

Effet combiné de la température et de l'attaque au sulfate de magnésium sur la durabilité du mortier à base de ciment composé au laitier

Mohammed Nadjib AZIEZ^{1*}, Abderraouf Achour¹, Abdelillah Bezzar¹

¹ Laboratoire Eau et Ouvrages dans leur Environnement, (EOLE), Faculté de Technologie, Université AbouBakr Belkaid, Tlemcen, Algérie

(Received 20 October 2018 - Accepted 12 December 2018 – Published 30 July 2019)

Abstract. The aim of this work is to study the effect of temperature on the durability of mortars in a sulphate-magnesium-rich environment (5% MgSO₄). The strength of mortars after 12 months of immersion in the sulphate solution is evaluated by visual observation, mass variation, compressive strength, and XRD analysis. No damage was observed on the samples exposed to the sulphate solution at 20, and 50 °C, except for mortars exposed to 5 °C which are very sensitive to the formation of thaumasite. Results show that high temperature improved the mechanical strength and do not necessarily accelerate the degradation due to magnesium sulphate.

Keywords: *Durability, Temperature; Sulphate attack, Sand, Thaumasite, Ettringite, Gypsum, Mortar*

Résumé. Ce travail a pour but d'étudier l'effet de la température sur la durabilité des mortiers conservés dans un environnement riche en sulfate de magnésium (5% MgSO₄). La résistance des mortiers après 12 mois d'immersion dans la solution sulfatique est évaluée par l'observation visuelle, la variation de la masse, la résistance à la compression, et l'analyse DRX. Aucun dégât n'a été observé dans les échantillons exposés aux sulfates à 20, 50 °C, sauf pour les mortiers exposés à 5 °C qui sont très sensibles à la formation de la thaumasite. Les résultats ont montré que l'augmentation de la température permet d'améliorer la résistance mécanique et n'accélère pas nécessairement la dégradation des mortiers en solution de sulfates de magnésium.

Mots clés: *Durabilité, Température ; Attaque sulfatique, Sable, Thaumasite, Ettringite, Gypse, Mortier.*

1. Introduction

Les attaques sulfatiques externes sont parmi les détériorations qui affectent la durabilité des structures en béton [1, 2]. Les matériaux cimentaire sujet à des attaques sulfatique externes présentent des signes de détérioration caractérisés par une expansion du matériau résultant de la formation de produits tels que : la thaumasite, le gypse et l'ettringite secondaire. Ces derniers vont créer des contraintes de traction internes conduisant en premier lieu l'expansion du matériau, la fissuration de sa surface, l'augmentation de sa perméabilité, la décohesion et enfin une réduction de ses propriétés mécaniques [3-5].

En Algérie, cette problématique est liée aux ouvrages construits dans le sud sur des sols gypseux. Ces derniers représentent une surface totale de 7966.3 km² soit 12% des sols gypseux présents dans le monde (FAO, 1990) [6].

*Corresponding author.

E-mail: aziez.mednadjib@yahoo.fr (Mohammed Nadjib AZIEZ.).

Address: BP 230 Chetoua, Tlemcen 13000 Algeria.

Les régions du sud-est algérien présentent des concentrations en sulfate variant entre 0.9 et 5,4 % ce qui est considéré comme environnement très sévère selon le code Américain ACI 318 [7, 8].

La majorité des ouvrages construits dans ces régions utilisent un sable siliceux naturel provenant de la rivière M'zi dans la ville de Laghouat. Toutefois, l'extraction de ce sable constitue une agression envers l'environnement [9].

Durant les dernières années, il y a eu une ascension remarquable dans l'utilisation des ciments aux ajouts minéraux pour des raisons écologiques et économiques, mais les mécanismes de dégradation aux attaques sulfatiques externes (ESA) de ces ciments restent très peu connus. Les mélanges minéraux présents dans le ciment réduisent considérablement les C₃A (effet de dilution) [10], et réagissent avec la portlandite (CH) pour produire le silicate de calcium hydraté C-S-H, ces derniers favorisent la densification, et abaissent la perméabilité [11, 12]. En Algérie, la plupart du ciment est mélangé avec des additifs tels que de filler calcaire, et de laitier. Les cimenteries ajoutées habituellement d'environ 15% de laitier de haut fourneau.

