Programme de R & D belge relatif aux déchets de moyenne et de haute activité

Expériences menées dans le laboratoire souterrain HADES dans l'argile de Boom

Ann Dierckx et Robert Gens

Résumé Le laboratoire souterrain HADES est creusé dans l'argile de Boom, formation de référence sélectionnée en

Belgique pour l'étude du stockage des déchets nucléaires. Des expériences relatives aux effets produits par les déchets vitrifiés sur les matériaux y sont menées (projets CERBERUS et CORALUS). Des tests sont également faits sur le comportement des radionucléides : eau tritiée, percolation du ¹³⁴Cs durant sept ans, migration en 3D, percolation de l'américium et du technétium. La caractérisation géochimique de l'argile a aussi été étudiée (expériences ARCHIMEDE, ORPHEUS, MORPHEUS, PEGASUS). Les mesures in situ sont compétées par des expériences faites en laboratoire de surface ainsi que par la modélisation.

Mots-clés Laboratoire souterrain, irradiation, matériaux, migration.

Abstract Belgian R&D program on waste of medium or high activity carried on in the underground laboratory

HADES in Boom clay

The HADES underground laboratory sits in the Boom clay geological formation selected in Belgium for the study of radioactive waste disposal. The experimental work carried out in the laboratory includes the following: study of the effects of vitrified waste on the surrounding materials (projects CERBERUS and CORALUS), tests on the behaviour of some radionuclides (tritiated water, ¹³⁴Cs percolation during seven years), 3D migration, percolation of americium and technetium, geochemical characterization (projects ARCHIMEDE, ORPHEUS, MORPHEUS, PEGASUS). The in situ experimentation is supplemented by

surface laboratory experimentation as well as by modelling studies.

Keywords Underground laboratory, irradiation damage, migration of radionuclides.

L'ONDRAF (Organisme national des déchets radioactifs et matières fissiles enrichies) considère l'argile* de Boom comme la formation-hôte de référence pour la recherche et l'évaluation d'une solution de dépôt en profondeur pour les déchets MAVL* et HA*; l'objectif étant de démontrer qu'il existe une solution sûre pour la gestion à long terme de ces déchets et qu'elle peut être mise en œuvre sans préjuger de l'endroit où, le cas échéant, cette mise en œuvre aura lieu. La zone nucléaire de Mol-Dessel est considérée comme le site de référence pour les études méthodologiques relatives à l'argile de Boom [1-2], qui est une argile silteuse peu indurée appartenant au Rupélien et située à une profondeur comprise entre 290 et 190 m sous la zone nucléaire de Mol-Dessel. Le programme de R & D a débuté en 1974 au Centre d'Études Nucléaires de Mol (SCK-CEN).

Parallèlement aux recherches réalisées dans les installations de surface, des études sont également conduites dans le laboratoire souterrain HADES (« high-activity disposal experimental site »), opérationnel depuis 1984. Depuis sa mise en service, diverses générations d'expériences in situ se sont succédées. Celles-ci portent entre autres sur la géochimie de l'argile de Boom, le comportement des radionucléides* (transport et chimie), ainsi que sur le comportement de divers matériaux susceptibles d'être présents dans le champ proche (matériaux cimentaires et métalliques, déchets vitrifiés) [3-4]. Les expériences relatives aux déchets vitrifiés, au comportement des radionucléides et à l'acquisition des paramètres géochimiques de l'argile de Boom font l'objet du présent article.

Étude du comportement des déchets vitrifiés

Une spécificité des études relatives au comportement des verres menées dans le cadre du programme belge est la réalisation de tests dans le laboratoire souterrain avec des échantillons de verres inactifs et faiblement dopés. Un des avantages des expériences in situ est le maintien sur de longues périodes de conditions stables représentatives de celles qui prévaudront en évacuation (contrôle plus aisé des conditions expérimentales). Les expériences in situ permettent d'atteindre des taux de réaction très avancés avec un nombre élevé d'échantillons représentatifs de différents types de verre et ce dans des conditions identiques. Parmi les différents types de verre testés figurent les verres PAMELA, produits par l'ancienne usine de retraitement

Eurochemic située sur le site de Belgoprocess à Dessel, et les verres SYNATOM, produits par l'usine de retraitement COGEMA située sur le site de La Hague.

