entre deux réactions : la réaction entre les sulfates et les aluminates pour former l'ettringite primaire d'une part et l'adsorption des sulfates par les CSH pour former une phase notée « phase X » dans la littérature d'autre part (Diamond & Ong 1994, Divet & Randriambololona 1998, Taylor et al. 2001). Les facultés de mobilisation des sulfates par les CSH ont été étudiées par de nombreux auteurs (Brown & Bothe 1993, Fu et al. 1994-a, Divet & Randriambololona 1998, Taylor et al. 2001). Selon (Divet & Randriambololona 1998), l'adsorption des sulfates augmente avec la température, ce qui tend à créer une réserve en sulfates pour la formation différée d'ettringite d'autant plus importante que la température de cure est élevée. Barbarulo suggère que l'augmentation de la température n'est pas la cause de l'augmentation de la quantité de sulfates adsorbés. Pour lui, l'élévation de la température conduit à la solubilisation d'une quantité de sulfates plus importante en solution (Barbarulo et al. 2007). Or, (Barbarulo 2002) a montré que l'augmentation de la quantité de sulfates présents en solution conduit à une augmentation de la quantité de sulfates adsorbés par les CSH. La température n'est donc pas responsable d'un changement de propriétés des CSH mais a pour conséquence d'augmenter l'adsorption par solubilisation d'une plus grande quantité d'ettringite lors de la cure thermique (Barbarulo et al. 2002).

L'adsorption des sulfates par les CSH apparaît au delà d'un seuil de concentration en sulfates de la solution qui est d'autant plus important que la température est élevée (Barbarulo et al. 2002) comme illustré par la Figure 1-12. Ceci indique que plus la température est élevée (la gamme de température étudiée par [Barbarulo et al. 2002] est comprise entre 20°C et 85°C), plus la solution interstitielle présente des facultés de stockage des sulfates, avant même d'amorcer une adsorption importante de ces espèces par les CSH. Lors du refroidissement du système, le développement d'une sursaturation vis-à-vis de l'ettringite sera ainsi d'autant plus facile.

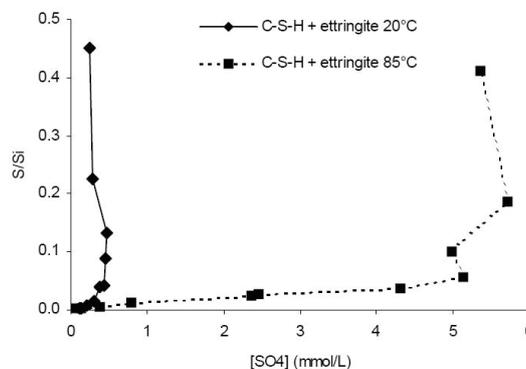


Figure 1-12 : adsorption des sulfates par les CSH (S/Si) en fonction de la concentration en sulfates de la solution interstitielle et de la température (Barbarulo et al. 2002)

La quantité de sulfates adsorbés augmente avec le rapport Ca/Si des CSH (Barbarulo 2002, Barbarulo et al. 2002). Selon (Fu & Beaudoin 1996-c), l'adsorption des sulfates est d'autant plus rapide que la température est élevée. En outre, la mobilisation des sulfates par les CSH est d'autant plus importante que la teneur en alcalins du milieu est élevée (Divet & Randriambololona 1998, Taylor et al. 2001) (cf. section 4.3.1). Les CSH semblent également présenter des propriétés d'adsorption des alcalins augmentant avec la diminution du ratio C/S des CSH (Chen & Brouwers 2010).

La sorption/désorption des sulfates par les CSH est un phénomène entièrement réversible mais la cinétique de la désorption est beaucoup plus lente que celle de

l'adsorption (*Brown & Bothe 1993, Divet & Randriambololona 1998, Barbarulo 2002, Barbarulo et al. 2002, Barbarulo et al. 2007*). Selon (*Fu & Beaudoin 1996-c*), la désorption des sulfates est d'autant plus lente qu'ils ont été mobilisés à haute température. (*Fu et al. 1994-a*) indiquent que la désorption de sulfates est d'autant plus rapide que la quantité adsorbée sur les CSH est importante. En outre, le taux de désorption augmente avec la diminution de la concentration en alcalins du milieu (*Famy et al. 2001*). Des informations plus détaillées sur ce phénomène sont fournies en section 4.3.2.

Pour expliquer ce phénomène, (*Barbarulo et al. 2002*) suggèrent un mécanisme d'adsorption des sulfates : il est supposé que Ca^{2+} se substitue à H^+ au niveau des terminaisons Si-O-H des CSH. Ainsi, le site Si-O- Ca^+ présent en bout de chaîne pourrait constituer un site d'adsorption de SO_4^{2-} via la mise en jeu de forces de Coulomb et d'interactions chimiques.

Les CSH présentent également des facultés de mobilisation des aluminates. En revanche, il semble plus probable que ceux-ci soient intégrés à la structure des hydrates par substitution de Si (*Brown & Bothe 1993, Scrivener & Taylor 1993, Taylor et al. 2001*). Même si ce point ne semble pas faire l'objet d'un consensus (*Brown & Bothe 1993*), ce mécanisme suggère que les aluminates ne sont relâchés dans la solution que très lentement, leur intégration comme substituant représentant une liaison chimique beaucoup plus forte que l'adsorption des sulfates (*Taylor et al. 2001*). De plus, cette hypothèse semble appuyée par les travaux expérimentaux de (*Famy et al. 2001*) qui montrent que le rapport Al/Ca reste relativement constant lors du suivi de la composition des CSH à l'issue de la cure thermique tandis que le rapport S/Ca diminue. Par ailleurs, pour favoriser la formation d'ettringite plutôt que de monosulfate après la cure thermique, il est nécessaire que les sulfates soient relâchés plus rapidement que les aluminates (différences de stoechiométrie entre les deux espèces) ce qui semble cohérent avec une liaison « faible » des sulfates et une liaison « forte » des aluminates. Il est à noter que (*Lothenbach et al. 2007*) n'observent pas de telles variations de Al/Ca.

4.2.2 Impacts sur la microstructure et les possibilités de gonflement

Selon (*Barbarulo 2002*), la structure cristalline des CSH ne semble affectée ni par la température, ni par la présence de sulfates, tout au moins pour les gammes de variations de ces paramètres correspondant à des risques de RSI. (*Famy et al. 2002-b*) et (*Sahu & Thaulow 2004*) entre autres observent la présence de deux types de CSH autour des grains de ciment anhydre pour des composites cimentaires dont la microstructure est suivie à long terme (conservation en eau) à l'issue d'une cure thermique appliquée au jeune âge. La cure thermique conduit à des cinétiques d'hydratation plus rapides du fait de la thermoactivation. Ces auteurs notent la présence de CSH gris clairs et gris foncés entourant les grains de ciment anhydres (cf. Figure 1-13). Les premiers sont formés lors de la cure thermique et les seconds sont issus de l'hydratation prolongée lors de la phase de stockage en eau. Ces différences de niveaux de gris ne sont pas observées pour un matériau conservé à température ambiante de manière continue. Elles ne sont pas attribuées à des différences de composition chimique (trop faibles) mais à des différences de porosité et de teneur en eau (*Scrivener 1992, Scrivener et al. 1999, Famy et al. 2002-c, Lothenbach et al. 2007*) : les CSH formés lors de la cure thermique présentent une porosité fine moins importante. (*Laplante 1993*) note pour sa part des différences de morphologie des CSH avec l'augmentation de la température : la porosité apparaît plus grossière dans ce cas. (*Scrivener et al. 1999*) synthétisent en indiquant que les CSH formés à haute température

sont plus denses et contiennent plus d'eau. (Vandamme et al. 2010) notent également une augmentation de la densité des CSH avec l'augmentation de la température de cure.

Ces différences de porosité peuvent jouer sur les phénomènes de diffusion et donc influencer les phénomènes tels que la RSI (Scrivener et al. 1999, Lothenbach et al. 2007). (Famy et al. 2002-c) indiquent par ailleurs que ces différences de niveau de gris peuvent également être observées dans le cas de l'utilisation de fumée de silice ou lors d'une attaque sulfatique externe. Dans ces cas précis, les différences de niveau de gris sont attribuables à des différences de composition des CSH.

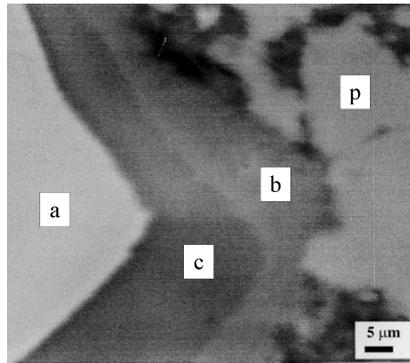


Figure 1-13 : observation microscopique (technique des électrons rétrodiffusés) d'un mortier soumis après une précure de 4 h à une cure thermique de 90°C / 12 h puis à un stockage en eau à température ambiante durant 200 jours. a. grain de C₃S anhydre b. CSH formés lors de la cure thermique c. CSH formés lors de la phase de conservation en eau p. Portlandite (Famy et al. 2002-b)

Certains auteurs ont tenté de relier les variations de composition des CSH d'un matériau aux possibilités de gonflement de RSI. Ainsi, (Scrivener & Lewis 1999) réalisent des analyses de la composition des inner CSH (CSH formés au contact des grains de ciment anhydres) formés lors de la cure thermique. Ces analyses sont rendues délicates par la résolution des méthodes d'analyse microscopique : les volumes analysés représentent des espaces dont la longueur caractéristique est de l'ordre du micromètre. Or, les phases présentes dans la pâte de ciment sont mélangées à une échelle submicrométrique, ce qui conduit à réaliser des analyses de mélange de phases, les résultats variant ainsi potentiellement d'un point d'analyse à un autre. (Scrivener & Lewis 1999) ont donc mis au point une méthode d'analyse permettant d'analyser au mieux ces zones de mélange. Les résultats des investigations semblent montrer que les inner CSH formés à haute température montrent une composition proche d'un mélange CSH/AFt à l'issue de la cure thermique. Pour un matériau non traité thermiquement, la composition semble proche de CSH/AFm. Les travaux de (Famy et al. 2002-a) n'ont par la suite pas permis de confirmer ces résultats. Il semble en revanche que les outer CSH soient mélangés à du monosulfate (AFm). Il est suggéré que lors de la désorption des sulfates des CSH, le monosulfate est converti en ettringite conduisant à la formation de cristaux en espaces confinés et donc au développement de pressions (cf. section 3.4). Par la suite, l'intrusion d'eau dans le matériau facilite les phénomènes de dissolution – reprécipitation des petits cristaux vers des espaces plus grands comme les fissures et les interfaces pâte – granulat. Ces considérations semblent en accord avec les travaux de (Kurdowski 2002) qui note la présence de petits cristaux d'ettringite au sein de la pâte de ciment.

Les propriétés des CSH et leur mode de formation influent donc sur les possibilités de développement de gonflements de RSI : les silicates de calcium hydratés représentent un moyen de stockage des réactifs d'une part ; d'autre part, la nature des CSH influe sur la microstructure des matériaux et a donc une influence directe sur la réponse des matériaux

vis-à-vis des pressions développées lors de la cristallisation d'ettringite ainsi que sur ses propriétés de transfert, régissant les phénomènes de diffusion ionique entre autres. Ainsi, avec l'augmentation de la température, les CSH mobilisent potentiellement davantage d'alcalins et développent une microstructure plus favorable à la formation d'ettringite en milieu confiné, favorisant ainsi le développement d'expansions de RSI.

4.3 Le rôle des alcalins

4.3.1 Effets au jeune âge sur la formation d'ettringite d'hydratation précoce

La présence d'alcalins dans un système cimentaire peut conduire à des modifications chimiques importantes. Dans leurs travaux d'expertise, (*Lawrence et al. 1999*) observent que les éléments les plus dégradés sont ceux dont la teneur en alcalins est la plus forte (on gardera néanmoins à l'esprit que les structures diagnostiquées peuvent ne pas avoir été soumises à un échauffement excessif). Ceci semble donc indiquer que la présence d'alcalins peut avoir un effet considérable sur le développement de dégradations.

Tout d'abord, la présence d'alcalins modifie considérablement le domaine de stabilité de l'ettringite (*Damidot & Glasser 1993, Ghorab 2002*). Ainsi, la présence d'alcalins favorise la solubilité de l'ettringite, à plus forte raison à haute température (*Scrivener & Skalny 2005*). De même, (*Sahu & Thaulow 2004*) indiquent qu'une teneur élevée en alcalins peut retarder voire empêcher la formation d'ettringite primaire. L'ajout d'alcalins induit une augmentation des concentrations en sulfates et en aluminates et une diminution de la concentration en calcium dans le système $\text{CaO-Al}_2\text{O}_3\text{-CaSO}_4\text{-H}_2\text{O}$ (*Damidot & Glasser 1993*). Selon (*Owsiak 2008*), la présence d'alcalins est favorable à la stabilité du monosulfate. En outre, l'ajout d'alcalins en grandes quantités peut conduire à la formation de nouveaux hydrates intégrant ces espèces et complexifiant d'autant plus l'étude des systèmes cimentaires (*Damidot et al. 1995*).

En présence de soude, (*Barbarulo 2002*) et (*Shimada & Young 2004*) observent une augmentation de la concentration en sulfates dans la solution interstitielle. (*Barbarulo 2002*) note également que la quantité de sulfates adsorbés sur les CSH dans ces conditions est relativement faible en comparaison avec un système sans alcalins. Selon ces auteurs, il semble donc qu'en présence d'alcalins, la solution interstitielle soit un moyen de stockage en sulfates considérable dans le cadre d'une formation différée d'ettringite. (*Divet & Randriambololona 1998*) notent pour leur part une augmentation de la quantité des sulfates adsorbés par les CSH avec l'augmentation de la teneur en NaOH. Il est à noter que ces deux effets ne sont pas contradictoires.

Selon (*Brown & Bothe 1993*), la présence de KOH induit une accélération de l'hydratation du C_3S et semble empêcher la réaction du C_3A avec le gypse pour former de l'ettringite. Une accélération similaire de l'hydratation du C_3S est mentionnée par (*Owsiak 2008*), induisant ainsi un potentiel de gonflement plus important par mobilisation d'une plus grande quantité de sulfates. Ces effets combinés peuvent donc faciliter l'intégration des sulfates et des aluminates aux CSH. (*Fu & Beaudoin 1996-c*) suggèrent de la même manière que la formation rapide de CSH conduit à une adsorption plus précoce des sulfates par rapport à un système pauvre en alcalins et est ainsi d'autant plus défavorable à la formation d'ettringite précoce. En outre, selon (*Kurdowski 2002*), la présence d'alcalins favorise l'hydratation de C_2S (sans nécessité d'échauffement), relâchant ainsi plus rapidement les sulfates qu'ils peuvent contenir. Il convient toutefois de noter que ce dernier phénomène ne s'inscrit pas directement dans le cadre de la RSI tel que nous l'avons défini.

Sous certaines conditions, l'ajout d'alcalins peut avoir un effet réducteur sur le développement des gonflements. Ainsi, (*Ekolu et al. 2007-a*) mentionnent la possibilité de contrôler les gonflements par l'utilisation de lithium. Il semble que cette espèce soit moins soumise à la lixiviation, ce qui aurait pour conséquence de bloquer la désorption des sulfates contenus dans les CSH à l'issue de la cure thermique. De même, dans le cas de l'utilisation de cendres volantes ou de fillers calcaires, l'ajout de KOH a pu conduire à une diminution de gonflements (*Kurdowski & Duszak 2002*). Néanmoins, selon ces auteurs, ces résultats semblent inattendus et nécessitent des investigations complémentaires pour permettre une interprétation pertinente.

Dans de nombreuses autres études, l'ajout d'alcalins sous forme de sodium ou de potassium conduit à une augmentation des gonflements. Ainsi, (*Hanehara et al. 2008-b*) observent des gonflements plus rapides dans le cas d'un ajout de sulfate de potassium plutôt que de sulfate de calcium dans le système clinker étudié. (*Kelham 1996*) observe pour sa part une augmentation des gonflements lors de l'augmentation de la teneur initiale en alcalins. (*Shayan & Ivanusec 1996*) notent quant à eux des gonflements plus importants dans le cas de l'utilisation de potassium à la place du sodium.

4.3.2 Effets à long terme sur la formation différée d'ettringite

La présence d'alcalins en plus ou moins grande quantité dans un matériau susceptible de RSI semble avoir des effets sur le développement de gonflements. Ainsi, (*Aubert et al. 2009*) notent qu'un même matériau peut développer des gonflements ou non, selon qu'il est conservé respectivement dans un volume d'eau distillée restreint mais régulièrement renouvelé ou dans un grand bac d'eau non renouvelée. Selon ces auteurs, les matériaux sont soumis, lors de l'immersion, à une lixiviation des alcalins jusqu'à mise en équilibre avec la solution environnante. Si celle-ci n'est pas renouvelée, la lixiviation est stoppée et aucun gonflement n'est observé dans le cadre de cette étude. Si l'eau est particulièrement agressive (eau distillée) et renouvelée, cet équilibre est régulièrement brisé ce qui entretient le phénomène de lixiviation des alcalins et provoque l'apparition de gonflements dans ces travaux. Ceci est cohérent avec les considérations de stabilité de l'ettringite en milieu alcalin : en présence d'alcalins, le domaine de stabilité de l'ettringite est considérablement modifié (*Damidot & Glasser 1993, Flatt & Scherer 2008*).

Par ailleurs, la diminution de la teneur en alcalins induit une diminution de pH facilitant la désorption des sulfates mobilisés par les CSH (*Brown & Bothe 1993, Divet & Randriambololona 1998, Diamond 2000*). Pour (*Diamond 2000*), l'apparition d'une RSI ne peut se faire qu'en cas de diminution de la concentration en alcalins du matériau soit par lixiviation, soit par consommation par la RAG. (*Diamond & Ong 1994*) observent ainsi une diminution de la concentration en alcalins dans un matériau susceptible de RSI et de RAG durant les jours suivant la cure thermique. Cette diminution est alors attribuée à la formation de gel de RAG.