Enfin, il convient de noter qu'il n'y a pas beaucoup d'informations dans la littérature sur l'effet de la température sur les performances des matériaux à base de ciment dans les environnements sulfatés. Cet article décrit une étude expérimentale menée sur des mortiers à base de ciment composé au laitier (CEM II 42,5) exposés à 5% MgSO₄ de sulfate de magnésium à différentes températures 5, 20, 50 °C pour des périodes allant jusqu'à 12 mois. Les paramètres de quantification de la durabilité des mortiers pris en considération sont l'inspection visuelle et les changements de masse et la variation de la résistance à la compression. Les phases minéralogiques ont été déterminées en utilisant la diffraction des rayons X.

2. Matériaux et matériel d'essai

2.1. Matériaux

2.1.1. Ciment

Un seul type de ciment a été utilisé: CEM II / A 42,5 est un ciment composé au laitier de la cimenterie de Hajar Elsouid Skikda (Algérie), le laitier de haut fourneau est approvisionné du complexe sidérurgique ARCELOR MITTAL –ANNABA. Sa surface spécifique de Blaine est de 3450 cm²/g et sa masse volumique absolue est de 3.1 g/cm³. Le détail de sa composition chimique et minéralogique du Clinker est donné dans les deux tableaux 1 et 2, respectivement.

Tableau 1. Composition chimique élémentaire du ciment.

CaO	SiO ₂	Al ₂ O ₃	Fe ₂ O ₃	SO ₃	K ₂ O	Na ₂ O	MgO	CaO libre
60,24	23,25	5,69	3,36	1,94	0,45	0,27	0,74	0,98

Tableau 2. Composition minéralogique du clinker.

C ₃ S	C ₂ S	C ₃ A	C ₄ AF
59,66	16,45	9,14	11,02

2.1.2. Sable

Un sable alluvionnaire (sable siliceux naturelle) a été utilisé qui est extraite de la rivière d'Oued M'zi (rivière traversant la ville de Laghouat). Le tableau 3 représente les propriétés physiques du sable.

Tableau 3. Propriétés physiques du sable.

Propriétés physiques	Sable Siliceux
Masse volumique absolue en (Kg/m ³)	2640
Masse volumique apparente en (Kg/m ³)	1530
Equivalent de sable sous piston (%)	88
Coefficient d'absorption Ab (%)	0,56

2.2. Procédures expérimentales

Nous avons utilisé dans notre programme expérimental des mortiers de forme cubique 40×40×40 mm³, cette géométrie a été choisie pour accélérer le processus de dégradation [13,14]. Les échantillons de mortier ont été préparés conformément à la norme EN 196-1 [15], avec un rapport E / C = 0,5 et un rapport C / S = 1/3. Après la préparation du mortier, les échantillons ont été versés dans les moules déjà lubrifiés. Le séchage s'est effectué pendant 24 heures à l'air libre, après démoulage, les échantillons ont subi une cure de 28 jours dans une solution saturée avec Ca(OH)₂ à une température T = 20 ± 3 ° C. En suite, Les échantillons cubiques ont été immergés dans une solution à 5% de sulfate de magnésium MgSO₄, à différentes températures 5, 20 et 50 °C pendant 12 mois. Le rapport liquide (solution de sulfate) et solide (mortier) est constant et aux environs de 4,5 conformément aux exigences de la norme ASTM C 2012 [16]. Dans les différents tests, les solutions ont été renouvelées tous les trois mois.

2.3. Méthodes

2.3.1. Inspection visuelle

L'inspection visuelle des échantillons a été réalisée mensuellement et les observations sont résumées dans le tableau 4. L'évaluation de la dégradation de la surface du mortier a été réalisée en utilisant un code de numéro par exemple : Le zéro désigne 0 : Pas de détérioration visible ; 1 : Une certaine détérioration dans les coins ; 2 : Une certaine détérioration dans les bords ; 3 : Détérioration dans les coins et certaine fissuration le long des bords ; 4 : Expansion dans les coins et fissuration étendue le long des bords ; 5 : Eclatement de la surface ; 6 : Dégradation totale.

