
Propriétés physico-chimiques et comportement différé des matériaux cimentaires sous irradiation γ

**M. Robira^{1,2,3}, B. Hilloulin², A. Loukili², G. Potin¹, P. Buisson¹, A. Abdelouas³,
M. Fattahi³, X. Bourbon⁴**

¹ Tractebel Engineering – Le Delage, 5 rue du 19 Mars 1962 92622 Gennevilliers CEDEX France

² Laboratoire GeM – Ecole Centrale de Nantes, 1 rue de la Noë 44321 Nantes

³ Laboratoire SUBATECH – Ecole des Mines de Nantes, CNRS/IN2P3, Université de Nantes 4 rue Alfred Kastler 44307 Nantes cedex 3 France

⁴ Agence nationale pour la gestion des déchets radioactifs – 1-7, Rue Jean-Monnet – 92298 Chatenay-Malabry Cedex

RÉSUMÉ.

Le projet du Centre Industriel de stockage Géologique porté par l'Andra (Agence nationale pour la gestion des déchets radioactifs) doit permettre le stockage des déchets MA/VL (Moyenne Activité Vie Longue) et HA (Haute Activité) à 500 mètres de profondeur dans une couche d'argilite imperméable. Le sujet de cette thèse s'intègre dans ce contexte. L'objectif principal est d'étudier les effets d'une irradiation gamma externe à faibles débits de dose, sur le comportement physico-chimique et thermo-hydrromécanique de formulations de bétons du type de celles susceptibles d'être utilisées dans les structures ou éléments stockés dans les galeries souterraines. Les bétons sont irradiés dans un irradiateur γ ($E = 0,667$ MeV, $TEL = 0,23$ keV. μm^{-1}) sur le site du cyclotron ARRONAX (Saint-Herblain, France). Ils subissent ensuite des contraintes mécaniques de type flexion et compression. La variation de la résistance en flexion et en compression est observée après irradiation sur différents matériaux (mortier sec ou humide).

ABSTRACT.

The project of Centre Industriel de stockage Géologique or CIGEO supported by Andra (Agence nationale pour la gestion des déchets radioactifs) will allow to store intermediate-level and high-level wastes at 500 meters deep in an impermeable argillaceous rock. The subject of this PhD thesis is situated in this context. The main objective is to study the effects of a lower dose rate external gamma irradiations on the physico-chemical and hydro-thermo-mechanical behavior of concrete which could be used in the CIGEO structures and elements, both of which are to be stored in underground galleries. The concrete is irradiated in a γ irradiator ($E = 0,667$ MeV, $LET = 0,23$ keV. μm^{-1}) and subsequently subjected to bending and compressive mechanical stress. These tests are made at the ARRONAX cyclotron site (Saint-Herblain, France). The variation of compressive and bending strength after irradiation was measured for different materials (humid mortar and dried mortar).

MOTS-CLÉS : mortier, irradiation, propriété mécaniques, gamma, Cigéo.

KEY WORDS: mortar, irradiation, mechanical properties, gamma, Cigéo.

1. Introduction

Faisant l'objet d'études menées depuis la fin des années 1990, Cigéo (Centre Industriel de Stockage Géologique) aura pour but de stocker les déchets de haute activité et de moyenne activité à vie longue (déchets HA et MA/VL). La durée d'exploitation d'un tel site est aujourd'hui de l'ordre de 100 à 120 ans pour les déchets dont l'isolation doit être assurée sur des durées pluri-séculaires à pluri-millénaires. Des études antérieures menées par l'Andra dans le cadre du dossier de faisabilité rendu au gouvernement en 2005 [AND 05] ont montré que les structures de l'installation de stockage de déchets MA/VL pouvaient être soumises à des variations de température comprises entre 20°C et 50°C et d'humidité relative pouvant varier entre 25 % et 90 % en fonction des conditions d'exploitation (débit de ventilation, exothermicité de certains déchets, ...). Le béton de la structure est également soumis à des contraintes physiques telles que la pression du milieu géologique de l'ordre de 20 MPa (contraintes litho- et hydrostatique) ou l'irradiation émanant des conteneurs de déchets déterminée par l'Andra comme étant de quelques Gy/h au contact des colis de déchets à moins d'un Gy/h dans les structures de stockage [AND 05].