De la même manière, le maintien d'une teneur élevée en alcalins peut conduire à une diminution des cinétiques et des amplitudes de gonflement. Lors de l'analyse aux rayons X de matériaux contenant du lithium et susceptibles de RSI, (*Ekolu et al. 2007-a*) notent ainsi une présence moins marquée de l'ettringite par rapport à un matériau ne contenant pas cet alcalin. De même, (*Famy et al. 2001*) notent que la limitation de la lixiviation des alcalins lors de la phase de suivi des corps d'épreuve conduit à une limitation importante des cinétiques et des amplitudes de gonflement (cf. Figure 1-14). Selon ces travaux, la nature des alcalins présents (Li ou K) dans la solution de stockage semble avoir peu d'influence. En revanche, il semble que le potassium soit lessivé plus

rapidement que le sodium. Par ailleurs, (Graf 2007) note un développement de gonflements plus précoces pour des mortiers conservés en eau distillée qu'il attribue à une lixiviation des alcalins. Ces travaux indiquent la possibilité de lixiviation dans des atmosphères d'Humidité Relative (HR) élevée mais dans des proportions nettement moins importantes que dans le cas d'une immersion. Selon (Graf 2007), la lixiviation est d'autant plus importante que l'humidité relative augmente.

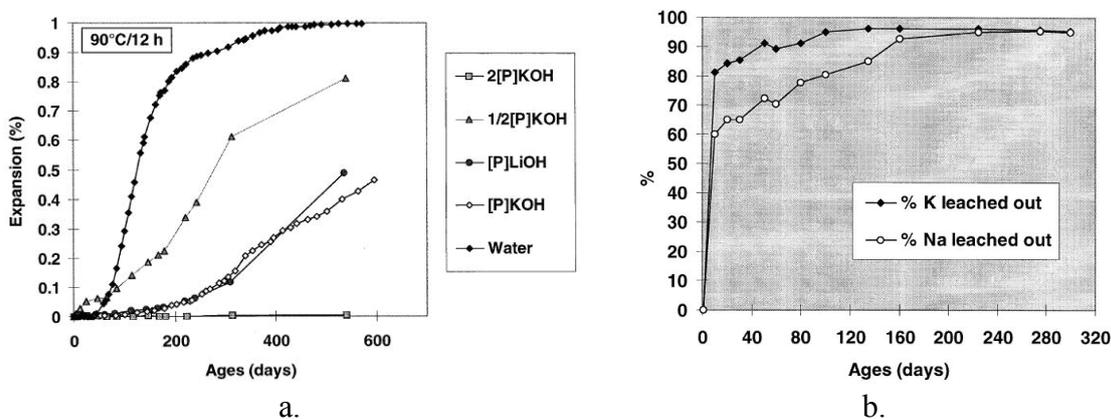


Figure 1-14 : effets de la présence d'alcalins sur le développement de gonflements ; a. Suivi dimensionnel d'un mortier conservé dans des solutions de différentes concentrations ([P] = concentration en alcalins de la solution interstitielle avant immersion) b. Evolution de la lixiviation des alcalins d'un mortier conservé en eau (Famy et al. 2001)

Ainsi, selon (Leklou 2008), plus les conditions sont favorables à la lixiviation des alcalins, plus les gonflements démarrent rapidement. Ceci semble confirmé expérimentalement dans de nombreuses études. (Zhang et al. 2002-a) remarquent que les cinétiques de gonflement de prismes sont plus rapides que celles de cubes plus massifs. De même, (Lawrence 1995-a) note des gonflements plus rapides pour des corps d'épreuve minces. (Fu et al. 1997) notent également une diminution des cinétiques de gonflement (et une augmentation de leur amplitude) avec l'augmentation de la taille des corps d'épreuve.

Finalement, (Lawrence 1999) indique que la réalisation de ses essais sur des corps d'épreuve conservés en eau peut être critiquable car ce procédé de conservation favorise la lixiviation des alcalins et donc potentiellement l'apparition de gonflements de RSI n'ayant pas forcément lieu pour un même matériau peu exposé à ce phénomène *in situ*. Toutefois, il indique que cette technique expérimentale présente l'intérêt de fournir des estimations conservatives et sécuritaires puisqu'elles conduisent à l'établissement d'amplitudes de gonflement plus importantes.

4.4 Histoire thermique

4.4.1 Les possibilités d'échauffement

Lors de la préfabrication de produits en béton, les matériaux sont souvent soumis à une cure thermique ayant pour objectif de thermoactiver la réaction d'hydratation, développant ainsi des résistances au jeune âge de manière plus précoce et autorisant un décoffrage plus rapide. Historiquement, les premiers matériaux diagnostiqués atteints de RSI sont ainsi issus de la préfabrication (Heinz & Ludwig 1987). Par la suite, une grande majorité des études de laboratoire sur la RSI ont été menées pour des cycles de traitement

thermique proches de ceux de l'industrie de la préfabrication (e.g. *Kelham 1996, Yang et al. 1999-b, Pavoine 2003*).

Certains auteurs ont d'autre part démontré la possibilité de développer une RSI dans une pièce de béton massive. En effet, sous les effets combinés du dégagement de chaleur inhérent à l'hydratation et des faibles conditions d'échange thermique de pièces de taille importante, des élévations de température considérables peuvent être observées jusqu'à dépasser les seuils de température jugés à risque vis-à-vis de la RSI (*Hobbs 1999, Divet 2001, Divet & Pavoine 2002, Barbarulo 2002, Pavoine 2003, Petrov 2003, Baghdadi 2008, Boenig et al. 2009*). Ainsi, la température au cœur de certaines pièces massives de béton peut aisément dépasser 70°C durant plusieurs jours (*Divet 1998, Divet 2002*).

Certaines applications telles que le stockage de déchets radioactifs dans des conteneurs en béton peuvent conduire à l'application d'un échauffement dit tardif (i.e. n'étant pas appliqué lorsque le béton est encore à l'état plastique) (*Paul & Glasser 2000*). Il semble que ce type d'échauffement puisse également être responsable du développement de gonflements attribués à la RSI (*Barbarulo 2002, Barbarulo et al. 2005*).

4.4.2 Influence de la précure

La durée de précure (c'est à dire la durée comprise entre le coulage d'un béton et l'application d'un échauffement) semble avoir une influence sur le comportement expansif d'un matériau susceptible de RSI. Selon (*Collepari 2003*), une période de précure trop courte peut conduire au développement de microfissurations pouvant favoriser la RSI (cf. section 4.6.3). Ainsi, selon certains auteurs, plus la précure est courte, plus les gonflements sont importants et/ou rapides (*Lawrence 1995-a, Fu et al. 1997, Graf 2007*). Cet effet de la durée de précure peut être expliqué par les résultats de (*Famy et al. 2002-b*) qui montrent une modification de la microstructure des matériaux (notamment au niveau de la nature des CSH) avec l'augmentation de la durée de précure. Néanmoins, les effets de ce paramètre ne semblent pas faire l'objet d'un consensus. En effet, certains auteurs ne notent aucune différence notable lors de la variation de ce paramètre (*Odler & Chen 1996, Heinz et al. 1999*).

4.4.3 Vitesses d'échauffement et de refroidissement

Les vitesses de chauffe et de refroidissement appliquées aux matériaux semblent avoir une influence vis-à-vis de la RSI. Ainsi, selon (*Collepari 2003*), des vitesses d'échauffement et de refroidissement trop importantes peuvent conduire au développement d'une microfissuration et ainsi induire un risque de RSI plus important. (*Petrov & Tagnit-Hamou 2004*) appliquent pour leur part des vitesses de refroidissement très rapides à leurs corps d'épreuve afin de provoquer un choc thermique dans le cadre de leur étude de l'influence de la microfissuration sur la RSI. Selon eux, cette microfissuration peut conduire à une initialisation plus précoce des gonflements et/ou à une diminution des amplitudes de gonflement en créant des vases d'expansion pour la précipitation de l'ettringite (cf. section 4.6.3). Ainsi, même si ce paramètre ne semble pas être d'une importance de premier ordre à la lumière des études disponibles dans la littérature, il semble important de garder à l'esprit qu'il peut aggraver les phénomènes de RSI (en termes de cinétique et/ou d'amplitude).

4.4.4 Température et durée de la cure thermique

La température et la durée d'application d'un palier de cure thermique est un paramètre dont l'importance est de premier ordre vis-à-vis du risque de RSI. Pour (Kelham 2002) et (Brunetaud 2005), il s'agit d'un facteur dominant vis-à-vis du risque de RSI. Pour de nombreux auteurs, l'application d'une cure thermique dépassant une température de l'ordre de 65-70°C (cf. section 2.2.1) est une nécessité pour induire un risque d'expansion (Heinz & Ludwig 1987, Lawrence 1995-b, Odler & Chen 1995, Kelham 1996, Shayan & Ivanusec 1996, Lawrence 1999, Zhang et al. 2002-a, Petrov & Tagnit-Hamou 2004, Barbarulo et al. 2005, Tosun 2006, Hanehara et al. 2008-a, Hanehara et al. 2008-b).

Pour certains auteurs, l'augmentation de la température de cure thermique induit une augmentation de l'amplitude des gonflements de RSI (Fu et al. 1997, Meland et al. 1997, Ramlochan et al. 2003, Barbarulo et al. 2005) et une accélération de la cinétique et de l'initialisation (Heinz & Ludwig 1987, Meland et al. 1997, Ramlochan et al. 2003, Hanehara et al. 2008-a, Hanehara et al. 2008-b). Hanehara ne note pas d'effet amplificateur de la température de cure sur la valeur finale des gonflements (Hanehara et al. 2008-a). Sur la gamme de température 75-100°C (durées d'application de l'ordre de 5 heures), (Heinz et al. 1999) observent une diminution du temps de latence et de l'amplitude des gonflements avec l'augmentation de la température de cure. (Ramlochan et al. 2003) résume cette situation en indiquant que l'influence de la température sur le comportement expansif de RSI est complexe, point de vue partagé par (Lawrence 1995-b) pour qui l'influence de la température dépend grandement de la composition du ciment. D'une manière générale, on note une augmentation de l'occurrence des gonflements avec l'augmentation de la température (Lawrence 1995-b, Kelham 1999).

Certains auteurs notent un effet de *pessimum* vis-à-vis de la durée de cure thermique. A température de cure constante, on observe une augmentation de l'amplitude des gonflements avec l'accroissement de la durée de cure thermique jusqu'à une certaine valeur au delà de laquelle le potentiel de gonflement décroît (Lawrence 1995-b, Lawrence 1999, Taylor et al. 2001, Brunetaud 2005, Scrivener & Skalny 2005). Ainsi, selon (Kelham 1996), il convient de considérer à la fois température et durée du palier de traitement thermique pour prédire les gonflements d'un matériau donné. (Brunetaud 2005) suggère quant à lui de considérer ces deux grandeurs comme un couple et non comme des paramètres isolés.

Les travaux de (Baghdadi et al. 2008-b) confirment expérimentalement l'intérêt de prendre en compte le palier de cure thermique en considérant conjointement la durée et la température. Ces auteurs proposent une relation empirique calibrée sur des données expérimentales et visant la prédiction des amplitudes de gonflement en fonction de l'histoire thermique d'un béton (cf. relation (1-8)). Cette relation suggère l'existence d'une énergie d'activation et d'un seuil de température nécessaires au déclenchement des expansions. La calibration des constantes de ce modèle, pour le béton étudié et pour des températures de traitement thermique variant de 70°C à 85°C durant des périodes de 24 heures à 72 heures, donne $E = 407,8 \text{ J/mol}$, $T_0 = 54^\circ\text{C}$ et $\alpha = 0,00133 \text{ h}^{-1}$. La Figure 1-15 compare les estimations du modèle aux amplitudes de gonflement réelles. Le modèle permet de reproduire la tendance générale d'augmentation des gonflements avec la température et la durée d'application. Néanmoins, on observe que les points expérimentaux sont relativement dispersés par rapport aux prédictions du modèle. En particulier, on note que l'estimation de l'expansion pour un traitement thermique de 80°C pendant un jour est inférieure aux résultats expérimentaux. Il semble donc que cette approche sous-estime l'effet des traitements thermiques à haute température et de faible durée. Par ailleurs, cette

relation n'introduit pas l'effet de pessimum qui semble exister au delà d'une certaine énergie de traitement thermique. Ceci constitue une limite de ce modèle.

$$\left\{ \begin{array}{l} \varepsilon_{\infty} = \alpha \int_0^{t_m} \phi(t) dt \\ \phi(t) = \begin{cases} 0 & \text{si } T(t) \leq T_0 \\ \exp\left(-\frac{E}{R} \cdot \left(\frac{1}{T(t) - T_0}\right)\right) & \text{sinon} \end{cases} \end{array} \right. \quad (1-8)$$

ε_{∞} = potentiel de gonflement du béton
 α = constante dépendant de la formulation du béton
 E = énergie d'activation
 T_0 = seuil de température de déclenchement de la RSI
 t_m = durée de maturation du béton
 $T(t)$ = température du matériau à l'instant t
 R = constante des gaz parfaits

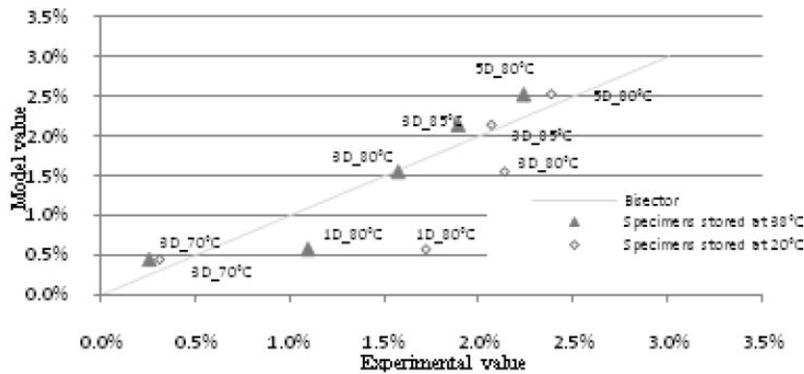


Figure 1-15 : estimation des potentiels de gonflement par le modèle de (Baghdadi et al. 2008-b) (D = days)

Ces effets variés de la température de traitement thermique peuvent être en partie expliqués par les modifications du système à l'échelle microscopique sous les effets d'un échauffement plus ou moins prolongé. Ainsi, à partir de 80°C, (Brown & Bothe 1993) rapportent dans leur bibliographie que l'ettringite pourrait se décomposer en monosulfate en présence d'alcalins. A des températures supérieures, AFm pourrait ensuite se décomposer en hydrogrenat C₃AH₆. (Fu et al. 1995) notent une augmentation de la cinétique de consommation du gypse avec la température. Ceci peut conduire à la présence plus importante de sulfates dans le système et ainsi modifier le comportement de certains hydrates. (Ghorab 2002) attribue quant à lui la diminution (voire la suppression) des gonflements pour une cure prolongée à 100°C à la décomposition complète de l'ettringite en Portlandite et en hydrogrenat. La possibilité de mobilisation des aluminates par les hydrogrenats avec l'augmentation de la température est également envisagée par (Taylor et al. 2001). Pour (Lawrence 1995-b) et (Paul & Glasser 2000), cette diminution des aluminates disponibles peut alors conduire à des conditions défavorables à la précipitation d'ettringite. Par ailleurs, (Odler & Chen 1996) observent une chute de la teneur en ettringite du matériau étudié après cure thermique lors d'une élévation de la température de

50°C à 90°C. L'augmentation de la température de cure développe également des effets vis-à-vis de la morphologie des hydrates formés. L'augmentation de la température semble diminuer le degré d'hydratation final en formant des couches d'hydrate autour des grains de ciment anhydres d'autant plus denses que la température est élevée (*Kjelssen & Detwiler 1992*). De même, (*Paul & Glasser 2000*) notent l'existence de nombreuses phases anhydres à l'issue d'une cure thermique à 85°C de 8 ans. La formation de couches denses de CSH pourrait constituer une barrière à la poursuite de l'hydratation. L'augmentation de la température permet d'augmenter les résistances au jeune âge (accélération de la dissolution des phases anhydres avec la température) mais conduit à des résistances à long terme plus faibles (*Lothenbach et al. 2007*). La microstructure des matériaux avec l'augmentation de la température devient plus granuleuse (*Laplante 1993, Patel et al. 1995*).

4.4.5 Effets d'un échauffement tardif

On considère en général que la RSI apparaît suite à l'application d'un échauffement au jeune âge. Néanmoins, certains auteurs ont mis en évidence la possibilité de développer des gonflements lors de l'application d'échauffements tardifs (i.e. une fois la prise du matériau réalisée). (*Barbarulo et al. 2005*) appliquent ainsi un échauffement d'un mois à une température de 85°C à une échéance d'un an à des matériaux ayant subi ou non une cure thermique au jeune âge. Ils observent alors le développement de gonflements, que les matériaux aient déjà développé des expansions ou non. Sur la base de la comparaison des prises de masse en fonction des déformations observées dans le cas d'un échauffement précoce et d'un échauffement tardif, (*Barbarulo 2002*) conclut que ces gonflements sont issus d'une RSI. De même, (*Brunetaud 2005*) observe que l'application d'un échauffement tardif à des matériaux n'ayant pas développé d'expansions dans un premier temps conduit à l'apparition d'une RSI. Enfin, (*Heinz et al. 1999*) observent que l'application d'un traitement thermique après une précure de un an conduit à des amplitudes de gonflement plus importantes que dans le cas d'un échauffement précoce. A chaque nouvel échauffement, ils notent une chute instantanée du module dynamique précédant les expansions en question et des prises de masse subséquentes lors d'une conservation en eau.

4.4.6 Effets de la température de conservation

Dans ce mémoire, on appelle température de conservation (ou indifféremment température de stockage) la température à laquelle le matériau est conservé à l'issue du traitement thermique. De par la nature de l'ettringite et les mécanismes physiques impliqués dans le cadre de la théorie de la pression de cristallisation, une élévation de la température de conservation semble donc a priori défavorable au développement de gonflements. Ainsi, dans ses travaux, (*Scherer 2002*) évalue qu'il est possible, selon les travaux de (*Damidot & Glasser 1992*) et (*Damidot & Glasser 1993*), de développer une pression de l'ordre de 6 MPa lors d'un refroidissement de 85°C à 20°C. En revanche, si ce refroidissement est stoppé à une température de 38°C, la diminution du degré de sursaturation limite la pression développée à 2,6 MPa et est ainsi moins susceptible de provoquer des gonflements. Cette tendance est confirmée expérimentalement par des travaux qui font état d'une diminution des amplitudes de gonflement (voire une suppression des gonflements) au fur et à mesure que la température de stockage est

augmentée (Pavoine 2003, Baghdadi 2008, Baghdadi et al. 2008-b, Hanehara et al. 2008-a, Hanehara et al. 2008-b, Leklou 2008).