Différentes techniques d'analyse ont été appliquées dont la spectrométrie de masse d'ions secondaires (SIMS), particulièrement bien adaptée pour l'analyse de surface des échantillons. Des données fondamentales ont été obtenues sur les mécanismes de dissolution des verres. La durabilité des déchets vitrifiés (« input data » requises pour les évaluations de sûreté) a été inférée entre autres des données de tests in situ de longues durées. Trois comportements distincts en fonction du temps ont été mis en évidence à partir des mesures de perte de masse des échantillons [5] : une vitesse de dissolution proportionnelle à \sqrt{t} , à t et à t^2 . Les profils d'analyse SIMS confortent les hypothèses avancées quant aux mécanismes de dissolution postulés. En partant du verre sain, trois zones, dont l'importance relative varie d'un cas de figure à l'autre, ont été identifiées : une zone de diffusion, une zone altérée (« gel layer ») et une zone de précipitation [6]. Pour les durées et les conditions expérimentales appliquées, on observe selon les cas de figure soit une dissolution congruente, soit une dissolution sélective (lixiviation* préférentielle de certains éléments).

Parmi les diverses expériences conduites dans le laboratoire souterrain HADES, on mentionnera en particulier le projet CERBERUS (« control experiment with radiation of the Belgian repository for underground storage »).

L'expérience CERBERUS [7], menée de 1987 à 1998, constitue la principale étude in situ des effets occasionnés sur l'argile de Boom ainsi que sur différents matériaux potentiels pour le champ proche par la mise en dépôt d'un colis de déchets vitrifiés (présence de sources 60Co destinées à créer un champ de rayonnement gamma représentatif d'un tel colis, température amenée dans la formation argileuse à dépasser 100 °C par endroits). Le dispositif expérimental est illustré à la figure 1. Les résultats rapportés dans le cadre de cette expérience montrent que l'irradiation gamma n'a pas d'influence significative sur le comportement des verres dans l'argile [7].

Un autre projet d'envergure est le projet européen CORALUS (« Corrosion of active glass in underground storage conditions »), débuté en 1996 et qui se poursuivra pour les tests de plus longues durées (10 ans) jusqu'en 2013. Il s'agit de tests intégrés réalisés à 30 et 90 °C, en présence et en l'absence d'un champ d'irradiation gamma (représentatif d'un colis de verre réel), et avec différents matériaux de remblayage répartis sur quatre tubes d'essai modulaires différents (figure 2). Outre des échantillons inactifs, des échantillons de verre dopés avec des teneurs en neptunium, plutonium et américium correspondant aux quantités nominales du verre réel SYNATOM (COGEMA) sont utilisés [8-9].

Comportement des radionucléides dans l'argile de Boom

Des tests de migration in situ ont été entrepris aussi bien avec des éléments peu ou non sorbés qu'avec des éléments fortement sorbés. Les objectifs des tests réalisés dans le laboratoire souterrain sont :

• de vérifier l'applicabilité des paramètres de migration déterminés en laboratoire de surface (aussi bien pour les

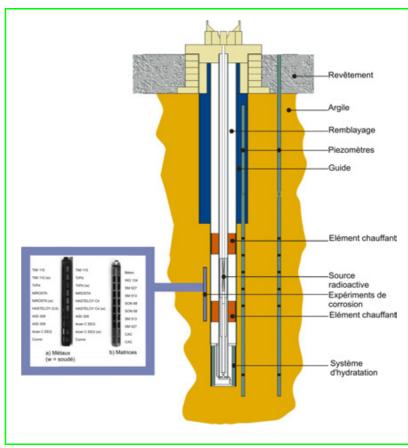


Figure 1 - Schéma de l'expérience in situ CEBERUS.



dans le cadre de l'expérience in situ CORALUS.

espèces peu ou non sorbées que pour les espèces fortement retardées);

• de tester les modèles de migration à grande échelle (augmentation linéaire de l'échelle d'un facteur 50 entre les

Tableau I - Facteurs et/ou processus déterminant le comportement des radionucléides dans l'argile de Boom.
?: à confirmer, +: espèces faiblement ou modérément retardées, ++: espèces fortement retardées.

