

Image MEB d'un mortier hydraulique romain, premier béton bas pH de l'histoire.

Stockage géologique de déchets radioactifs

Comment s'assurer de la tenue à très long terme des bétons ?

[CONTEXTE]

De nombreux pays ont opté pour le stockage des déchets radioactifs les plus nocifs dans des couches géologiques profondes. La France a opté pour un enfouissement à 500 mètres dans une couche d'argile de 130 mètres d'épaisseur. Elle est censée assurer l'isolement de la radioactivité pendant plusieurs centaines de milliers d'années. La création d'une telle installation près de Bure, en Meuse - Haute-Marne, est en cours d'instruction. Baptisée Cigéo, elle accueillera les premiers déchets dans plusieurs décennies.

Nous sommes dans l'Aveyron, à Tourmemire, à 250 mètres sous terre, dans un ancien tunnel ferroviaire. L'eau, provenant d'un aquifère calcaire, suinte des parois. Dans un recoin, elle coule à travers un bac au fond duquel sont plongés une centaine de petits cylindres de 3 centimètres de diamètre sur 1 centimètre de hauteur. Ces échantillons apparemment insignifiants sont des pâtes de ciment et des bétons. En 2010, c'est grâce à eux que les chercheurs et chercheuses de l'IRSN ont révélé un phénomène peu étudié par la communauté scientifique : la précipitation de phases appelées « magnésiennes » dans les bétons dits « bas pH ». « Nous testions deux formulations de ces bétons envisagées pour Cigéo en plus du béton Portland, classiquement utilisé dans le génie civil », raconte Alexandre Dauzères, responsable du Laboratoire d'étude et de recherche sur les transferts et les interactions dans les sous-sols (LETIS) à l'IRSN. « En caractérisant les échantillons afin d'estimer leur évolution chimique et mécanique, nous avons découvert ces précipités magnésiens. » Problème : dans certaines conditions, ils produisent un endommagement des échantillons en quelques mois seulement.

Le laboratoire souterrain où ont été menées ces expérimentations est installé dans un ancien tunnel ferroviaire acquis par l'IRSN en 1992. Long de 1885 mètres, il dispose de six galeries creusées dans une formation argileuse similaire à celle où l'Andra (Agence nationale pour la gestion des déchets radioactifs) prévoit de construire Cigéo. « Depuis trente ans, nous y scrutons l'évolution de l'argile exposée à des environnements de stockage sur les plans minéralogiques, chimiques, mécaniques, ainsi que le transfert de l'eau et des éléments en solution », poursuit le chercheur. « Ces études sont très complexes du fait de la multitude de mécanismes impliqués et des interactions à caractériser puis à modéliser sur des millénaires entre des matériaux pour lesquels les connaissances sur ces durées sont limitées. » Les recherches actuelles portent, d'une part, sur la dégradation chimique, mécanique, hydrique et thermique des composants et, d'autre part, sur les outils de surveillance utilisés durant les cent cinquante ans d'exploitation de Cigéo, le temps prévu pour construire le stockage et y déposer les déchets.

La sûreté des systèmes de fermeture

Le projet Cigéo concerne les déchets radioactifs les plus nocifs, les résidus du traitement et du recyclage du combustible nucléaire pour l'essentiel, soit 3 % de nos déchets nucléaires. Actuellement, ils sont entreposés dans des installations de surface à La Hague, Cadarache ou Marcoule. L'intérêt de la roche argileuse est qu'elle est très peu perméable : l'eau, piégée dans sa microstructure au cours des temps géologiques, s'y déplace de quelques centimètres par million d'années. Le risque de voir la radioactivité migrer jusqu'à la surface ou atteindre les aquifères, principalement lié à la diffusion des radionucléides contenus dans l'eau, est faible. Cigéo comporte un réseau de puits, descenderies et galeries tapissées de béton armé. Ces infrastructures doivent être opérationnelles tout au long de la phase d'exploitation, le stockage devant rester réversible. Si ces bétons ne résistent guère plus de cent ans, leurs fissures seraient réparables tant que les ouvrages restent accessibles. Après la fermeture du stockage, les infrastructures, remplies de déblais issus des creusements, seraient immergées d'eau en quelques millénaires, les ouvrages se dégradant alors sans affecter la sûreté. Il est toutefois capital d'assurer la performance des systèmes de fermeture du stockage à l'issue de l'exploitation. À ce jour, l'Andra prévoit des scellements constitués d'un bouchon de 35 mètres de long sur 10 mètres de diamètre dans une argile particulièrement gonflante qui peut gagner dix fois son volume en se réhydratant. Elle aurait alors les mêmes propriétés que la roche. Baptisée « bentonite », cette argile est couramment utilisée pour