(Flatt & Scherer 2008) étudient l'influence d'une variation de la température de stockage. Pour le mortier étudié, une conservation continue à une température de 20°C aboutit au développement de gonflements importants. En revanche, un même matériau conservé continuellement à 38°C ne développe aucune expansion, confirmant ainsi les considérations théoriques de (Scherer 2002). Le basculement de la température de stockage à 20°C après une conservation initiale de 98 jours à 38°C conduit à l'apparition de phénomènes de RSI indiquant que le potentiel de gonflement n'a pas disparu lors de la première phase de stockage même si cette dernière n'a fait état d'aucun phénomène délétère à l'échelle macroscopique. En revanche, l'exposition à une température de 38°C d'un matériau conservé initialement à 20°C durant 98 jours conduit à la poursuite des gonflements : à l'échéance de basculement, le matériau est déjà suffisamment endommagé pour permettre une expansion bien que les pressions développées soient moins importantes (cf. Figure 1-16). (Flatt & Scherer 2008) confrontent la pression qu'il est possible de développer dans les mortiers étudiés (calculable en fonction de la température moyennant la connaissance de la quantité d'ettringite présente et en formulant une hypothèse sur la géométrie des pores où précipitent les cristaux) à la résistance à long terme du matériau (cf. Figure 1-17). Cette figure établit que la possibilité de développer une expansion diminue avec l'augmentation de la température (diminution de la pression développée du fait de la diminution du degré de sursaturation) et est fonction de la résistance du matériau mais également de la nature de la porosité dans laquelle les cristaux précipitent.

Ainsi, des variations de température peuvent avoir des effets marqués sur le développement de gonflements. Dans ce contexte, (Glasser 2002) indique que des variations de température saisonnière peuvent avoir des conséquences très marquées sur les équilibres chimiques du matériau et peuvent ainsi induire des degrés de sursaturation importants.

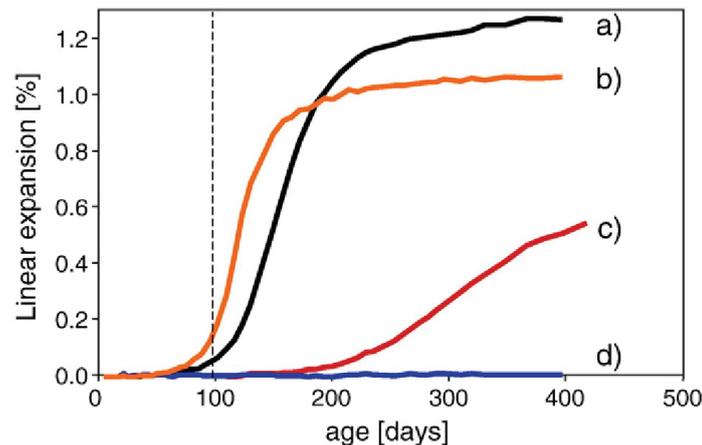


Figure 1-16 : gonflement d'un mortier (cure thermique 90°C/12 h) soumis à différentes températures de conservation (a. conservation continue à 20°C ; b. conservation à 20°C durant 98 jours puis stockage à 38°C ; c. conservation à 38°C durant 98 jours puis stockage à 20°C ; d. conservation continue à 38°C) (Flatt & Scherer 2008)

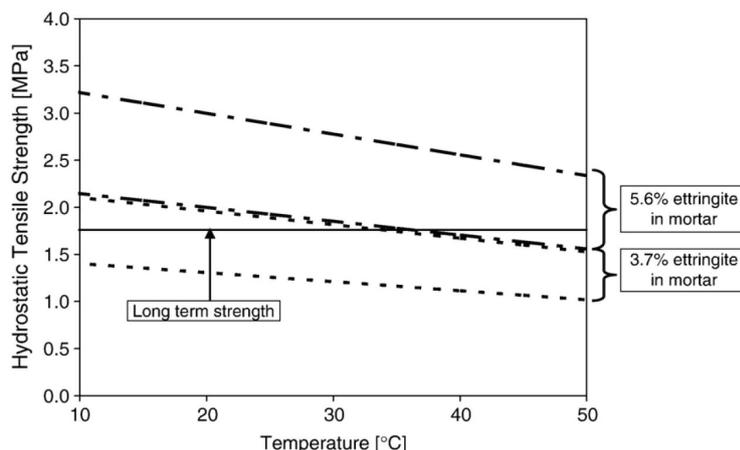


Figure 1-17 : évolution de la pression développée en fonction de la quantité d'ettringite présente dans un mortier et de la température de conservation (Flatt & Scherer 2008)

Pour chaque cas, la courbe pointillée supérieure correspond à une hypothèse de précipitation dans des pores sphériques, la courbe pointillée inférieure correspond à celle d'une précipitation dans des pores cylindriques. La ligne continue horizontale représente la résistance en traction à long terme.

La diminution des amplitudes de gonflement avec l'augmentation de la température de stockage semble contrebalancée par une diminution du temps de latence des phénomènes de gonflement (Pavoine 2003, Baghdadi 2008, Leklou 2008). (Leklou 2008) attribue cette diminution du temps d'apparition de la RSI à une accélération des échanges ioniques à température plus élevée.

Finalement, (Heinz et al. 1999) indiquent qu'une diminution de température de stockage trop importante (valeur de 2°C considérée) peut conduire à la formation de thaumasite $\text{Ca}_3\text{Si}(\text{CO}_3)(\text{SO}_4)(\text{OH})_6 \cdot 12\text{H}_2\text{O}$ plutôt que d'ettringite. La formation de thaumasite constitue une autre forme d'attaque sulfatique interne conduisant à la dégradation de la cohérence entre la matrice cimentaire et les granulats (Mingyu et al. 2006).

4.5 Effets de l'humidité

Les investigations *in situ* semblent souvent indiquer que les parties d'ouvrage les plus exposées à l'humidité sont les plus dégradées (Mielenz et al. 1995, Lawrence et al. 1999, Godart & Divet 2008, Boenig et al. 2009). Au sein d'un même élément en béton atteint de RSI, (Mielenz et al. 1995) observent que les zones de matériau les plus proches des surfaces humidifiées par la pluie sont plus riches en ettringite.

En laboratoire, ces tendances d'augmentation des gonflements avec l'augmentation de l'humidité ont été confirmées (Lawrence 1995-a, Odler & Chen 1995, Heinz et al. 1999, Odler & Colàn-Subauste 1999, Famy et al. 2001, Taylor et al. 2001, Shimada 2005, Graf 2007, Hanehara et al. 2008-b, Rust 2009) : les amplitudes et les cinétiques de gonflement sont augmentées par l'accroissement du taux d'humidité relative environnant les corps d'épreuve. Cette influence de l'eau est expliquée par (Colleparidi 2003) par son rôle de moyen de transport des espèces ioniques vers les sites de cristallisation de l'ettringite. D'autre part, (Diamond 2000) indique qu'un stockage en eau plutôt que dans une atmosphère riche en vapeur d'eau favorise la lixiviation des alcalins et donc le développement d'expansions (cf. section 4.3.2). Selon (Odler & Chen 1995), la quantité d'ettringite formée est d'autant plus importante que l'humidité est importante.

Devant l'influence de l'humidité environnante sur les possibilités d'expansion liées à la RSI, certains auteurs ont étudié l'existence d'un seuil d'humidité relative (HR) en dessous duquel aucun gonflement ne se produirait. Selon (*Heinz & Ludwig 1987*) et (*Heinz et al. 1999*), aucun gonflement ne peut se développer pour des HR inférieures ou égales à 95 %. (*Rust 2009*) estime qu'il existe un seuil de HR bloquant le développement de la RSI et situé entre 90 % et 92 %. (*Shimada 2005*) et (*Graf 2007*) établissent l'absence de gonflements pour des HR inférieures ou égales à 90 %. En revanche, à partir d'une HR de 92 %, les gonflements observés sont d'autant plus précoces et importants que l'humidité environnante augmente. Dans ses travaux, (*Graf 2007*) considère la loi de Kelvin-Laplace qui relie pression de vapeur et taille des pores suivant la relation (1-9). Cette relation indique que l'augmentation de la taille d'un pore nécessite l'augmentation de la concentration de vapeur (et donc de HR) pour voir apparaître la condensation. Ainsi, la condensation et la saturation sont plus susceptibles de se développer dans de petits pores, ce qui semble cohérent avec un mécanisme de gonflement par croissance d'ettringite dans des nanopores comme celui exposé par (*Taylor et al. 2001*). Sur la base de la relation (1-9), (*Bentz et al. 1995*) établissent pour l'eau à 25°C la relation (1-10), dans un matériau contenant des pores sphériques et sans prise en compte de tortuosité ou de connectivité. Malgré ces approximations sur la nature et la distribution des pores dans le matériau, cette relation est susceptible de fournir des ordres de grandeurs sur la taille des pores susceptibles de correspondre à une HR suffisante pour le développement d'une RSI. L'application numérique conduit à l'estimation d'un rayon de pore de 3,7 nm correspondant à une HR de 92 %, ce qui va également dans le sens d'un gonflement de la pâte issu de la précipitation d'ettringite dans les nanopores des CSH (*Taylor et al. 2001*).

$$\left\{ \begin{array}{l} \ln\left(\frac{p}{p_0}\right) = \frac{2 \cdot V_m \cdot \gamma}{r \cdot R \cdot T} \\ p = \text{pression de vapeur d'une goutte de rayon } r \\ p_0 = \text{pression de vapeur d'une surface plane (rayon infini)} \\ \text{dans les conditions standard} \\ V_m = \text{volume molaire} \\ r = \text{rayon du pore sphérique} \\ R = \text{constante des gaz parfaits} \\ T = \text{température absolue} \\ \gamma = \text{tension de surface du liquide} \end{array} \right. \quad (1-9)$$

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{p}{p_0} = \exp\left(-\frac{1,0553}{r}\right) \\ p = \text{pression de vapeur d'une goutte de rayon } r \\ p_0 = \text{pression de vapeur d'une surface plane (rayon infini)} \\ \text{dans les conditions standard} \\ V_m = \text{volume molaire} \\ r = \text{rayon du pore sphérique} \end{array} \right. \quad (1-10)$$

(Graf 2007) étudie également les possibilités de gonflement lors d'une humidification tardive. Il conclut que l'exposition d'un matériau à une HR insuffisante pour l'apparition d'une RSI ne conduit pas à une suppression du potentiel de gonflement. Ainsi, lors d'une exposition ultérieure à une atmosphère d'humidité suffisante, le matériau peut développer une expansion. Par ailleurs, selon (Odler & Colan-Subauste 1999), le développement de RSI sans apport d'eau extérieur semble envisageable.

Ainsi, l'essentiel des résultats disponibles dans la littérature concernant les couplages entre humidité et gonflements sont relatifs à des mortiers. Si ces études se révèlent nécessaires à la compréhension des phénomènes, leur transposition aux bétons apparaît délicate. Des études détaillées de ce couplage se révèlent donc nécessaires sur ces matériaux afin de mettre en évidence les mécanismes sous-jacents et quantifier les effets de l'humidité.

4.6 Microstructure du matériau cimentaire

Les causes des gonflements de RSI se situent clairement à l'échelle de la microstructure des hydrates et des interfaces du matériau cimentaire. L'influence constatée des caractéristiques de la microstructure des matériaux cimentaires vis-à-vis des expansions de RSI décrite dans cette section est susceptible de contribuer à expliquer, quantifier et discriminer ces mécanismes.

4.6.1 Pâte de ciment

La possibilité de développer des gonflements de RSI pour une pâte de ciment a longtemps fait l'objet de controverses. Aujourd'hui, l'occurrence de gonflements dans des pâtes de ciment semble faire l'objet d'un consensus (Yang *et al.* 1996). Ces gonflements sont en revanche extrêmement lents par rapport à ceux mesurés pour des bétons ou des mortiers (Odler & Chen 1995, Barbarulo 2002). Ainsi, (Odler & Chen 1995) rapportent le cas de pâtes de ciment initiant leurs expansions après 12 mois de conservation en eau. Les expansions après 24 mois de suivi sont de l'ordre de 0,1 % (après une cure thermique de 90°C durant 8 heures au jeune âge).

Selon (Ping & Beaudoin 1992-b), la contrainte dans un matériau issue du développement de pressions de cristallisation est fonction de la fraction surfacique des cristaux en contact avec la matrice. Cette contrainte est donc fonction, entre autres, de la nature de la porosité de la pâte de ciment. Ainsi, selon (Taylor *et al.* 2001), les expansions sont d'autant plus importantes que les pores sont petits et peu connectés. De même, (Grabowski *et al.* 1992) notent l'importance de la densité de fissuration, de la distribution des pores et de la porosité vis-à-vis du développement de gonflements. Pour (Petrov 2003), la nature d'une expansion est liée au volume de pâte de ciment dans le matériau.

La diminution du rapport E/C a pour effet de diminuer la porosité de la pâte de ciment. Expérimentalement, on observe dans ce cas une augmentation de l'occurrence des gonflements des bétons et mortiers (Brunetaud *et al.* 2007) ainsi qu'une augmentation des amplitudes de gonflement (Lawrence 1999, Taylor *et al.* 2001, Petrov 2003, Brunetaud 2005). Les cinétiques sont en revanche diminuées dans ce cas, conjointement à l'augmentation du temps de latence avant apparition des gonflements (Lawrence 1995-a, Heinz *et al.* 1999, Lawrence 1999, Petrov 2003, Brunetaud 2005, Brunetaud *et al.* 2007, Leklou 2008). Cet effet du rapport E/C peut être interprété selon les travaux de (Siedel *et*

al. 1993) d'après lesquels la diminution de la porosité issue d'une baisse du rapport E/C conduit à une limitation des migrations ioniques dans le matériau et donc à une limitation de la formation d'ettringite. Par ailleurs, (Siedel et al. 1993) observent une modification de la morphologie des cristaux d'ettringite avec la variation du rapport E/C : la diminution de E/C conduit à la formation d'une quantité d'ettringite moins importante ; néanmoins, les cristaux se développent dans ce cas dans une structure beaucoup plus dense et se présentent sous forme de couches à la surface des granulats, contrairement à la formation de cristaux aciculaires aux effets a priori beaucoup moins délétères mise en évidence dans le cas de structures plus poreuses (E/C plus important).

Il convient néanmoins de noter que ces résultats concernant l'influence du rapport E/C ne sont pas universels. Ainsi, selon (Heinz et al. 1999), l'augmentation de E/C ne semble pas conduire à des variations significatives des amplitudes de gonflement, exception faite des rapports E/C très importants ($\sim 0,7$) pour lesquels l'amplitude est moins importante. Cet effet réducteur est attribué à une augmentation importante de la porosité fournissant des vases d'expansion pour la précipitation d'ettringite. (Leklou 2008) réalise des observations expérimentales similaires. Par ailleurs, (Odler & Chen 1995) observent une augmentation des amplitudes de gonflement avec l'augmentation du rapport E/C. Cet effet est attribué à une diminution de la résistance du matériau avec l'augmentation de E/C.

La porosité de la pâte de ciment (et donc des matériaux cimentaires en général) a donc une influence marquée sur le développement d'expansions liées à la RSI. Ainsi, (Tosun 2006) note que l'initialisation des gonflements est d'autant plus rapide que la finesse du ciment utilisé est faible et donc que la porosité de la pâte est importante. Selon cet auteur, cette augmentation de porosité facilite l'accès d'eau et donc favorise la précipitation d'ettringite. Néanmoins, dans ce cas, comme lors d'une augmentation de rapport E/C, l'augmentation de porosité conduit à une diminution des amplitudes de gonflement, l'ettringite disposant de plus d'espace pour précipiter librement. De même, l'utilisation d'air entraîné dans les matériaux conduit à une diminution des gonflements en permettant plus facilement à l'ettringite de précipiter dans des espaces plus grands (Heinz & Ludwig 1987, Lawrence 1995-a, Heinz et al. 1999, Petrov 2003, Petrov & Tagnit-Hamou 2004). Finalement, les travaux de (Graf 2007) semblent également indiquer qu'une diminution de la porosité d'un matériau cimentaire peut se révéler favorable au développement d'une RSI : la diminution de la taille des pores peut conduire à l'établissement d'une HR plus importante favorable aux gonflements (cf. section 4.5)

La cure thermique a également un effet sur la microstructure de la pâte de ciment (Famy et al. 2002-b). Selon (Glasser et al. 1995), les matériaux cimentaires soumis à une cure thermique présentent en général une structure poreuse plus grossière favorable à la précipitation d'ettringite sans développement de pressions. De même, (Lothenbach et al. 2007) mentionnent une augmentation du rayon moyen des pores avec la température. Selon (Kjelssen & Detwiler 1992), l'augmentation de la température joue sur le degré d'hydratation final du matériau en favorisant la formation de coques d'hydrates denses autour des grains de ciment anhydres. Par ailleurs, à température constante, (Sakai et al. 2004) notent une diminution du volume total et de la taille de la porosité au cours de l'hydratation.

Finalement, les additions minérales telles que les cendres volantes, les fumées de silice et les laitiers de haut fourneau semblent avoir des propriétés de contrôle vis-à-vis des gonflements de RSI (Kelham 1999, Diamond 2002, Kelham 2002, Kurdowski & Duszak 2002, Ramlochan et al. 2003, Santos Silva et al. 2010). Outre leurs contributions

chimiques (cf. section 4.1.3), ces additions ont souvent pour effet de densifier la structure de la pâte de ciment, limitant ainsi les possibilités d'échanges ioniques favorables à la précipitation d'ettringite. L'effet des fillers calcaires semble à ce jour moins bien maîtrisé : (Kelham 1996) observe une initialisation des gonflements plus précoce dans le cas de l'ajout de fillers sans effet sur l'amplitude ; (Kurdowski & Duszak 2002) notent quant à eux un effet réducteur vis-à-vis du potentiel de gonflement. Enfin, (Santos Silva et al. 2010) mettent en évidence une augmentation des gonflements lors de l'ajout de fillers calcaires.