•	Cs	C(HCO ₃ -)	Se	Тс	Pd	U	Np	Pu	Am	Cm
			+	+		+	+	+		
								+(?)	+	+
+		+								
								+(?)	+	+
	++	+(?)				+	+	++	++	++
			+	+	+	+	+			
	+			+ + + +(?)	+ + +(?)	+ + + +(?)	+ + + +(?) +	+ + + +(?) + +	+ + + +(?) + + + ++	+ + + + + + + + + + + + + + + + + + +

tests en laboratoire de surface réalisés sur des carottes d'argile et les tests in situ réalisés dans le laboratoire souterrain). Cette partie du programme ne concerne que les espèces peu ou non sorbées (eau tritiée ou HTO, I⁻, H¹⁴CO₃⁻).

L'argile de Boom à l'aplomb de la zone nucléaire de Mol-Dessel étant caractérisée par une conductivité hydraulique verticale (K_V ≈ 2.10⁻¹² m/s) et un gradient hydraulique naturel (2 m de colonne d'eau sur 100 m d'épaisseur d'argile) très faibles, la migration des radionucléides y est essentiellement contrôlée par la diffusion ; l'advection (convection) ne jouant qu'un rôle secondaire. Deux tests réalisés in situ dans le laboratoire souterrain illustrent très bien cette propriété, dont un, celui réalisé avec de l'eau tritiée, met en jeu des échelles spatiales et temporelles importantes [10].

Un test de migration à l'échelle métrique, débuté en 1988, démontre sans ambiguïté que la migration de l'eau tritiée relève d'un processus diffusif. Les résultats expérimentaux obtenus jusqu'à présent sont en effet en très bon accord avec les prédictions théoriques calculées à partir d'un modèle strictement diffusif utilisant les paramètres déterminés dans le cadre de tests en laboratoire de surface.

Un test de percolation avec du 134Cs mené durant sept ans sous un gradient hydraulique très élevé (600 à 1 300, alors que le gradient naturel est de 0,02) indique un effet de percolation insignifiant (profil d'activité dans la carotte d'argile quasiment symétrique par rapport à la position initiale de la source), démontrant ainsi que, même dans ces conditions extrêmes, la migration du césium reste essentiellement déterminée par la diffusion.

Un test de migration en trois dimensions a débuté en 1996 (injection d'un cocktail de carbonates marqués au 14C

et d'eau tritiée). Les données inhérentes à l'eau tritiée sont conformes aux prédictions théoriques. Des difficultés expérimentales rendent les mesures relatives aux ions bicarbonate actuellement peu fiables (évaluation des procédures en cours).

Dans le cadre de l'expérience CERBERUS, un test de percolation avec de l'américium (actinide trivalent très sensible à la complexation par la matière organique) et le technétium (élément très sensible au potentiel redox) a été réalisé. Aucun effet significatif dû au réchauffement et à l'irradiation n'a été observé pour ces deux éléments [1, 7].

Les facteurs et/ou processus déterminant le comportement des radionucléides dans l'argile de Boom sont repris dans le tableau I [2].

Acquisition des paramètres géochimiques de l'argile de Boom

Des études concernant la caractérisation géochimique de l'argile ont aussi été menées dans le laboratoire souterrain. L'expérience ARCHIMEDE (« acquisition et régulation de la chimie des eaux en milieu argileux pour le stockage de déchets radioactifs en formation géologique ») a significativement amélioré les connaissances dans ce domaine [11]. L'expérience ORPHEUS (« oxidation reduction potential and pH experimental underground station »), visant spécifiquement à la détermination du pH et du potentiel redox (Eh), a été installée dans le laboratoire souterrain fin 2000 [12-13]. Les résultats acquis jusqu'à présent corroborent ceux rapportés précédemment. Un schéma de l'expérience est présenté à la figure 3.

L'expérience MORPHEUS (« mobile organic matter pore water extraction in the HADES experimental underground site), mise en place dans le laboratoire souterrain en 2001, permet d'échantillonner l'argile sur une épaisseur de l'ordre de 40 m (phases solide et liquide) et de suivre l'évolution du milieu en fonction du temps après la mise en place du piézomètre. L'un des principaux objectifs de cette expérience est la caractérisation de la matière organique [14]. Les résultats d'analyses des échantillons prélevés montrent des variations au niveau de la composition de l'eau interstitielle* argileuse. Ces variations peuvent généralement être expliquées sur base du modèle « Boom clay equilibrium » existant, lequel s'applique à un système considéré à l'équilibre. Ce modèle

