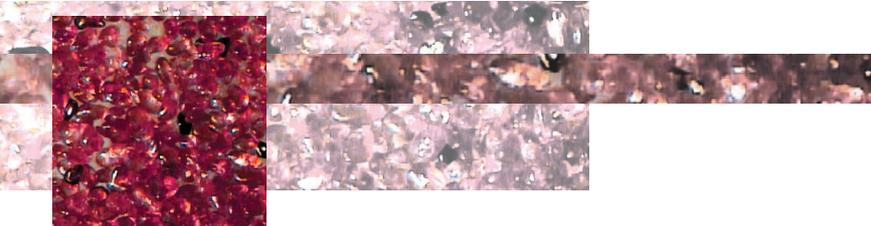




Les recherches sur l'axe 2

1. Les études liées au stockage géologique profond	37
1.1 - Étude de l'état initial : propriétés de confinement et mécanismes de transfert	38
1.1.1 - <i>Composition, origine et évolution de l'eau porale de l'argilite</i>	
1.1.2 - <i>Organisation des écoulements : mouvements lents au sein des formations calcaires et rôle d'écran de la couche d'argilite</i>	
1.1.3 - <i>Colmatage des calcaires encadrant l'argilite</i>	
1.2 - Étude des perturbations dues au creusement d'ouvrages souterrains	39
1.2.1 - <i>Mesure de la perméabilité de roches très imperméables</i>	
1.2.2 - <i>Propriétés mécaniques des roches d'après microéchantillons</i>	
1.2.3 - <i>L'observatoire interdisciplinaire de l'EDZ à Bure</i>	
1.2.4 - <i>Imagerie 3D de la fracturation induite de l'EDZ</i>	
1.3 - Conclusion et perspectives post-2006	42
1.3.1 - <i>Les données sur l'évolution de l'EDZ : analyse des observations à Tournemire et au Mont Terri</i>	
1.3.2 - <i>Étude de « l'amortissement » de fractures naturelles dans une formation argileuse</i>	
1.3.3 - <i>Étude en laboratoire d'échantillons de carottes prélevées en paroi endommagée</i>	
1.3.4 - <i>Utilisation d'un démonstrateur intégré sur le site de Meuse / Haute-Marne</i>	
2. Phénomènes physico-chimiques aux interfaces	44
2.1 - Physico-chimie des transferts liquide-solide	44
2.1.1 - <i>Les propriétés des surfaces solides</i>	
2.1.2 - <i>Les liaisons formées à l'interface liquide-solide</i>	
2.1.3 - <i>Les effets de la température</i>	
2.1.4 - <i>Conclusion</i>	
2.2 - La radiolyse	47
2.3 - L'entreposage du combustible nucléaire utilisé	48
3. Modélisation numérique de la migration des radionucléides	50
3.1 - Couplages multidomains	51
3.1.1 - <i>Simulation du comportement hydromécanique des milieux poreux fracturés</i>	
3.1.2 - <i>Simulation en champ lointain du site de stockage</i>	
3.1.3 - <i>Méthodes particulières</i>	
3.1.4 - <i>Exercice Couplex de qualification de code de simulation de transport/migration en milieu saturé</i>	
3.1.5 - <i>Évaluation d'erreur et adaptation du maillage pour uniformiser l'erreur</i>	
3.2 - Couplages multiphénomènes	54
3.2.1 - <i>Couplage d'un modèle de transport/hydrologie à un modèle de géochimie</i>	
3.2.2 - <i>Qualification de code géo-hydromécanique</i>	
3.3 - Modélisation mathématique, changements d'échelle	56
3.3.1 - <i>Changement d'échelle des sources de relâchement pour les calculs « champ lointain »</i>	
3.3.2 - <i>Modèles de transport/écoulement multicomposants à travers des milieux poreux fracturés</i>	
3.3.3 - <i>Calcul des paramètres hydrologiques effectifs dans diverses situations d'hétérogénéité</i>	
3.4 - Estimation/prédiction	58
3.4.1 - <i>Identification des paramètres</i>	
3.4.2 - <i>Analyse de sensibilité</i>	
3.5 - Conclusion et perspectives à long terme	59



Pilotées par l'Andra, ces recherches qui contribuent à instruire le dossier de faisabilité d'un site de stockage des déchets MHAVAL en formation géologique profonde, ont impliqué, au CNRS, des disciplines très variées : sciences de la terre, chimie et mathématiques appliquées. Une part importante de la recherche en chimie concerne l'acquisition de connaissances sur la sorption des radionucléides sur les matériaux naturels et ouvrages du stockage, et aussi les conditions de leur migration. Le retour à la biosphère est retardé par l'ensemble des barrières, dont il revient en particulier aux chimistes et aux géologues d'évaluer l'efficacité, et aux spécialistes de simulation numérique d'apprécier les performances.

En collaboration avec l'Andra, le CNRS a fourni, à partir de 1994, des données d'évaluation des trois sites étudiés pour l'implantation d'un laboratoire souterrain. Cette évaluation reposait sur une caractérisation du milieu géologique, sur l'exploitation des forages et prélèvements et sur des propositions de modèles géologiques. Rapidement la géochimie s'est trouvée fortement impliquée dans ces recherches, notamment à travers l'analyse, la datation et l'étude de circulations éventuelles de fluides, dont la connaissance est indispensable pour évaluer le comportement d'un stockage. Le CNRS disposait déjà d'instruments performants (spectromètres de masse, microsondes, etc). Il en a développé d'autres, qui représentent de véritables percées scientifiques : datation des eaux par les isotopes du krypton, tomographie électrique, endoscopie sismique, etc. Il a rassemblé des chercheurs de géomécanique, de géophysique et de géochimie pour disposer des compétences indispensables à la compréhension des systèmes géologiques et de leur réactivité lorsqu'ils sont soumis à des perturbations. En prévision des travaux à mener sur le secteur de Meuse/Haute-Marne, les équipes de géosciences du CNRS ont testé leurs méthodes et leurs appareils dans le cadre de collaborations européennes, en particulier au Mont Terri (Suisse). Ils transfèrent maintenant ces acquis et préparent les premières expériences dans le laboratoire souterrain de Meuse/Haute Marne. Avec celles-ci, ils vont contribuer aux programmes mis en œuvre, interpréter les résultats importants qui seront acquis et répondre aux questions que les données obtenues dans le laboratoire souterrain de Bure ne manqueront pas de soulever.

Après 1998 et malgré l'abandon de la recherche d'un site en milieu granitique, des recherches génériques ont

été poursuivies sur ce milieu, essentiellement sur la caractérisation et la datation des épisodes de circulation des fluides qui ont pu affecter les granites hercyniens en France.

Les questions de la fixation, du relâchement et de la migration des radionucléides vers la biosphère s'adressent en premier lieu à la chimie. Des questions très difficiles, si l'on songe aux échelles d'espace et de temps mises en jeu, qui demandent de passer de l'échelle microscopique (comment un atome d'un radionucléide s'attache-t-il à une surface solide ou peut-il s'en écarter, quelle entité chimique constitue-t-il avec cette surface ?), à l'échelle macroscopique correspondant aux parcours des radionucléides sur des millénaires. Ces études concernent les colis de déchets vitrifiés, mais également les combustibles usés, dont le stockage souterrain ne doit pas être exclu des études (on a décrit, dans la première partie (Axe 1, § 5), les travaux sur le conditionnement spécifique des espèces radiochimiques isolées).

Les distances et surtout les durées à prendre en compte sont telles, à l'échelle des atomes radioactifs dont on souhaite éviter le retour dans la biosphère, qu'aucune expérience ne peut répondre seule aux questions posées. Heureusement, l'époque de l'énergie nucléaire est aussi celle des ordinateurs. C'est pourquoi le CNRS et l'Andra ont fait appel aux chercheurs des mathématiques appliquées : leurs simulations numériques sont seules susceptibles de fournir des prédictions à très long terme, si l'on fait preuve d'une extrême rigueur dans le choix des données numériques acquises par les chimistes et les géologues et des modèles les plus pertinents. En outre, les ordres de grandeur à franchir requièrent de parcourir le temps ou l'espace avec un pas si fin que les durées de calcul pourraient mettre en échec la puissance des ordinateurs si les mathématiciens ne savaient proposer les moyens de sortir de cette nouvelle difficulté... La fiabilité des modèles (physiques ou chimiques) utilisés ne serait rien sans l'efficacité des méthodes numériques auxquelles il est fait appel.

C'est donc un très large spectre de compétences que le CNRS a mobilisé sur le programme de recherches menées dans le cadre de l'axe 2. L'aide reçue de l'Andra, sous forme de financement de thèses ou de bourses post-doctorales a été bien davantage qu'un encouragement : elle a permis de consacrer à certains travaux,



rigoureusement choisis, le temps et la profondeur qu'ils méritaient ; elle a transformé les problèmes posés sur le site, au cours de sa reconnaissance, des forages puis du fonçage des puits, en véritables questions scientifiques. Elle a porté sur tous les thèmes de l'axe 2 : géosciences, chimie, simulations numériques. C'est un double investissement qui a été réalisé, par des échanges approfondis avec la communauté académique, et par la formation de jeunes chercheurs en contact avec un grand projet technologique.

1. Les études liées au stockage géologique profond

Les recherches pilotées par l'Andra ont pour objectif de démontrer la faisabilité et d'évaluer la sûreté d'un stockage de déchets MHAVAL en formation géologique profonde. Dans le cadre de partenariats, elles ont associé à l'Andra les communautés académiques du CNRS, des Universités et des Grandes Ecoles, regroupées dans le GDR FORPRO autour d'actions de recherche fondamentale.

1. développer des méthodes expérimentales innovantes et applicables en laboratoire souterrain.

Ainsi sont mises au point, par exemple, l'imagerie 3D des discontinuités en paroi de galerie sur quelques mètres d'épaisseur, ou de nouvelles méthodes de datation des eaux souterraines à l'aide des isotopes 81 et 85 du krypton. L'intérêt de telles méthodes ne se limite pas aux études développées pour le stockage des déchets radioactifs, elles sont aussi utiles à d'autres domaines de recherche très variés (prévision des éruptions volcaniques, évaluation des risques de rupture d'un barrage, datation de corps extra-terrestres, évaluation et protection des ressources en eau, etc).

2. accompagner chaque étape des travaux de l'Andra par une phase d'expérimentation.

Ainsi, lors du creusement des galeries du laboratoire souterrain de Meuse / Haute-Marne (figure II.1), des recherches ciblées seront développées sur l'initialisation, le développement, l'extension et l'imagerie de la zone endommagée (Excavation damaged zone, ou EDZ) ceinturant tout ouvrage (puits, galerie, forages) creusé au sein d'une formation géologique profonde naturellement

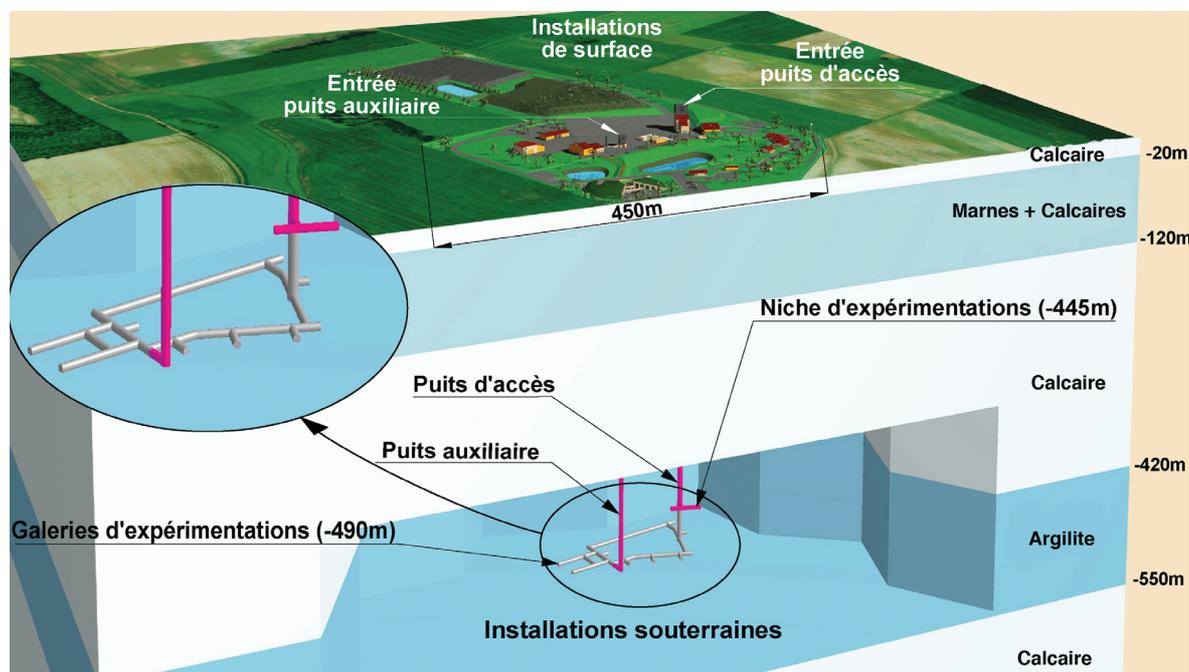


Figure II.1 : Implantation du laboratoire souterrain de recherche de Meuse / Haute-Marne et détail des galeries de recherche à -490 m au sein de la couche d'argilite (voir figure II.3). © Andra

Depuis la décision gouvernementale, prise en décembre 1998, d'implanter un laboratoire souterrain en domaine argileux, sur le site de Meuse / Haute-Marne à Bure, les travaux de ces équipes visent à évaluer les propriétés des formations géologiques en suivant deux approches complémentaires :

non fracturée (c'est le cas de la formation argileuse du Callovo-Oxfordien du site, au sein de laquelle aucune fracture susceptible de modifier les propriétés hydrauliques de la roche n'a été observée dans les forages de reconnaissance). En effet, l'excavation d'un ouvrage souterrain provoque, en paroi et à partir d'une certaine



profondeur, le développement de fissures et de fractures dont une partie est connectée et dont la densité diminue quand on s'éloigne de la paroi. En cas de non cicatrisation, cette EDZ, plus perméable que la roche non perturbée, est susceptible d'offrir aux eaux souterraines (vecteur potentiel du retour des radionucléides vers la surface et la biosphère) une voie préférentielle de cheminement, parallèle aux axes des galeries et des puits. Sa caractérisation et la modélisation de son évolution à long terme représentent des objectifs prioritaires pour les équipes du CNRS, des Universités et des Grandes Ecoles. L'étude interdisciplinaire d'un objet unique, la zone endommagée, a donc été mise au cœur du programme scientifique des équipes du CNRS, programme dont une partie est soutenue par le projet intégré européen Near Field Processes (NFPRO) du 6e PCRD. Les expérimentations réalisées dans ce cadre, depuis 2004, au laboratoire souterrain du Mont Terri (Jura suisse) (§ 1.2.4) sont actuellement en cours d'implantation dans celui de Meuse / Haute-Marne (§ 1.2.3).

1.1. Étude de l'état initial : propriétés de confinement et mécanismes de transfert

1.1.1. Composition, origine et évolution de l'eau porale de l'argilite

Dans les roches, y compris dans les formations les plus imperméables, de l'eau est présente dans les pores et les micropores à la limite des grains minéraux. Ainsi, l'argilite de Bure (l'argilite est une roche sédimentaire très imperméable, à grain très fin, formée au fond des océans ou des lacs, et riche en minéraux argileux associés à plus ou moins de quartz et de calcite) contient-elle de 6 à 8 % massiques d'eau. Cette eau, dite *porale* ou *interstitielle*, ne circule pas, mais peut faciliter le transfert d'éléments chimiques (entre autres, de radionucléides) hors de la couche argileuse hôte, par des mécanismes lents comme la diffusion. Dans le cas d'un site de stockage en milieu argileux profond, après la mise en place des colis de déchets et le remblayage et le scellement des galeries et des puits, l'eau porale de l'argilite va resaturer lentement les ouvrages du stockage (sur des durées de quelques dizaines d'années à la centaine de milliers d'années suivant l'ouvrage considéré) et pourra donc atteindre les colis et de les corroder (§ 1.3.3).

Pour estimer la tenue à long terme des colis de déchets et les modalités du transfert en solution des

éléments, il est donc essentiel de connaître la composition chimique, l'origine et l'évolution de l'eau porale de l'argilite, de même que les mécanismes de transfert des éléments en solution dans cette eau. La très faible teneur en eau et l'organisation au niveau poral de l'argilite rendent son extraction très difficile. Il faut en particulier veiller à ce que les techniques employées ne modifient pas sa composition chimique et isotopique.

Les équipes du CNRS ont relevé ce défi en mettant au point des protocoles d'extraction et des méthodes fiables d'analyses isotopiques (pour l'oxygène, l'hydrogène, le strontium, les gaz rares et le chlore) de l'eau porale de l'argilite de Bure. Ces analyses, dont une partie reste en cours, ont contribué :

- à définir l'origine et la composition de cette eau : il s'agit d'eau d'origine *météorique* (de l'eau de pluie infiltrée dans le sous-sol) ayant remplacé au cours des temps géologiques l'eau marine contemporaine du dépôt de l'argilite,

- et à préciser le mécanisme très lent (s'établissant en 10 millions d'années (Ma)) de transfert du chlore (représentatif des anions) par diffusion depuis l'argilite vers les calcaires sus-jacents.