A la lumière de cette analyse, il est possible de conclure que la structure poreuse de la pâte de ciment est un paramètre important vis-à-vis du comportement expansif des matériaux susceptibles de RSI. La texture et le caractère saturé ou non de la porosité de la pâte semblent être les caractéristiques les plus critiques par rapport au risque de gonflement. L'utilisation d'additions minérales influe sur la nature de la pâte de ciment et a donc des conséquences sur les gonflements. L'action d'additions inertes telles que les fillers calcaires est à ce jour encore difficile à expliquer en détail. Si la diminution de la porosité du matériau peut se révéler bénéfique en limitant les échanges ioniques, la diminution de la taille des pores peut, quant à elle, être favorable au développement de pressions de cristallisation. L'utilisation d'additions pouzzolaniques a en revanche un effet plus clairement compris. Sous réserve que le taux de substitution mis en œuvre soit suffisant, leur ajout conduit à une diminution voire à une suppression des expansions (Ramlochan et al. 2003, Ramlochan et al. 2004, Santos Silva et al. 2006, Santos Silva et al. 2010). L'action de ces additions peut provenir de l'apport en aluminates qu'elles constituent d'une part, et de la diminution de la chaleur d'hydratation qu'elles permettent d'autre part (Santos Silva et al. 2006).

4.6.2 Nature des granulats et influence de l'interface pâte – granulat

La nature des granulats présents dans les mortiers et bétons présente une influence significative sur les possibilités de gonflement de RSI. Selon certains auteurs, l'utilisation de granulats calcaires permet la suppression des gonflements (Heinz et al. 1999, Yang et al. 1999-b). Pour d'autres auteurs, l'utilisation de granulats calcaire diminue l'occurrence des gonflements (Brunetaud et al. 2007) et diminue considérablement les cinétiques de gonflement par rapport à l'utilisation de granulats siliceux (Grattan-Bellew et al. 1998, Lawrence 1999, Kelham 2002, Brunetaud 2005, Brunetaud et al. 2007, Hanehara et al. 2008-a, Hanehara et al. 2008-b). Pour (Petrov 2003), l'influence de la nature des granulats sur les gonflements semble néanmoins relativement limitée.

Selon (Famy & Taylor 2001), la nature du granulat utilisé dans un composite cimentaire influe sur la capacité du matériau à résister aux sollicitations imposées par les gonflements. Ainsi, (Brunetaud et al. 2008) établissent une relation entre module dynamique et taux de gonflement de RSI fonction de la nature des granulats. Pour leur part, (Grabowski et al. 1992) mettent en évidence l'importance de l'interface pâte – granulat en démontrant que certains bétons gonflent plus que les pâtes de ciment associées. (Yang et al. 1996) notent néanmoins que la présence de granulats n'est pas indispensable aux gonflements, du fait de l'expansion de certaines pâtes de ciment traitées thermiquement.

Les effets réducteurs de granulats calcaires sont souvent attribués à leur meilleure liaison avec la pâte de ciment (Taylor et al. 2001). Ces meilleures performances sont

attribuées au caractère plus anguleux des granulats calcaires par rapport à des granulats siliceux (Yang *et al.* 1999-b, Brunetaud *et al.* 2008) ainsi qu'à la formation potentielle de carboaluminates rendant les interfaces pâte – granulat plus résistantes (Kuzel & Meyer 1993, Yang *et al.* 1999-b). Les dilatations thermiques différentielles entre pâte de ciment et granulats semblent également en cause. Ainsi, (Meland *et al.* 1997) observent le développement de fissurations dans la zone de transition autour des granulats. (Lawrence 1999) considère également la possibilité de dégradation des interfaces pâte – granulat par dilatations thermiques différentielles. (Brunetaud *et al.* 2008) observent que les auréoles de transition autour des granulats calcaires (en anglais ITZ = Interfacial Transition Zone) sont moins poreuses que celles des granulats siliceux. De même, (Leklou 2008) n'observe de fissuration aux interfaces que dans le cas de l'utilisation de granulats siliceux. (Grattan-Bellew *et al.* 1998) observent pour leur part une dilatation plus importante des granulats de quartz induisant une microfissuration plus importante et donc fournissant des sites de précipitation de l'ettringite. Ainsi, ces différences de fissuration pourraient induire une limitation des transports ioniques dans les interfaces pâte – granulat calcaire et donc une limitation de la formation d'ettringite (Brunetaud *et al.* 2008).

L'utilisation de granulats siliceux (quartz) semble au contraire faciliter le développement de gonflements. Selon (Lawrence 1999), la fraction de sable de quartz intégrée aux matériaux qu'il étudie semble ainsi avoir une influence directe sur l'amplitude des gonflements. (Yang *et al.* 1999-b) analysent le comportement expansif de matériaux dont le squelette granulaire est composé de mélanges entre calcaire et quartz. Les résultats indiquent que les amplitudes de gonflement semblent proportionnelles à la masse de quartz intégrée au mortier considéré.

Finalement, la granulométrie des particules utilisées semble également jouer un rôle sur le développement de gonflements. Ainsi, (Fu *et al.* 1997) notent des gonflements plus importants lors de l'utilisation de particules plus fines. La diminution du rapport S/C (sable/ciment) semble diminuer les cinétiques mais augmenter les amplitudes de gonflement. Pour leur part, (Grattan-Bellew *et al.* 1998) observent des gonflements d'autant plus rapides que les granulats sont petits : la vitesse de gonflement des mortiers étudiés est trouvée inversement proportionnelle à la taille moyenne des granulats. Ces auteurs notent également une tendance à l'augmentation de la quantité d'ettringite détectée par DRX avec la diminution de la taille des granulats. Au contraire, (Heinz *et al.* 1999) mettent en évidence la diminution du temps de latence avec l'augmentation de la taille des granulats. Leurs travaux semblent indiquer que l'utilisation de granulats très fins peut conduire à la suppression des gonflements.

Ces conclusions disparates sur l'influence de la taille des granulats illustrent la complexité des mécanismes sous-jacents à la RSI. La distribution granulaire a une influence sur la porosité des matériaux cimentaires (en termes de taille, de distribution et de connexion) et influe donc sur les échanges ioniques nécessaires à la rencontre des réactifs d'une part et sur la possibilité de développer des pressions de cristallisation d'autre part en permettant la croissance de l'ettringite dans des espaces confinés. Ainsi, une augmentation de la taille des granulats peut favoriser la connexion de la porosité et ainsi faciliter les échanges ioniques et diminuer les temps de latence, comme le concluent (Heinz *et al.* 1999). Néanmoins, si la porosité devient trop importante, la précipitation se fera davantage dans des zones suffisamment grandes pour ne pas développer de pressions et ainsi diminuera l'amplitude des expansions. La diminution de la taille des pores en utilisant des granulats plus fins (rôle de filler) peut ainsi conduire à une augmentation des gonflements en favorisant le développement de pressions de cristallisation plus importantes (Fu *et al.* 1997, Grattan-Bellew *et al.* 1998).

4.6.3 Microfissuration

A la lumière des informations regroupées dans les sections 4.6.1 et 4.6.2, il semble que la microfissuration du matériau soit un paramètre très influent vis-à-vis du risque de RSI. Selon (*Scrivener & Skalny 2005*), une fissuration induit une amplification des phénomènes de RSI. (*Petrov 2003*) et (*Petrov & Tagnit-Hamou 2004*) notent que la microfissuration accélère les cinétiques de gonflements mais a tendance à diminuer les amplitudes finales (effet de vase d'expansion). Ce point de vue est partagé par (*Escadeillas et al. 2007*). Pour d'autres auteurs, le développement d'une microfissuration est une nécessité à l'apparition de gonflements (*Colleparadi 1999*). Pour (*Yang et al. 1996*), la microfissuration a un effet accélérateur mais n'est pas une nécessité à l'apparition des expansions. Pour leur part, (*Heinz & Ludwig 1987*) indiquent qu'il est possible de déclencher une expansion de RSI par l'application de cycles de gel / dégel responsables d'une dégradation mécanique du matériau. De même (*Patel et al. 1995*) et (*Idorn 2002*) indiquent que la cure thermique peut être responsable d'une microfissuration provoquant la RSI. (*Meland et al. 1997*) notent ainsi une augmentation de la microfissuration des matériaux avec l'augmentation de la température de cure, tout comme lors du retrait du matériau (développement d'une fissuration rayonnante autour des granulats). (*Lawrence 1995-a*) et (*Leklou 2008*) observent quant à eux une diminution du temps de latence avec l'apparition de la microfissuration. (*Taylor et al. 2001*) résument en indiquant que toute dégradation préalable aux gonflements a tendance à amplifier ces derniers.

La microfissuration peut par ailleurs être responsable de gradients hydriques au sein des matériaux (*Patel et al. 1995*). La microfissuration facilite les entrées d'eau et les mouvements de réactifs (*Petrov & Tagnit-Hamou 2004*, *Escadeillas et al. 2007*) et favorisent ainsi la précipitation d'ettringite.

4.7 Action concomitante de la RSI avec d'autres mécanismes délétères

4.7.1 Mécanismes de dégradation d'une manière générale

Les recherches récapitulées en section 4.6.3 indiquent qu'en règle générale, tout mécanisme de dégradation induisant une fissuration augmente les possibilités d'expansions dues à la RSI (on peut néanmoins nuancer ce propos en indiquant qu'une fissuration trop importante finit par créer des vases d'expansion pour la formation d'ettringite et peut conduire à une diminution de l'amplitude des gonflements). Dans ce contexte, (*Batic et al. 2000*) observent dans leurs travaux que la formation d'ettringite est favorisée pour des matériaux soumis à des mécanismes de dégradations tels que l'application de cycles de gel/dégel ou d'humidification/séchage ou par l'application de chargements mécaniques. (*Colleparadi 2003*) liste les mécanismes de dégradation de manière plus exhaustive : cure thermique à haute température, chauffe ou refroidissement trop rapide, cycles d'humidification/séchage, de gel/dégel, concentrations de contraintes dans des pièces précontraintes, retrait plastique ou bien encore alternance de chauffés et de refroidissements (effets climatiques).

Ainsi, (*Escadeillas et al. 2007*) et (*Leklou 2008*) notent que l'application de cycles d'humidification/séchage conduit à une initialisation plus précoce des gonflements. (*Fu et al. 1997*) rapportent une accélération des cinétiques de gonflement avec l'augmentation du nombre de cycles d'humidification/séchage appliqués. Par ailleurs, (*Fu & Beaudoin 1996-c*) indiquent qu'un séchage thermique sévère conduit à des gonflements plus importants

expliqués par le développement d'une microfissuration aux abords des granulats (on notera néanmoins ici qu'une telle élévation de température peut également induire une déstabilisation de l'ettringite et ainsi influencer sur le potentiel de gonflement d'origine thermique). Enfin, selon (Fu et al. 1994-b), la combinaison d'un prétraitement des matériaux par séchage et préfissuration conduit à une augmentation considérable des expansions.

(Ekolu et al. 2007-b) observent une initialisation plus précoce et une amplitude de gonflements plus importante lors de l'application de cycles de gel/dégel. (Heinz & Ludwig 1987) rapportent que l'application de tels cycles peut avoir un effet déclencheur vis-à-vis de la RSI. Toutefois, (Shao et al. 1997) notent que ce procédé peut avoir un effet stabilisant vis-à-vis de la RSI : l'application de cycles de gel/dégel au jeune âge (un jour après le coulage) conduit à une diminution des amplitudes d'expansion. Ces auteurs notent également que les effets des cycles et des gonflements sont cumulatifs en ce qui concerne les performances mécaniques et la perméabilité à l'oxygène.

Enfin, la présence de chlorures influence également les propriétés expansives des matériaux. Les travaux de (Ekolu et al. 2006) indiquent que l'action des chlorures a un effet de pessimum : l'exposition d'un matériau susceptible de RSI à une solution de NaCl a pour conséquence d'augmenter les gonflements jusqu'à une certaine concentration au delà de laquelle les amplitudes diminuent à nouveau. Dans le cas d'une attaque extérieure des chlorures, (Ekolu et al. 2006) considèrent que le front d'humidité pénètre plus rapidement dans le matériau que le front de chlorures. Ainsi, lorsque les chlorures parviennent à une certaine profondeur, l'eau déjà présente a permis d'initialiser le développement des expansions. En dessous de la valeur pessimum, les chlorures réagissent avec les monosulfates encore présents et relâchent ainsi des sulfates qui peuvent migrer plus en profondeur pour réagir avec d'autres monosulfates et ainsi accroître le phénomène d'expansion, à condition que l'ettringite soit stable pour les concentrations en chlorures considérées. Au delà de la valeur pessimum, l'ettringite et le monosulfate sont considérés instables et on observe alors la précipitation de sel de Friedel (chloroaluminate de calcium $3\text{CaO}\cdot\text{Al}_2\text{O}_3\cdot\text{CaCl}_2\cdot 10\text{H}_2\text{O}$) et de gypse.

4.7.2 Couplages réaction sulfatique interne (RSI) – réaction alcali – granulat (RAG)

La RSI et la RAG sont deux pathologies endogènes du béton conduisant au développement d'expansions et à la dégradation des performances des matériaux affectés. Les effets macroscopiques de ces deux réactions étant similaires quoique d'amplitude potentielle différente, il est compliqué d'identifier la contribution délétère de chacune d'entre elles lorsqu'elles se produisent d'une manière concomitante (Godart et al. 2004, Ekolu et al. 2007-a). Les cas de concomitance sont par ailleurs souvent évoqués dans la littérature (Johansen et al. 1993, Shayan & Quick 1992, Mielenz et al. 1995, Thaulow et al. 1996, Meland et al. 1997, Santos Silva et al. 2008, Thomas et al. 2008). Ainsi, certains diagnostics conduisent à des conclusions controversées : (Tepponen & Ericksson 1987) établissent lors du diagnostic des dégradations de traverses de chemin de fer que les désordres sont liés au développement d'une RSI ; pour les mêmes traverses, (Shayan & Quick 1994) diagnostiquent une RAG. L'établissement de la (des) cause(s) des désordres est rendu d'autant plus compliqué que ces deux réactions semblent couplées mécaniquement mais également chimiquement. Ces couplages peuvent être illustrés par les résultats de (Rust 2009) : le seuil de HR de développement de la RAG est estimé à 80 % ; celui de la RSI est estimé à 92 % ; dans le cas d'un matériau susceptible de RSI et de RAG,

Rust établit le seuil de HR à une valeur intermédiaire de 82-83 %, indiquant bien une modification du couplage entre humidité et gonflement lors de l'occurrence simultanée de ces deux pathologies. Par ailleurs, (*Diamond & Ong 1994*) notent que la quantité d'ettringite dans un matériau susceptible de RSI et de RAG est plus importante que celle mesurée dans un matériau uniquement atteint de RSI.

Ainsi l'établissement d'un diagnostic des causes des désordres se révèle particulièrement délicat et nécessite des investigations détaillées tant à l'échelle microscopique (*Marusin 1994*) qu'à l'échelle macroscopique (*Thomas et al. 2008*). A cet effet, des méthodologies de diagnostic et de gestion des ouvrages atteints ont été définies (*Wood & Koran 1992, Wood et al. 1996, Godart et al. 1999, Fasseu & Mahut 2003, Godart et al. 2004, Godart & Divet 2008, Godart 2009*).

Selon (*Batic et al. 2000*), la formation de gel de RAG est responsable du développement d'une fissuration favorisant la mobilité des ions et donc la formation d'ettringite (on gardera néanmoins à l'esprit que ces auteurs considèrent le cas d'une formation différée d'ettringite en l'absence de cure thermique). Selon (*Collepari 2003*), dans le cas d'un matériau susceptible de RSI et de RAG, les gonflements imputables à la réaction alcali-granulat sont développés dans un premier temps. Ces expansions induisent alors des fissures pouvant exacerber les phénomènes de RSI. (*Diamond & Ong 1994*) et (*Diamond 1996*) observent qu'une grande partie des expansions de RAG sont développées durant la cure thermique sous les effets de la thermoactivation. A l'instar de Collepari, ces auteurs concluent que la fissuration induite facilite par la suite le développement de la RSI. Ceci implique néanmoins que les phénomènes de RSI sont par la suite localisés préférentiellement au droit des granulats réactifs comme le notent (*Poole et al. 1996*). (*Ekolu et al. 2007-b*) démontrent l'existence d'un effet de pessimum des gonflements de RAG sur les expansions de RSI : en imposant des dégradations de RAG de manière contrôlée à des mortiers (conservation en solution de NaOH à 38°C pour des durées différentes, favorable à la RAG et bloquant la RSI par présence abondante d'alcalins), ces auteurs observent un maximum du potentiel de gonflement de RSI (favorisée par un stockage en eau de chaux saturée une fois la RAG développée au degré souhaité en solution alcaline) pour une certaine valeur de préendommagement par la RAG (cf. Figure 1-18).

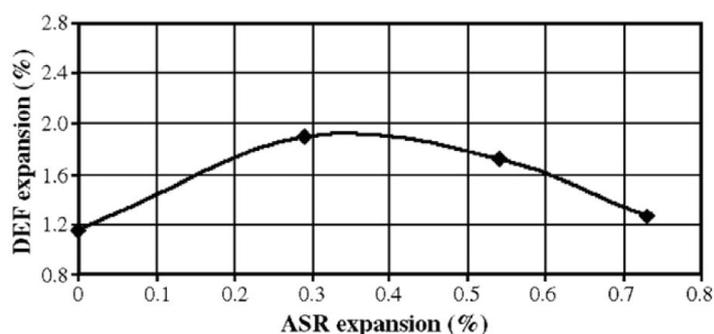


Figure 1-18 : effet de pessimum des expansions de RAG sur celles de RSI (*Ekolu et al. 2007-b*)

Certains auteurs mentionnent les possibilités de couplage chimique entre les deux réactions. La stabilité de l'ettringite dépend en partie de la présence d'alcalins (cf. section 2.2). Ainsi, la consommation d'alcalins par la formation de gels de RAG peut être un initiateur de la RSI (*Brown & Bothe 1993*) : la consommation des ions HO^- conduit à une diminution du produit de solubilité K_{sp} de l'ettringite et donc favorise sa solubilisation (cf. relation (1-11)). Néanmoins, la diminution de pH ainsi induite entraîne une augmentation

de la concentration en calcium par solubilisation de la Portlandite. La solubilité de l'ettringite dépendant de la concentration en calcium à la puissance 6 (cf. équation (1-11)), l'effet négatif de la consommation des ions hydroxyle est dominé par l'augmentation de concentration en Ca^{2+} favorisant ainsi la précipitation d'ettringite. (Sahu & Thaulow 2004) notent également que la diminution du pH favorise la RSI.

$$K_{sp} = [\text{Ca}^{2+}]^6 \cdot [\text{Al}(\text{OH})_4^-]^2 \cdot [\text{SO}_4^{2-}]^3 \cdot [\text{OH}^-]^4 \quad (1-11)$$

(Brown & Bothe 1993) notent également que la formation d'ettringite est très consommatrice d'eau, augmentant ainsi d'autant plus la concentration en alcalins. Pour ces auteurs, tout mécanisme de consommation des alcalins est ainsi favorable à la précipitation d'ettringite. Selon (Diamond 2000), le développement de RSI ne peut être observé que par la diminution de la teneur en alcalins du matériau, soit par lixiviation, soit par consommation via une RAG. (Diamond & Ong 1994) observent une diminution importante de la teneur en alcalins d'un matériau susceptible de RSI et de RAG durant les jours suivant la cure thermique. Cette consommation d'alcalins (observée durant 28 jours dans le cadre de cette étude) est attribuée au développement d'une RAG. Par la suite, l'apparition d'ettringite est coordonnée avec le ralentissement de la diminution de concentration en alcalins qui peut alors être interprétée comme un ralentissement de la RAG.