2.3.2. Variation de la masse

La masse a été mesurée mensuellement, avec une balance type OHAUS (exactitude 0,0001 g). Le changement de masse a été calculé en utilisant la moyenne de trois valeurs, selon l'équation (1).

$$\text{Variation de masse (t)} = ((M_t - M_i) / M_i) \times 100 \quad (1)$$

Où : t est le temps, M_i la masse initiale du mortier (mortier de référence), M_t est la masse après un temps t (temps d'exposition dans la solution de sulfate).

2.3.3. Résistance à la compression

La résistance à la compression a été calculée avec la moyenne de trois mesures. Elle a été mesurée après un (01) mois (résistance de référence), juste après la fin de la cure, puis après 2, 4, 6 et 12 mois d'exposition à une solution de 5% MgSO₄. Cette résistance a été mesurée sur un échantillon cubique (40×40×40 mm³) en utilisant la méthode d'essai recommandée par la norme EN 196-1 [15].

2.3.4. Vitesse d'impulsion ultrasonique

Les éprouvettes de (40×40×40 mm³) ont été testées aux ultrasons, à l'aide d'un appareil ultrasons de fréquence 55 KHz. Les résultats obtenus représentent la moyenne des valeurs de trois échantillons cubiques. Le principe consiste à déterminer le temps nécessaire à une impulsion dynamique pour traverser une surface tout en connaissant la distance, d = 40 mm, c'est la distance entre l'émetteur et le récepteur, donc la vitesse est déduite de la relation (2) :

$$V = d/t \text{ (Km/s)} \quad (2)$$

Où V : vitesse d'impulsion aux ultrasons, d : distance entre les capteurs en Km,
t : temps mesuré en μs.

2.3.5. Analyse par diffraction aux rayons X

Les analyses DRX (disponible à l'université de Bejaia) ont été effectuées sur des échantillons finement broyés (< 80 microns), recueillis à partir de la surface du matériau dégradé. Cette dernière a été exposée aux rayons X afin d'avoir une idée sur les nouveaux produits formés sur la surface (5 mm). Les phases minéralogiques ont été identifiées avec un diffractomètre PANalytical X'Pert PRO en utilisant un rayonnement Cu K of de longueur d'onde = 1,54 Å, fonctionnant à 40 kV et 30 mA, avec un pas de 0,01 ° (2θ) et un temps d'étape de 5 s.

3. Résultats expérimentaux et interprétation

3.1. Inspection visuelle

L'apparition des dégradations est observée rapidement sur des échantillons conservés au sulfate à 5 °C. Après 4 mois d'immersion au sulfate à 5 °C, les échantillons montrent les premiers signes de détérioration dans les coins suivis par la fissuration le long des bords, pour éclater enfin après 10 mois d'exposition. En revanche, concernant les mortiers conservés au sulfate de magnésium MgSO₄ à 20 et 50 °C, aucun dommage n'a été observé (Tableau 4).

En général, le premier signe d'attaque est la dégradation des coins et des bords de l'échantillon cubique, ainsi que la formation d'une couche blanche sur la surface supérieure, suivie de l'apparition de fissures le long des bords. L'expansion progressive et l'éclatement se sont produits sur les coins de l'échantillon. Nous signalons que les basses températures (5 °C) accélèrent la cinétique de la dégradation de tous les échantillons. La Figure 1 présente état des mortiers après 12 mois d'immersion dans 5% MgSO₄ à 5 °C.

Tableau 4. Evaluation visuelle de la détérioration des échantillons.

Température	Temps d'exposition (mois)											
	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12
5 °C	0	0	0	0	1	2	3	4	5	5	6	6
20 °C	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
50 °C	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0



Fig.1 : Etat des mortiers après 12 mois d’immersion dans 5% MgSO₄ à 5 °C.