1.1.2. Organisation des écoulements : mouvements lents au sein des formations calcaires et rôle d'écran de la couche d'argilite

Des analyses systématiques de géochimie élémentaire et isotopique (identification d'éléments majeurs et en trace, compositions isotopiques de O, H, S, Cl, Sr, He et gaz rares, et mise au point de la méthode sur le krypton) ont permis de caractériser et de dater les eaux actuellement présentes en très faible quantité dans les deux formations calcaires qui encadrent la couche d'argilite du site de Meuse / Haute-Marne (*figure II.2*). Ces eaux ont été échantillonnées par l'Andra (nombreux forages dans le secteur et sur le site du laboratoire et fonçage du puits principal d'accès) dans les rares niveaux poreux préservés dans ces calcaires en dépit de leur colmatage (§ 1.1.3).

Les données géochimiques démontrent l'absence de connexion entre les eaux des deux formations calcaires et donc le rôle d'écran imperméable joué par la couche d'argilite dans l'environnement du site. Elles suggèrent cependant des connexions possibles entre niveaux poreux à l'intérieur des calcaires oxfordiens sus-jacents à la couche d'argilite.

De plus, les analyses en ^{36}Cl de certains échantillons ont fourni pour ces eaux des âges de l'ordre de 1 Ma,

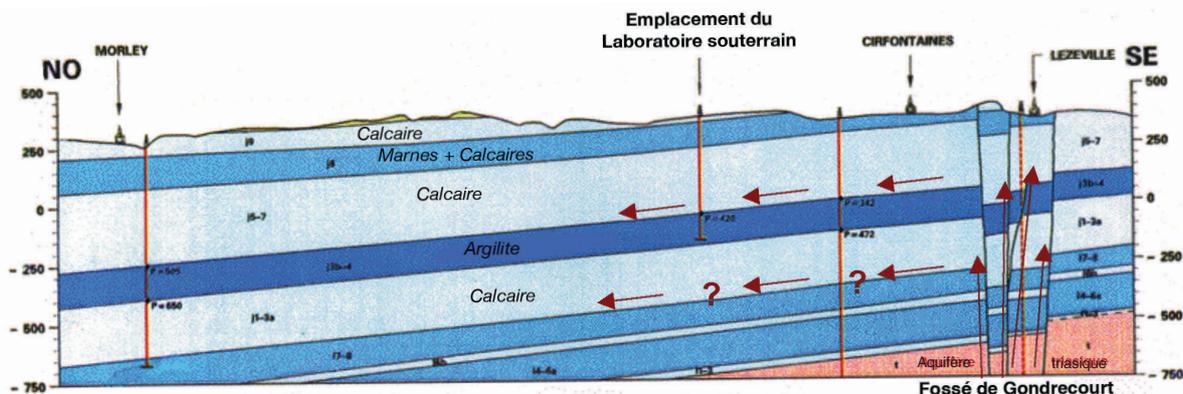
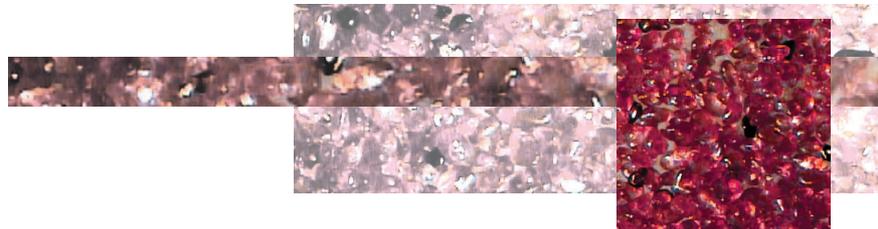


Figure II.2 : Schéma (sur une coupe géologique NO-SE) des circulations des paléofluides d'origine triasique à l'origine du colmatage, il y a 30 Ma, des calcaires encadrant la couche d'argilite. Des forages pétroliers et de l'Andra sont figurés en rouge. (doc. GdR Forpro)

ordre de grandeur confirmé par des datations utilisant la méthode $^3\text{He}/^4\text{He}$. De tels âges ne sont pas mesurables par la méthode de datation utilisant le ^{14}C , dont les limites analytiques ne permettent de caractériser que les eaux « jeunes » (moins de 40 000 ans). Ces âges anciens suggèrent des vitesses d'écoulement très lentes, de l'ordre du cm/an, et donc de très longs temps de résidence dans les formations calcaires encadrant la couche d'argilite. L'interprétation des données chronométriques ^{36}Cl et $^3\text{He}/^4\text{He}$ reste toutefois à affiner, en prenant en compte les variations des teneurs en U et Th à l'origine de la production *in situ* de ^{36}Cl et ^4He dans les calcaires renfermant les niveaux poreux où les eaux ont été prélevées. Toutefois, ces vitesses très faibles suggèrent déjà que la propagation par convection d'un éventuel panache de radionucléides dans les formations encaissant le Callovo-Oxfordien argileux s'effectuerait sur des durées très longues.

1.1.3. Colmatage des calcaires encadrant l'argilite

Dans le bassin de Paris, les formations calcaires sus et sous-jacentes aux argilites callovo-oxfordiennes constituent généralement des aquifères. Pourtant, les travaux de minéralogie et de géochimie isotopique ont démontré que dans l'environnement du site de Meuse / Haute-Marne, les calcaires avaient été colmatés par des précipitations de calcite lors de paléocirculations d'eaux d'origine météorique, salées et à basse température ($\approx 40^\circ\text{C}$). Ces paléofluides proviendraient de l'aquifère triasique sous-jacent : ils auraient circulé le long des failles du fossé de Gondrecourt formé il y a environ 40 Ma, avant de percoler latéralement dans les deux formations calcaires encadrant la couche d'argilite (figure II.2). Cette interprétation vient d'être confortée par la méthode de datation $^{238}\text{U}/^{206}\text{Pb}$, qui a fourni une valeur préliminaire de (30 ± 10) Ma pour âge de ces

calcites et donc pour celui des paléocirculations de fluides à l'origine de leur cristallisation.

Ce colmatage très développé des calcaires sus et sous-jacents à la couche d'argilite constitue une autre particularité du site de Meuse / Haute-Marne, comparé au reste du Bassin de Paris, et un facteur favorable à l'implantation d'un site de stockage. De la porosité initiale de ces calcaires, d'épaisseurs supérieures à 100 m, ne subsistent que quelques minces niveaux poreux, de quelques dizaines de centimètres d'épaisseur, où, comme on l'a vu dans le paragraphe précédent, des eaux anciennes, sans recharge récente, circulent à des vitesses extrêmement faibles.

1.2. Étude des perturbations dues au creusement d'ouvrages souterrains

1.2.1. Mesure de la perméabilité de roches très imperméables

Les mesures de très faibles perméabilités sont délicates et complexes à mettre en œuvre : elles requièrent une bonne compréhension des processus physiques impliqués et un contrôle sévère de tous les facteurs externes. Compte tenu de l'intérêt primordial de déterminations fiables de la perméabilité d'échantillons argileux hautement imperméables, constituant la barrière géologique d'un site potentiel de stockage de déchets radioactifs, la réalisation d'un benchmark sur ce sujet, engageant une dizaine d'équipes de géomécanique, était indispensable. Les essais ont porté sur deux types d'échantillons de référence, un béton microporeux (bon exemple de roche imperméable) et l'argilite du site de Meuse / Haute-Marne. Quatre laboratoires ont obtenu des valeurs extrêmement faibles de perméabilité à l'eau de l'argilite ($2-10 \cdot 10^{-21} \text{ m}^2$), avec une excellente reproductibilité pour des conditions expérimentales identiques.



1.2.2. Propriétés mécaniques des roches d'après microéchantillons

Afin de disposer, au cours du creusement des ouvrages d'un laboratoire souterrain, d'un outil particulièrement adapté à la détermination des propriétés mécaniques des roches, un prototype de micropénétrromètre a été conçu au CNRS, fonctionnant par pénétration d'un poinçon plat de section circulaire dans des éprouvettes de roches de petite taille (10x10x10 cm³). L'avantage de cette méthode originale réside dans sa rapidité et dans les volumes réduits d'échantillon qu'elle requiert, qui peuvent ainsi être prélevés sur des carottes de roches. Après des tests satisfaisants, deux micropénétrromètres ont été réalisés : l'un est utilisé en routine par l'Andra sur le site de Meuse / Haute-Marne pour caractériser les propriétés mécaniques des terrains traversés lors du fonçage des puits, des carottages et de l'excavation des galeries, et l'autre installé dans un laboratoire de recherche pour la poursuite des tests sur échantillons.

Figure 11.3 : Plan du laboratoire souterrain de Meuse / Haute-Marne, creusé dans la couche d'argilite à - 490 m de profondeur. Le rectangle rouge localise la zone d'expérimentations Forpro dans le laboratoire et la flèche donne l'emplacement de l'action « Géomécafor » débutant en juillet 2005. PA : puit principal d'accès, PX : puit auxiliaire. (doc. Andra modifié)

1.2.3. L'observatoire interdisciplinaire de l'EDZ à Bure

Les équipes du CNRS disposeront, à l'été 2005, d'un observatoire interdisciplinaire situé dans l'une des galeries du niveau principal du laboratoire souterrain de recherche de Meuse / Haute-Marne, à - 490 m de profondeur (figure 11.3). Menées par la quasi-totalité des équipes impliquées dans ces recherches, deux séries d'expérimentations y débiteront durant le second semestre 2005.

Trois chambres à hygrométrie contrôlée seront installées dans deux forages de 10 m de long ; les déformations cassantes et plastiques et le bruit acoustique associé à la fracturation seront enregistrés en permanence pendant au moins 2 ans. Il s'agira :

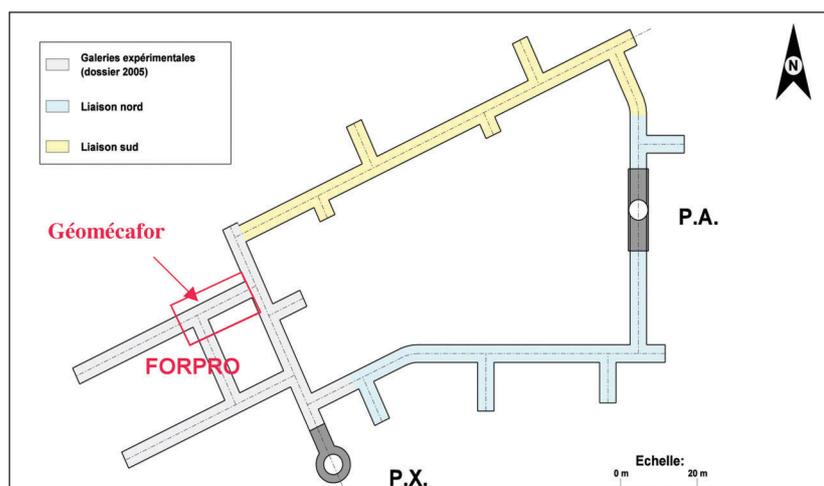
- de déterminer si la modélisation, calée à partir d'essais sur des échantillons carottés, rend correctement compte des phénomènes observés en paroi et de mettre en évidence l'éventuelle influence de la stratification sédimentaire sur le comportement à long terme de l'argilite,
- de vérifier que l'évolution de la paroi d'une galerie est bien contrôlée par une déformation plastique lorsque la saturation est maintenue et par une déformation cassante par traction ou fissuration en cas de désaturation,
- d'étudier les incidences entre les deux régimes de déformation lors du passage d'un état désaturé de galerie ouverte à un état resaturé de galerie bouchée par les matériaux rapportés.

Les forages d'écoute acoustique seront réalisés dès le début de l'été 2005 et les forages contenant les chambres à hygrométrie contrôlée à l'automne 2005. L'écoute acoustique visera à bien caractériser l'état initial de l'EDZ avant réalisation des forages de sollicitation hygrométrique. Les mesures de déformation se termineront fin 2006 - début 2007.

L'autre série d'expérimentations aura pour objectifs de quantifier et de modéliser l'impact de l'ouverture d'une galerie sur les propriétés de confinement de l'argilite.

Il s'agira de suivre l'initialisation, le développement et l'extension de l'EDZ en paroi de galerie, en couplant les observations et les analyses sédimentologiques, minéralogiques, pétrophysiques, structurales, biogéochimiques, microbiologiques et géochimiques.

L'ouverture d'une galerie dans une formation argileuse induit en effet des perturbations physiques (EDZ) mais également chimiques, qui pourraient modifier les capacités de confinement de la barrière géologique (ici, la couche d'argilite). Du point de vue chimique, des transferts de matière associés au développement de fronts d'oxydation s'observent, par exemple au Mont Terri. Des traceurs géochimiques ont donc été sélectionnés, comme l'état de la matière organique fossile présente dans l'argilite ou encore la composition en gaz rares de l'argilite, pour suivre, au niveau de l'EDZ, la pénétration de l'air qui oxyde le milieu initialement



L'action « GeoMecaFor » a pour objet de suivre, en fonction des conditions de saturation en eau, les déformations différées de la paroi d'une galerie excavée dans l'argilite.

réduit de l'argilite. Cet air oxydant et plus ou moins humide suivant la saison provient de la ventilation des galeries du laboratoire souterrain.

1.2.4. Imagerie 3D de la fracturation induite de l'EDZ

L'étude du volume rocheux entourant les galeries du laboratoire souterrain est un élément important du programme scientifique mené en partenariat par le CNRS et l'Andra. Dans le but d'apprécier la faisabilité du stockage en formation géologique argileuse, il apparaît important de caractériser cette zone, afin de compléter les données d'entrée aux modèles de comportement. Les géophysiciens disposent d'une panoplie de techniques pour ausculter les formations géologiques, de l'échelle régionale à celle du mètre, et y détecter la fracturation naturelle ou celle qui se développe en paroi de galerie suite à l'excavation (figure II.4). Bien que de nombreux outils d'imagerie géophysique soient disponibles, notamment ceux qui ont été mis au point par l'industrie pétrolière, des innovations sont nécessaires pour obtenir une image 3D du champ proche, c'est-à-dire du volume rocheux situé au voisinage immédiat des parois des galeries ou des puits. Aussi les méthodes de tomographie électrique et d'endoscopie sismique ont-elles fait l'objet de recherches actives depuis plusieurs années dans le cadre du GdR FORPRO.

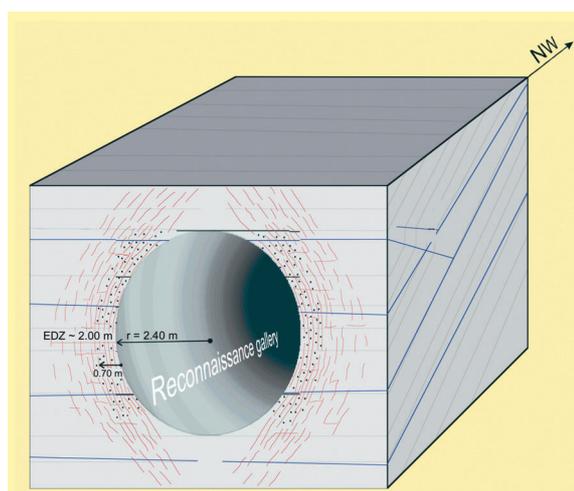


Figure II.4 : Schéma de l'EDZ après excavation d'une galerie du laboratoire souterrain de recherche du Mont Terri (d'après P. Bossart et M. Thury, Geotechnisches Institut AG, Suisse)

La tomographie électrique consiste à réaliser une cartographie de la résistivité électrique du volume rocheux étudié, qui permet de repérer et de suivre

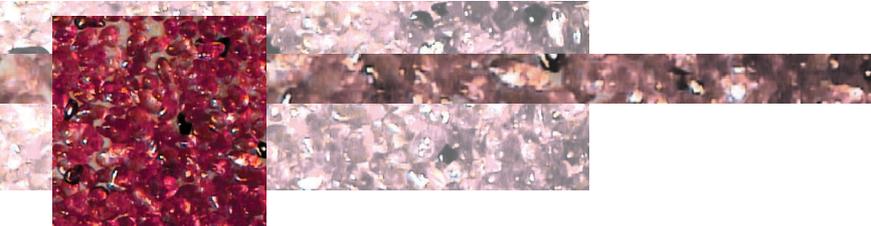
l'évolution de zones fissurées contenant de l'eau. Les propriétés électriques locales du milieu sont déterminées en mesurant la réponse de la roche à différentes fréquences du courant sonde. Tout changement détecté dans la réponse doit ensuite être interprété en termes géologiques par des modèles mathématiques. Les équipes travaillant sur la géophysique en champ proche ont testé la capacité de ces appareils de tomographie électrique à suivre l'évolution des parois rocheuses des galeries à grande profondeur.



L'endoscopie sismique multidirectionnelle utilise des ultrasons pour produire une image échographique à haute résolution du volume de roche situé au voisinage de forages recoupant l'EDZ. L'analyse des images produites par des dizaines de capteurs pointant dans toutes les directions permet de détecter les zones fracturées et d'en préciser l'orientation. L'endoscopie peut aussi être combinée à d'autres méthodes sismiques pour faire de la tomographie sur plusieurs forages ou enregistrer les microséismes produits par la fracturation de la roche lors de la formation de l'EDZ.