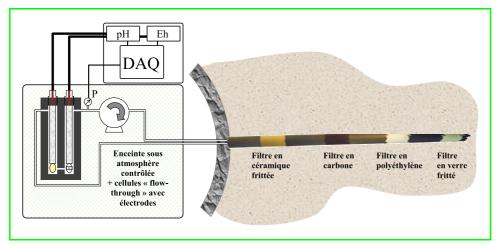


Figure 3 - Schéma de l'expérience in situ ORPHEUS relative à la mesure du pH et du potentiel redox Eh. DAQ : système d'aquisition des donn

combinant solubilité et échanges ioniques permet d'interpréter les compositions d'eau interstitielle observées.

La détermination de la pression partielle en CO_2 (P_{CO2}) dans les conditions *in situ* est actuellement l'objet de mesures. Il s'agit de l'expérience PEGASUS (« partial pressure evolution of dissolved gases in real underground situations ») qui a débuté en 2004.

Les données acquises dans le cadre de l'expérience CERBERUS indiquent que la composition minéralogique de l'argile de Boom n'est pas significativement modifiée par le réchauffement et l'irradiation, le pH de la solution reste approximativement neutre et son potentiel redox reste réducteur.

L'ensemble des données acquises jusqu'à présent montrent que l'argile de Boom possède une série de caractéristiques géochimiques et physico-chimiques très favorables à la rétention des radionucléides [1-2]:

- milieu réducteur (~ 270 mV/EHS) et légèrement alcalin (pH = 8,2) favorisant la réduction des espèces sensibles au potentiel redox en espèces peu solubles,
- capacité d'échange cationique élevée,
- ultrafiltration des colloïdes, et notamment des colloïdes organiques auxquels sont partiellement associés certains radionucléides, qui limite ainsi leur mobilité.

Conclusion

Afin d'une part d'évaluer le comportement des divers matériaux dans le champ proche, et d'autre part de caractériser la roche-hôte (géochimie de l'argile de Boom, comportement des radionucléides), trois approches sont poursuivies : études in situ dans le laboratoire souterrain HADES, études dans les installations de surface et modélisation. Ces trois démarches contribuent spécifiquement et de façon complémentaire à l'obtention d'arguments visant à démontrer la robustesse du système de dépôt (« confidence building »). Les tests in situ permettent par ailleurs de contrôler et d'imposer aisément des conditions représentatives d'un dépôt sur de longues périodes (conditions stables). Les mesures in situ sont quasiment incontournables pour la détermination de certains paramètres géochimiques de la formation-hôte comme le pH, le potentiel redox ou encore P_{CO2}.

Références

- SAFIR-2: Safety assessment and feasibility interim report 2, Report NIROND 2001-06E, 2001.
- [2] Gens R., Lalieux P., De Preter P., Dierckx A., Bel J., Boyazis J.P., Cool W., The second safety assessment and feasibility interim report (SAFIR-2 Report) on HLW disposal in Boom Clay: overview of the Belgian

- program, Scientific basis for radioactive waste management XXVII, *Mat. Res. Soc. Symp. Proc.*, **2004**, 807, p. 917. Van Iseghem P., Kursten B., Valcke E., Serra H., Fays J., Sneyers A., In
- [3] Van Iseghem P., Kursten B., Valcke E., Serra H., Fays J., Sneyers A., In situ testing of waste forms and container materials: contribution to the identification of their long term behaviour, in Prediction of long term corrosion behaviour in nuclear waste systems, *Proceedings of an international workshop, Cadarache, France, 2002*, European Federation of Corrosion Publications, nr 36, D. Féron, D.D. Macdonald (eds), 2002.
- of Corrosion Publications, nr 36, D. Féron, D.D. Macdonald (eds), **2002**.