3.2. Variation de la masse

Les résultats des variations de la masse en fonction du temps d'exposition dans les sulfates pour différentes températures sont présentés sur la Figure 2. Les échantillons qui ont été immergés à 5 °C ont montré une augmentation de masse jusqu'à 6 mois, puis à un âge plus tardif il y avait eu une perte de masse importante d'environ 48,35 % après 12 mois d'immersion. Cependant, les mortiers conservés à 20 °C présentent une légère perte d'ordre 0,12 % dans la même période d'exposition. Cependant, la plupart des échantillons submergés à 50 °C dans la solution de sulfate ont montré une augmentation de masse continue d'environ 0,9 % après 12 mois.

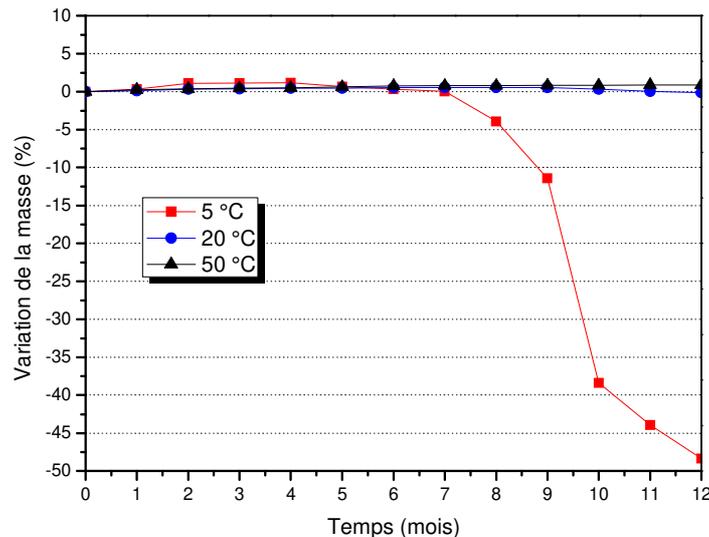


Fig 2 : Variation de la masse pour différentes températures 5, 20, 50 °C.

Il faut noter que l’augmentation de la masse observée dans les échantillons en contact avec les sulfates à différentes températures est due principalement aux réactions entre la portlandite Ca(OH)₂ et les sulfates MgSO₄ donnant naissance à deux produits : le gypse secondaire (CaSO₄.2H₂O) et la brucite Mg(OH)₂ qui se forment à la surface des échantillons [3]. Cette augmentation de masse est due aussi au processus d’hydratation qui n’est pas encore achevé [17].

3.3. Résistance à la compression

La Figures 3 représente la variation de la résistance à la compression pour les différents types de mortiers en fonction de la température et la durée d’immersion dans la solution du sulfate de

magnésium. Il convient de noter que la résistance des mortiers à l'attaque du sulfate de magnésium a été fortement influencée par la température.

La plupart des échantillons submergés à 20 et 50 °C montrent un développement significatif de la résistance à la compression. L'augmentation de la résistance à la compression peut être attribuée à deux types de réactions. D'une part, l'hydratation continue des grains de ciment non hydratés qui produisent plus de C-S-H, qui est la principale phase cohésive de la pâte de ciment [18, 19]. D'autre part, la réaction des ions des sulfates avec les hydrates de ciment donne du gypse et de l'ettringite secondaire. À des âges plus précoces, les deux réactions conduisent à une structure plus dense qui améliore l'interface agrégat-pâte [11, 20]. De plus, ces produits vont précipiter dans les vides, comme les fissures et les micropores [21], qui ont un effet important sur le raffinement de la structure des pores, réduisant la perméabilité du béton, inhibant la pénétration des ions des sulfates et augmentant la résistance à la compression [22]. Ces résultats sont en bon accord avec le travail d'Akoz et al. [23] qui ont obtenu de meilleures propriétés mécaniques de mortiers en contact avec les sulfates de magnésium à 40 °C pendant 300 jours d'immersion.