Figure II.5 : Installation en galerie au Mont Terri, par une équipe du GdR Forpro, des anneaux d'électrodes pour les mesures de géophysique en champ proche dans la paroi argileuse recouverte de béton projeté. (Doc. Géosciences Rennes, UMR 6118 CNRS)

Ces deux méthodes innovantes ont été testées *in situ* dans le laboratoire souterrain du Mont Terri et dans le cadre du programme européen NFPRO, avant d'être croisées avec des méthodes confirmées de géophysique en champ proche : depuis juillet 2004, l'évolution au cours du temps de l'EDZ a été suivie par imagerie 3D dans le laboratoire souterrain du Mont Terri (figure II.5). Ces deux méthodes, ainsi que d'autres techniques géophysiques permettant d'ausculter le champ proche, seront très prochainement mises en œuvre dans l'observatoire interdisciplinaire du laboratoire souterrain de Meuse/Haute-Marne.



Repérées en 2004 au Mont Terri par tomographie électrique, les zones où l'EDZ est présente en paroi de galerie viennent d'être forées : une analyse structurale de la fracturation sur des carottes orientées fournira des données pour modéliser l'évolution de l'EDZ.

1.3. Conclusion et perspectives post-2006

Les 25 équipes de recherche du CNRS, des Universités et des Grandes Écoles ayant réalisé ces travaux ont montré qu'une recherche fondamentale, pluridisciplinaire, effectuée en partenariat avec l'Andra, a pu apporter des réponses pertinentes à la question cruciale du stockage des déchets radioactifs, lequel constitue un enjeu environnemental majeur pour la société. Le partenariat CNRS-Andra a en outre permis à ces équipes d'être associées à la production de rapports dans le cadre de la loi de 1991 et de participer à la réflexion sur la prospective de recherche à court et long terme.

Depuis 1998, les différentes étapes du programme de recherche de l'Andra sur le site de Bure ont été accompagnées par des actions de recherche ciblées sur les axes principaux suivants :

- analyses isotopiques couplées des fluides interstitiels de l'argilite (origine et transferts),
- traçage et datation des transferts aqueux passés et actuels dans les calcaires encadrant la couche d'argilite, imposant des contraintes aux modèles hydrogéologiques,
- caractérisation et développement de méthodes d'investigation et d'imagerie 3D de la zone endommagée en paroi de galerie et de puits,
- étude sur des analogues naturels de la dégradation des ciments et de la propagation de fluides hypercalcaires en domaine argileux.

Ces actions de recherche ont conduit à :

- mener des tests comparatifs pour vérifier la validité et la reproductibilité de données particulièrement délicates à acquérir,
- développer des méthodes expérimentales innovantes, tant en chimie isotopique qu'en géophysique en champ proche, et transposables sur le long terme à des domaines de recherche très variés,
- intégrer des programmes européens comme le Projet intégré NFPRO du 6^e PCRD.

Ces travaux de recherche, dont la qualité est attestée par de nombreuses publications dans des revues d'audience

internationale, ont ainsi contribué à valider les capacités de confinement de la couche d'argilite. Elles ont aussi permis de caractériser les formations calcaires sus et sous-jacentes du site de Meuse/Haute-Marne et de confirmer son rôle de barrière géologique.

Dans le cadre des expérimentations à développer sur le site du laboratoire souterrain au-delà de 2006, il est proposé que les actions soient ciblées sur un objet unique, l'EDZ, suivant des approches à caractère interdisciplinaire menées conjointement sur des analogues naturels en laboratoire et en vraie grandeur en laboratoire souterrain.

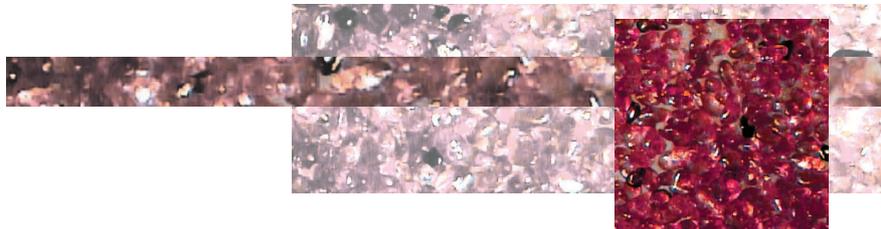
1.3.1. Les données sur l'évolution de l'EDZ : analyse des observations à Tournemire et au Mont Terri

Deux autres sites souterrains (Tournemire et Mont Terri), présentant des propriétés physico-chimiques proches de celles de Bure, permettent d'observer l'évolution d'une EDZ et de la fracturation naturelle dans des milieux argileux.

Dans le site de l'IRSN, situé à Tournemire (Aveyron), deux galeries recoupent à angle droit la zone endommagée créée dans des argilites par le creusement d'un tunnel ferroviaire, il y a plus de cent ans. À l'échelle macroscopique, aucune cicatrisation ne s'observe : les fractures et les fissures sont ouvertes, y compris celles de longueur métrique ou pluri-métrique. La zone endommagée ne présente aucune circulation de fluide, ni aucun colmatage par de la calcite. Inversement, hors de l'EDZ, les parois et le radier (partie basale de la galerie) des deux galeries présentent :

- des fractures naturelles colmatées par de la calcite ; ces fractures sont liées à la formation de la chaîne des Pyrénées,
- des circulations actuelles de fluides associées à certaines de ces fractures.

Dans le laboratoire souterrain du Mont Terri, en paroi des galeries et des niches excavées respectivement en 1996, 1998 et 2004, la zone endommagée s'observe dans des argiles sans phénomène de cicatrisation, ni circulation récente de fluides. Une fracture naturelle majeure, bien reconnaissable en paroi de galerie, présente un aspect cataclasté, comme broyé et réduit en menus fragments par une forte pression due aux multiples plans de fracturation et de glissement formés lors de la surrection des Alpes. Certaines de ces discontinuités sont colmatées par de la calcite. Aucune venue naturelle de fluides ne s'observe actuellement au sein de ces argiles.



En conclusion, dans les deux sites de Tournemire et du Mont Terri, l'EDZ en paroi de galerie constitue un domaine désaturé en eau sans évidence de processus d'autocicatrisation. En revanche, de nombreuses fractures et microfractures naturelles situées en zone saturée sont cicatrisées principalement par des minéraux de colmatage précipités à partir de paléocirculations de fluides dans ces fractures. Schématiquement, une autocicatrisation peut se produire par gonflement des minéraux argileux en présence d'eau, colmatage par précipitation de minéraux, principalement de la calcite, et/ou fluage de la matrice argileuse mais la hiérarchisation de ces processus d'autocicatrisation est encore mal connue sur le long terme.

Ces observations semblent indiquer qu'en l'absence d'eau saturant les pores et les discontinuités structurales (induites et naturelles) et sédimentaires plus ou moins interconnectées, les processus d'autocicatrisation de l'EDZ dans des formations argileuses ne peuvent être initiés. Il est donc probable que de tels processus ne pourront être observés au cours des travaux du GdR FORPRO programmés dans le laboratoire souterrain de Meuse/Haute-Marne sur la période 2005-2007. Les phénomènes couplés intervenant dans l'autocicatrisation des argilites pourraient alors être abordés au-delà de 2007 et sur le long terme, en combinant les trois approches interdisciplinaires présentées ci-dessous.

1.3.2. Étude de « l'amortissement » de fractures naturelles dans une formation argileuse

De nombreuses études géologiques font état de « l'amortissement », dans une formation argileuse épaisse, des fractures naturelles affectant une formation compétente sus ou sous-jacente (grès, calcaire, dolomie, etc.). Pour étudier de tels phénomènes, les observations et prélèvements de terrain doivent être faits en galeries minières profondes. Toutefois, l'arrêt des activités minières en France réduisant considérablement les possibilités d'études, des galeries minières adéquates devront être recherchées à l'étranger.

1.3.3. Étude en laboratoire d'échantillons de carottes prélevées dans la zone endommagée (site de Meuse/Haute-Marne)

Ces travaux expérimentaux visent à reconstituer en laboratoire la remise sous pression de l'EDZ et les arrivées successives de fluides dans l'EDZ après la fermeture

d'une galerie. Du point de vue hydrogéochimique, le problème est compliqué du fait de l'intervention potentielle de fluides ayant des compositions différentes de l'eau porale des argilites, comme les fluides hyperalcalins générés au cours de la dégradation des bétons localisés à l'interface avec les argilites.

Il s'agira donc d'évaluer les probabilités d'arrivée dans le temps de ces différents fluides et leur capacité respective à favoriser ou non l'autocicatrisation. Pour permettre une réelle approche interdisciplinaire de cette autocicatrisation des argilites sur le long terme, des protocoles expérimentaux précis devront être définis, en fonction de la nature des fluides, des caractéristiques de leur écoulement, du degré d'endommagement de la roche-hôte et de sa minéralogie initiale. D'autre part, des techniques d'auscultation non destructive devront être mises en œuvre afin de suivre avec précision l'évolution au cours du temps du processus d'autocicatrisation.

1.3.4. Utilisation d'un démonstrateur intégré sur le site de Meuse / Haute-Marne

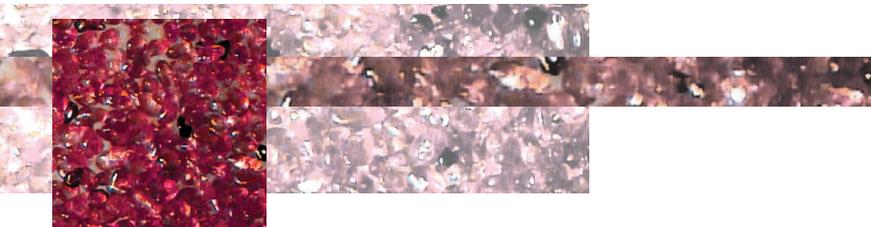
Les travaux porteraient sur 6 à 8 ans au minimum, afin de tester *in situ* les capacités d'autocicatrisation des argilites de Bure dans la paroi resaturée d'un démonstrateur intégré d'environ 20 m de long, simulant au mieux une galerie de stockage bouchée par une barrière ouvragée (béton+bentonite); des saignées dans la barrière géologique, remplies d'argile gonflante, et disposées perpendiculairement à l'axe de la galerie pour stopper un éventuel flux aqueux, pourraient également être installées le long du démonstrateur.

- Approche couplée mécanique, géochimique, minéralogique et pétrophysique

Effectués à des intervalles de temps réguliers (6 mois), des forages carottés permettraient de suivre l'évolution temporelle des argilites de l'EDZ. Afin de minimiser le développement d'une EDZ autour des forages, ceux-ci seraient rebouchés immédiatement après le prélèvement des carottes. Une partie de celles-ci seraient placées en cellules de confinement afin de pouvoir réaliser le suivi précis de l'évolution de la perméabilité.

- Approche géophysique en champ proche (imagerie 3D)

Cette approche impliquerait la mise en place de moyens d'auscultation opérationnels sur de longues périodes afin de suivre l'évolution lente de l'EDZ.



Cette approche pourrait se faire :

- soit en réalisant périodiquement des mesures ponctuelles : l'accès à la zone d'étude serait limité à des forages et ne permettrait pas une auscultation complète, mais il serait alors possible d'attendre des progrès techniques.

- soit en installant des réseaux permanents de capteurs avant rebouchage de la galerie et en les lisant en continu : mis en place une fois pour toutes, le réseau ne pourrait être ni déplacé, ni amélioré.

2. Phénomènes physicochimiques aux interfaces

2.1. Physico-chimie des transferts liquide-solide

Il faut distinguer la connaissance des milieux envisagés dans les concepts de stockage souterrain, particulièrement celle des interfaces entre matériaux, de la connaissance des interactions des radionucléides, en particulier leur rétention sur ces interfaces.

La connaissance des milieux a été particulièrement approfondie dans le domaine de la structure et de la dynamique de l'eau et des contre-ions. En effet, les modèles concernent des minéraux naturels ou synthétiques chargés, dont les propriétés physicochimiques sont déterminées par la distribution spatiale et les interactions des charges électriques. Dans le cas des argiles, la présence de défauts de charge dans leur

réseau entraîne l'existence d'une charge globale négative sur les feuillets de cette argile. Ces charges négatives sont compensées par la présence de contre-ions, cations plus ou moins mobiles, ou même attachés à des sites.

La rétention ou la sorption de cations multivalents des radionucléides provient en premier lieu de leur interaction (électrique) avec ces charges et sites du réseau. Puisque la plupart des matériaux et argiles naturels sont chargés négativement, ils constituent des pièges plus ou moins spécifiques de ces cations. Pour les anions et en particulier pour les iodures, la situation est plus complexe. Pour faciliter l'intercomparaison des méthodes analytiques, certaines études de sorption ont considéré, non pas les argiles ou les bétons, mais certains oxydes modèles.

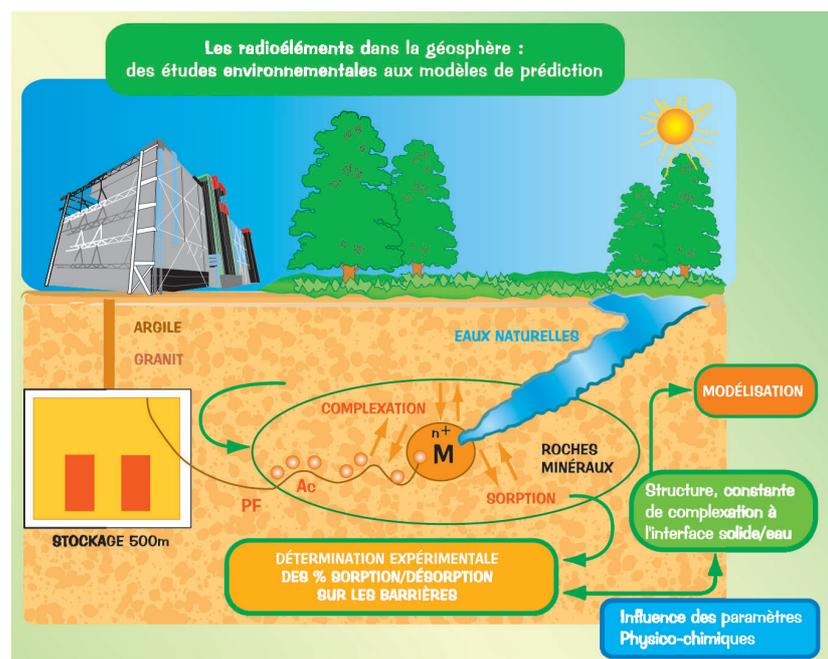
Les travaux ont porté sur des études de sorption et de spéciation d'actinides présents dans le colis de déchets (notamment des actinides mineurs), de produits de fission à vie longue (comme ^{99}Tc , ^{135}Cs , ^{129}I) et de produits d'activation des matériaux de structure (^{59}Ni , ^{95}Zr , ^{14}C , ^{36}Cl , etc). La sorption de ces radionucléides à la surface des minéraux des sols, ainsi que leur précipitation, constituent en effet les mécanismes les plus importants retardant leur migration à travers la géosphère, depuis un site de stockage géologique jusqu'à la biosphère (figure II.6).

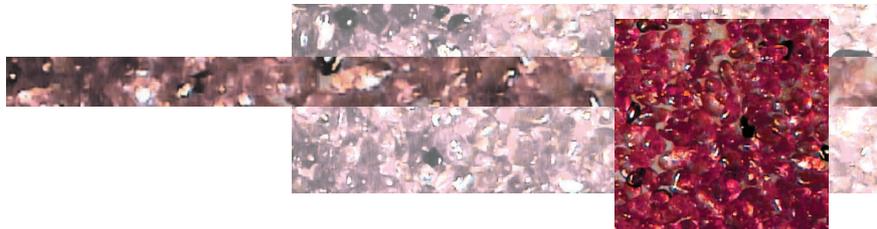
Le rôle de ces travaux a été de fournir des données physico-chimiques pertinentes, permettant de construire des modèles numériques adéquats. Leur originalité réside dans la nécessité de passer du microscopique au macroscopique, tant en ce qui concerne l'espace, du nanomètre au kilomètre, que le temps, de la picoseconde aux temps géologiques (une situation commune à de nombreux travaux sur l'axe 2).

Une des difficultés de cette recherche provient du fait que les matériaux de stockage, comme les argiles, peuvent exister aussi bien sous forme compacte (très peu d'eau associée) que sous forme très hydratée (en suspension aqueuse). Il faut donc confronter les résultats obtenus sur les argiles en solution à ceux relatifs aux argiles compactes, bien que toutes les grandeurs ne soient pas susceptibles d'être déterminées dans les deux situations et que, du point de vue fondamental, rien ne garantisse que la physico-chimie utilisée pour les solutions s'applique en milieu confiné.

Un des progrès attendus des modélisations consiste à donner un sens précis aux grandeurs de sorption.

Figure II.6 : Schématisation de l'ensemble des processus en jeu lors de la migration des radionucléides dans les sols. © CNRS





En effet, les modèles de sorption s'attachaient jusqu'ici à décrire les résultats d'expériences d'équilibre solide-solution, qui ignorent le détail des sites où s'effectue la sorption. Le but commun des expériences de spéciation de type Exafs, des simulations moléculaires et des études de chimie quantique a donc été de déterminer l'origine microscopique de la sorption et la mise en évidence des mouvements et phénomènes inobservables macroscopiquement (figure II.7).