 [4] Lodding A., Odelius H., Van Iseghem P., Belgian HLW glasses after burial in Boom Clay: elemental trends in leaching, *In situ testing of radioactive waste forms and engineered barriers, Report EUR 15629*, T. McMenamin (ed.), **1993**.
- [5] Van Iseghem P., Aertsens M., Lemmens K., Lolivier P., Pirlet V., Valcke E., Jiang W., Long-term behaviour of high-level waste forms in clay repository environment, A final report for the AIEA co-ordinated research programme, agreement n° 6795/CF, 1991-1996.
- [6] Lodding A., Van Iseghem P., Corrosion of waste glasses in Boom Clay: studies of element concentration by SIMS, Scientific basis for radioactive waste management XIX, Mat. Res. Soc. Proc., 1996, 412, p. 229.
- [7] Heat and radiation effects on the near field of a HLW or spent fuel repository in a clay formation (CERBERUS Project), L. Noynaert (ed.), European Commission, Report EUR 19125, 2000.
- [8] Ribet I., Van Iseghem P., Valcke E., Crovisier J.-L., Curti E., Del Nero M., Grambow B., Luckscheiter B., Lemmens K., Schwyn B., GLASTAB, CORALUS-II, GLAMOR: Long-term behaviour studies of vitrified highlevel waste, paper presented at the EC Euradwaste'04 conference, Luxembourg. 29-31 mars 2004.
- [9] Van Iseghem P., Valcke E., Godon N., Jockwer N., CORALUS: an integrated in situ corrosion test on α-active glass, Scientific basis for radioactive waste management XXI, *Mat. Res. Soc. Symp. Proc.*, 1998, 506. p. 961.
- [10] De Cannière P., Moors H., Lolivier P., De Preter P., Put M., Laboratory and in situ migration experiments in the Boom Clay, contract CE n° Fl2W-CT90-0039, Report EUR 16927, 1996.
- [11] Griffault L., Merceron T., Mossmann J.R., Neerdael B., De Cannière P., Beaucaire C., Dumas S., Bianchi A., Christen R., ARCHIMEDE-ARGILE, CE Contract nº FI2W-CT90-0117. Report EUR 17454. 1996.
- CE Contract n° F12W-CT90-0117, Report EUR 17454, 1996.

 [12] De Craen M., Wang L., Van Geet M., Moors H., Geochemistry of Boom Clay pore water at the Mol site, report SCK-CEN-BLG 990, sept. 2004.
- [13] Moors H., Wang L., Vandervoort F., De Cannière P., Dierckx A., Assessment of the in situ pH and Eh of Boom Clay. Clays in natural and engineered barriers for radioactive waste confinement, International Meeting, Reims, 9-12 déc. 2002, Andra, abstracts.
- [14] Maes N., Wang L., Delécaut G., Bouwens T., Van Geet M., Put M., Weetjens E., Marivoet J., Van Der Lee J., Warwick P., Hall A., Maes A., Bruggeman C., Bennett D., Hicks T., Galson D., Migration case study: transport of radionuclides in a reducing clay sediment (Trancom-II), CE Contract n° FIKW-CT-2000-00008, Final Report, Report EUR 21022EN, 2004.



A. Dierckx

Ann Dierckx est coordinatrice du pôle phénoménologie dépôt final catégories B et C et Robert Gens est coordinateur scientifique dépôt final catégories B et C à l'Ondraf-Niras*.



R. Gens

Ondraf-Niras, avenue des Arts 14, 1210 Bruxelles, Belgique. Courriel : r.gens@nirond.be

Graine de Chimiste



Créée en 1991, l'association a pour objectifs d'exploiter le potentiel gestuel des enfants dès leur plus jeune âge, de les motiver à recevoir ultérieurement un enseignement scientifique, d'initier tout type de public à une démarche scientifique, de sensibiliser aux valeurs telles que le soin, la sécurité, l'organisation, l'autonomie... et de donner à chacun l'occasion de mieux comprendre le monde qui l'entoure.

La méthodologie est basée sur l'affectif, la mise en confiance et le jeu. Chacun manipule selon un protocole expérimental, il s'approprie la manipulation par les sens. Il est mis dans la peau du chimiste puisqu'il porte une blouse et se trouve

responsable du matériel et des produits confiés. L'association s'adresse à tout public, particulièrement aux enfants et aux adolescents à partir de 4 ans. Les activités se déroulent dans des établissements scolaires, de loisirs, culturels, de vacances... principalement en lle-de-France, mais aussi en province ou à l'étranger.

Association Graine de Chimiste, Université Pierre et Marie Curie, Boite 67, 4 place Jussieu, 75252 Paris Cedex 05.
 Tél./Fax: 01 44 27 30 71. Courriel: gdc@cicrp.jussieu.fr. www.sfc.fr/Graine%20de%20chimiste/presentation.htm