A l'inverse, les éprouvettes immergées dans les sulfates à 5 °C, présentent le pire comportement mécanique qui indique une dégradation totale après 12 mois d'immersion. Cette sensibilité à basse température peut être attribuée à la formation de la thaumasite ($\text{CaSiO}_3 \cdot \text{CaCO}_3 \cdot \text{CaSO}_4 \cdot 15\text{H}_2\text{O}$). Il convient de noter que les basses températures inférieures à 15 °C, en particulier 5 °C, sont plus favorables à la formation de la thaumasite [24]. Cependant, quelques cas ont été rapportés dans lesquels une attaque au sulfate de thaumasite aurait eu lieu à des températures d'environ 20 °C [25, 26]. La thaumasite se forme dans les matériaux cimentaires à la suite d'une réaction entre les hydrates de silicate de calcium (C-S-H) et des sulfates en présence d'ions de carbonate (CaCO_3) dans des environnements humides [27]. Cette réaction peut éventuellement détruire la matrice C-S-H, entraînant une modification de la porosité, une dégradation à la surface et créent des microfissures qui accélèrent la diffusion des ions sulfates [28], ce qui réduira considérablement la résistance à la compression. Les résultats vérifient que la forte température améliore la résistance à la compression des mortiers contre l'attaque au sulfate de magnésium

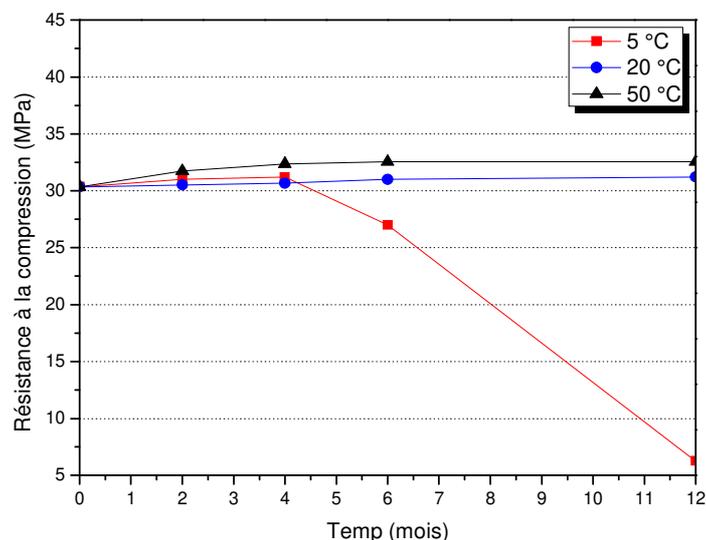


Fig.3 : Résistance à la compression des échantillons pendant 12 mois d'immersion dans 5% de MgSO_4 à 5, 20, 50 °C.

3.4. Vitesse d'impulsion ultrasonique

La technique par ultrasons permet de suivre le processus de dégradation de la surface des matériaux cimentaires [29]. Les résultats obtenus dans les échantillons conservés pendant 12 mois à 5% MgSO₄ à 5, 20 et 50 °C sont présentés sur la Figure.4.

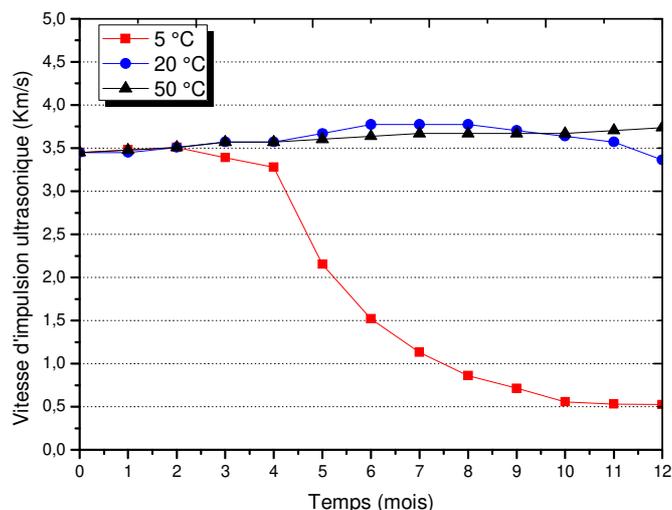


Fig.4 : Vitesse d'impulsion aux ultrasons des échantillons de mortiers pendant 12 mois d'immersion dans 5% de MgSO₄ à 5, 20 et 50 ° C.