Selon (Shayan & Ivanusec 1996), il est impossible de développer une RSI sans apparition préalable d'une RAG, y compris pour des matériaux à très fort potentiel vis-à-vis d'une formation différée d'ettringite. De la même manière, (Bournazel et al. 1996) constatent que, pour des matériaux soumis initialement à une cure thermique, seuls ceux contenant des granulats réactifs vis-à-vis de la RAG présentent une quantité importante d'ettringite localisée dans les fissures formées par les gels de RAG. Néanmoins, les travaux de (Pavoine 2003) et (Owsiak 2008) ne semblent pas confirmer cette conclusion. Pour de nombreux auteurs, la RAG se développe avant la RSI, notamment sous les effets de la cure thermique (Diamond & Ong 1994, Ekolu et al. 2007-a). Pour certains auteurs, lors d'une concomitance entre RSI et RAG, la RAG est ainsi considérée comme étant le principal mécanisme délétère (Shayan & Quick 1992, Bournazel et al. 1996, Thomas et al. 2008). Toutefois, certains résultats semblent montrer que, tout en étant favorisée par le développement préalable de la RAG, la RSI est responsable de l'essentiel des dégradations et représente la majeure partie des gonflements (Owsiak 2008, Santos Silva et al. 2008). (Owsiak 2008) indique même que durant certaines phases, il est possible que RSI et RAG se développent de manière simultanée dans le matériau. (Hanehara et al. 2008-a) observent une apparition des gonflements plus tardive dans le cas de matériaux susceptibles de RSI et de RAG. Les amplitudes sont néanmoins dans ce cas plus importantes. Pour Hanehara, les sulfates sont dans ce cas mobilisés pour la formation d'ettringite tandis que les alcalins servent à la formation de gel de RAG. Pour cet auteur, la RAG se développe après la RSI. Dans le cadre de l'expertise de carottes prélevées sur un barrage, (Meland et al. 1997) observent l'absence de traces de RSI et de RAG pour les prélèvements de surface alors qu'ettringite et gel de RAG sont détectés dans les carottes prélevées à cœur. Ceci semble cohérent avec le développement d'une RSI (température au cœur plus élevée du fait de l'hydratation dans un ouvrage massif tel qu'un barrage). (Diamond & Ong 1994) indiquent sur ce point que les expositions à des températures élevées peuvent exacerber le comportement expansif de RAG de certains granulats jugés peu expansifs à température ambiante.

Enfin, (Ekolu et al. 2007-a) indiquent que l'utilisation de lithium dans des proportions suffisantes peut se révéler être un moyen efficace pour contrôler les expansions

de RSI et de RAG. (*Shayan et al. 1993*) rapportent que l'utilisation de fumée de silice peut être un moyen de contrôle de la RSI et de la RAG en mobilisant notamment les alcalins par réaction avec la silice apportée par cette addition minérale.

4.8 Effet des contraintes

De par les mécanismes proposés pour expliquer les gonflements de RSI, il semble probable que l'état de contrainte d'un matériau susceptible de RSI influence le développement des expansions : la création de microfissurations lors d'un chargement mécanique ou l'évolution de la solubilité d'un cristal avec la pression environnante (*Scherer 2004*) sont autant d'exemples des effets possibles des contraintes. Ainsi, (*Scrivener et al. 1999*) indiquent que la présence d'armatures dans un matériau peut modifier le comportement de gonflement homogène de la pâte : le développement d'un champ d'autocontraintes par réaction des armatures aux gonflements est susceptible « d'orienter » les directions de cristallisation de l'ettringite et donc le développement des gonflements. En outre, la quantification des couplages existant entre contraintes et gonflement est une nécessité afin d'envisager des modélisations fiables et réalistes des effets mécaniques de la RSI sur des structures (*Baghdadi et al. 2007-a*) : à l'instar des travaux menés pour la RAG (citons par exemple *Capra & Sellier 2003*, *Multon & Toutlemonde 2006*, *Grimal et al. 2008-a*), il est nécessaire d'évaluer les propriétés d'anisotropie intrinsèque et d'anisotropie induite pour la RSI (*Baghdadi 2008*). Si cet aspect semble plus orienté vers les effets de la pathologie à l'échelle de la structure, il nécessite néanmoins une compréhension des phénomènes à l'échelle du matériau dans un premier temps.

A notre connaissance, relativement peu de travaux semblent disponibles dans la littérature à ce jour concernant les effets de ce paramètre sur le développement de l'expansion associable à la RSI. Dans les nombreux cas d'expertise retracés dans la littérature accessible, il semble que les faciès de fissuration développés soient fonction de la direction de la précontrainte ou du renforcement (par exemple [*Lawrence et al. 1999*]). Ceci suggère donc que l'application de contraintes pourrait influencer le développement des dégradations.

(*Lawrence 1995-a*) relate des résultats de travaux menés par la British Cement Association sur les effets de la présence d'armatures. Le suivi dimensionnel de prismes en béton armé (prismes avec une armature Ø 10 mm centrée) montre que les gonflements sont d'autant plus importants qu'on s'éloigne de la barre. L'utilisation d'un ferrailage dans cette étude permet de réduire les expansions mais pas de les supprimer. Au delà d'un certain niveau de gonflement, une désolidarisation de l'acier par rapport au béton se produit, entraînant le développement de gonflements du matériau (cf. Figure 1-19).

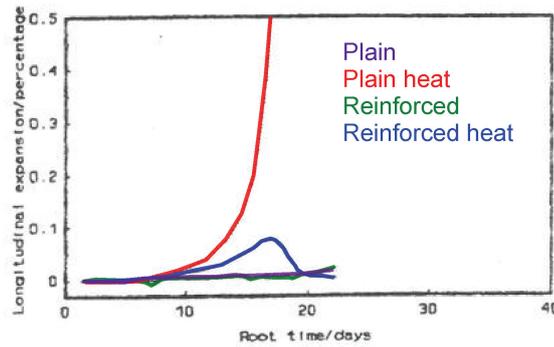


Figure 1-19 : effets de la présence d’une armature sur les gonflements d’un prisme (Lawrence 1995-a)

4.9 Synthèse : conditions d’apparition de la RSI ?

(Collepari 1999) introduit la notion d’approche holistique. Ce type d’approche vise à évaluer le risque de RSI d’un matériau en le considérant dans son intégralité : il ne s’agit pas ici de se borner à des critères de composition du matériau mais d’envisager également ses conditions d’exposition, ses caractéristiques de chargement etc.

La Figure 1-20 synthétise différentes propositions de conditions de développement de la RSI pour quelques auteurs. Les différences observées entre ces différents diagrammes illustrent les divergences de point de vue sur les conditions d’occurrence et donc sur les mécanismes sous jacents à la RSI. Néanmoins, un point semble faire l’unanimité dans ces différentes approches : une humidité importante semble indispensable au développement de RSI.

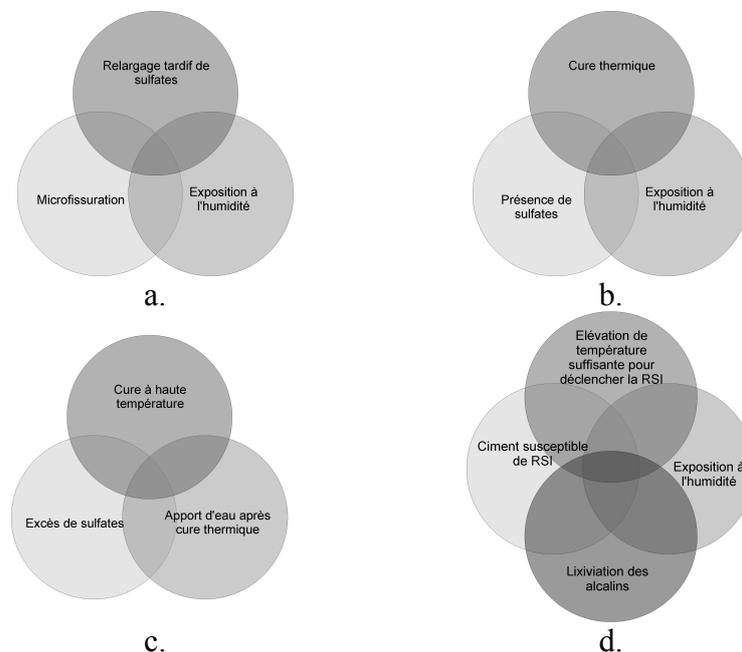


Figure 1-20 : conditions d’occurrence de la RSI d’après a. (Collepari 1999) b. (Escadeillas et al. 2007) c. (Hanehara et al. 2008-a) d. (Thomas & Ramlochan 2002)

5 Les effets de la RSI à l'échelle du matériau et de la structure

5.1 Effets à l'échelle du matériau

La RSI se caractérise par le développement d'expansions considérables (jusqu'à 1 à 2 %, en fonction du matériau, du traitement thermique, des conditions d'exposition...). Lors du gonflement, on observe une fissuration du matériau. (Aubert *et al.* 2009) détectent cette fissuration à l'œil nu à partir d'une déformation d'environ 0,23 %. (Escadeillas *et al.* 2007) détectent la fissuration à partir d'une déformation de 0,15 %. Cette valeur est évidemment fonction du matériau considéré (les performances mécaniques, notamment la résistance en traction, variant d'une formule de béton à une autre) et de la taille de l'échantillon (possibilité de déformations différentielles entre le cœur et la peau).

Selon (Famy & Taylor 2001), la façon de développer les gonflements est fonction de la faculté de l'ettringite à appliquer des efforts et de la capacité du composite cimentaire à y résister. (Brunetaud *et al.* 2007) observent deux types d'évolution temporelle des expansions : évolution linéaire et évolution sigmoïde. Ces auteurs attribuent ces différences de comportement à la capacité des matériaux à résister aux pressions développées par la RSI. Ainsi, pour des matériaux à gonflement linéaire, la matrice est supposée suffisamment rigide (module suffisamment important) pour reprendre les efforts. Il est supposé que les sollicitations sont maintenues dans un domaine où la réponse du squelette du matériau resterait élastique. En revanche, les matériaux à gonflements sigmoïdes possèdent une matrice insuffisamment résistante, « cédant » sous les effets de la pression au delà d'un certain seuil. Selon (Flatt & Scherer 2008), la cristallisation de l'ettringite étant relativement lente, il convient probablement de considérer des performances mécaniques du matériau modulées par la vitesse de chargement (c'est-à-dire la vitesse à laquelle les pressions sont appliquées au matériau). En effet, les résistances mécaniques telles qu'elles sont déterminées en laboratoire mettent en œuvre des vitesses de chargement nettement plus importantes que celles impliquées dans le cas d'une RSI. Ces auteurs proposent par exemple de considérer une résistance en traction diminuée par la durée d'application de la charge suivant la relation (1-12) déterminée par (Reinhardt & Cornelissen 1985). Ainsi, la résistance en traction est supposée d'autant plus faible que la durée d'application de la charge est importante.

$$\left\{ \begin{array}{l} \log_{10}(t_f) = 13,63 - 14,46 \cdot \frac{\sigma_f}{f_{ctm}} \\ t_f = \text{âge à la rupture} \\ \sigma_f = \text{charge appliquée} \\ f_{ctm} = \text{résistance en traction suivant normes} \end{array} \right. \quad (1-12)$$

Généralement, le suivi des performances mécaniques des matériaux atteints de RSI font état d'une dégradation de l'ensemble des propriétés. Ainsi, (Batic *et al.* 2000) constatent une chute de la résistance en flexion des matériaux d'autant plus importante que les gonflements sont sévères. (Heinz & Ludwig 1987) notent une chute de la fréquence de résonance de prismes de mortier avec l'augmentation des gonflements. (Ping & Beaudoin 1992-b) et (Shimada 2005) notent une diminution importante du module d'Young lors du développement des gonflements. (Meland *et al.* 1997), (Shao *et al.* 1997) et (Shimada 2005) établissent une chute importante de la résistance en compression de matériaux

atteints. (*Brunetaud et al. 2008*) observent de même une diminution du module dynamique des matériaux au delà d'une expansion de l'ordre de 0,1 %. Ce seuil de déformation semble correspondre pour ces auteurs à l'apparition de la fissuration et à la formation d'interstices aux interfaces pâte - granulats. En cas de cinétiques de gonflement sigmoïdes, la chute de module observée est très importante. En revanche, pour des sollicitations plus lentes (gonflements linéaires), l'évolution du module n'est que peu (voire pas) marquée. Par ailleurs, au delà d'un certain niveau de déformation, (*Brunetaud et al. 2008*) notent une nouvelle augmentation progressive du module dynamique (à l'image de celle qu'on peut mesurer sur un matériau sain par poursuite de l'hydratation du ciment au cours du temps). Ce phénomène est attribué à un colmatage des fissures par formation d'ettringite, à l'image de ce qui a pu être observé pour la RAG par (*Siegert et al. 2005*). La fin de la diminution du module est observée lorsque le point d'inflexion de la courbe de gonflement sigmoïde est atteint : (*Brunetaud et al. 2008*) concluent donc qu'au delà de cette valeur, les gonflements consistent en une ouverture des fissures déjà existantes et non en l'apparition de nouvelles fissures. Enfin, ces auteurs établissent une relation entre la vitesse de déformation au point d'inflexion (pente de la courbe sigmoïde) et le module dynamique. (*Zhang et al. 2002-a*) établissent une relation linéaire entre amplitude de déformation et module dynamique. (*Boenig et al. 2009*) établissent une relation linéaire entre la résistance d'une structure et le Damage Index (DI) qui constitue une méthode de mesure de la fissuration d'un corps d'épreuve (cf. section 7.1.3). Ces auteurs constatent une réduction importante de la résistance en compression et du module d'Young lors du gonflement. Il semble donc que certaines grandeurs décrivant directement les effets de la réaction de gonflement puissent être directement reliées aux dégradations de certaines performances mécaniques.

Lorsque le corps d'épreuve est immergé ou conservé en atmosphère suffisamment humide, un des effets de la RSI à l'échelle du matériau consiste en une prise de masse importante. Selon (*Diamond 2002*), l'attribution de ces gains de masse à une absorption d'eau suite à fissuration ou à une mobilisation d'eau pour la formation d'ettringite ne fait pas l'objet d'un consensus. Les résultats des différentes études à ce sujet semblent ainsi relativement disparates. Certains auteurs observent une coïncidence des gains de masse avec les déformations (*Barbarulo 2002, Escadeillas et al. 2007, Graf 2007*). Pour (*Odler & Colan-Subauste 1999*), la prise de masse est proportionnelle aux déformations et est d'autant plus importante que l'humidité environnante est élevée (prises de masse en eau plus importantes qu'à 100 % HR). (*Meland et al. 1997*) attribuent ces prises de masse à une intrusion d'eau dans le matériau suite à sa fissuration. Pour (*Graf 2007*), il n'existe pas de corrélation directe entre la prise de masse et la quantité d'ettringite formée. (*Zhang et al. 2002-a*) n'observent pas pour leur part de proportionnalité entre les gonflements et les prises de masse. Ils attribuent ainsi ce gain de masse à un phénomène mixte entre formation d'ettringite et piégeage de l'eau dans les fissures formées. Enfin, selon (*Shimada 2005*), trois mécanismes différents peuvent induire une prise de masse : la poursuite de l'hydratation du ciment lors d'une exposition à un milieu humide, la formation d'ettringite par conversion du monosulfate (résultant en une prise de masse de 632 g/mol) et l'intrusion d'eau dans les vides du matériau. Pour Shimada, c'est ce dernier phénomène qui est responsable de la majeure partie des gains de masse lors d'un gonflement important.

5.2 Effets à l'échelle de la structure

Par rapport à la RAG étudiée depuis de nombreuses années, la RSI est une pathologie découverte relativement récemment. Logiquement, avant d'étudier les effets d'un mécanisme délétère à l'échelle d'une structure, il convient de comprendre celui-ci d'une manière poussée à l'échelle microscopique et à l'échelle du matériau, actions majoritairement menées durant ces vingt dernières années. Ainsi, à notre connaissance, la littérature semble faire état d'assez peu d'études expérimentales des effets de la RSI à l'échelle d'une structure. La plupart du temps, les investigations rapportées sont issues de diagnostics de structures *in situ*, la reproduction de phénomènes de RSI à l'échelle d'une structure en laboratoire étant relativement plus complexe que ce qui peut être envisagé à l'échelle du matériau. Néanmoins, le Ministère des Transports du Texas (TxDOT = the Texas Department Of Transportation) a mené une série d'études sur des structures réelles ou de laboratoire atteintes de Réactions de Gonflement Internes (RGI = RSI et/ou RAG) (Burgher et al. 2008, Bae et al. 2009, Boenig et al. 2009, Deschenes et al. 2009). Ainsi, (Boenig et al. 2009) observent que le développement d'une réaction de gonflement interne sévère dégrade de manière significative la résistance au cisaillement des structures (les parties soumises au cisaillement sont souvent situées en des points plus exposés à l'humidité et donc plus susceptibles de développer des gonflements). (Bae et al. 2009) réalisent une série d'essais sur des blocs d'ancrages utilisés pour la mise en place de dispositifs d'éclairage ou de signalisation des réseaux routiers. Cette étude semble indiquer que le développement d'une RGI sur ce type de structure massive ne semble pas avoir d'effet très marqué sur leur résistance. En revanche, le développement d'une telle pathologie conduit à un changement du mode de rupture de la structure.