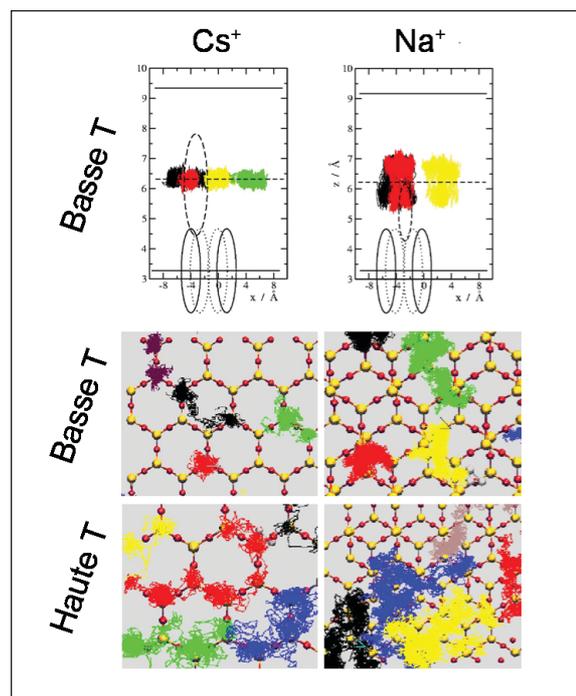


Figure II.7 : Trajectoires d'ions solvatés Na^+ et Cs^+ dans une argile monohydratée. **En haut** : l'argile est observée parallèlement aux plans de ses feuillettes (situés aux cotes 3,3 et 9,4 Å). Le volume occupé par les ions est représenté par une ellipse (les échelles sur les deux axes sont différentes). Aucun des ions solvatés n'entre dans les cavités hexagonales des feuillettes. **En bas** : l'argile est observée perpendiculairement aux plans de ses feuillettes. Aux effets de température près (dispersion plus grande des trajectoires des ions à température plus élevée), le césium, peu solvaté, se déplace essentiellement de site en site le long des atomes du réseau des parois de l'argile ; tandis que l'ion sodium, solvaté par un nombre plus grand de molécules d'eau, se déplace d'une manière moins caractéristique, par des sauts de site en site.

Pour comprendre les phénomènes fondamentaux en jeu et hiérarchiser les différents processus qui déterminent la vitesse de migration des radionucléides, il est indispensable d'apprécier l'importance relative des paramètres décrivant l'environnement et de tenir compte de leur très grande variabilité. La charge

électrique portée par les radionucléides, et leur degré d'oxydation qui dépend de leur charge et du potentiel redox imposé par le milieu, sont des paramètres qu'il faut pouvoir définir et suivre au cours du temps. Parmi les radionucléides, les actinides mineurs, chargés positivement, sont facilement retenus par les minéraux constitutifs des sols (chargés négativement dans les conditions du milieu) et tendent à former des hydroxydes qui précipitent ; au contraire, la plupart des produits de fission sont sous forme d'ions négatifs et donc repoussés par ces mêmes minéraux. Mais la situation est loin d'être toujours aussi simple ; ainsi, l'action de ligands (carbonates, silicates, sulfates, etc) éventuellement présents dans le milieu naturel doit être examinée, car la complexation des actinides par les ligands peut empêcher, dans certains cas, leur précipitation et les rendre mobiles. Le champ proche autour du site de stockage est également le lieu de différents gradients spatiaux et temporels (concentration, front redox, etc) dont la présence et l'évolution au cours du temps rendent ces études particulièrement délicates.

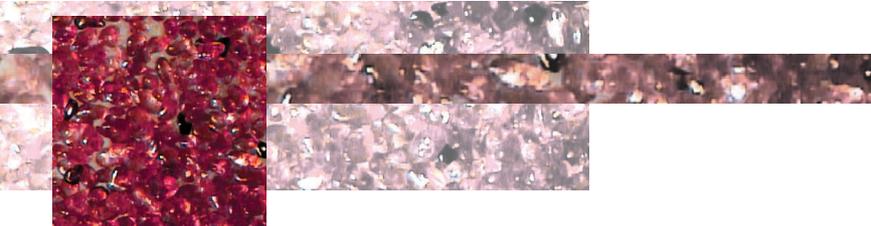
Les objectifs étaient donc :

- de comprendre les mécanismes de traversée, ou au contraire de fixation des actinides et des radionucléides à vie longue aux interfaces solide-liquide,
- de déterminer un ensemble de données thermodynamiques et physico-chimiques caractéristiques des processus de spéciation et de sorption,
- de confronter ces résultats aux données sur les systèmes naturels.

De nombreuses expériences ont porté sur des argiles ouvragées de type bentonite ou montmorillonite, qui présentent une minéralogie simple et un agencement régulier de leur porosité, ou sur des oxydes, des phosphates et des silicates. Non seulement la méthodologie est maintenant acquise, mais des données ont été acquises sur la bentonite MX80 (fournie par l'ANDRA) : les taux de rétention des radionucléides y ont été obtenus en fonction de leur concentration et du pH dans le milieu. La dernière étape est indispensable pour valider les prédictions faites à partir de ces études. Elle permettra une modélisation des phénomènes, en particulier de leur évolution temporelle, et une quantification de la migration des radioéléments à différentes échelles de temps et d'espace.

2.1.1. Les propriétés des surfaces solides

La détermination des interactions radionucléide-solide nécessite de prendre en compte l'hétérogénéité



énergétique de la surface du solide (conséquence de l'agencement de ses atomes et de ses défauts) et la distribution superficielle des sites susceptibles d'accueillir les radionucléides (*figure II.8*). Ces deux caractéristiques des substrats solides conditionnent non seulement la quantité de radionucléides attachés à leur surface, mais également la réversibilité des interactions qui les y retiennent, deux propriétés qui ont une importance capitale dans l'évaluation de la migration.

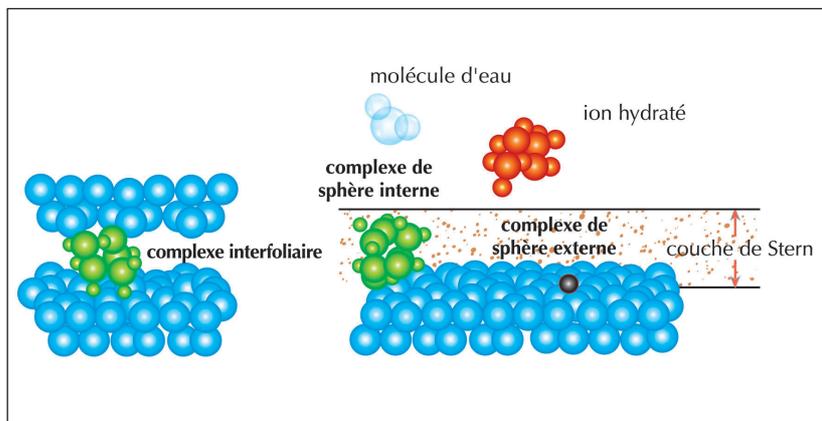


Figure II.8 :
Représentation schématique de l'interaction d'un ion avec un solide minéral.
© CNRS

Un programme spécifique a eu pour but d'étudier les propriétés électriques de la surface qui découlent de ses propriétés acido-basiques : la goethite (un hydroxyde de fer) a été choisie comme « solide modèle » et la sorption des ions sélénium (représentatifs des ions négatifs) et uranyle sur ce substrat a été comparée. Une méthode par titrage potentiométrique de la surface des solides a été mise au point, puis a fourni une description précise des charges électriques en surface : concentration des ions H^+ et OH^- présents et valeurs des constantes d'acidité correspondantes. Cette description a été confirmée par des mesures de mobilité des particules de goethite sous champ électrique (variation de la distribution des charges à la surface du solide avec le pH de la solution en contact). Elle l'a aussi été par des approches plus locales des interfaces solide-liquide, déduites des observations structurales, et qui ont permis d'identifier l'influence sur les propriétés de sorption de la réactivité spécifique des différentes faces cristallines. Enfin, la comparaison de « solides modèles », étudiés à la fois sous forme de poudre et de monocristaux, a permis de quantifier l'influence des contributions individuelles de chaque face cristalline sur la réactivité globale du solide. Ce type d'approche est intéressant, puisqu'il a permis par exemple de prédire les propriétés acido-basiques de la poudre de TiO_2 , une fois

calculées celles des trois plans cristallographiques principaux de ce solide. Ce résultat est fondamental pour deux raisons :

- une telle modélisation des propriétés surfaciques est particulièrement robuste, dans la mesure où elle est réalisée avec un jeu minimum de paramètres ajustables,
- les propriétés des matériaux peuvent être prédites à partir de la seule connaissance structurale des minéraux susceptibles de retenir les radionucléides.

2.1.2. Les liaisons formées à l'interface liquide-solide

La connaissance de l'environnement chimique des radionucléides à la surface des solides et surtout de la nature des liaisons formées (par exemple, liaison forte entre le radionucléide et la surface, ou au contraire, liaison fragilisée par la présence de molécules d'eau entre l'ion sorbé et le solide) est importante et a été précisée. Une caractérisation structurale complète a été obtenue à l'aide de plusieurs techniques spectroscopiques complémentaires.

Les résultats montrent clairement que, dans une large gamme de pH et de force ionique, les actinides forment des complexes de surface dans lesquels il n'y a pas de place pour une molécule d'eau entre l'ion sorbé et le substrat. L'atome d'actinide est lié à plusieurs atomes de la surface du solide (liaisons polydentates), comme sur la *figure II.9*. De plus, ces liaisons, plus courtes que celles habituellement mesurées en solution, présentent probablement un caractère covalent important (liaison forte).

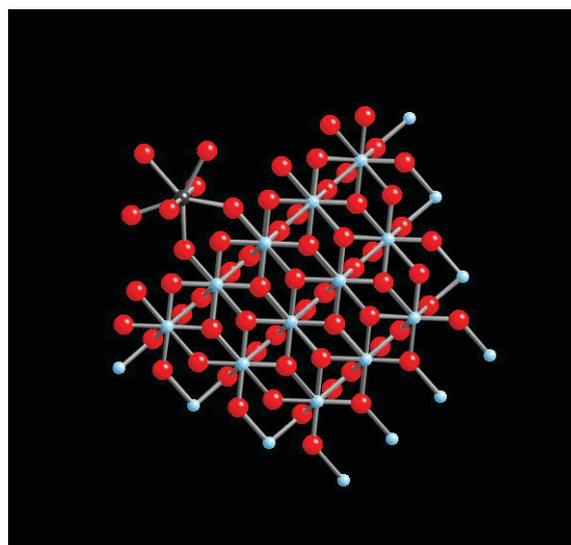


Figure II.9 : Ion uranyle hexavalent adsorbé sur la surface d'un cristal de TiO_2 par l'intermédiaire de deux liaisons courtes (2,35 Å). © CNRS



Parallèlement à ces aspects structuraux, des calculs de chimie quantique, développés sur les systèmes actinides sorbés - surface, permettent d'accéder aux énergies de sorption et au type de liaison chimique qui s'établit entre les électrons de valence des actinides et les atomes superficiels du substrat. L'ion uranyle, sorbé sur un oxyde simple (le rutile TiO_2), a fait l'objet d'un premier calcul. L'interaction entre la surface de l'oxyde et les molécules d'eau a d'abord été examinée, pour connaître la densité de charge électrique superficielle susceptible d'interagir avec la charge de l'ion uranyle. Les calculs ont ensuite montré qu'en établissant des liaisons avec les atomes d'oxygène de l'oxyde de titane, cet ion uranyle forme des complexes surfaciques dont trois structures différentes sont énergétiquement possibles, suivant le plan cristallographique considéré. Dans ces complexes, un fort recouvrement entre les orbitales de valence des atomes d'oxygène de l'oxyde et celles de l'atome d'uranium est en outre favorisé, ce qui signe la nature fortement covalente et donc la grande stabilité de cette liaison. Ces études théoriques sont en cours : elles doivent encore être confrontées à d'autres systèmes modèles avant d'être appliquées à des solides plus complexes. Ceci devrait aboutir, non seulement à une compréhension plus fine des mécanismes de rétention, mais également à une prédiction de la rétention des minéraux d'intérêt vis-à-vis de tel ou tel radionucléide.

2.1.3. Les effets de la température

Si les données obtenues à température ambiante par différentes techniques expérimentales (spectroscopies, titrages potentiométriques, ...) sont cohérentes entre elles, leur validité à des températures plus élevées restait à démontrer. En effet, les phénomènes thermiques induits par la radioactivité des déchets dans le colis impliquent d'extrapoler les données existantes au-delà d'une centaine de degrés, ce qui exige, entre autres, la connaissance des chaleurs de sorption. Les effets de la température sur les processus de sorption des actinides sur des surfaces minérales ont donc été examinés, sur une gamme des températures allant de la température ambiante à 120 °C. Il a fallu prendre en compte simultanément tous les phénomènes pouvant être affectés par l'élévation de température : dissolution, re-précipitation, variation des constantes d'acidité de surface et de sorption et évolution de la spéciation en solution.

Dans un premier temps, l'uranium et l'euporium ont été étudiés sur des substrats modèles (tels ZrO_2 , Al_2O_3 et

SiO_2), qui sont assez simples d'un point de vue structural pour limiter le nombre d'équilibres de surface à prendre en compte, synthétiques pour éviter la présence d'impuretés et enfin très peu solubles pour s'affranchir d'éventuelles transformations structurales. Puis des matériaux de structure et de composition plus complexes (de type argileux comme la smectite) ont également été étudiés avec des ions comme le césium, le nickel ou l'euporium.

Les résultats montrent que les propriétés de sorption des ions métalliques et la charge de surface du substrat solide varient rapidement avec la température (le taux de sorption croît avec la température), mais que la nature du complexe de surface reste la même, de 25 à 120 °C.

Des chaleurs de sorption des ions métalliques sur ces surfaces minérales ont également été déterminées par différentes méthodes, en particulier par microcalorimétrie.

Les résultats de ces études, encore en cours, permettront une meilleure connaissance du champ proche et conduiront à un dimensionnement adapté et optimal du site de stockage, eu égard à la charge thermique associée aux colis et au coût de l'ensemble.

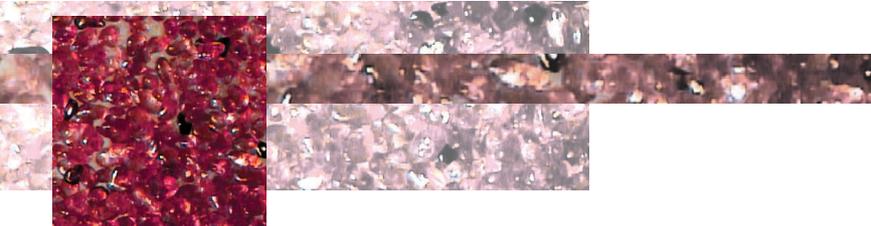
2.1.4. Conclusion

L'ensemble des résultats recueillis a permis de décrire les équilibres en jeu dans les processus de rétention des ions par les minéraux. Ces équilibres chimiques ont pu être simulés à l'aide des modèles utilisés classiquement pour ces phénomènes, et les constantes thermodynamiques associées aux équilibres chimiques entre les radionucléides et l'argile ont pu être calculées. Par conséquent, il est maintenant possible d'évaluer le taux de rétention des ions d'actinides mineurs et de certains produits de fission à vie longue sur tout un ensemble de solides, dont la plupart ont un intérêt pour le stockage géologique.

Toutefois, il reste à poursuivre et consolider les études entreprises sur les argiles compactées et à examiner en particulier la transposition des mécanismes et des grandeurs issus des études aux milieux dispersés. En effet, les milieux confinés présentent des caractéristiques physico-chimiques souvent spécifiques, comme par exemple le comportement de l'eau ou les effets de la radiolyse.

2.2. La radiolyse

Le CNRS est engagé dans un certain nombre d'études portant sur la dissociation, induite par rayonnement, de



l'eau lorsqu'elle est en contact de parois métalliques, ou surtout de milieux naturels (argiles) vers lesquels les efforts les plus importants sont faits. Une règle générale des effets de cette radiolyse est l'accélération de la corrosion des matériaux au contact de l'eau.

Ces études ont été essentiellement centrées sur les actes élémentaires de cette dissociation. Le premier d'entre eux est l'introduction d'un électron dans le milieu aqueux et donc la génération (10^{-15} seconde) d'électrons solvatés sur les diverses espèces capteurs présentes en solution. L'élévation de température modifie fortement la réactivité des espèces issues de la radiolyse de l'eau ; elle agit en particulier sur la formation de H_2 et H_2O_2 qu'il est souhaitable d'éviter dans le cas d'un stockage des déchets radioactifs, et donc nécessaire de contrôler. La spécificité des actes élémentaires de la radiolyse en milieu confiné et la modification de la trajectoire des précurseurs par les parois sont deux questions essentielles.

Les études sont généralement menées à l'aide d'une cellule d'irradiation haute température couplée à un accélérateur d'électrons, ce qui permet d'accéder à des échelles de temps de l'ordre de la nanoseconde, et récemment de la picoseconde. Les thèmes abordés ont été les suivants :

- évolution du rendement radiolytique de formation de l'électron hydraté, en présence de capteurs de l'électron sec (dication cadmium, dianion sélénate, ...) précurseurs. Par exemple, la réaction de l'anion sélénate SeO_4^{2-} avec l'électron hydraté et/ou son précurseur est connue pour distinguer, à forte concentration en SeO_4^{2-} , l'électron hydraté de son précurseur. Les constantes de vitesse ne sont connues qu'à température ambiante. Le but est donc de faire varier la température, de l'ambiante à 400 °C, et pour des concentrations croissantes de capteurs.