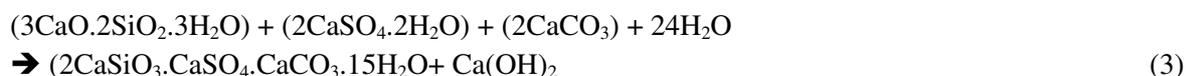
L'investigation aux ultrasons a montré qu'au début de l'exposition au sulfate la vitesse a légèrement augmenté ceci peut s'expliquer par la densification de la surface, principalement due aux réactions entre Ca(OH)₂ et MgSO₄ et deux produits ont été obtenus, à savoir le gypse secondaire CaSO₄.2H₂O et le brucite Mg(OH)₂, formé à la surface d'échantillons, plus le temps d'exposition augmente la vitesse commence à diminuer particulièrement à faible température qui est certainement due à la formation de la thaumasite qui est plus fréquente à basse température.

Ceci confirme les résultats trouvés dans la partie de la perte de masse, résistance à la compression et la porosité. Notons aussi un changement dans ces vitesses pour des échantillons n'ayant pas encore subi une perte de masse ceci peut être dû au changement de la microstructure de ces échantillons.

3.5. Analyse par diffraction aux rayons X :

La prospection des phases minéralogiques formées après 12 mois d'immersion dans les solutions 5% MgSO₄ à 5 °C a été effectuée par l'analyse de la diffraction aux rayons X. Les échantillons sous forme de poudres (<80 μm) sont obtenus par broyage de mortiers extrais à partir de la surface du matériau dégradé. Le diagramme de DRX présenté dans la Figure 5 montre que les principales phases détectées comprennent : Ettringite, thaumasite, calcite, gypse, quartz et quelques traces de brucite. Il convient de noter qu'aucun pic de portlandite n'a été détecté. Cela est dû d'une part aux réactions pouzzolaniques qui consomment la portlandite (CH) et d'autre part (CH) a probablement réagi avec les sulfates de magnésium pour former du gypse et la brucite.

La formation thaumasite pourrait être obtenue par deux mécanismes différents : Dans le premier la thaumasite se forme par une réaction entre le C-S-H, gypse, carbonate de calcium et de l'eau [30, 31]. Ceci est connu comme le mécanisme direct de formation thaumasite. (cf. eq. 3)



Dans le second mécanisme la thaumasite se forme par une réaction entre l'ettringite, C-S-H et les ions de carbonate en présence d'eau, connue sous le nom de woodfordite route (cf. eq. 4) [32].

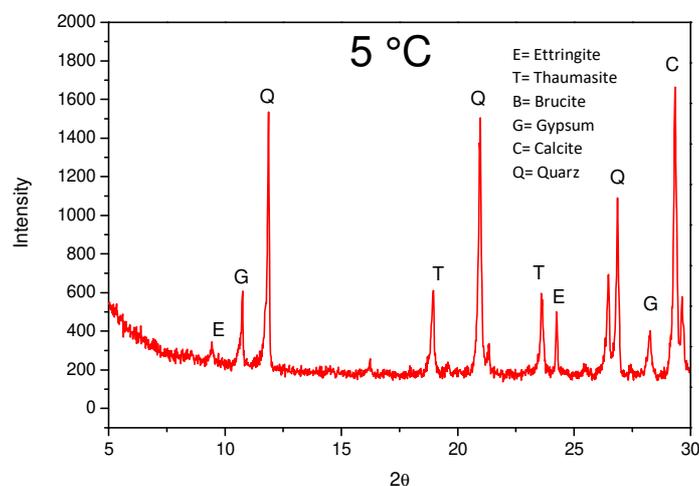
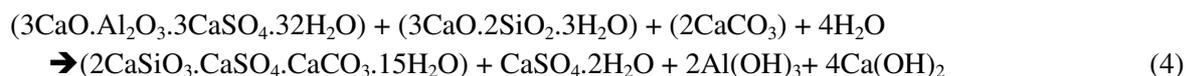


Fig.5 : Diffraction par rayons X après 12 mois d'exposition dans 5% MgSO_4 à 5 °C.