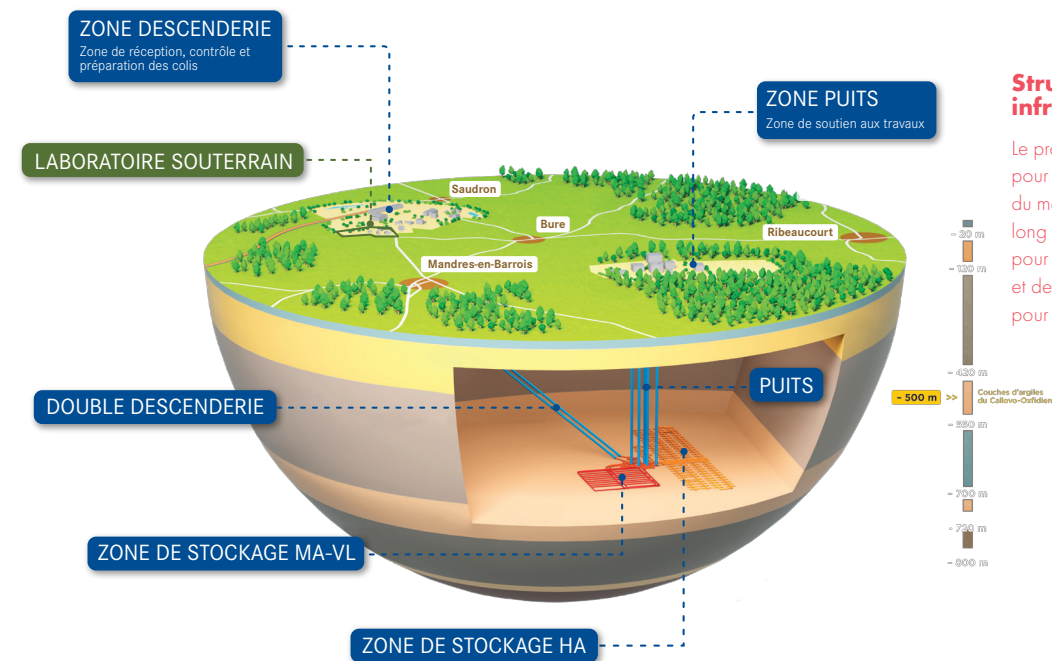
l'étanchéité d'édifices, la construction de digues ou le comblement de carrières. Son gonflement s'opérerait avec le retour de l'eau dans les puits et descenderies, provenant de l'aquifère calcaire présent au-dessus du stockage. Cette déformation serait contenue de part et d'autre par un ouvrage en béton (un « massif d'appui ») d'une dizaine de mètres de long conçu pour résister pendant plusieurs centaines de milliers d'années à la contrainte mécanique engendrée.

Des bétons bas pH

Une des options considérée à ce stade de développement de Cigéo pour ces scellements est une nouvelle formulation cimentaire, développée spécifiquement. Car couler de tels gros blocs de béton peut poser problème quant à leur de tenue à long terme en raison d'une montée en température trop importante à cœur. Rappelons que le béton est fabriqué à partir de ciment, une poudre minérale sèche à base de calcaire et d'argile qui durcit quand on la mélange avec de l'eau : cela produit un liant appelé C-S-H (silicate de calcium hydraté). Cette hydratation entraîne une réaction exothermique liée à la quantité de ciment. Pour la limiter, des bétons contenant moins de ciment ont été développés depuis les années 2000 par les différents organismes en charge du stockage géologique des déchets radioactifs.

Dans ces nouvelles formulations, nommées « bétons bas pH », près des deux tiers du ciment est remplacé par des matériaux pouzzolaniques, à haute teneur en silice, de type cendres volantes ou fumée de silice. Ceux-ci font baisser le pH de l'eau qui subsiste dans les micropores du béton. Dans le cas du béton Portland, cette eau est très alcaline (pH 13 à 13,5) en raison de la potasse caustique (KOH)

LE PROJET DE STOCKAGE CIGÉO



Structure du site et ses infrastructures

Le projet Cigéo comporte des puits pour la circulation du personnel et du matériel, une double descenderie, long tunnel incliné de 5 kilomètres pour acheminer les colis de déchets, et des galeries menant aux alvéoles pour stocker ces colis.



COMMENT RÉAGIT LE BÉTON BAS pH EXPOSÉ À L'EAU ARGILEUSE



Schéma d'un scellement de descenderie dans Cigéo d'après l'Andra (dossier de DAC - 2023)