- élucidation des mécanismes des actes chimiques élémentaires aux temps courts. Il s'agit d'étudier différents types de réactions chimiques (réactions redox, radicalaires, ...) par un couplage de méthodes de radiolyse et de photolyse. Actuellement, la seule photolyse est limitée à l'étude de transferts de protons ou d'électrons, ou encore d'isomérisations internes de molécules.

- étude d'un équilibre particulier liant les radicaux électron hydraté et hydrogène atomique ($OH + H \cdot \leftrightarrow e_{aq}^- + H_2O$). Alors qu'à température ambiante cet équilibre (cinétiquement limité) est fortement déplacé vers la gauche, il est déplacé vers la droite à haute température et contribue pour 20 % de la formation totale en électron hydraté.

- chimie dans les liquides confinés (matériaux poreux, jusqu'aux argiles et bétons).

- étude des processus de solvation et d'évolution d'espèces transitoires en solution (par exemple dans un liquide ionique, RTIL, etc)

- étude de la formation de nouveaux nanomatériaux et matériaux hybrides obtenus par réduction radiolytique.

Du point de vue théorique, les méthodes de simulation quantique *ab initio* sont complémentaires des méthodes expérimentales ultrarapides. Les précurseurs initiaux ne sont en général pas décrits et les simulations commencent au stade de l'électron injecté, dont on étudie la solvation et le devenir physique et chimique. Il s'agit donc essentiellement de simulations quantiques ou semi quantiques de l'électron solvaté.

2.3. L'entreposage du combustible nucléaire usé

Dans l'attente d'une solution définitive, l'entreposage de longue durée du combustible nucléaire usé pose le problème de sa stabilité structurale et chimique sur des durées séculaires. Le combustible usé est un système complexe, extrêmement hétérogène, constitué d'un fritté de grains de dioxyde d'uranium qui contient un grand nombre d'impuretés (produits de fission, actinides mineurs) générées au cours des réactions de fission de l'uranium.

Les scénarios envisagés privilégient, pour la longue durée, l'entreposage des assemblages de combustible usé dans un étui scellé sous atmosphère inerte. Dans ce type de scénario, on considère la situation accidentelle dans laquelle la rupture d'étanchéité de l'étui et de la gaine de l'assemblage peut conduire à une mise en contact du combustible et de l'oxygène de l'air. La suroxydation de la matrice a pour conséquence la transformation de UO_2 en oxydes « inférieurs » U_4O_9 et U_3O_7 , voire « supérieur » U_3O_8 si la teneur en oxygène et la température sont suffisantes. La transformation structurale déterminante est la formation de U_3O_8 , une étape qui s'accompagne d'un accroissement relatif de volume pouvant atteindre 36 %. La connaissance des mécanismes et cinétiques de cette réaction est importante dans la mesure où celle-ci peut provoquer une déchirure de la gaine de protection du combustible, la pulvérisation de la pastille et le relâchement des éléments radiotoxiques piégés. Ces études sont principalement réalisées au sein du programme d'étude du comportement à long terme

du combustible utilisé en entreposage et en stockage (PRECCI). À ce programme, piloté par le CEA, sont associés EDF, le CNRS, Areva et Andra.

Dans le cadre d'études menées en commun avec le CEA et EDF, les efforts de recherche et de développement ont porté principalement sur les aspects suivants :

- étude des mécanismes réactionnels et de la cinétique de la transformation de UO_2 en oxydes inférieurs $\text{U}_3\text{O}_7/\text{U}_4\text{O}_9$ et supérieur U_3O_8 , dans des conditions thermodynamiques représentatives d'une rupture d'étanchéité de l'emballage des assemblages (températures comprises entre 100 et 400 °C, pression partielle d'oxygène, etc),

- étude du rôle des différents paramètres (taux de combustion, présence d'impuretés, état de division du matériau) qui peuvent différencier les mécanismes d'oxydation du combustible utilisé de ceux du dioxyde d'uranium non irradié,

- étude fondamentale des mécanismes de la *transformation structurale fluorine-lamellaire* ($\text{U}_3\text{O}_7 \rightarrow \text{U}_3\text{O}_8$) et de son rôle sur le comportement à long terme du combustible utilisé,

- étude de la production d'hélium pendant l'entreposage de longue durée du combustible utilisé, production susceptible de pulvériser la matrice et d'en limiter la capacité de confinement.

Ces recherches ont donné les résultats qui suivent.

Le rayonnement synchrotron a fourni une confirmation expérimentale de la séquence d'oxydation de UO_2 à U_3O_8 ($\text{UO}_2 \rightarrow \text{U}_4\text{O}_9/\text{U}_3\text{O}_7 \rightarrow \text{U}_3\text{O}_8$) qui est la même pour les monocristaux, les pastilles frittées et les poudres de UO_2 . L'oxydation des monocristaux (de taille comparable à celle de la pastille frittée) et celle des poudres sont toutes deux gouvernées par la *diffusion* de l'oxygène à travers leur surface (figure II.10). En revanche, la loi d'oxydation qui régit le comportement des *pastilles frittées* est complexe, mêlant contributions intra- et intergranulaire, et conduit à des épaisseurs oxydées qui croissent linéairement avec la durée d'oxydation. L'état de division du matériau joue certainement un rôle essentiel dans cette cinétique d'oxydation, mais il n'en demeure pas moins qu'au bout d'un long temps d'oxydation, le comportement des pastilles frittées irradiées met en péril l'intégrité de la pastille. En outre, la germination de l'oxyde U_3O_8 peut être mise en évidence dès 180 °C, une température relativement basse pour le stockage ou l'entreposage.

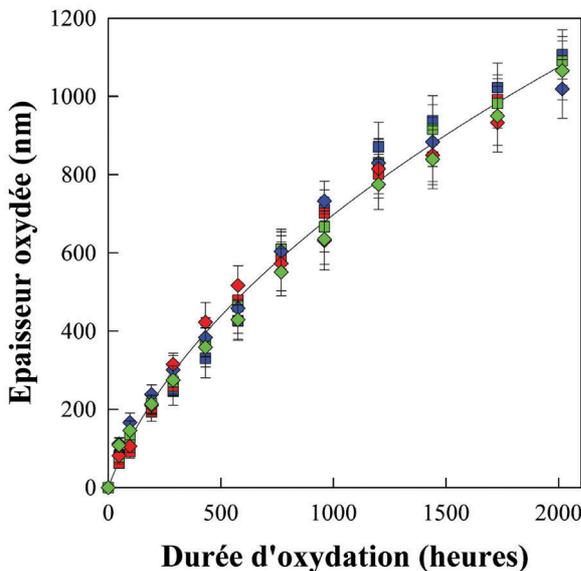
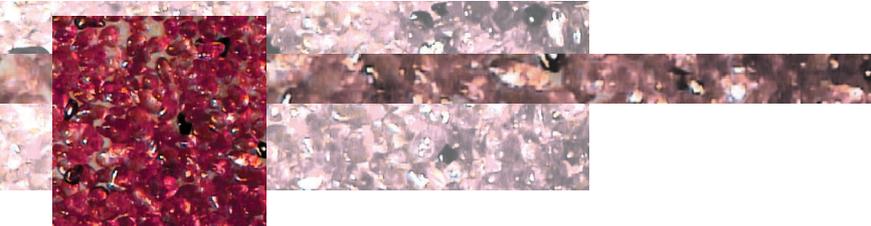


Figure II.10 : Cinétique de l'oxydation de monocristaux de UO_2 de différentes orientations cristallographiques à $T = 180$ °C.

Les carrés correspondent aux cristaux vierges de toute irradiation ; les losanges représentent des cristaux préalablement irradiés avec des ions Xe de grande énergie. © CNRS

La fission modifie la composition chimique du combustible (diminution de la teneur en uranium et incorporation de produits de fission) et endommage sa microstructure. Des implantations ioniques par ions lourds ont été utilisées pour simuler l'irradiation à fort taux de combustion du combustible et évaluer l'influence de ces modifications sur la formation de nouvelles phases et sur la stabilisation des oxydes inférieurs. La valence et la taille du cation substitué à l'uranium jouent un rôle fondamental, notamment via leur influence sur l'énergie réticulaire du solide : par exemple, la diminution du rayon ionique du cation en substitution induit une stabilisation du cristal. L'implantation favorise une transformation structurale de type monocristal - polycristal (polygonalisation) et l'endommagement balistique qui l'accompagne conduit à la formation d'un réseau de dislocations, mais jamais à l'amorphisation du matériau, même à fluence élevée. En revanche, l'implantation ne modifie que peu le comportement du monocristal vis-à-vis de l'oxydation. Ce résultat confirme que l'oxydation de UO_2 en oxydes intermédiaires est encore contrôlée par la diffusion de l'oxygène à travers la couche suroxydée. Par contre, l'oxydation de U_3O_7 à U_3O_8 n'a plus un caractère diffusif, mais est vraisemblablement du type germination - croissance, dans lequel la nature du matériau n'influe que sur les cinétiques de transition.

Dans la transition fluorine-lamellaire, l'organisation du sous-réseau uranium est largement préservée, tandis que le sous-réseau oxygène subit d'importantes transformations, les distorsions qui en résultent constituent



le moteur de la transition structurale vers U_3O_8 . Le sous-réseau oxygène des oxydes inférieurs stabilise un excès d'atomes d'oxygène en son sein, par la formation d'agrégats d'anions O^{2-} répartis de manière périodique. La difficulté majeure est de comprendre comment l'organisation locale de ces agrégats dans la structure fluorine du sous-réseau oxygène induit un déplacement cohérent des plans d'uranium lors de la transition et conduit à la structure de l'oxyde U_3O_8 . La répartition et la nature des agrégats ont été caractérisées expérimentalement dans les différentes variétés d'oxydes intermédiaires entre U_4O_9 et U_3O_7 . Ce travail, terminé pour U_4O_9 , est en cours pour U_3O_7 . Le mécanisme de la transition structurale reste à décrire, du fait de la complexité de la structure des oxydes intermédiaires.

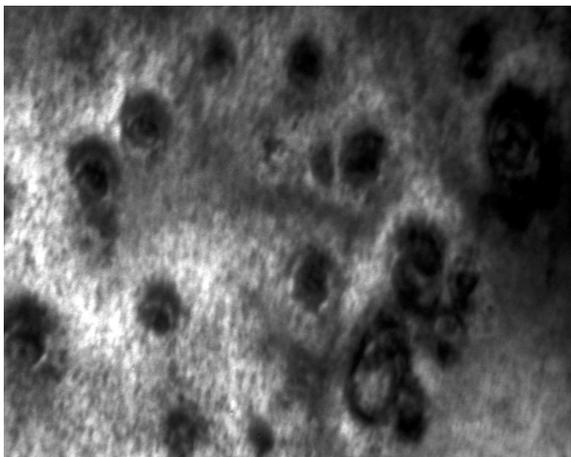


Figure II.11 : Micrographie de bulles d'hélium dans UO_2 implanté et recuit à 700 °C. © CNRS

La désintégration alpha des actinides produits par capture neutronique, lors du passage du combustible en réacteur, entraîne la production de quantités importantes d'hélium (environ 0,7 atome d'hélium pour cent atomes d'uranium dans un UOX de taux de combustion 47,5 GWj/t). Du fait de son insolubilité dans la matrice, l'hélium s'agglomère sous forme de bulles, conduisant à l'altération de l'intégrité des pastilles. Les mécanismes responsables de la diffusion des bulles de gaz, de leur agrégation, puis de l'éventuel relâchement de l'hélium dans la matrice UO_2 sont en cours d'étude. Des cloques de grande taille (entre 20 et 200 nm) se forment dès 600 °C dans les monocristaux (figure II.9). Des techniques de caractérisation par faisceaux d'ions ont localisé l'hélium en position octaédrique dans la maille cristalline de UO_2 et suivi son relâchement en fonction de la température. Dans le cas d'une faible concentration (0,2 %

d'hélium implanté entre 600 et 1 100 °C dans des pastilles frittées, une compétition s'établit entre le relâchement de l'hélium (vraisemblablement sa fraction localisée aux joints de grains) et son piégeage dans les bulles d'hélium en croissance. Au-delà de 1 100 °C, les bulles d'hélium sont remises en solution dans la matrice UO_2 et l'hélium est expulsé hors de l'échantillon. Lorsque la concentration d'hélium incorporée dans le matériau est plus grande (1 %), la précipitation des bulles, observée dès 500 °C, conduit à l'exfoliation du matériau.

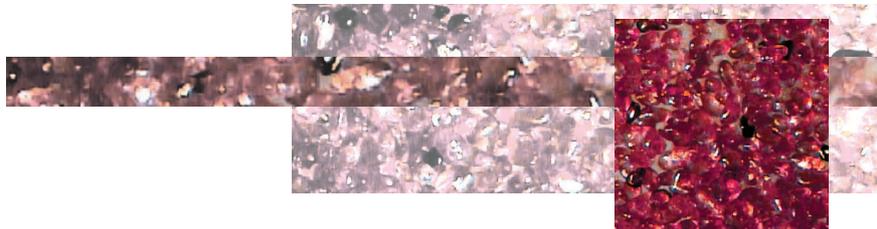
L'extrapolation du comportement à long terme du combustible utilisé nécessite la compréhension des mécanismes de dégradation de cette matrice particulière de confinement des déchets nucléaires. Afin de déterminer les paramètres clés de sa stabilité, ses principales caractéristiques physiques et chimiques ont été modélisées en simulant le combustible utilisé par des cristaux de UO_2 (sous forme de monocristaux ou frittés) soumis à différents traitements (oxydation, irradiation, dopage). La compréhension du mécanisme de la transformation structurale du combustible utilisé est en effet nécessaire pour la différer le plus possible, voire l'annihiler totalement.

3. Modélisation numérique de la migration des radionucléides

Ces recherches ont été menées par des équipes de recherche du domaine de mathématiques appliquées du CNRS, des Universités et des Instituts de recherche. Leur objectif était de développer des outils et méthodes de modélisation et de calcul numérique, efficaces et robustes, contribuant à :

- l'estimation du comportement à long terme d'un stockage de déchets radioactifs en formation géologique,
- une amélioration de méthodes rigoureuses pour les calculs de performance et les analyses de sensibilité (impacts radiologiques sur la biosphère),
- l'établissement et la validation de modèles cohérents avec les concepts phénoménologiques concernés, puis la mise à disposition de la communauté des différents acteurs du stockage de ces outils et méthodes de simulation numérique.

Dans les analyses d'un stockage, la dimension des ouvrages, les échelles de temps considérées et la complexité des phénomènes à prendre en compte sont



Les boucles de vérifications

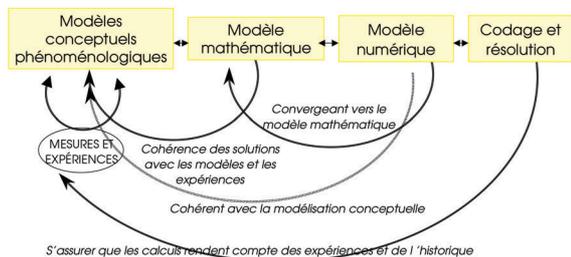


Fig. II.12 : Rétroactions entre les diverses étapes de la simulation, depuis la compréhension du phénomène à simuler jusqu'à la production de prédictions numériques : modèles conceptuels phénoménologiques ; modèle mathématique ; modèle numérique ; codage et résolution/vérification de cohérence des solutions mathématiques et des résultats de simulation avec les modèles conceptuels et les expériences ; vérification de la convergence des modèles numériques vers le modèle mathématique ; calage sur les mesures et les expériences. © CNRS

telles que des expériences en laboratoire ne peuvent prédire le comportement des radionucléides à confiner, ni celui des ouvrages et du milieu géologique concerné. La simulation numérique joue alors un rôle fondamental dans les analyses sur lesquelles s'appuie l'évaluation de faisabilité. C'est un outil d'autant plus indispensable que la représentation des phases d'exploitation et de fermeture du stockage nécessite une caractérisation fine de certaines étapes de l'évolution du site. Les équipes impliquées dans la phénoménologie complexe du transport/migration des radionucléides doivent donc absolument disposer de telles méthodes, qui se sont déjà avérées efficaces, performantes et robustes dans des domaines aussi variés que la météorologie, l'aérodynamique, l'ingénierie pétrolière ou la modélisation financière. Il est naturellement indispensable de connaître le niveau d'approximation et les limites de validité des modèles utilisés, afin que le biais introduit par chacun d'eux puisse être estimé (figure II.12).