4. Conclusion

Aucun dégât n'a été observé dans les échantillons exposés à la solution de sulfate à 20 et 50 °C pendant 12 mois. Il semble que dans l'attaque de sulfate de magnésium MgSO_4 à fort température, est beaucoup plus lente que la forme de la thaumasite de l'attaque des sulfates à basse température.

Les résultats de cette recherche ont montré qu'une température élevée entraînait certains changements dans les propriétés des mortiers. Ces changements étaient généralement bénéfiques. Par conséquent, les températures élevées n'accélèrent pas nécessairement la dégradation due à l'attaque au sulfate de magnésium.

L'analyse DRX indique que la thaumasite, l'ettringite, et le gypse sont les principaux produits responsables de la détérioration des matériaux cimentaires à 5 °C.

Les mortiers à base des ciments composé au laitier CEM II/ 42 avec un C_3A modéré ont été facilement dégradé par une attaque de sulfate de type de thaumasite à 5 °C. Par contre, pour la température de 50 °C ils ont présenté un meilleur comportement à ce phénomène. Alors, on peut dire que le mécanisme d'attaque des hydrates de ciment par les sulfates de magnésium varie d'un mortier à un autre et il dépend de la nature du ciment et sa composition chimique et de la température d'exposition.

Les résultats de la vitesse d'impulsion aux ultrasons montrent que la surveillance régulière de la vitesse dans les échantillons peut aider à prédire le moment où les échantillons commencent à montrer des signes de détérioration, l'ouverture de fissures invisibles dans la matrice de mortier entraîne une diminution de la vitesse d'impulsion aux ultrasons

5. Références

- [1] Bellmann F, Erfurt W, Ludwig HM. Field performance of concrete exposed to sulphate and low pH conditions from natural and industrial sources. *Cement and Concrete Composites*. 2012; 34(1):86-93.
- [2] Leemann A, Loser R. Analysis of concrete in a vertical ventilation shaft exposed to sulfate-containing groundwater for 45 years. *Cement and Concrete Composites*. 2011;33(1):74-83.