Un premier mécanisme de dégradation des bétons sous rayonnement met en jeu la radiolyse de l'eau principalement par le biais de la production d'hydrogène au sein du matériau. Bien que la radiolyse de l'eau soit un phénomène connu, [BOU 08], [KON 10], les conséquences physiques qu'elle engendre sont très rarement étudiées. Récemment [FIE 15], l'évolution des propriétés mécaniques de matériaux cimentaires sous irradiation neutronique a été mise en avant montrant une modification du comportement physique du béton après irradiation. En effet, la littérature montre une dégradation de la résistance en compression du béton de l'ordre de 30 % après irradiation (10^{20} n/cm²). De nombreux auteurs s'accordent sur le fait que le phénomène d'expansion de la matière ou RIVE (Radiation Induced Volumetric Expansion) est le phénomène prédominant au sein d'un béton à la suite d'une forte irradiation (10^{20} n/cm²) [LEP 15], [GIO 15]. Cependant il est important de noter que ces observations ont été réalisées à partir d'irradiations extrêmement importantes (neutron : 10^{20} n.cm⁻², gamma : 10^8 Gy [HIL 78]). Peu d'études traitent des effets des rayonnements γ sur la matière cimentaire et encore moins à des débits de dose assez faibles. La majeure partie des études s'accorde à montrer une dégradation du matériau se traduisant par une diminution de sa résistance en traction, en flexion ou en compression ainsi que de son élasticité.

Le principal objectif du présent article est de mettre en avant les modifications des propriétés mécaniques d'un matériau cimentaire à la suite d'une irradiation γ de faible débit de dose. Dans ce but, des échantillons de mortier sont irradiés sous faibles débits de dose de rayonnement gamma (environ 8,5 Gy/min). Les résistances en compression et en flexion sont ensuite déterminées et comparées à celles obtenue sur des échantillons sains n'ayant subi aucune irradiations.

2. Formulation, fabrication et irradiation

Les échantillons de mortier sont préparés à partir de ciment CEM I (ULTRACEM 52,5 N SR3PM) et de sable calcaire (sable 0/4 prélevé à INST. CRIB. LAV. BARVILLE). Les proportions utilisées sont détaillées dans le tableau 1. Les produits organiques étant très sensibles aux irradiations, aucune huile pour le démoulage ou de superplastifiants ne sont utilisés lors de la préparation des échantillons. Par ailleurs, des moules en polypropylène ont été préférés à des moules en acier afin d'éviter une pollution des échantillons au fer, élément sensible à l'irradiation. Douze éprouvettes de mortier de dimension $4 \times 4 \times 16$ cm³ sont préparées. Après coulage, les échantillons sont vibrés et maintenus en conditions endogènes dans une salle humide (température 20 °C et HR 90 %). Après 24 h, les éprouvettes sont démoulées puis placées en cure dans une solution d'eau saturée en chaux jusqu'à atteindre un âge de 28 jours. Une fois la cure terminée une première série de 6 éprouvettes subit un séchage de 14 jours en étuve ventilée, à une température de 45 °C (jusqu'à masse constante mesurée à partir de 12 jours de séchage). Les 6 éprouvettes restantes sont maintenues après cure en conditions endogènes avec un emballage aluminium et scellées dans un sac étanche placé en salle humide (20°C, 90 % HR). Deux séries sont ainsi préparées : une série de 6 éprouvettes de mortier sec et une série de 6 éprouvettes de mortier humide. Pour chaque série, 3 éprouvettes sont irradiées sous rayonnement γ pendant 21 jours (irradiateur γ source ¹³⁷Cs, E = 661 keV). Après trois semaines d'irradiation, les échantillons ont reçu une dose cumulée d'environ 257 kGy (dose déterminée par la méthode de Fricke [FRI 66], avec un débit de dose moyen de 510 Gy/h). Les 3 éprouvettes non irradiées sont entreposées en salle climatisée (20 °C et 50 % HR) afin de servir de références.

Tableau 1. Composition des mortiers.