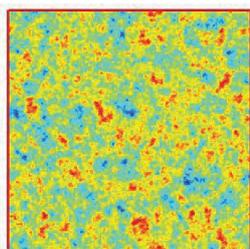


Fig. II.13 : Champ de perméabilité aléatoire de distribution log-normale donné sur une grille de 512x512. © IRISA / CNRS

De plus en plus détaillés, et se voulant de plus en plus précis, les modèles physiques sur lesquels s'appuient les

simulations numériques adoptent différentes échelles spatiales et temporelles, qui vont de l'alvéole (échelle métrique) pour les calculs « champ proche » au site entier de stockage (échelle plurikilométrique) pour les calculs « champ lointain », et de l'instantané aux centaines de milliers d'années. Il leur faut non seulement prendre en compte l'interaction de processus mécaniques, thermiques, hydrologiques et physico-chimiques variés, mais aussi les coupler sur des temps parfois particulièrement longs. À chaque échelle spatio-temporelle considérée doivent donc être associés un modèle et des paramètres « effectifs », qui peuvent n'être pertinents qu'à cette seule échelle ; en outre, d'éventuelles lacunes de connaissance, des incertitudes expérimentales et les simplifications réalisées au cours de la modélisation sont autant de faiblesses inévitables qui doivent pouvoir être surmontées par des méthodes modernes.

Se fondant sur ce constat, les équipes de recherche ont structuré leur travail sur les quatre thèmes scientifiques suivants :

- couplages multidomains,
- couplages multiphénomènes,
- modélisation mathématique, changements d'échelle,
- estimation/prédiction.

3.1. Couplages multidomains

D'une façon générale, il s'agissait ici de développer des méthodes de résolution de systèmes à très grand nombre d'équations, ainsi que des méthodes d'approximation et d'appréciation de la validité des calculs qui accroissent l'efficacité des simulations numériques du comportement d'un stockage et de son environnement.

Les valeurs numériques des paramètres physiques (perméabilité hydraulique, vitesse des écoulements, etc) qui caractérisent les milieux géologiques peuvent varier considérablement et rapidement dans l'espace (figure II.13). Ainsi, autour d'un site de stockage, la région étudiée peut comporter plusieurs couches géologiques, elles-mêmes divisées en sous-domaines dont les caractéristiques sont uniformes, mais qui peuvent varier de plusieurs ordres de grandeur d'un sous-domaine à l'autre. Des méthodes ont donc été étudiées qui permettent de calculer les variations de la valeur d'une ou plusieurs grandeurs physiques sur la totalité du domaine géologique étudié, lorsqu'on sait les obtenir de

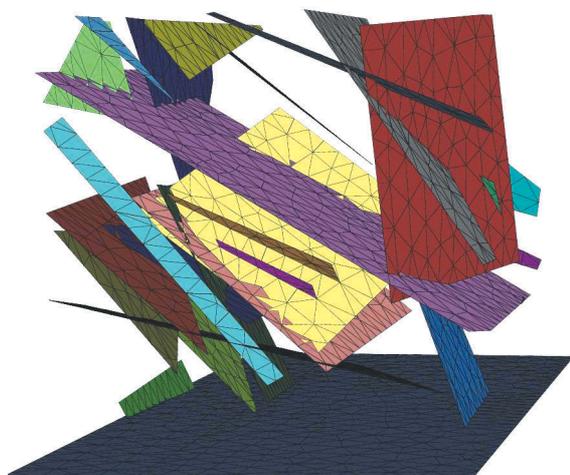


manière efficace (rapide et précise) sur chacun des sous-domaines. Cette démarche permet d'appliquer à la situation physique une discrétisation, dans le temps et l'espace optimisée pour chaque sous-domaine ; un tel maillage se prête ensuite aisément au calcul parallèle. Il offre également les moyens de repousser les limites introduites par les capacités des ordinateurs. Des exemples de quelques réalisations sont donnés ci-dessous.

3.1.1. Simulation du comportement hydromécanique des milieux poreux fracturés

Si le milieu physique considéré est fracturé, les contraintes mécaniques qu'il subit sont déterminantes pour l'évolution de son comportement hydraulique et donc pour la migration des radionucléides. Des contraintes fortes dans certaines directions pourront par exemple refermer des fractures et diminuer ainsi sa perméabilité. Les méthodes développées utilisant le couplage multidomaines ont permis d'évaluer la modification des capacités de transfert d'une zone endommagée (EDZ) lors du creusement des galeries du stockage.

Fig. II.14 : Résultats d'un calcul des ouvertures d'un ensemble de fractures résultant d'une compression verticale. © CNRS



3.1.2. Simulation en champ lointain du site de stockage

Le calcul de la pression et de l'écoulement autour du site de stockage a fourni un test en vraie grandeur des méthodes numériques utilisant le couplage multidomaines. La décomposition en sous-domaines a été appliquée à un modèle comprenant 6 couches géologiques, chacune d'elles étant divisée en 2 sous-domaines aux propriétés hydrogéologiques uniformes, mais variant de plusieurs ordres de grandeur de l'un à l'autre. Le champ de pression hydrostatique et l'écoulement ayant

été calculés sous-domaine par sous-domaine, un processus itératif a permis d'obtenir sur le site tout entier une description de la pression et de l'écoulement qui soit physiquement correcte, en particulier à la traversée des frontières entre sous-domaines.

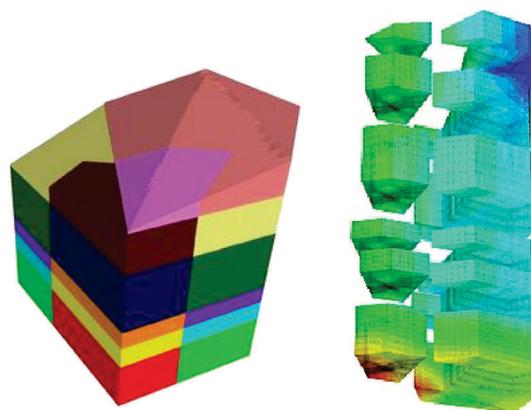


Fig. II.15 : Calcul du champ de pression autour d'un site « simplifié » de stockage, sur le site de Bure : à gauche, le domaine de calcul découpé en 12 sous-domaines, dans une vue dilatée verticalement, et à droite, le champ de pression dans une vue dilatée et éclatée des 12 sous-domaines ; le calcul a été réalisé en parallèle sur 12 processeurs. © Inria

3.1.3. Méthodes particulières

À côté de ces méthodes d'éléments finis et de volumes finis, qui calculent les valeurs de la quantité physique d'intérêt sur un maillage donné, d'autres méthodes existent, dites particulières, qui suivent des particules en mouvement et doivent à leur simplicité d'emploi d'être très utilisées en hydrogéologie. Elles donnent notamment des résultats précis, là où les vitesses d'écoulement sont importantes. Elles peuvent en outre être couplées à un code d'éléments finis résolvant le problème du transport sur un maillage.

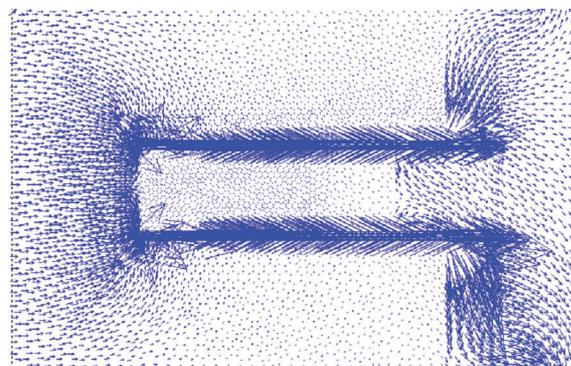


Fig. II.16 : Calcul du champ de vitesses d'écoulement dans la roche-hôte, autour d'une alvéole de stockage. © Université Bordeaux 1

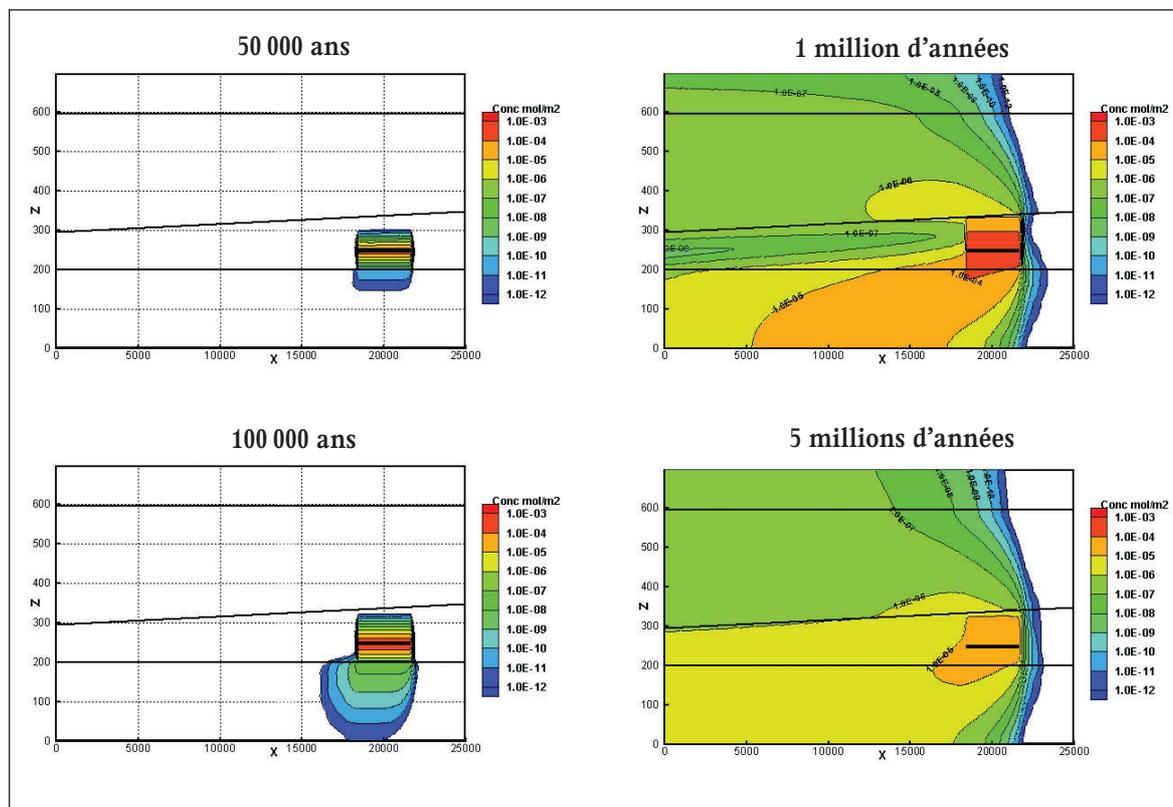
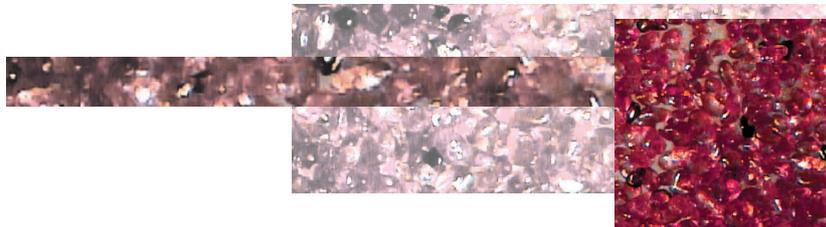


Fig. 6 : Calcul de l'évolution des concentrations d'un contaminant (césium 135) dans une coupe du sous-sol, la source étant représentée par le trait noir gras. Les radionucléides restent confinés au voisinage du site de stockage jusqu'à 1 million d'années, et même alors, les concentrations restent faibles, sauf au voisinage de la source ; les diverses barrières jouent bien leur rôle protecteur. Ces résultats ont été obtenus au cours de l'exercice Couplex. © CNRS

Ce couplage, réalisé au sein du code Estel d'EDF, a amélioré les performances de celui-ci, tant au niveau de la précision que de la rapidité.

3.1.4. Exercice Couplex de qualification de code de simulation de transport/migration en milieu saturé

Cet exercice est basé, dans un modèle de champ lointain, sur la simulation numérique du transport/migration de radionucléides, à partir d'un site constitué d'alvéoles de stockage. Il a permis de comparer la robustesse et l'efficacité des méthodes employées pour simuler numériquement le transport et l'hydrologie en milieu saturé d'eau. Son objectif de qualification, de comparaison et d'estimation, a justifié l'emploi de modèles simplifiés, mais encore réalistes, dans un contexte de calcul de sûreté. Les résultats obtenus ont fait l'objet d'un numéro spécial de la revue « Computational Geosciences ». Cet exercice a mobilisé la communauté scientifique internationale, stimulé ses équipes de calculs et finalement permis d'écarter des méthodes prétendues « universelles ». Un tel exercice est maintenant une étape indispensable et une référence pour la qualification de codes dans les domaines du transport et de l'écoulement. (figure II.17)

3.1.5. Évaluation d'erreur et adaptation du maillage pour uniformiser l'erreur

L'évaluation des erreurs inhérentes à un calcul numérique exécuté sur un maillage donné fournit une appréciation non seulement de la qualité numérique de la simulation, mais aussi des critères permettant

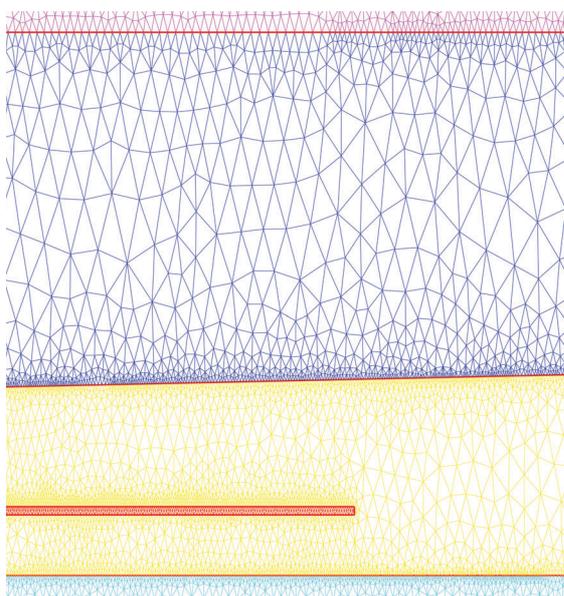


Fig. II.18 Maillage adapté au calcul d'un champ de vitesses pour l'exercice COUPLEX. Le maillage n'est pas uniforme, afin que l'erreur numérique soit inférieure à un seuil fixé dans tout le domaine étudié. © École des Ponts et Chaussées



d'optimiser le maillage et de réduire et uniformiser ces erreurs dans l'espace. Le coût du calcul pour une erreur donnée s'en trouve en outre minimisé. Ceci est illustré sur la *figure II.18*, où le maillage n'est raffiné qu'aux seuls endroits nécessaires, ici aux frontières des couches et au voisinage de la source (en rouge sur la figure). Une estimation de l'erreur en chaque point a été obtenue par le code, qui construit automatiquement, où c'est nécessaire, un nouveau maillage dans lequel se trouve réduite l'erreur inhérente au calcul numérique.

3.2. Couplages multiphénomènes

La simulation du comportement des radionucléides en situation de stockage doit tenir compte d'un grand nombre de phénomènes physiques différents.

Pour réduire la complexité de cette situation, dans un calcul classique « multiphénomènes » les différents phénomènes sont d'abord simulés séparément, puis enchaînés à la suite les uns des autres, sans tenir compte des rétroactions possibles. Ne pas prendre en compte d'éventuels couplages rétroactifs entre des phénomènes

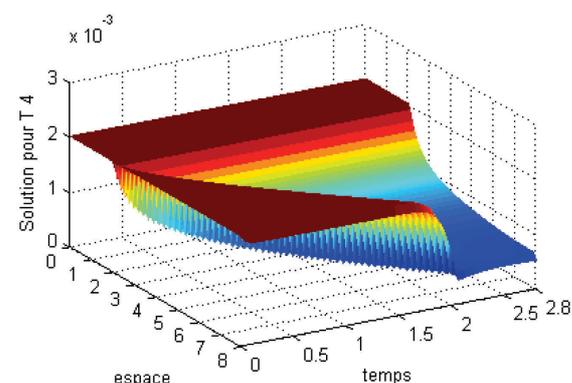
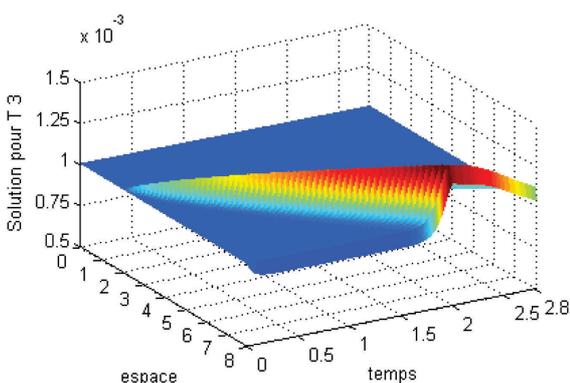
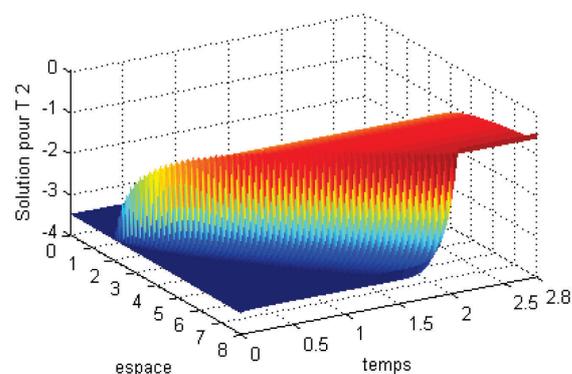
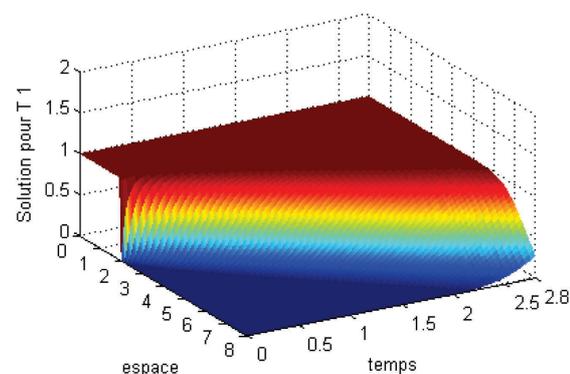
physiques différents simplifie considérablement la résolution numérique et épargne donc du temps de calcul, mais la complexité des phénomènes en jeu étant ignorée, la prédiction peut s'écarter dangereusement de la réalité.