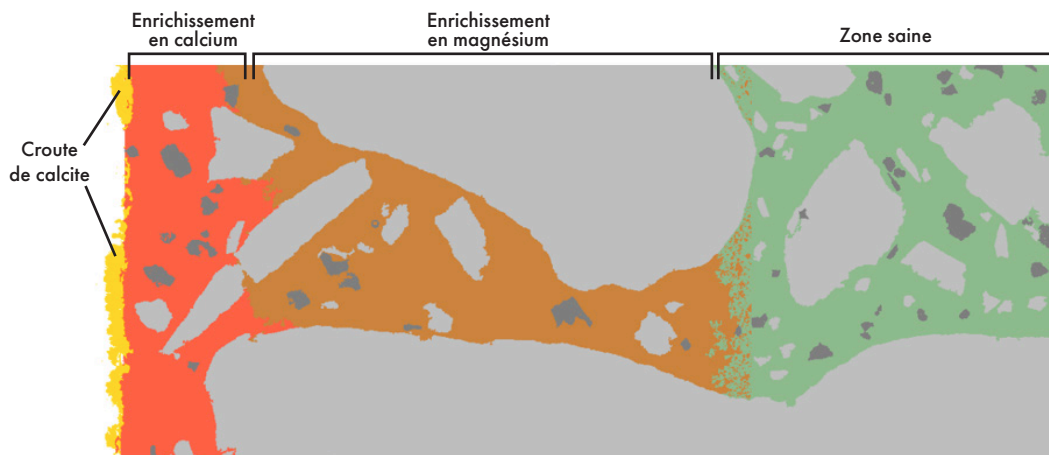


Illustration des mécanismes de dégradation dans un béton bas pH

et de la soude (NaOH) provenant du ciment. Le pH se limite à 11,5 dans le cas des bétons bas pH.

La surprise de l'attaque magnésienne

« Depuis 2008, nous testons en laboratoire la tenue des bétons bas pH lorsqu'ils sont exposés à l'eau argileuse, précise Alexandre Dauzères. Cette eau, dont le pH est neutre, est multi-ionique : elle contient des carbonates, du magnésium, des sulfates... Cela produit trois grands types de perturbations chimiques : la lixiviation, qui conduit à la dissolution de certains minéraux du béton, la carbonatation (liée à la présence de CO_2) qui crée des microfissurations, et l'attaque magnésienne, qui provoque la formation de silicates de magnésium hydratés (ou M-S-H) à l'interface avec l'argile. »

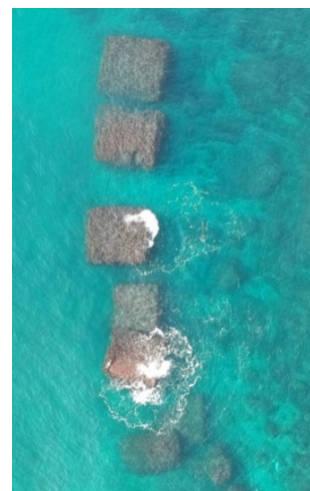
Depuis la découverte du phénomène, trois thèses ont été menées à l'IRSN sur ce précipité magnésien. Ses impacts méritent en effet d'être étudiés avec soin. Car les M-S-H formés remplacent totalement ou partiellement la matrice cimentaire à base de C-S-H. « Or ils ont des propriétés moins cohésives, poursuit-il. Cela explique le vieillissement prématuré que nous avons observé, avec des fissures importantes apparues en seulement quatre mois. »

Les résultats obtenus par l'IRSN ont permis de mettre à jour les bases de données thermodynamiques internationales qui recensent les précipités et les réactions chimiques, sur lesquelles reposent les modélisations de tenue à long terme du béton. Grâce à ces dernières, on peut vérifier le comportement du béton aux échelles micro et macroscopique dans n'importe quel environnement aqueux.

« Notre code de calcul est fondé sur ces bases de données, enrichies de nos propres résultats, sur des lois thermodynamiques et sur un modèle de transport réactif, souligne le chercheur. Aujourd'hui, grâce à la prise en compte de l'attaque magnésienne, nos modélisations sont en parfait accord avec les résultats de nos expérimentations à l'échance de cinq à six ans. »

Et pour s'assurer que les prévisions de vieillissement du béton sont valides et permettent de simuler l'évolution à long terme, le code de calcul sera testé sur des analogues archéologiques de béton pouzzolaniques dans le cadre d'une nouvelle thèse. Les modélisations auront lieu, d'une part, sur des échantillons prélevés sur des piles d'un pont romain construit il y a deux mille ans, aujourd'hui immergées dans la baie de Naples (Italie), et, d'autre part, sur un béton similaire reconstitué par une équipe d'archéologues et plongé depuis vingt ans dans la mer au large de Brindisi, ce qui fournit une donnée à moyen terme. Et pour avoir en outre des références à très court terme, l'IRSN fabrique ces mêmes bétons et les fera tremper dans de l'eau de mer pour pouvoir les comparer aux échantillons précédents, sachant que les principes de chimie thermodynamique sont les mêmes qu'en eau douce.

« Si nos résultats sont en bonne adéquation sur un béton immergé quelques mois, vingt ans ou deux millénaires, nous pourrions avoir confiance dans notre base de données et dans nos modèles, conclut Alexandre Dauzères. D'autant plus que l'environnement de Cigéo, moins salin, est chimiquement moins complexe à modéliser. » ■



Comme l'attestent les analyses des restes de piles de pont à Pouzzoles, près de Naples (Italie), les Romains avaient inventé et utilisaient déjà des formulations de bétons très proches des bétons bas pH quant à leur composition.