(Deschenes et al. 2009) notent dans leur étude de laboratoire que les ferraillements de cisaillement mis en oeuvre en Amérique du Nord ne sont pas suffisants pour confiner les expansions. Les essais mécaniques réalisés sur des corps d'épreuve dégradés par une RGI semblent indiquer que, jusqu'à des amplitudes d'expansion de l'ordre de 0,7 %, la résistance au cisaillement des structures ne semble pas affectée de manière drastique. Ainsi, il semble que le ferraillement d'effort tranchant ait développé une contrainte de compression suffisante sur le béton environnant pour limiter les effets néfastes des gonflements vis-à-vis de la résistance en compression du matériau. (Deschenes et al. 2009) précisent néanmoins que ces conclusions ne sont a priori applicables que dans le cas de leur étude et ne peuvent être généralisées sans investigations complémentaires. Finalement, ces auteurs concluent sur la pertinence des essais sur carottes extraites de structures atteintes de RGI : si l'utilité de tels essais n'est pas remise en cause pour la compréhension des mécanismes de dégradation des structures, (Deschenes et al. 2009) indiquent que de tels prélèvements de matériaux conduisent à ne pas prendre en compte les effets des contraintes environnantes pour l'évaluation de l'expansion résiduelle et posent ainsi des problèmes quant à la corrélation des résultats de ces essais avec le comportement réel de la structure atteinte.

6 Disposer de méthodes de discrimination des matériaux susceptibles de RSI : un enjeu pour les constructions neuves

L'étude de la RAG a permis de mettre au point de nombreux essais ayant pour objectif de tester le comportement expansif de certains granulats ou certaines formules de

béton (BSI 1999, Sims & Nixon 2003, ASTM 2003, ASTM 2005, ASTM 2008). La difficulté pour ce type de méthode consiste en l'évaluation de la pertinence des résultats obtenus par rapport à des conditions d'exposition naturelle (Fournier & Bérubé 1992, Fournier & Malhotra 1999). Ces outils se révèlent être indispensables pour éviter l'apparition des phénomènes de RAG dans les structures neuves.

Afin d'éviter l'apparition de désordres liés à la RSI dans des structures nouvellement construites, il est nécessaire de disposer de tels outils permettant de valider l'utilisation de formules de béton sans crainte de voir se développer des processus délétères (Pavoine 2003, Pavoine et al. 2006-a, Pavoine et al. 2006-b, Kretz et al. 2007, Godart & Divet 2008). Deux points de vue peuvent être envisagés à cet effet : l'élaboration de formules prédictives permettant, sans réaliser d'essais expérimentaux, de déterminer si un matériau est susceptible de RSI ; la réalisation d'essais de performance validant par l'expérience le choix d'un couple composition d'un matériau / conditions d'échauffement (Kretz et al. 2007). De telles approches ont été développées dans le cas de la RAG par l'Association Canadienne de Normalisation (CSA 2009-a, CSA 2009-b) Cette section étudie quelques outils disponibles dans la littérature, issus de ces deux approches.

6.1 Approches analytiques

(Brunetaud et al. 2007) proposent un modèle prédictif des amplitudes de gonflement issu de l'application de la méthode des plans d'expérience. Cette technique permet de hiérarchiser l'importance des différents paramètres considérés et de leur affecter un coefficient d'importance dont la valeur est d'autant plus élevée que l'effet du paramètre est marqué. L'avantage de cette méthode est qu'elle permet de considérer un grand nombre de paramètres aussi bien relatifs à la composition du matériau qu'à la cure thermique. Néanmoins, en l'absence d'investigations complémentaires, (Brunetaud et al. 2007) précisent que ce modèle n'est a priori applicable qu'à des matériaux de composition et de traitement thermique proches de ceux considérés dans leur étude.

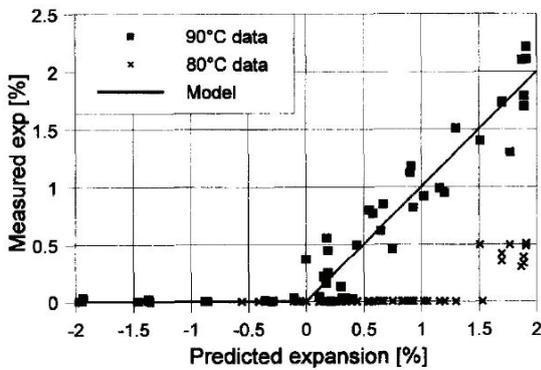
(Kelham 1996) développe une relation prédictive basée sur une étude expérimentale de nombreux mortiers traités à différentes températures. Il établit ainsi la relation (1-13) qui donne une prédiction du gonflement pour un traitement thermique de 90°C durant 12 h (l'estimation d'un gonflement négatif correspond à un gonflement réel nul). La Figure 1-21.a compare les résultats mesurés aux résultats estimés. Pour une température de traitement thermique de 90°C, le modèle fournit une réponse pertinente. En revanche, l'application de cette relation aux expansions mesurées sur des matériaux identiques mais traités à une température de 80°C durant 12 heures n'est pas satisfaisante. (Lawrence 1999) note pour sa part que l'application de cette relation pour des ciments de composition proches de ceux étudiés par (Kelham 1996) fournit des estimations pertinentes. Des ciments de composition trop éloignée aboutissent en revanche à des estimations erronées. Une adaptation des coefficients du modèle proposé conduit à une amélioration de la prédiction mais un nouveau changement de composition pose à nouveau les mêmes problèmes.

$$\begin{cases} \text{Exp}(90^\circ\text{C}) = 0,00474 \cdot \text{SSA} + 0,0768 \cdot \text{MgO} \\ + 0,217 \cdot \text{C}_3\text{A} + 0,0942 \cdot \text{C}_3\text{S} + 1,267 \cdot \text{Na}_2\text{O}_{\text{eq}} \\ - 0,737 \cdot |\text{SO}_3 - 3,7 - 1,02 \cdot \text{Na}_2\text{O}_{\text{eq}}| - 10,1 \\ \text{SSA} = \text{surface spécifique du ciment (m}^2/\text{kg)} \end{cases} \quad (1-13)$$

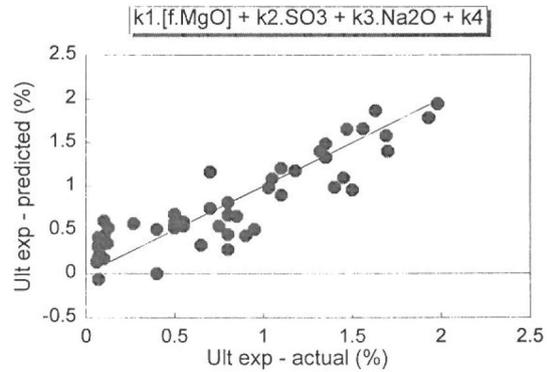
De la même manière, (Hobbs 1999) développe un modèle consistant en une combinaison linéaire de différentes caractéristiques représentatives d'un ciment (cf. Figure 1-21.b). Celui-ci est basé sur la teneur en sulfates, en alcalins et en oxyde de magnésium du ciment. La finesse de ce dernier est également mise en jeu.

D'autre part, (Zhang et al. 2002-b) établissent l'expression du DEF index (cf. relation (1-14)) à partir de l'étude de mortiers utilisant des ciments de différentes compositions (cf. Figure 1-21.c). Une fois de plus, les teneurs en sulfates et en alcalins sont identifiées comme critiques vis-à-vis du risque de gonflement. En revanche, la teneur en aluminates est introduite afin d'établir la prédiction d'expansion.

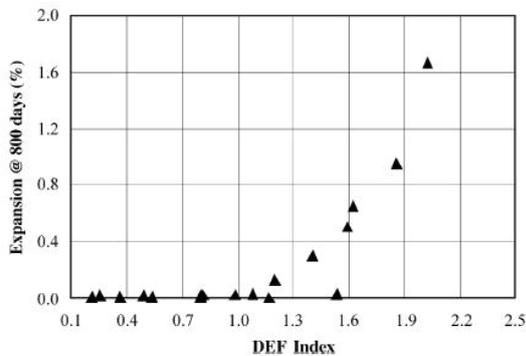
$$\begin{cases} \text{DEF index} = \left(\frac{\text{SO}_3}{\text{Al}_2\text{O}_3} \right)_m \cdot \frac{(\text{SO}_3 + \text{C}_3\text{A})_w}{10} \cdot \sqrt{\text{Na}_2\text{O}_{\text{eq}}} \\ \left(\frac{\text{SO}_3}{\text{Al}_2\text{O}_3} \right)_m = \text{ratio molaire} \\ (\text{SO}_3 + \text{C}_3\text{A})_w = \text{pourcentages massiques} \end{cases} \quad (1-14)$$



a.



b.



c.

Figure 1-21 : comparaison entre gonflement mesuré et gonflement estimé par a. (Kelham 1996), b. (Hobbs 1999) (f = finesse du ciment en m²/kg) et c. (Zhang et al. 2002-b)

Enfin, (*Lawrence 1995-b*) établit également des coefficients de corrélation pour une vaste gamme de paramètres caractérisant les caractéristiques cimentaires et les gonflements observés à différentes échéances (étude menée sur une série de 55 ciments Portland).

Les modèles présentés dans cette section sont empiriques. De par leur nature, leur champ d'application est donc restreint à des matériaux de compositions proches de celles mises en œuvre pour leur établissement ainsi que pour des traitements thermiques semblables. En l'absence d'investigations complémentaires pour élargir leur domaine d'application, ces modèles présentent donc un champ d'application limité. (*Scrivener et al. 1999*) indiquent ainsi que l'établissement de ces relations étant basée sur l'étude d'échantillons de ciment limités, leur domaine d'application ne peut être universel. Par ailleurs, ces modèles sont souvent basés sur la prise en compte de la composition du matériau et sur les caractéristiques de la cure thermique (de manière explicite ou implicite). En outre, (*Petrov & Tagnit-Hamou 2004*) indiquent qu'il apparaît nécessaire de prendre en compte l'ensemble des caractéristiques d'un béton (comme la porosité par exemple) afin de réaliser une estimation réaliste et fiable du potentiel de gonflement. Les relations prédictives présentées ici ne prennent pas en compte ce type de paramètre (elles sont d'ailleurs le plus souvent établies sur mortier). Comme telles, elles apparaissent ainsi délicates à mettre en œuvre pour établir une prédiction précise du gonflement final d'un matériau. Néanmoins, elles présentent l'avantage de fournir une réponse rapide et peu coûteuse en temps quant au choix d'un matériau (ciment ou béton suivant la manière dont a été établi le modèle considéré) et peuvent ainsi être utilisées comme un indicateur du risque de gonflement (*Tosun 2006*).

Par ailleurs, (*Glasser et al. 1995*) développent une méthode basée sur l'utilisation d'un programme de calcul permettant de déterminer la quantité d'ettringite qu'il est possible de former dans un système donné et utilisant comme données d'entrée les produits de solubilité des différentes phases considérées comme stables. Cette méthode permet de calculer un potentiel de gonflement d'origine chimique. Néanmoins, l'étude bibliographique menée en section 4 a montré que ce potentiel ne représente qu'une partie des éléments à considérer pour évaluer le potentiel d'expansion final d'un béton (microstructure, conditions d'exposition...).

6.2 Approches performantielles

Les approches performantielles sont basées sur l'étude expérimentale d'un matériau soumis à un traitement thermique. Ces essais ont pour ambition de caractériser le risque de RSI attaché à une formule de béton donnée. L'intérêt de ce type de méthode est qu'elle permet d'avoir une quantification expérimentale du comportement expansif du matériau. Par rapport à l'approche analytique (cf. section 6.1), l'approche performantielle présente a priori un champ d'application beaucoup plus large car la dépendance des gonflements aux caractéristiques cimentaires est implicitement prise en compte par l'utilisation réelle du liant étudié dans le cadre de l'essai. Les résultats obtenus sont donc propres à chaque matériau. En revanche, ces essais peuvent être régulièrement critiqués sur deux aspects liés et indissociables : devant les cinétiques de développement de la RSI, ces essais peuvent être relativement longs (jusqu'à un an) et posent donc des problèmes d'utilisation pratique dans le domaine de l'ingénierie ; pour répondre à ce besoin de rapidité des résultats, certains essais proposent des méthodes d'accélération de la RSI mais se heurtent alors à des problèmes de représentativité, la réaction étant ainsi potentiellement artificiellement

provoquée. Dans ce dernier cas, il peut être notamment craint que le matériau soit évalué comme problématique alors qu'il pourrait ne poser aucun problème dans le cadre d'une utilisation pratique.

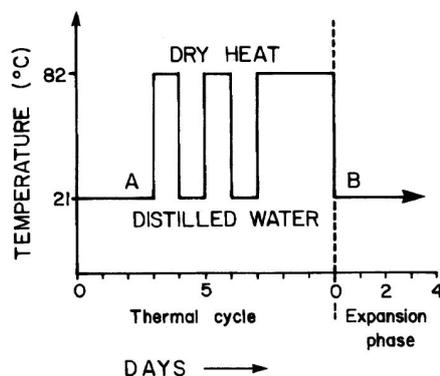


Figure 1-22 : cycles de chauffe / refroidissement appliqués durant le test de Duggan (*Grabowski et al. 1992*)

Le test de Duggan, développé à l'origine pour évaluer la réactivité vis-à-vis de la RAG, s'est révélé être un test potentiellement intéressant pour caractériser le risque de RSI (*Grabowski et al. 1992*). Ce test est réalisé sur des carottes de béton (\varnothing 25 mm H 50 mm) soumises à un échauffement de 85°C appliqué durant 4 heures. Par la suite, les échantillons sont soumis à des cycles de chauffe/refroidissement respectivement en phases sèche et aqueuse conformément à la Figure 1-22. Ces cycles ont pour objectif d'accélérer au maximum les cinétiques de gonflement en induisant une microfissuration du matériau et en favorisant le transport des espèces ioniques. L'objectif est ainsi d'apporter rapidement les réponses recherchées par l'ingénierie. Par la suite, on réalise un suivi dimensionnel des corps d'épreuve conservés en eau distillée à 21°C durant 20 jours. Le matériau est jugé potentiellement réactif si les déformations évaluées à cette échéance dépassent un seuil de 0,05 %. Cet essai est en général jugé plutôt sévère vis-à-vis de la RSI (*Lawrence 1995-a*). Par ailleurs, du fait des cycles d'humidification / séchage, (*Fu & Beaudoin 1996-a*) indiquent que ce test présente un risque de voir apparaître des phénomènes de SEF (Secondary Ettringite Formation : formation d'ettringite par dissolution – reprécipitation dont les mécanismes sont différents de ceux impliqués par la RSI, cf. section 1). Néanmoins, cette technique d'accélération de la réaction par application de cycles d'humidification / séchage reste utilisée aujourd'hui (*Tosun 2006, Pavoine & Divet 2007*).

(*Fu 1996*) a également développé un essai accéléré pour l'évaluation du risque de RSI. Les essais sont réalisés sur des prismes 25*25*160 mm soumis à une précure d'une heure à 23°C. Par la suite, on applique deux échauffements successifs : le premier consiste en un traitement thermique de 12 heures à 95°C suivi d'une phase de conservation en eau à 23°C durant 6 heures ; le second correspond à l'application d'une température de 85°C durant 24 heures. Ce dernier traitement thermique a pour objectif d'accélérer les cinétiques de réaction. Le point zéro des mesures de déformation est réalisé avant le second traitement thermique. La phase de suivi dimensionnel dure 42 jours et est réalisée sur les corps d'épreuve immergés en eau de chaux saturée à 23°C afin de favoriser le développement de la RSI. Le matériau est considéré à risque s'il dépasse un seuil de déformation de 0,04 % à la fin de l'essai.

(*Pavoine 2003*) a développé un essai de performance sur béton. Cet essai a été présenté et a fait l'objet d'une validation dans la littérature (*Pavoine et al. 2006-a, Pavoine*

et al. 2006-b). Le choix du mortier a été écarté afin d'améliorer la représentativité de l'essai en réduisant la lixiviation des alcalins notamment. Pour (*Pavoine 2003*), les températures appliquées dans d'autres essais performantiels sont trop importantes et peuvent conduire au développement d'une RSI sur des matériaux n'étant pas réactifs dans la réalité. L'essai de performance de Pavoine débute par l'application à 3 corps d'éprouve (cylindres Ø 110 mm H 220 mm) d'un traitement thermique représentatif de celui appliqué dans la réalité au matériau à étudier (soit cycles de préfabrication, soit reproduction de l'histoire thermique d'une pièce massive). Par la suite, deux cycles d'humidification / séchage sont appliqués aux éprouvettes : chaque cycle est constitué d'une phase de 7 jours de séchage à 38°C / 30 % HR et d'une phase de 7 jours en eau à 23°C. A l'issue de ce traitement, les corps d'éprouve sont conservés à 23°C dans un volume d'eau limité afin d'éviter la lixiviation. Le matériau est alors considéré comme non réactif si un des deux critères suivant est satisfait (*Pavoine & Divet 2007*) :

- La déformation longitudinale moyenne de trois éprouvettes est inférieure à 0,04 % et aucune valeur individuelle ne dépasse 0,06 % à l'échéance 12 mois ET la variation mensuelle de déformation longitudinale moyenne des trois éprouvettes mesurée à partir du troisième mois est inférieure à 0,004 % ;
- La déformation longitudinale individuelle des trois éprouvettes est comprise entre 0,04 % et 0,07 % à 12 mois. Dans ce cas, il est nécessaire de prolonger l'essai jusqu'au 15^{ème} mois ET la variation mensuelle de la déformation longitudinale moyenne de trois éprouvettes mesurée à partir du 12^{ème} mois est inférieure à 0,004 % et la variation cumulée entre le 12^{ème} mois et le 15^{ème} mois est inférieure à 0,006 %.