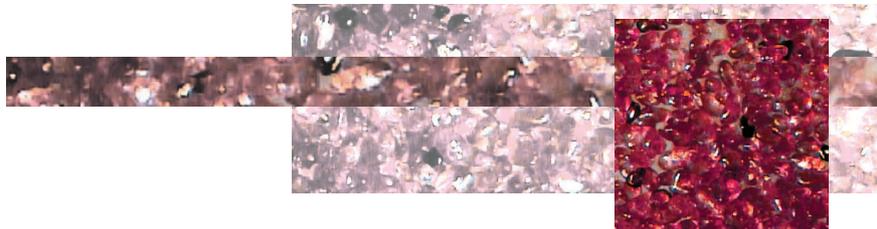
Des méthodes ont donc été recherchées, qui conservent les rétroactions lorsque c'est nécessaire, tout en conservant maintenant des temps de calcul raisonnables. Elles ont été appliquées au transport de radionucléides en interaction chimique, au comportement mécanique des sols couplé à l'hydrogéologie, ou encore au couplage du transport en subsurface des radionucléides avec les échanges sol-biosphère.

3.2.1. Couplage d'un modèle de transport/hydrologie à un modèle de géochimie

Cette étude visait à comprendre et à reproduire l'altération des propriétés de transport des argilites soumises à des perturbations alcalines et/ou oxydantes, ou encore la dégradation des barrières artificielles (bétons, verres, métaux). Les phénomènes chimiques

Fig. II.19 : Simulation numérique d'une expérience de transport réactif en laboratoire : concentrations, dans l'espace et le temps, des ions H^+ (en haut à gauche), O_2^- (en haut à droite), Fe^{2+} (en bas à gauche) et SO_4^{2-} (en bas à droite). © Inria





rencontrés dans ces situations sont en effet nombreux : hydrolyse, oxydoréduction, précipitation, dissolution, échanges d'ions, réactions entre espèces chimiques et matrice rocheuse, etc.

Pour obtenir les résultats de la *figure II.19*, la partie « transport » du modèle a été d'abord approchée sur un maillage spatial ; l'évolution au cours du temps est ainsi contrôlée par un système différentiel simple dont la résolution globale permet un contrôle automatique du pas de temps. Le choix de cette méthode a permis de réduire, d'un facteur compris entre 5 et 10, le temps de calcul par rapport à l'approche classique qui résout séparément le transport et la chimie à chaque pas de temps.

3.2.2. Qualification de code géo-hydrromécanique

Des tests fondés sur des modèles de simulation en milieu hydro-mécaniquement fragile ont été réalisés afin d'évaluer la capacité des codes à simuler, dans une roche initialement non saturée, l'endommagement induit par les travaux d'excavation d'un éventuel site de stockage. Ils ont permis de comparer la fiabilité et la robustesse des méthodes numériques utilisées traditionnellement pour simuler ce problème physique, qui est un des plus difficiles auxquels les projets de stockage sont confrontés. Une forte dépendance des résultats vis-à-vis des maillages a été mise en évidence, laquelle ne conduit pas à une localisation stable des zones réellement endommagées.

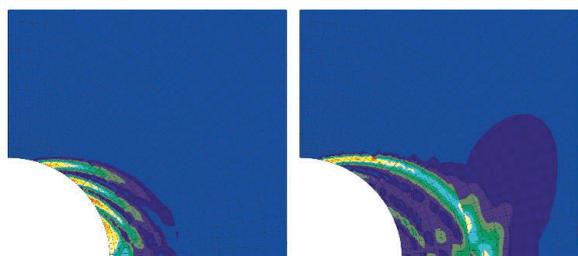


Fig. II.20 : Simulation des zones de possible endommagement (EDZ) : à gauche, les zones dans lesquelles des fractures peuvent apparaître, devenant des chemins privilégiés d'infiltration ; à droite, un zoom de la figure de gauche sur les zones où l'évolution des fractures peut être la plus rapide. © CNRS

Ayant conclu au caractère « mal posé » des modèles utilisés dans ce domaine, les évaluateurs ont alors entrepris une réflexion théorique approfondie sur la validité de ces modèles. Un champ important de recherche en modélisation a ainsi été ouvert : l'origine de l'instabilité est maintenant comprise et les propriétés intrinsèques et numériques d'un nouveau modèle « stabilisé » sont en cours d'étude.

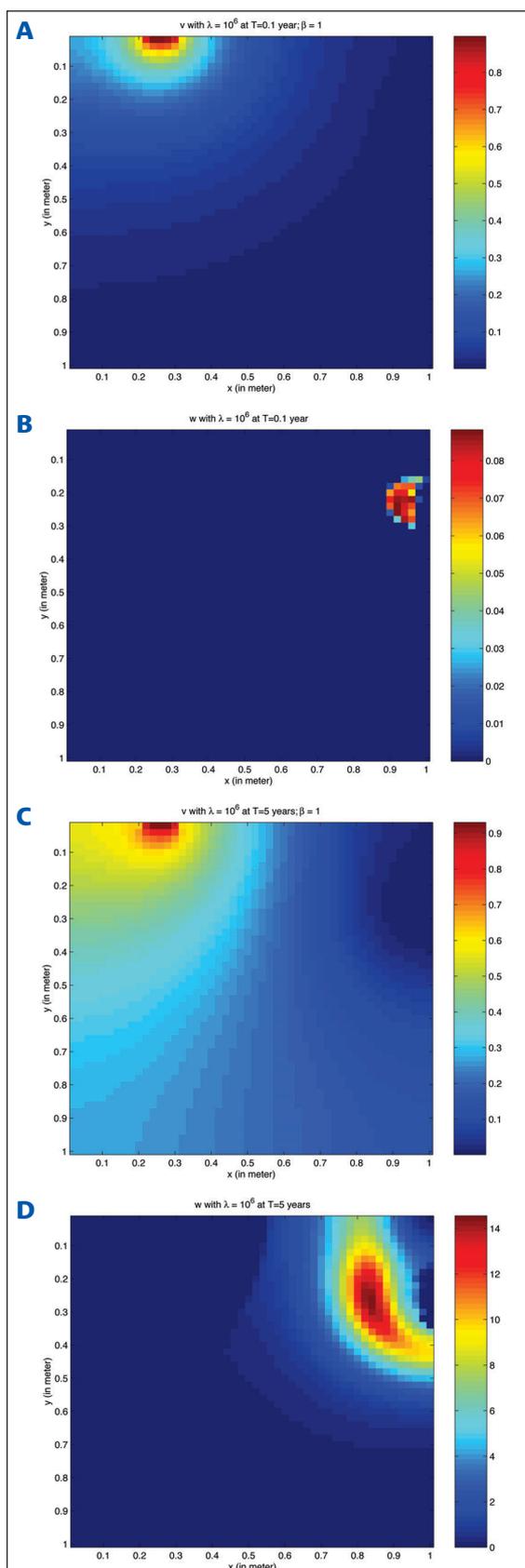
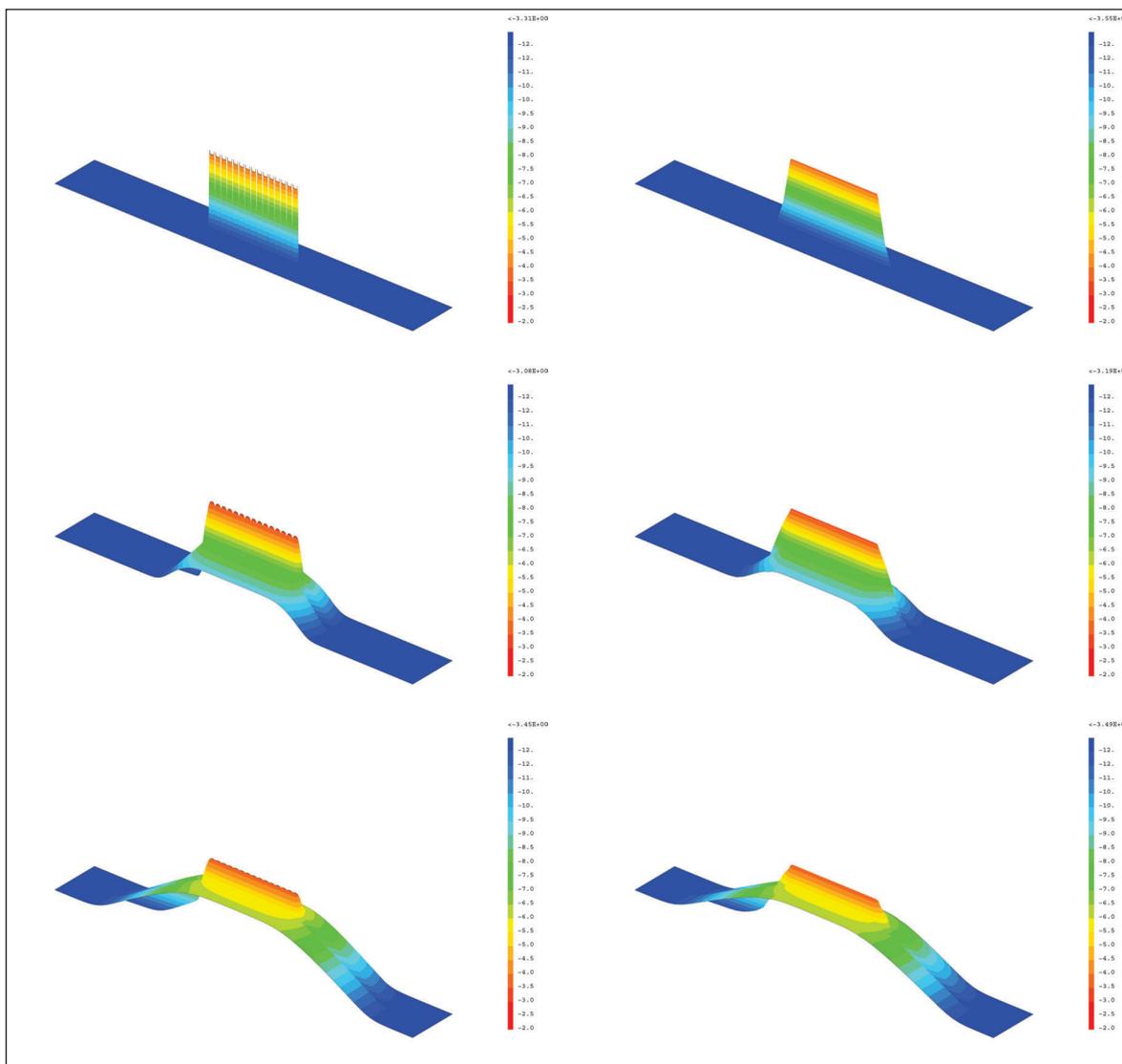


Fig. II.21 : Simulation de la coprecipitation de la portlandite, due à la diffusion des espèces aqueuses apportées sur les faces supérieures de l'échantillon : concentration en Ca^{2+} (en haut) et en $\text{Ca}(\text{OH})_2$ (au-dessous), après 0,1 an, puis à 5 ans. La méthode utilisée pour ce couplage de type « global » a été implémentée dans Alliances (plate-forme d'intégration, développée par l'Andra, le CEA et EDF, pour simuler et analyser les phénomènes importants dans le comportement d'un site de stockage, aussi bien pour les études de phénoménologie que pour celles de sûreté). © CEA



Fig. II.22 : Comparaison des niveaux de concentration en iode 129, après 1 000, 300 000 et 1 000 000 ans, obtenus par une simulation détaillée à une échelle fine (à gauche) et par une simulation basée sur le modèle « homogénéisé » correspondant (à droite). Malgré son caractère « global », cette dernière simulation, moins détaillée, rend cependant bien compte des pics de concentration au voisinage des conteneurs. © CNRS



À la suite de ces deux exercices (§ 3.1.4. et 3.2.2), une nouvelle qualification de codes de calcul en géochimie/transport est en préparation, afin d'évaluer la capacité des méthodes numériques à prendre en compte l'interaction de différents phénomènes chimiques, y compris l'apparition, la propagation et l'interaction entre eux de « fronts » de concentration.

3.3. Modélisation mathématique, changements d'échelle

La validité des modèles sur lesquels reposent les simulations numériques, ou que testent les expériences en laboratoire, doit être acquise à l'échelle à laquelle la simulation s'intéresse : échelle décimétrique de l'échantillon en laboratoire, métrique d'une alvéole de

stockage, kilométrique du site tout entier. En outre, la complexité des modèles physiques impose de hiérarchiser leurs effets à chacune de ces échelles.

Pour valider les modèles et paramètres effectifs à une échelle globale, à partir des résultats obtenus à une échelle d'un ordre de grandeur moindre, il est nécessaire de s'appuyer sur des méthodes mathématiquement robustes, dites *asymptotiques*.

Les travaux correspondants, qui jouent en simulation numérique le rôle d'un téléobjectif en photographie, ont été appliqués aux domaines suivants :

- description macroscopique (simulation du « champ lointain » pour les calculs de sûreté) de l'hydrologie et de la migration dans des roches très hétérogènes,
- description mésoscopique (simulation du « champ

proche ») de l'hydrologie et du transport en présence de roches fracturées (EDZ) ou en situation de dissolution/précipitation,

- ou encore transport de radioéléments répartis initialement dans un très grand nombre d'alvéoles disséminées.

3.3.1. Changement d'échelle des sources de relâchement pour les calculs « champ lointain »

Pour estimer l'impact radiologique des radionucléides relâchés jusqu'à une région relativement éloignée du site de stockage, un modèle « champ lointain » d'émission de radionucléides par le site de stockage tout entier doit être établi à partir d'un modèle d'émission par chacun des conteneurs. Il s'agit donc de passer de modèles validés en champ proche à des modèles applicables en champ lointain, en ne gardant de la phénoménologie que ce qui est cohérent avec cette dernière échelle et en négligeant ce qui n'apparaît pas à une échelle moindre (figure II.22).

Deux modèles globaux différents apparaissent, suivant que l'on est en début ou en fin de relâchement des radioéléments. Différents niveaux d'endommagement de la roche environnante (confinement parfait, fuites contenues sur la seule zone du site, échappement dans les galeries) ont été envisagés, qui aboutissent à des modèles « champ lointain » différents. Ces méthodes et les résultats obtenus sont particulièrement novateurs dans ce type de problématique, pour lequel les simples moyennes « empiriques » employées jusqu'à présent ne permettaient, dans les modèles « champ lointain », ni de conserver les pics de relâchement, ni de les différencier suivant le degré d'endommagement local.

3.3.2. Modèles de transport/écoulement multicomposants à travers des milieux poreux fracturés

Les données provenant du site granitique d'Aspö (Suède) montrent que des vitesses de filtration élevées y sont observées, tant dans les fractures que dans les blocs. On se trouve donc dans une situation où les effets dus au transport par filtration l'emportent sur ceux dus au transport par diffusion. Or ces régimes, et les méthodes numériques utilisées pour les simuler, sont très différents dans le milieu fracturé et dans les blocs. Un modèle détaillé, impliquant en outre un réseau particulièrement dense sur une région assez grande et sur toute la durée de la radioactivité des éléments transportés, demanderait des temps de calcul prohibitifs. Pour contourner cette difficulté, une caractérisation globale du comportement d'un tel milieu, c'est-à-dire une description mésoscopique, a été recherchée. Ce modèle, dont tous les paramètres effectifs (porosité, perméabilité, terme d'échange, dispersion) peuvent être explicités et calculés à partir des données expérimentales, peut ensuite être utilisé pour calculer, à moindre coût, sur un maillage moins dense que le réseau de fractures lui-même (figure II.23).