Ciment	Sable calcaire 0/4	Eau	E/C	Volume de pâte
(kg/m ³)	(kg/m ³)	(kg/m ³)		(%)
566	1344	270	0,43	45

Deux séries d'échantillons sont donc préparées (avec dans chaque cas une référence non irradiée à comparer aux échantillons irradiés) :

- Série 1 : 3 éprouvettes de mortier sec irradiées (MS-257kGy-I1, MS-257kGy-I2, MS-257kGy-I3) et 3 éprouvettes de mortier sec saines (MS-257kGy-S1, MS-257kGy-S2, MS-257kGy-S3),
- Série 2 : 3 éprouvettes de mortier humide irradiées (MH-257kGy-I1, MH-257kGy-I2, MH-257kGy-I3) et 3 éprouvettes de mortier humide saines (MH-257kGy-S1, MH-257kGy-S2, MH-257kGy-S3).

3. Résultats et analyses

La comparaison des résultats de flexion obtenus sur mortier sain et irradié (figure 2) montre une chute de 20 % de la résistance en flexion après irradiation pour les mortiers secs et de 15 % pour les mortiers humides. Ces observations sont bien en accord avec les données issues de la littérature. Vodak et al. [VOD 05] observent une diminution de la résistance en flexion de l'ordre de 10 % dès 5.10^5 Gy. Dans le cas de la résistance en compression, une chute de 9 % pour les mortiers secs et 4.5 % pour les mortiers humides est observée, elle aussi en accord avec la littérature montrant une diminution de la résistance en compression sous rayonnement pouvant aller jusqu'à 30 % dès 100 kGy [VOD 05], [SOO 01]. Des analyses par spectroscopie infrarouge à transmission (ATR) ne montrent pas de variation chimique du matériau après irradiation (figure 1). Un suivi de la porosité par porosimétrie à l'eau et au mercure met en évidence que pour un volume de vide identique avant et après irradiation (20 % dans les deux cas), le volume de macroporosité diminue au profit du volume de microporosité.

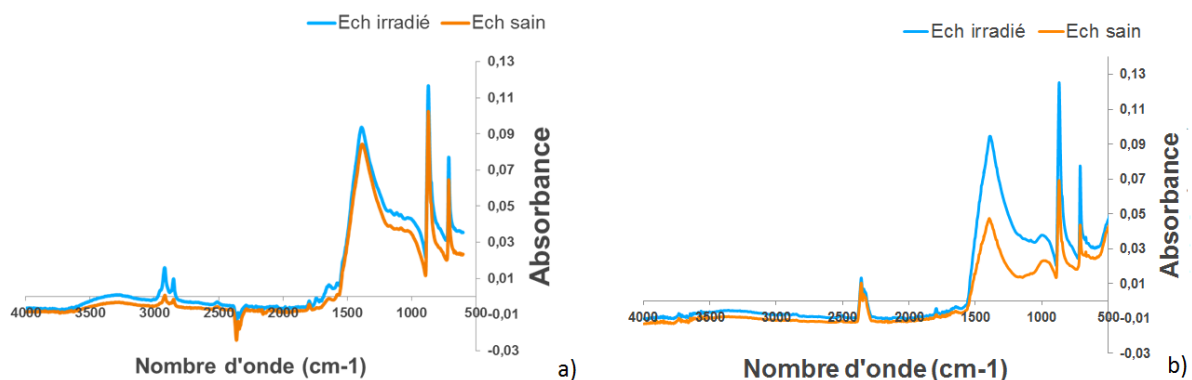


Figure 1. Spectres ATR d'échantillons de mortiers sec a) et humide b), sains et irradiés.

La comparaison des échantillons sains aux échantillons irradiés de mortier sec ou humide montre une diminution de la résistance en flexion et de la résistance en compression. La comparaison des deux séries montre une diminution de la résistance en flexion identique mais une diminution de la résistance en compression deux fois moins importante dans le cas d'un mortier humide. La teneur en eau du matériau joue donc un rôle dans la modification des résistances mécaniques des matériaux cimentaires sous irradiations.