(*Tagnit-Hamou & Petrov 2004*) proposent une méthode d'accélération des cinétiques de gonflement par l'application de variations de température lors du suivi dimensionnel des corps d'éprouve. L'objectif de cette technique est d'accélérer légèrement les cinétiques de réaction sans pour autant déclencher artificiellement la RSI. Ainsi, à l'issue du traitement thermique, les corps d'éprouve sont conservés en eau de chaux dont la température varie entre 10°C et 50°C à une fréquence de six cycles par jour. Les vitesses de chauffe et de refroidissement sont maintenues suffisamment faibles pour éviter tout choc thermique. La comparaison des résultats de ce test par rapport à des corps d'éprouve dont la réaction n'est pas accélérée confirme que ce procédé ne conduit pas à une provocation artificielle de la pathologie tout en augmentant la cinétique de réaction (et donc en diminuant le temps nécessaire à l'obtention du résultat des essais). Les travaux menés pour la définition de ce test sont basés sur une étude de mortiers et (*Tagnit-Hamou & Petrov 2004*) indiquent que des investigations complémentaires sont nécessaires pour étendre ces conclusions à l'étude de bétons.

(*Hanehara et al. 2008-b*) proposent une méthode basée sur l'évaluation de la teneur en sulfates « libres » du matériau à l'issue de la cure thermique. Basé sur une campagne d'essai, le test consiste en un broyage grossier d'une pâte de ciment directement après traitement thermique. Le broyat est ensuite plongé dans une quantité contrôlée d'eau afin de solubiliser les sulfates qui peuvent l'être. La concentration de la solution en sulfates est alors évaluée par chromatographie. Sans le quantifier précisément, (*Hanehara et al. 2008-b*) mettent en évidence l'existence d'un seuil de teneur en sulfates de la solution au delà duquel des gonflements sont observés.

Globalement, les approches performantielles visent à apporter une réponse expérimentale permettant de valider le choix d'un matériau vis-à-vis d'un risque de RSI. Dans ce contexte, il est systématiquement recherché des techniques permettant d'accélérer les cinétiques. Ainsi, (Aubert *et al.* 2009) proposent de soumettre les matériaux à une lixiviation des alcalins, par exemple par renouvellement d'eau (conditions représentatives d'une pile de pont en rivière par exemple). Cette lixiviation peut également être modulée par variation de la taille des corps d'épreuve (Fu *et al.* 1997). Néanmoins, (Diamond 2000) indique que la lixiviation des alcalins peut constituer un élément déclencheur de la RSI et ainsi conduire à des résultats non représentatifs du comportement de bétons *in situ*. Pour cet auteur, les résultats des études de laboratoires sont grandement dépendants des choix de l'expérimentateur. Dans ce contexte, (Colleparidi & Ogoumagh Olagot 2002) constatent que les conclusions tirées de leurs études de laboratoires ne sont pas en accord avec les observations réalisées *in situ*.

La question de la représentativité des essais performantiels reste donc posée. De nombreux essais accélérés proposent des investigations sur mortiers ou pâtes de ciment. Ceci pose alors la question de l'extension des résultats correspondant à ces matériaux au cas des bétons utilisés pour la construction des structures (Lawrence 1999, Yang *et al.* 1999-b, Petrov 2003, Leklou 2008). D'autre part, les essais uniquement basés sur l'étude de pâtes de ciment (e.g. Hanehara *et al.* 2008-b) ne semblent pas adaptés à la caractérisation du potentiel expansif d'un béton : de nombreuses autres caractéristiques des matériaux cimentaires (porosité, conditions d'exposition...) doivent être prises en compte.

Afin de s'affranchir de ces questions, certaines méthodologies envisagent de caractériser de manière systématique une formule de béton et l'échauffement qui y est associé (Kretz *et al.* 2007). Cette approche présente l'intérêt de prendre en compte de manière implicite les effets de certains paramètres qu'il est délicat de caractériser avec des essais sur mortiers ou sur pâte de ciment.

Néanmoins, la question des conditions d'exposition des corps d'épreuve de laboratoire reste en suspens. Ce paramètre se révèle être en effet déterminant pour caractériser le risque de gonflement d'un matériau : par exemple, un béton conservé en eau en laboratoire et développant des expansions pourra très bien ne poser aucun problème pour une partie d'ouvrage peu soumise aux intempéries. Afin de caractériser la pertinence des essais de laboratoire par rapport aux comportements notés *in situ*, des essais menés sur des matériaux soumis à un vieillissement naturel se révèlent être nécessaires. Plusieurs programmes de recherche ont ainsi été lancés à cet effet en ce qui concerne la RAG (Fournier *et al.* 2009, Hooton *et al.* 2010, Thomas *et al.* 2010). A notre connaissance, relativement peu d'actions sont menées pour la RSI (Deschenes *et al.* 2009). Il se pose néanmoins la question de valider rigoureusement la notion de classe d'exposition XH1, XH2 et XH3 vis-à-vis du risque de RSI, introduite dans la méthodologie définie par (Kretz *et al.* 2007).

7 Diagnostic et prédiction de l'évolution structurelle : une nécessité pour la gestion des ouvrages atteints

La gestion d'une pathologie nécessite de disposer d'une part de méthodes de diagnostic afin d'évaluer si une structure est atteinte ou non, et d'autre part d'outils permettant d'évaluer, à un instant donné, l'aptitude au service et la sécurité résiduelle d'un ouvrage atteint. Cette section décrit les outils disponibles dans le cas de la RSI, tels qu'ils ont pu être recensés.

7.1 Méthodes de diagnostic

7.1.1 Observations macroscopiques, carte d'identité du matériau et analyses microscopiques

Le premier outil de diagnostic qu'il est possible de mettre en œuvre dans le cadre d'une expertise est l'observation générale de la structure et de son état de dégradation (Godart et al. 1999). La justification de la réalisation d'un diagnostic détaillé est d'ailleurs systématiquement issue d'une observation macroscopique de dégradations (e.g. Mielenz et al. 1995, Lawrence et al. 1999, Santos Silva et al. 2008, Thomas et al. 2008, Boenig et al. 2009). L'observation du faciès de fissuration constitue un premier élément de discernement pour l'établissement des mécanismes de dégradation (Godart et al. 1999, Lawrence et al. 1999, Zhang et al. 2002-a, Fasseu & Mahut 2003).

D'autre part, l'établissement d'une « carte d'identité » du matériau expertisé permet de garder à l'esprit l'ensemble des facteurs ayant pu conduire ou contribuer au développement de gonflements : chargement, environnement, histoire thermique, etc. Pour (Scrivener et al. 1999), la prise en compte des facteurs environnementaux est une nécessité pour la compréhension des phénomènes. Ainsi, les cas d'expertise rapportés dans la littérature indiquent systématiquement de la manière la plus détaillée possible ces caractéristiques des structures atteintes d'une réaction de RGI (e.g. Shayan & Quick 1992, Lawrence et al. 1999, Santos Silva et al. 2008). Malgré ce souci de détail apporté dans le cadre des expertises, certaines controverses peuvent émerger, notamment quant à la prise en compte d'échauffements au jeune âge (Mielenz et al. 1995, Scrivener et al. 1999).

Enfin, les investigations microscopiques (méthodes d'observation microscopique, analyse de composition à l'échelle microscopique...) se révèlent être un outil indispensable à l'établissement d'un diagnostic des causes de dégradation. Une des difficultés inhérentes à ce type de méthodes consiste en la différenciation des produits expansifs issus d'une RAG ou d'une RSI. Ainsi, certaines méthodes sont mises au point pour faciliter l'interprétation des images (Marusin 1994). (Broekmans 2009) démontre ainsi qu'un traitement et une échelle d'observation adaptés des échantillons peuvent mettre en évidence des signes caractéristiques propres à certaines dégradations. Pour leur part, (Rivard & Ballivy 2005) mettent en œuvre une méthode de microscopie permettant de quantifier l'état de dégradation d'un matériau atteint de RAG et même d'estimer l'expansion du matériau correspondant : cette méthode permet de calculer un indicateur appelé DRI (Damage Rating Index) estimé à partir d'observations pétrographiques telles que la présence de fissures, remplies ou non de gel, présence de bulles d'air etc. et quantifie ainsi l'état de dégradation du matériau. Néanmoins, l'interprétation des images de microscopie peut se révéler très délicate, en particulier pour la RSI. En effet, l'observation d'ettringite dans un matériau est souvent considérée comme un signe caractéristique de RSI. Selon (Thomas & Ramlochan 2002), ces conclusions sont souvent erronées, la présence d'ettringite pouvant être le fruit d'un mûrissement d'Ostwald non délétère dans des fissures créées par d'autres mécanismes de dégradation. De même, (Johansen & Thaulow 1999) indiquent que la présence d'ettringite dans un matériau exposé à l'humidité n'est pas un élément de diagnostic pertinent. (Famy & Taylor 2001) rapportent ainsi que des bétons sains peuvent tout à fait présenter des traces d'ettringite au sein de leur microstructure. En outre, si on considère que l'ettringite responsable des gonflements est celle localisée dans la microporosité des CSH (Taylor et al. 2001), l'ettringite observée par les techniques de microscopie traditionnelle ne peut être responsable des gonflements

macroscopiques. (*Garboczi 1997*) indique que le faciès de fissuration à l'échelle microscopique peut se révéler être un bon outil de diagnostic, celui-ci étant dépendant des mécanismes de gonflement mis en jeu. Ainsi, si on considère par exemple que RAG et RSI mettent en jeu des mécanismes de gonflement différents à l'échelle microscopique, il est possible de différencier les matériaux atteints de l'une ou de l'autre réaction. Ainsi, (*Johansen & Thaulow 1999*) considèrent que l'observation d'interstices aux interfaces pâte – granulat est un signe de développement d'une RSI. Les techniques de microscopie peuvent donc se révéler très utiles à l'établissement d'un diagnostic. Néanmoins, il convient de prendre garde lors de l'interprétation des images. (*Leklou et al. 2008*) notent ainsi que certaines méthodes de préparation d'échantillons peuvent conduire à l'apparition de fissurations parasites au sein des matériaux.

Les analyses des compositions microscopiques peuvent également constituer un outil complémentaire pour l'établissement d'un diagnostic. Ainsi, les techniques d'analyse thermo-gravimétrique (*Mielenz et al. 1995*) et les analyses aux rayons X régulièrement mises en œuvre (e.g. *Shayan & Quick 1992, Santos Silva et al. 2008*) peuvent fournir des informations particulièrement pertinentes sur les causes de dégradation. Néanmoins, la taille submicrométrique de l'ettringite potentiellement responsable des gonflements pose une nouvelle fois des problèmes par rapport à la résolution des appareils d'analyse (*Scrivener & Lewis 1999*).

7.1.2 Essais d'expansion résiduelle

La réalisation d'essais d'expansion résiduelle est une technique couramment mise en œuvre dans le cadre d'expertises : une fois la dégradation macroscopique d'une structure constatée, on prélève des carottes pour lesquelles on cherche à mesurer les possibilités de gonflement résiduel. Les prélèvements sont effectués en des lieux estimés représentatifs des structures atteintes. On réalise par la suite un suivi dimensionnel en laboratoire (*Shayan & Quick 1992, Santos Silva et al. 2008*). Différentes méthodes expérimentales sont disponibles pour l'évaluation de cette caractéristique, que ce soit pour la RAG (*Fasseu 1997*) ou pour la RSI (*Pavoine & Divet 2009*). Ces méthodes permettent d'estimer le risque existant quant à la poursuite des dégradations de la structure expertisée. Pour certaines méthodes de re-calcul, cet essai constitue une donnée d'entrée en permettant la détermination des paramètres de cinétique et d'amplitude de la réaction de gonflement (*Fasseu & Mahut 2003, Li et al. 2004*) : on évalue ainsi le degré d'avancement de la réaction. Néanmoins, il est à noter que certaines méthodes de re-calcul considèrent cet essai comme peu pertinent dans le cas d'une RAG (*Sellier et al. 2008, Sellier et al. 2009*) : la méthode proposée consiste dans ce cas à l'évaluation du potentiel de gonflement de RAG résiduel pour chaque classe granulaire du matériau.

Dans le cas d'une concomitance entre RAG et RSI, différentes méthodes expérimentales doivent être envisagées pour évaluer les contributions délétères respectives des différentes réactions, la difficulté étant de permettre le développement d'une réaction tout en empêchant l'autre (*Martin et al. 2010*). De même, différentes techniques d'investigation peuvent être envisagées pour évaluer les expansions résiduelles de RSI et de RAG (*Fasseu 1997, Multon et al. 2008, Pavoine & Divet 2009*). (*Deschenes et al. 2009*) notent néanmoins que ce type d'essai conduit probablement à surévaluer les expansions résiduelles, les échantillons étant affranchis de l'état de contrainte qu'ils subissaient *in situ*. Afin de conclure sur ce point, des analyses détaillées de l'influence de l'état de contrainte sur le développement d'expansions se révèlent nécessaires en ce qui concerne la RSI

(couplée ou non à la RAG), à l'image des travaux de (*Multon & Toutlemonde 2006*) sur la RAG.

7.1.3 Suivi des structures

Le suivi (dimension et fissuration) des structures atteintes, outre le contrôle de l'évolution de leur état structurel, constitue un outil de base du diagnostic des ouvrages atteints d'une RGI. Ce type d'investigation permet d'évaluer la vitesse d'avancement des dégradations et fournit également des informations sur les effets structurels de la pathologie. Par ailleurs, un tel suivi permet également de calibrer les méthodes de re-calcul des ouvrages et ainsi d'établir une prédiction de l'état structurel (*Fasseu & Mahut 2003*).

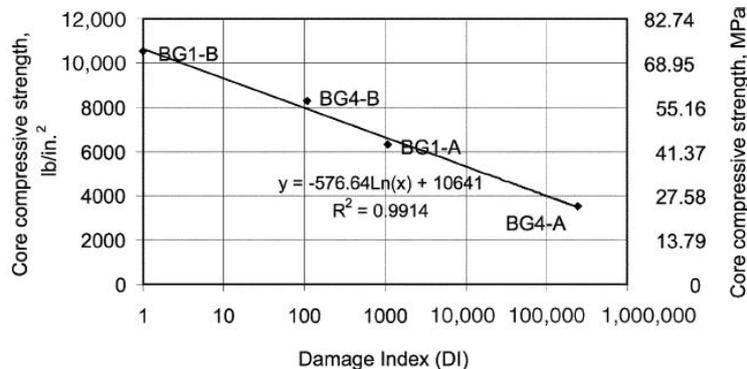


Figure 1-23 : corrélation entre Damage Index (DI) et résistance en compression (*Boenig et al. 2009*)

Ainsi, (*Boenig et al. 2009*) mettent en œuvre le Damage Index (DI) (somme des produits des longueurs de fissure par leur ouverture au carré dans un carré de 0,305 m de côté). Cette grandeur semble être corrélée avec la résistance en compression du matériau atteint (cf. Figure 1-23). D'autres indices de caractérisation de la fissuration existent dans la littérature (*Fasseu & Michel 1997*). Par ailleurs, l'instrumentation des structures afin d'évaluer les déplacements lors du développement de la pathologie (*Fasseu & Mahut 2003, Godart 2009*) se révèle être un outil très pertinent. Les données correspondantes sont d'ailleurs souvent utilisées pour calibrer les outils de re-calcul (*Baghdadi 2008, Grimal et al. 2008-b, Sellier et al. 2009*).

7.1.4 Conclusions

Le diagnostic de la RSI nécessite la mise en œuvre de nombreuses investigations afin de s'assurer des causes de dégradations. Ainsi, (*Scrivener & Skalny 2005*) indiquent que l'observation d'ettringite dans les fissures du matériau n'est pas un signe suffisant pour conclure à une RSI. Dans l'idéal, la combinaison des trois méthodes de diagnostic que sont l'analyse microstructurale, l'essai d'expansion (résiduelle ou sur béton reconstitué avec échauffement reconstitué) et le suivi dimensionnel de l'ouvrage fournit un ensemble de données cohérentes qu'il est possible de recouper pour s'assurer de la réalisation d'un diagnostic pertinent. A cet effet, (*Fasseu & Mahut 2003*) et (*Li et al. 2004*) définissent la méthode de gestion d'ouvrages atteints de RGI représentée par la Figure 1-24.

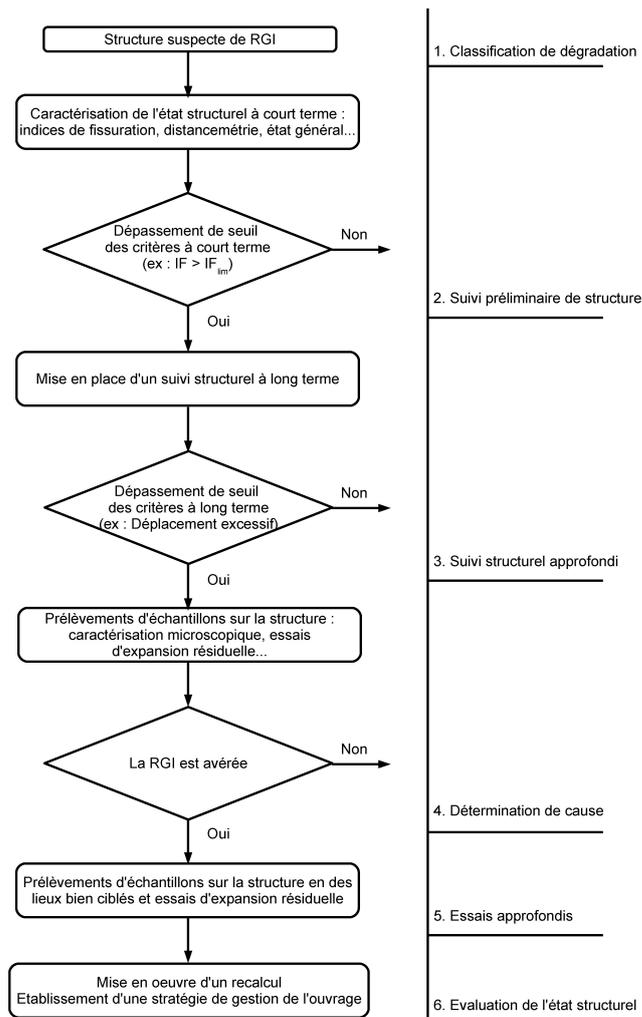


Figure 1-24 : logigramme de gestion des ouvrages atteints de RGI d'après (Li et al. 2004)

7.2 Prédiction de l'évolution de l'état des structures

Une fois que le diagnostic de RGI a été posé, la question de l'intégrité structurelle, de l'aptitude au service et de son évolution dans le temps se pose au gestionnaire d'ouvrage. Dans ce contexte, il est nécessaire de disposer d'outils de re-calcul des structures prenant en compte de manière réaliste et fiable les effets mécaniques des pathologies sur le comportement mécanique.