3.3.3. Calcul des paramètres hydrologiques effectifs dans diverses situations d'hétérogénéités

En s'appuyant sur des données de sismique inverse, des modèles de géostatistique et des techniques de caractérisation, un modèle peut être élaboré pour les formations géologiques, qui associe des paramètres hydrogéologiques (perméabilité, porosité, etc.) à plusieurs millions de mailles. Cependant, il est particulièrement difficile de prendre en compte cette complexité

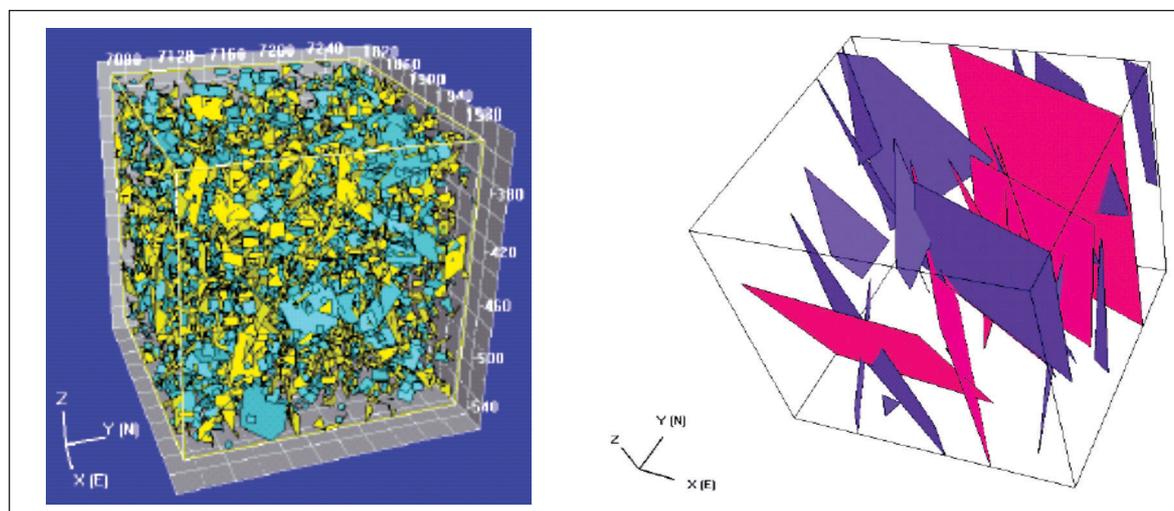
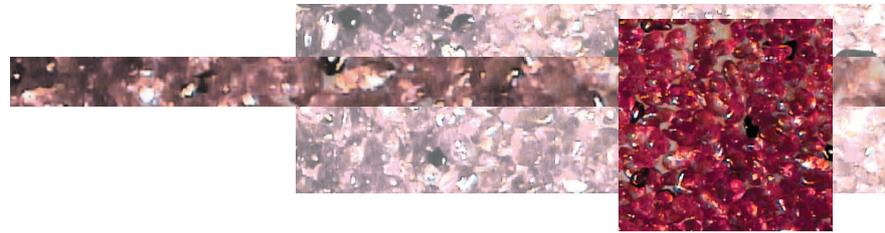
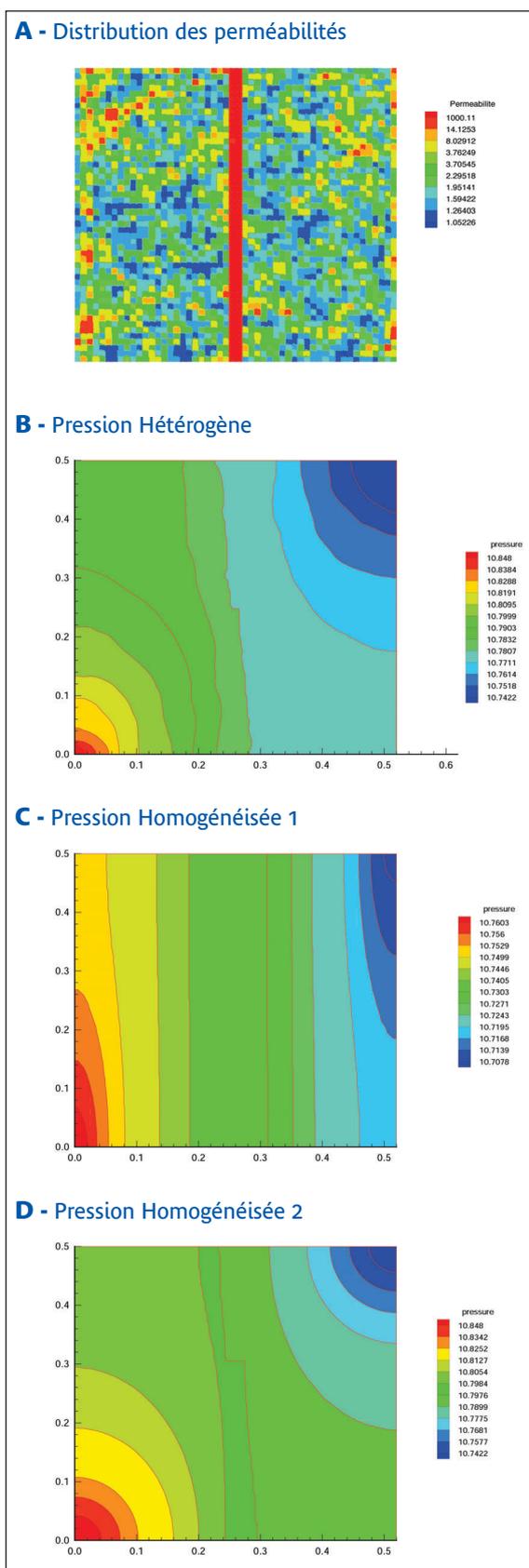


Fig. II.23 : Réseau de fissures du site granitique d'Aspö, sur lequel sont développés des modèles « globaux » de transport/écoulements multicomposants : à gauche, le réseau des fractures de fond ; à droite, les fractures principales. © CEA



Fig. II.24 : Comparaison de trois simulations d'un milieu poreux traversé par une fracture : carte détaillée des perméabilités d'une zone traversée par une faille rectiligne (en haut) ; niveaux de pression obtenus par simulation détaillée, puis par une simulation s'appuyant sur un modèle homogénéisé « global », enfin sur un modèle homogénéisé en 3 zones (en bas). © CNRS



dans des simulations numériques d'écoulement de fluides en milieux poreux hétérogènes. Même si, dans un tel modèle, des phénomènes peuvent être simulés au moyen de calculs parallèles, les temps de calcul sont encore trop longs et d'autres difficultés ne sont pas exclues (convergence, stabilité, ...). En outre, le modèle géologique devant respecter au mieux les particularités géométriques du domaine sur lequel sont simulés les écoulements, le maillage résultant de celui-ci est en général irrégulier.

La simulation sur un maillage régulier et relativement grossier conduirait à des calculs très rapides, mais pour utiliser une telle simulation, il faut auparavant transposer, à l'échelle mésoscopique, les caractéristiques géologiques obtenues sur les maillages fins et déstructurés. Pour cela, on a donc recouru aux méthodes de changement d'échelle, qui ont permis de construire un modèle équivalent, en calculant des paramètres géologiques effectifs, à partir de données ou de caractéristiques locales (figure II.24).

Une plate-forme de changement d'échelle numérique, *J-Homogenizer*, a été mise à la disposition des chercheurs. Elle calcule les coefficients effectifs obtenus par des méthodes asymptotiques de mise à l'échelle (perméabilité absolue, perméabilités relatives, pression capillaire, dispersion, etc.), pour des écoulements mono ou multiphasiques en milieux poreux.

3.4. Estimation/prédiction

Un problème inverse, ou d'estimation de paramètres, consiste à obtenir, à partir de mesures expérimentales, la valeur numérique de paramètres qui ne sont pas directement mesurables. L'application ciblée ici était la détermination des paramètres hydrogéologiques d'un site de stockage, la quantification des incertitudes affectant les simulations du comportement du site au cours du temps, ainsi que l'estimation des impacts radiologiques en des lieux précis. Ces recherches ont pour but, *in fine*, d'optimiser l'organisation du site lui-même et de donner une estimation statistique du risque pour une configuration donnée du stockage.

3.4.1. Identification des paramètres

Les études ont porté sur l'identification numérique des paramètres hydrauliques et de transport non mesurables dans un milieu de type argilite. Ces problèmes numériques étant très instables du fait de l'hétérogénéité du milieu, ils ont été abordés par plusieurs techniques (paramétrisation et optimisation de forme et de

taille des zones). En raison de cette instabilité, une analyse de sensibilité par rapport aux données a été menée, de façon à quantifier les incertitudes liées à leur imprécision. Ces méthodes ont été validées sur les données expérimentales du Mont Terri et peuvent maintenant être utilisées pour celles qui sont ou seront acquises sur le site de Bure.

3.4.2. Analyse de sensibilité

Un « plan d'expériences » est formé par un ensemble de points « bien placés » dans le domaine des paramètres étudiés. La méthodologie associée a deux volets : le premier est l'échantillonnage conduisant au choix de ces points, et le second est le tracé, par approximations, d'une surface de réponse reliant les valeurs de la variable d'intérêt en ces points, fournies par un code de simulation numérique (figure II.25). L'utilisation répétée d'un code de simulation, très lourde en temps de calcul (et qui n'est déjà qu'une approximation de la réalité) est alors remplacée par la lecture des valeurs numériques sur la surface de réponse, ce qui réduit considérablement les temps du calcul.

Les équipes ont mis en œuvre des méthodes de plans d'expériences numériques et de surfaces de réponse et déterminé le domaine de validité de la réponse d'un code de simulation de transport de radionucléides.

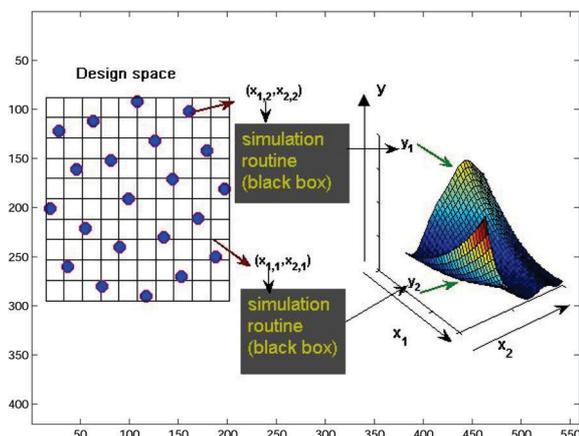
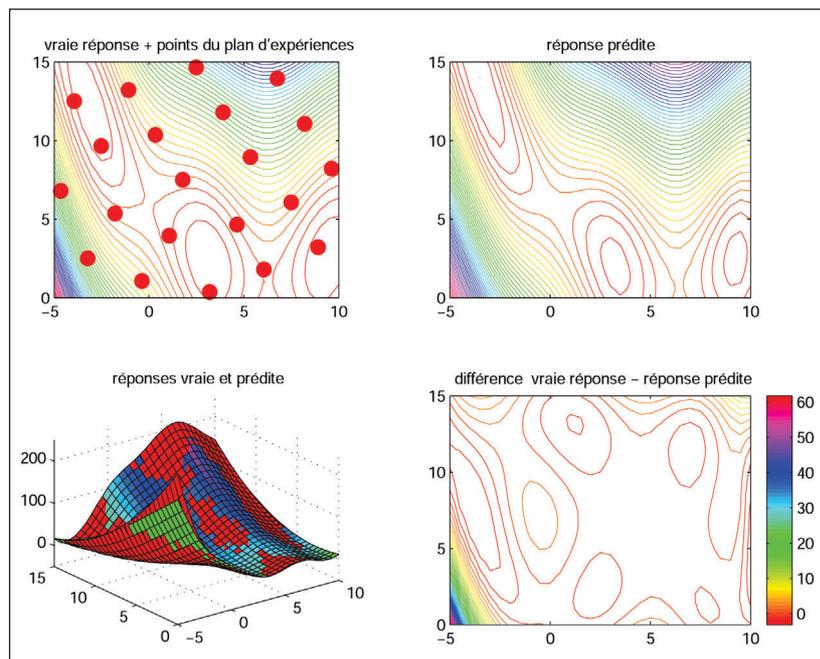


Fig. II.25 : Principe de mise en œuvre d'un plan d'expériences numérique : à gauche, échantillonnage du domaine d'intérêt ; à droite, construction d'une surface de réponse à partir des valeurs (ou réponses) obtenues par simulation numérique aux points de cet échantillonnage. © École des Mines de Saint-Étienne

Ce type d'approche permet non seulement d'ajuster un modèle simple en liant sa réponse aux paramètres pertinents, mais aussi d'identifier et de quantifier, parmi les paramètres d'entrée du code de calcul, les sources prépondérantes de variation de cette réponse (figure II.26).

Ce modèle simple se prête alors à des simulations par la méthode de Monte-Carlo, par exemple pour estimer la probabilité, pour chaque variable d'intérêt, de dépasser un certain seuil : alors qu'une seule simulation par le code initial demanderait plusieurs jours de calcul et que l'estimation d'une telle probabilité nécessite plusieurs milliers de simulations, l'utilisation du modèle simple, dont la réponse s'obtient en quelques secondes, rend possible et rapide des analyses de sensibilité.



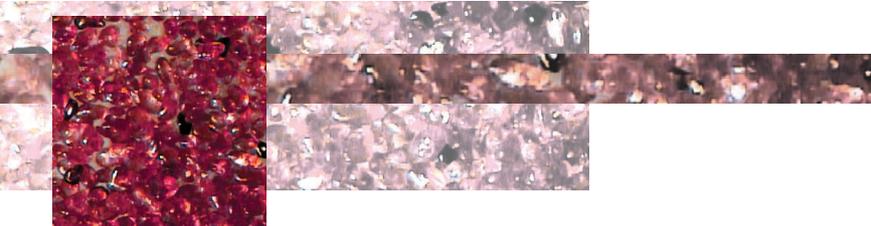
Des études systématiques de sensibilité et de robustesse des modèles vis-à-vis de leurs paramètres ont ainsi été menées sur la densité, la perméabilité et la porosité des milieux, la géométrie et la taille des fractures dans une zone endommagée, afin de quantifier la qualité de la modélisation et du degré de confiance à lui accorder.

3.5. Conclusion et perspectives à long terme

Avec les connaissances acquises sur le terrain, les études s'intéressent maintenant aux modèles plus complexes du champ proche, comme :

- la stabilisation des modèles hydromécaniques, pour localiser sans ambiguïté les déformations suivies d'endommagement lors des creusements,
- la caractérisation des propriétés globales d'une zone endommagée, à partir d'observations locales,
- l'étude d'écoulements complexes, insaturés (eau et air) et compressibles (avec des gaz comme l'eau, l'air ou l'hydrogène) dans les milieux géologiques fracturés,

Fig. II.26 : Exemple de construction d'une surface de réponse à partir d'un plan d'expériences et comparaison avec la réponse obtenue en chaque point du domaine par simulation numérique. © École des Mines de Saint-Étienne



- l'analyse numérique des couplages multiphénomènes en géohydrochimie pour le transport multiespèces,

- l'identification des paramètres du milieu à partir d'expériences en laboratoire souterrain, et à plus long terme, la formulation (sous forme de problème inverse) de modes optimaux de stockage satisfaisant aux règles de sûreté,

- l'établissement de modèles de transport de solutés réactifs en milieux poreux, à partir des lois établies au niveau du pore.

Comme dans beaucoup d'autres domaines, la simulation numérique appliquée à la problématique du stockage était récemment encore du ressort des seuls spécialistes de la phénoménologie associée (hydrogéologie, physique, géochimie, génie civil, mécanique des sols, transferts thermiques), dont le souci premier n'était pas d'utiliser les dernières avancées en mathématiques appliquées et calcul scientifique, ni de les développer. L'importance d'une analyse mathématique et numérique préliminaire est en effet souvent sous-estimée, de même que celle des vérifications et validations des étapes conduisant aux simulations finales. Dans certains cas, les réponses que peut apporter la modélisation mathématique, quant au choix des modèles phénoménologiques les plus appropriés à l'échelle des observations, étaient également méconnues.

La démarche des chercheurs qui, regroupés autour d'un noyau de mathématiciens appliqués, ont participé à ces études s'est davantage appuyée sur des concepts que sur des disciplines : bien que soucieux de voir appliquer leurs méthodes, ils n'en demeurent pas moins à l'écoute de ce que leurs collègues développent dans leur domaine. Grâce à cette approche transversale, les acquis issus de différents domaines ont pu profiter à celui du stockage : c'est ainsi que les méthodes numériques

hyperboliques étudiées en dynamique des gaz sont maintenant appliquées aux simulations de transport, lorsque la vitesse d'écoulement l'emporte sur celle de diffusion.

Les compétences mobilisées par le CNRS ont été concentrées, en accord avec les partenaires, sur les problèmes relativement simples de phénoménologie issus des calculs de sûreté réalisés par l'Andra en 2001 (transport des éléments par une seule phase, couplages faibles, modèles essentiellement déterministes, transport mono espèce avec sorption, etc). Une analyse des méthodes utilisées alors a permis de proposer des méthodes numériques plus efficaces et plus robustes (ce dernier point étant essentiel dans un contexte d'analyse de sûreté). De même, sur l'aspect multiéchelles (colis, alvéole, site, région), la validité des modèles utilisés pour passer du champ proche au champ lointain a été améliorée et des méthodes ont été proposées pour des situations plus compliquées (EDZ, par exemple). Des méthodes non classiques, adaptées à l'instabilité des problèmes numériques, ont été développées pour identifier leurs paramètres d'entrée, à partir des expériences *in situ*.

La communauté scientifique du CNRS et des Universités, qui participait pour la première fois à un projet d'une telle importance industrielle et sociétale, a dû trouver des habitudes de collaboration interdisciplinaire, dégager parmi des besoins industriels des problématiques auxquelles elle pouvait tenter de répondre et travailler par projets pluridisciplinaires. Ceci a conduit à un élargissement du champ scientifique des applications des mathématiques et ensemencé celui-ci de nombreux, nouveaux et difficiles problèmes.