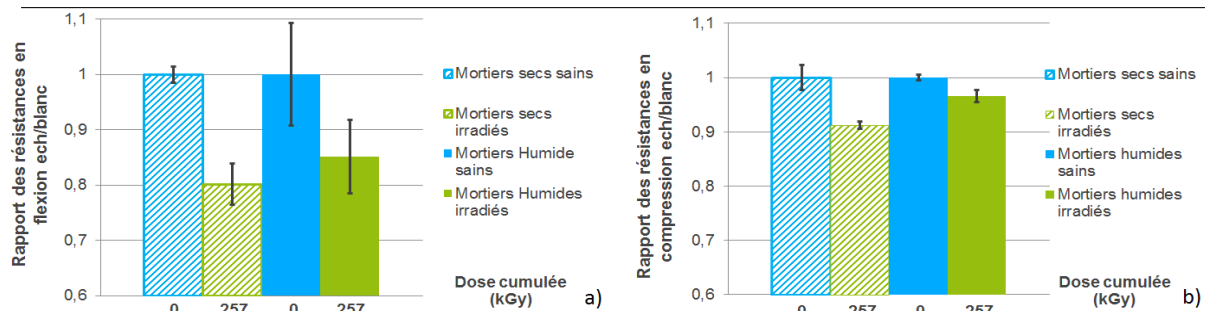


Figure 2. Résistance en flexion a) et en compression b) normalisées d'échantillons de mortiers sec et humide, sains et irradiés.

4. Conclusion

Des essais mécaniques ont été réalisés sur des échantillons de mortier sec et humide, après irradiation γ et comparés à des essais réalisés sur des échantillons de mortier sec et humide non irradiés. Ils ont mis en avant un comportement identique du matériau à celui observé dans la littérature sous fort débit de dose. En effet, une diminution importante de la résistance en flexion ainsi que de la résistance en compression a pu être observée après irradiation γ à faible débit de dose sur les deux séries réalisées.

De plus, la teneur en eau joue également un rôle important. En effet, la diminution de la résistance en compression après irradiation est moindre dans le cas d'un échantillon comportant beaucoup d'eau. Il est à noter qu'aucune modification de phase et aucun changement de porosité ouverte totale n'a pu être démontré. La distribution de l'eau et son comportement sous irradiation ainsi que la saturation totale du matériau semble donc être à l'origine de la modification des propriétés mécaniques du mortier. Des études complémentaires sont en cours sur des systèmes plus simples représentant les différentes phases du matériau (calcite, CSH ...) sous différentes conditions d'irradiation (pastilles, suspensions ...). Ces essais auront pour but de mettre en avant le comportement sous irradiations des différentes phases du matériau et d'expliquer par une étude microscopique les modifications macroscopiques observées.

5. Bibliographie

- [AND 05] ANDRA, Architecture and management of a geological repository, rapport de recherche, 2005.
- [BOU 08] BOUNIOL A., BJERGBAKKE E., « A comprehensive model to describe radiolytic processes in cement medium », *Journal of Nuclear Materials*, 372:1 – 15, 2008.
- [FIE 15] FIELD K.G., REMEC I., LE PAPE Y., « Radiation effect in concrete for nuclearpower plants – Part I: quantification of radiation exposure and radiation effects », *Nuclear Engineering and Design*, 282:126 – 143, 2015.
- [FRI 10] FRICKE H., HARTE J., « Chemical Dosimetry, Radiation Dosimetry », *Academic Press : New York, USA*, 1966.
- [GIO 15] GIORLA A., VAITOVÀ M., LE PAPE Y., SEMBERK P., « Meso-scale modeling of irradiated concrete in test reactor », *Nuclear Engineering and Design*, 295:59 – 73, 2015.
- [HIL 78] HILSDORF H.K., KROPP J., KOCH H.J., The effects of nuclear radiation on the mechanical properties of concrete, rapport de recherche, ACI SP-55, 1978.
- [KON 10] KONTANI O., ICHIKAWA A., ISHIZAWA A., TAKIZAWA M., SATO O., « Irradiation effects on concrete structures », International Symposium of the Ageing Management & Maintenance of Nuclear Power Plants, 2010.
- [LEP 15] LE PAPE Y., FIELD K.G., REMEC I., « Radiation effects in concrete for nuclear power plants, Part II: Perspective from micromechanical modeling », *Nuclear Engineering and Design*, 282:144 – 157, 2015.
- [SOO 01] SOO P., MILLIAN M., « The effect of gamma radiation on the strength of Portland cement mortars », *Journal of Materials Science Letters*, 20(14):1345 – 1348, 2001.
- [VOD 05] VODÁK F., TRTIK K., SOPKO V., KAPICKOVÁ O., DEMO P., « Effect of γ -irradiation on strength of concrete for nuclear-safety structures », *Cement and concrete Research*, 35(7):1447 – 1451, 2005.