- [3] Skalny, J. Marchand, I. Odler, Sulfate attack on concrete (Modern Concrete Technology), Spon Press (2002), 230 p.
- [4] P.K. Mehta, P.J.M. Monteiro, CONCRETE: Microstructure, Properties and Materials, McGraw Hill Companies, (2006). 647p.
- [5] H.F.W. Taylor, Cement chemistry, 2nd edn, Thomas Telford Publishing, London, ISBN: 0727725920, (1997). 439 p.
- [6] F.A.O., Distribution Of Gypsiferous Soils By Countries, [consulted 04/21/2017, <http://www.fao.org/docrep/t0323e/t0323e02.htm#1.4> Classification of Gypsiferous Soils, Food and Agriculture Organisation of the United Nations.
- [7] A. Kadri, Contribution à l'amélioration de la durabilité du béton dans les zones enterrées de la wilaya d'Ouargla par l'ajout des minéraux locaux, département de Génie Civil et d'hydraulique, Université Kasdi Merbah Ouargla, mémoire de Magistère, 2014, p 131.
- [8] B. Mecheri, Influence de la nappe phréatique sur les ouvrages hydrauliques et Génie Civil, Département d'hydraulique et Génie Civil, Université Kasdi Merbah, mémoire de Magister, Ouargla, 2009, 109 p.
- [9] Bederina M, Makhloufi Z, Bounoua A, Bouziani T, Quéneudec M. Effect of partial and total replacement of siliceous river sand with limestone crushed sand on the durability of mortars exposed to chemical solutions. *Construction and Building Materials*. 2013;47:146-58.
- [10] Irassar EF, González M, Rahhal V. Sulphate resistance of type V cements with limestone filler and natural pozzolana. *Cement and Concrete Composites*. 2000;22(5):361-8.
- [11] Ghrici M, Kenai S, Said-Mansour M. Mechanical properties and durability of mortar and concrete containing natural pozzolana and limestone blended cements. *Cement and Concrete Composites*. 2007;29(7):542-9.
- [12] Hadjsadok A, Kenai S, Courard L, Michel Fdr, Khatib J. Durability of mortar and concretes containing slag with low hydraulic activity. *Cement and Concrete Composites*. 2012;34(5):671-7.
- [13] Brunetaud X, Khelifa M-R, Al-Mukhtar M. Size effect of concrete samples on the kinetics of external sulfate attack. *Cement and Concrete Composites*. 2012;34(3):370-6.
- [14] El-Hachem R, Rozière E, Grondin F, Loukili A. New procedure to investigate external sulphate attack on cementitious materials. *Cement and Concrete Composites*. 2012;34(3):357-64.
- [15] NF EN 196-1. Methods of Testing Cement - Part 1: Determination of Mechanical Strength. France 2006.
- [16] ASTM C1012-04 AI. Standard Test Method for Length Change of Hydraulic-Cement Mortars Exposed to a Sulfate Solution 2004.
- [17] Nielsen P, Nicolai S, Darimont A, Kestemont X. Influence of cement and aggregate type on thaumasite formation in concrete. *Cement and Concrete Composites*. 2014;53:115-26.
- [18] Irassar EF, Di Maio A, Batic OR. Sulfate attack on concrete with mineral admixtures. *Cement and Concrete Research*. 1996;26(1):113-23.
- [19] Lothenbach B, Scrivener K, Hooton RD. Supplementary cementitious materials. *Cement and Concrete Research*. 2011;41(12):1244-56.
- [20] Touloum N, Brara A. Evidence of thaumasite formation in a newly built concrete structure in northeastern Algeria. *Innovation et Valorisation en Génie Civil et Matériaux de Construction*. Algérie 2014. p. 343-8.
- [21] Santhanam M, Cohen MD, Olek J. Mechanism of sulfate attack: A fresh look: Part 1: Summary of experimental results. *Cement and Concrete Research*. 2002;32(6):915-21.
- [22] Skaropoulou A, Sotiriadis K, Kakali G, Tsvivilis S. Use of mineral admixtures to improve the resistance of limestone cement concrete against thaumasite form of sulfate attack. *Cement and Concrete Composites*. 2013(0).
- [23] Aköz F, Türker F, Koral S, Yüzer N. Effects of raised temperature of sulfate solutions on the sulfate resistance of mortars with and without silica fume. *Cement and Concrete Research*. 1999;29(4):537-44.
- [24] Bensted J. Thaumasite — background and nature in deterioration of cements, mortars and concretes. *Cement and Concrete Composites*. 1999;21(2):117-21.
- [25] Collepardi M. Thaumasite formation and deterioration in historic buildings. *Cement and Concrete Composites*. 1999;21(2):147-54.
- [26] Diamond S. Thaumasite in Orange County, Southern California: an inquiry into the effect of low temperature. *Cement and Concrete Composites*. 2003;25(8):1161-4.

- [27] Crammond NJ. The thaumasite form of sulfate attack in the UK. *Cement and Concrete Composites*. 2003;25(8):809-18.
- [28] Gospodinov P, Kazandjiev R, Mironova M. The effect of sulfate ion diffusion on the structure of cement stone. *Cement and Concrete Composites*. 1996;18(6):401-7.
- [29] Jiang L, Niu D-t, Sun Y-z, Fei Q-n. Ultrasonic testing and microscopic analysis on concrete under sulfate attack and cyclic environment. *Journal of Central South University*. 2014;21(12):4723-31.
- [30] Heinz D, Urbonas L. About thaumasite formation in Portland-limestone cement pastes and mortars—effect of heat treatment at 95 °C and storage at 5 °C. *Cement and Concrete Composites*. 2003;25(8):961-7.
- [31] Irassar EF, Bonavetti VL, Trezza MA, Gonzalez MA. Thaumasite formation in limestone filler cements exposed to sodium sulphate solution at 20 °C. *Cement and Concrete Composites*. 2005;27(1):77-84.
- [32] Bensted J. Thaumasite—direct, woodfordite and other possible formation routes. *Cement and Concrete Composites*. 2003;25(8):873-7.