Afin d'élaborer une modélisation, différentes échelles peuvent être considérées en fonction de la façon dont les phénomènes pathogènes sont pris en compte. Devant la complexité de la réaction et les incertitudes subsistant encore à ce jour sur les mécanismes d'action de la RSI, une modélisation basée sur les connaissances des phénomènes chimiques à l'échelle microscopique semble très compliquée à mettre en œuvre à l'échelle d'une structure.

Certains modèles envisagent une approche mésoscopique des phénomènes. Dans ce cas, les composites cimentaires sont considérés comme des matériaux hétérogènes et leur comportement mécanique est étudié en considérant les comportements de chaque entité du composite. Cette approche est assez fréquemment mise en œuvre pour le cas de la RAG (Sellier et al. 1995, Sellier et al. 1996, Poyet et al. 2007, Naar 2009, Dunant & Scrivener

2010-a, Dunant & Scrivener 2010-b) et permet de comprendre à une échelle intermédiaire les effets d'une telle pathologie (Figure 1-25 par exemple). Une telle approche peut également être mise en œuvre en ce qui concerne la RSI comme l'ont montré (Scrivener et al. 2002).

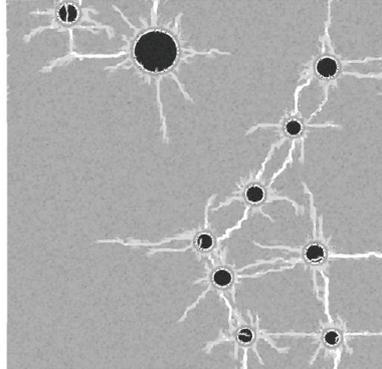


Figure 1-25 : estimation d'un faciès de fissuration par un modèle mésoscopique (cas de l'expansion d'un gel de RAG situé aux interfaces pâte/granulat– Dunant & Scrivener 2010-b)

Il est également possible d'envisager la formulation de modèles à l'échelle macroscopique. Ceux-ci reproduisent les effets de la pathologie à l'échelle du matériau et ont pour objectif général de modéliser le comportement mécanique des structures atteintes. Plusieurs modèles ont été développés pour la RAG parmi lesquels (Ulm et al. 2000, Li et al. 2004, Saouma & Perotti 2006, Comi et al. 2009, Grimal et al. 2010). (Baghdadi 2008) développe un modèle macroscopique spécifique à la RSI (Seignol et al. 2009). Basé sur le modèle développé par (Li et al. 2004) pour la RAG, il intègre une loi d'avancement des gonflements spécifique à la RSI ainsi qu'un couplage de l'amplitude finale des gonflements avec l'histoire thermique (Baghdadi et al. 2008-b). Il prend également en compte l'anisotropie intrinsèque (i.e. propre à la RSI) et induite (i.e. liée à l'application de chargements) des gonflements de RSI. Devant le manque de données expérimentales disponibles dans la littérature, certaines lois de couplages mises en œuvre dans ce modèle n'ont pu être calibrées vis-à-vis du comportement spécifique de la RSI (couplée ou non à la RAG). En particulier, par manque de données expérimentales sur les effets de l'humidité sur les gonflements de RSI dans les bétons, le couplage entre humidité et expansion introduit dans ce modèle n'a pu être explicitement calibré. Les recherches de (Graf 2007) et (Rust 2009) ont néanmoins mis en évidence la forte influence de ce paramètre sur les expansions de RSI dans des barres de mortier. Le cas d'une concomitance entre RSI et RAG a également révélé un comportement singulier vis-à-vis de l'humidité (Rust 2009). Il convient donc de disposer de résultats spécifiques à cet aspect pour des bétons afin de calibrer finement de telles lois de couplage. Des données sur l'influence de l'état de contrainte sur l'anisotropie des gonflements se révèlent également nécessaires.

L'application de ce type de modèle permet d'estimer l'état de l'intégrité structurelle d'un ouvrage atteint d'une RGI (cf. Figure 1-26) et d'en prédire l'évolution dans le temps, l'objectif final étant de fournir des réponses concrètes au gestionnaire d'ouvrage sur les questions de sécurité, d'aptitude au service et de durabilité des structures. Ces modèles nécessitent de disposer de données d'entrée telles que l'histoire thermique du matériau, les conditions d'exposition climatiques, la caractérisation du comportement expansif du matériau etc. En outre, ils intègrent des lois de couplage caractérisant l'effet des « conditions de vie » des ouvrages sur le développement des gonflements (contraintes, température, humidité, fluage...). Ainsi, le développement de ces approches nécessite de

disposer de bases de données expérimentales détaillées permettant de fournir les données d'entrée nécessaires au bon fonctionnement des modèles, de formuler et de valider les lois de couplages caractérisant les influences de l'environnement sur les gonflements et enfin de valider les réponses numériques apportées par les modèles en confrontant les prédictions à des résultats expérimentaux de qualité contrôlée.

De telles bases de données semblent aujourd'hui assez bien renseignées pour le cas de la RAG (citons par exemple *Toutlemonde et al. 2004*). Pour la RSI, des données complémentaires à celles déjà proposées par (*Graf 2007*) et (*Rust 2009*) pour les couplages humidité/gonflement et (*Burgher et al. 2008*) pour les couplages entre contraintes et expansions se révèlent nécessaires. Par ailleurs, la poursuite de l'étude des dégradations des performances mécaniques au cours des gonflements à l'image des travaux de (*Brunetaud 2005*) permettrait d'affiner les lois de couplages déjà formulées sur ce point. Enfin, des suivis structurels en laboratoire et *in situ* (comme ceux de *Boenig et al. 2009*, *Bae et al. 2009*, *Deschenes et al. 2009*) doivent permettre d'alimenter des bases de données nécessaires à la compréhension du fonctionnement des structures atteintes de RSI d'une part et à la calibration des méthodes de re-calcul d'autre part.

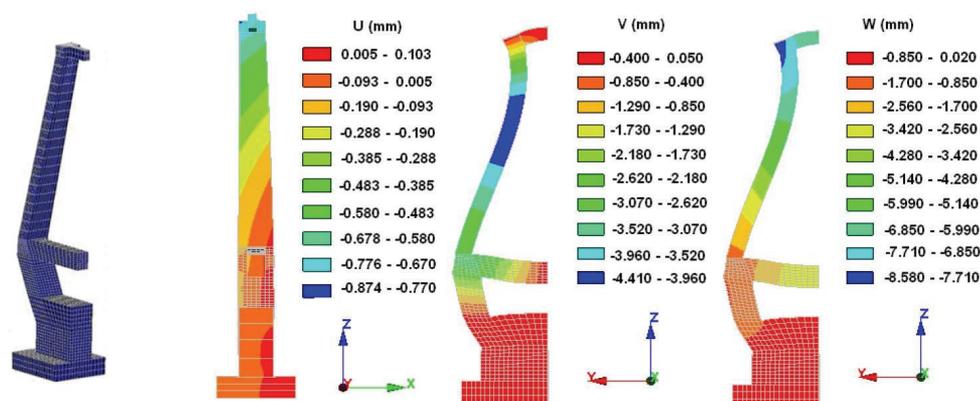


Figure 1-26 : exemple d'application du modèle de (*Baghdadi 2008*) au recalcul d'un pylône de pont à haubans atteint de RSI

8 Conclusions

On a résumé dans ce chapitre les principales connaissances disponibles actuellement sur la RSI. La première difficulté concernant cette pathologie réside dans la définition de sa dénomination. La revue de la littérature indique que les divergences de point de vue des différents auteurs sur les mécanismes impliqués dans le cadre d'une RSI posent des problèmes de définition précise de la pathologie. Dans ce mémoire, le terme de RSI est rattaché à l'attaque sulfatique interne faisant suite à un échauffement du matériau, conformément à la définition proposée par (*Scrivener & Skalny 2005*) à l'issue du comité technique 186 de la RILEM sur les attaques sulfatiques internes.

L'étude des propriétés de l'ettringite a montré que la stabilité de cette espèce dépend fortement de la composition chimique du système dans lequel elle précipite et de la température. La disparition de l'ettringite à haute température ne semble pas être le fruit d'une instabilité thermique mais le résultat d'une redistribution des sulfates et des aluminates dans d'autres phases telles que les CSH. L'étude bibliographique a également montré qu'il convient d'associer à la notion de stabilité celle de cinétique : ainsi, une espèce estimée thermodynamiquement instable peut subsister pendant une longue période

dans un système si sa cinétique de transformation est très lente. Ceci semble expliquer la présence de monosulfate dans certains matériaux cimentaires traités thermiquement bien qu'ils soient considérés comme instables à température ambiante.

L'étude de la théorie de la pression de cristallisation met en évidence la possibilité de développer des efforts sous les effets de la précipitation de l'ettringite en milieu confiné. Les pressions ainsi développées sont le résultat d'une sursaturation de la solution interstitielle vis-à-vis de l'ettringite conduisant à la nucléation puis à la croissance de cristaux. Si le site de cristallisation est suffisamment spacieux, l'ettringite peut croître sans appliquer d'efforts. En revanche, en espace confiné et sous réserve que le degré de sursaturation soit suffisant, des efforts considérables peuvent être transmis au matériau.

Les mécanismes mis en jeu lors du gonflement sont l'objet de controverses. Deux écoles de pensée principales s'opposent. La première considère que les gonflements sont le fruit de la formation d'ettringite au droit des interfaces pâte – granulat. L'influence de la nature des granulats sur les expansions semble en accord avec cette théorie. Néanmoins, il semble que les degrés de sursaturation en ces lieux ne soient pas suffisants pour développer des efforts résultant en une expansion du matériau (même si la prise en compte de concepts issus de la mécanique de la rupture semble pouvoir apporter des éléments de réponse). La seconde théorie suggère un gonflement homogène de la pâte, souvent considéré comme étant le fruit de la précipitation d'ettringite dans de très petits pores (quelques dizaines de nanomètres). Cette théorie semble en accord avec les concepts de pression de cristallisation. Par ailleurs, le gonflement de pâtes de ciment traitées thermiquement montre que la présence de granulats n'est pas indispensable à l'apparition d'expansions. Les détracteurs de cette théorie indiquent néanmoins que les faciès de fissuration des matériaux atteints de RSI semblent souvent en contradiction avec l'hypothèse de gonflement homogène de la pâte.

La RSI est un phénomène dépendant de nombreux paramètres. Dans un premier temps, la composition du ciment se révèle être un paramètre critique vis-à-vis du risque de gonflement car elle conditionne non seulement la quantité d'ettringite qu'il est possible de créer (correspondant à un potentiel de gonflement d'origine chimique) mais également la quantité et la nature des silicates de calcium hydratés (CSH) qui jouent un rôle déterminant dans les gonflements par leur capacité à mobiliser les sulfates et les aluminates durant la cure thermique puis à les relâcher lors du refroidissement. Par ailleurs, la teneur en C_3A se révèle également particulièrement critique : outre les aluminates que cette espèce apporte dans le système, elle conditionne également en grande partie la quantité de chaleur dégagée lors de l'hydratation du ciment et influe donc sur l'élévation de température conséquente au coulage d'une pièce massive.

La présence d'alcalins en plus ou moins grande quantité conditionne également le comportement expansif des matériaux. Les alcalins influent sur la stabilité des hydrates formés dans un système cimentaire (y compris l'ettringite) et modifient ainsi l'état chimique du système. De plus, la présence d'alcalins joue sur les facultés des sulfates à être solubilisés et/ou adsorbés par les CSH et conditionne donc la disponibilité des sulfates pour la formation différée d'ettringite. A long terme, la lixiviation de ces espèces lors d'une conservation du matériau dans un milieu d'humidité élevée se révèle être de première importance en favorisant voire en déclenchant le développement des gonflements.

L'histoire thermique du matériau présente une importance de premier ordre vis-à-vis du risque de RSI. L'étude bibliographique réalisée indique que, pour la majorité des auteurs, la RSI ne peut se développer en l'absence d'une élévation de température (d'où la

définition que nous avons adoptée). Cet échauffement peut être le fruit d'un procédé de préfabrication, de l'échauffement du matériau sous les effets de l'hydratation dans une pièce massive ou plus rarement d'un échauffement tardif dans le cas de colis de stockage de déchets radioactifs par exemple. La majorité des recherches menées établissent un seuil de « déclenchement » de la RSI voisin de 65-70°C. Néanmoins, l'analyse menée dans ce chapitre a montré que l'influence de la température est complexe et varie avec la composition du matériau considéré. Ce seuil ne peut donc être considéré comme fixe. D'une manière générale, les amplitudes de gonflement semblent augmenter avec la température et sa durée d'application jusqu'à un certain point au delà duquel on observe une diminution des expansions attribuée à la formation de nouveaux hydrates (comme les hydrogrenats) diminuant le potentiel de formation d'ettringite différée. La température de conservation du matériau joue également un rôle sur le développement des expansions : si l'amplitude semble diminuer avec l'augmentation de la température de stockage, les cinétiques semblent être accélérées. Ceci n'est néanmoins valable que jusqu'à une certaine température au delà de laquelle plus aucun gonflement n'est observé.

L'abondance d'humidité conditionne également le caractère expansif des matériaux. Les gonflements sont en général d'autant plus importants que l'humidité ambiante est élevée. Certains auteurs mettent en évidence un comportement à seuil dont la valeur est estimée entre 90 % et 92 % HR.

La microstructure de la pâte de ciment influe sur les cinétiques et les amplitudes de gonflement. D'une manière générale, une augmentation du volume des vides semble accélérer les cinétiques de gonflement en facilitant les échanges ioniques mais conduit la plupart du temps à une diminution des amplitudes de gonflement en fournissant des vases d'expansion permettant la précipitation d'ettringite sans développement de pressions. Il est à noter que l'influence de ce paramètre semble présenter un effet de pessimum : si l'augmentation du volume des vides dans le matériau est trop importante, la précipitation de l'ettringite peut alors se faire librement et conduit à la disparition de l'expansion.

La RSI est souvent couplée à d'autres mécanismes délétères. Pour ceux résultant en une microfissuration du matériau, le couplage semble mécanique et lié aux transferts hydrique ce qui favorise les échanges ioniques tout en facilitant la formation d'ettringite dans des espaces non confinés. Le cas de la concomitance avec la RAG semble particulier : si un couplage mécanique par la fissuration qu'elle induit semble indéniable, la consommation des alcalins pour la formation de gels de RAG induit également un couplage chimique favorisant probablement la précipitation d'ettringite de manière localisée, à proximité des granulats réactifs.

L'effet des contraintes sur le développement des gonflements a également été étudié. S'il est reconnu que l'application de contraintes a un effet sur le développement des gonflements et leur orientation, les données expérimentales sur ce point semblent aujourd'hui assez rares et des recherches complémentaires se révèlent nécessaires.

La RSI correspond à une expansion des matériaux atteints conduisant à une dégradation des performances mécaniques. Ainsi, on observe une diminution du module d'élasticité et de la résistance en compression (caractéristiques les plus souvent étudiées) d'autant plus importante que les gonflements sont sévères. A notre connaissance, les effets à l'échelle d'une structure semblent aujourd'hui encore relativement peu étudiés.

Un des enjeux vis-à-vis de la RSI est de disposer de méthodes permettant de valider le choix de matériaux cimentaires sans risques de développer cette pathologie. A cet effet, des formules prédictives ont été mises au point par différentes équipes. De par leur caractère empirique et leur mode de mise au point basé sur l'étude d'une population limitée

de matériaux, leur champ d'application est en général restreint à des compositions proches de celles considérées dans le cadre des travaux correspondants. Néanmoins, ces relations peuvent être utilisées en première approche comme des indicateurs du risque de gonflement. Elles présentent également l'avantage d'être peu coûteuses en temps.

Parallèlement à ces méthodes analytiques, différents essais performantiels ont été mis au point. Par rapport aux formules prédictives, les techniques expérimentales présentent l'intérêt de caractériser un matériau similaire voire identique à celui dont on souhaite valider l'utilisation (si possible en se plaçant dans des conditions d'échauffement identiques à l'application visée). En revanche, les temps de mise en œuvre inhérents aux cinétiques de développement des réactions rendent souvent ces essais d'utilisation difficile dans des conditions de délais réduits. Certaines techniques permettent d'accélérer les phénomènes chimiques et donc de diminuer le temps de réponse relatif à ces essais. En contrepartie, les essais sont alors souvent jugés trop sévères et sont parfois suspectés de conclure à un comportement expansif pour des matériaux ne posant aucun problème *in situ*.

Enfin, il apparaît nécessaire de disposer d'outils permettant de diagnostiquer la pathologie et de prédire l'évolution des structures atteintes. La RSI étant une pathologie découverte relativement récemment, certains de ces outils doivent encore être améliorés et validés afin de permettre une gestion efficace des ouvrages de Génie Civil.

Si de nombreuses études ont été menées au cours des dernières années et ont permis des avancées considérables dans le domaine de la RSI, beaucoup de questions restent aujourd'hui en suspens. Ainsi, les couplages existant entre les gonflements et les paramètres environnementaux (au sens large) restent souvent à déterminer et/ou à quantifier (contraintes, température etc.). La compréhension de ce type de dégradation se révèle être déterminant dans le contexte actuel où la durabilité est de rigueur (*Scrivener 2008*). Par ailleurs, la mise au point et/ou la validation des outils numériques de re-calcul d'ouvrages atteints de RGI nécessitent de disposer de bases de données expérimentales complètes permettant de décrire quantitativement certains couplages, de disposer des données d'entrée des modèles et de confronter leurs prédictions à des comportements mécaniques réels.

Plus spécifiquement, compte tenu de leur incidence quantitative dans les simulations (*Baghdadi 2008*), les aspects de couplage des expansions de RSI avec les paramètres que sont l'histoire thermique au jeune âge, l'humidité environnante et l'état de contrainte dans le matériau semblent devoir être caractérisés prioritairement. Par ailleurs, les différents types de couplages possibles mis en évidence dans le cas d'une concomitance entre la RSI et la RAG soulèvent de nombreuses questions auxquelles il convient de répondre afin de pouvoir prédire de manière précise et fiable le comportement des ouvrages atteints qui présentent fréquemment des deux pathologies.

Le travail de thèse présenté dans la suite de ce mémoire s'est particulièrement attaché à apporter cette contribution à la compréhension quantitative des effets mécaniques de la RSI, tant par l'analyse expérimentale à l'échelle du matériau que par la mise en évidence par l'analyse expérimentale du fonctionnement de structures modèles.

