

# DÉCHETS INDUSTRIELS ULTIMES, ANALOGUES NATURELS, ANALOGIES : QUELLE DÉMARCHE CHOISIR ?

P. Piantone, B. Côme\*  
BRGM, Antea

**Le concept d'analogue naturel, initialement appliqué au stockage des déchets radioactifs, est raisonnablement envisageable pour l'évaluation du comportement à long terme des résidus industriels ultimes stabilisés. Il apparaît irremplaçable pour bâtir des scénarios prospectifs de leur évolution pour des centaines voire des milliers d'années. Après un rappel sur le concept et ses limites, une démarche étendue, bénéficiant de l'expérience acquise dans le domaine des Sciences de la Terre, est proposée.**

**The natural analogue concept, initially applied to radioactive-waste storage, might also be used for evaluating the long-term behaviour of industrial stabilized final waste. This concept would seem to be vital for the creation of predictive scenarios for the evolution of such wastes over hundreds and even thousands of years. After a summary of the concept and its limitations, we propose an extensive approach based on experience acquired in the field of the Earth Sciences.**

## INTRODUCTION

Après avoir porté l'effort sur le domaine, souvent très médiatisé, des déchets radioactifs, alors qu'ils ne constituent, tous résidus confondus, qu'une part minime de la production annuelle, le monde de la recherche scientifique s'intéresse maintenant aux déchets industriels et domestiques. A cause des tonnages concernés, ces derniers constituent un enjeu très important, comme en témoignent en France, depuis la loi de 1992, les questions posées par leur inertage, leur stockage ou leur banalisation, et leur impact, à court et à long terme, sur l'écosystème. L'article propose une réflexion sur l'apport des Sciences de la Terre à la problématique des déchets, à travers le concept d'analogie.

## L'ANALOGUE NATUREL : RAPPELS DES CONCEPTS DE BASE

A l'origine, le concept d'analogie naturelle a été mis en œuvre pour étayer l'évaluation à long terme de l'impact d'un stockage de déchets radioactifs dans un système géologique

(Chapman et al., 1984 ; Petit, 1990 ; Côme et Chapman, 1990 ; Chapman, 1992 ; Brandberg et al., 1993 ; Miller et al., 1994). Dans ce contexte, un analogue naturel est défini comme un système géologique montrant des processus estimés voisins de ceux qui devraient régner dans un stockage de déchets radioactifs et ce, pour des échelles de temps et de volume comparables. Le système géologique (géosphère) peut être grossièrement défini par deux constituants majeurs, une roche mais aussi des eaux plus ou moins minéralisées qui, contenues dans les discontinuités du solide, permettent le transport des ions et par là avec le temps une inévitable transformation du milieu solide. Tel qu'il a été établi pour le stockage des déchets radioactifs, ce concept peut en principe être adapté aux résidus ultimes des déchets industriels résultant des dispositions réglementaires prises en France depuis 1992. Les prescriptions concernant le cadre géologique des centres de stockage pour les déchets ultimes étant maintenant fixées, il s'agit alors, pour appliquer la démarche analogique, d'identifier des matériaux naturels suffisamment voisins des déchets inertés en question, comme cela a été réalisé récemment (de manière préliminaire) par le BRGM dans le cadre d'un contrat avec l'association Record (Réseau coopératif de recherche sur les déchets) (Côme, 1995).

Ainsi, la réalisation de scénarios prospectifs vraisemblables de dégradation de déchets inertés, et de leur impact sur l'environnement, nécessite de déterminer qualitativement et quantitativement les mécanismes d'interaction entre l'eau, le déchet et l'environnement géologique de son lieu de stockage, ceci afin d'évaluer le bilan des transferts en fonction des paramètres physico-chimiques du milieu. En effet, si en laboratoire, il est maintenant possible de tester des réactions chimiques aux cinétiques de réactions lentes (sur une année) ou par exagération des paramètres intensifs, de faire évoluer des équilibres minéraux dans un laps de temps plus court (compatible avec les contingences humaines et matérielles), puis de les modéliser, il reste encore très délicat d'appréhender, à long terme, les conséquences de l'évolution d'un système chimique complexe (précipitation-dissolution-adsorption) mettant en jeu des phases minérales dont l'apparition, la croissance ou la dissolution, sont contrôlées

dans le court terme par des cinétiques encore mal connues. Les matériaux géologiques impliqués dans ce type d'étude, seront choisis pour leur analogie avec les déchets inertés et doivent donc présenter la manifestation des processus géochimiques à évaluer, par exemple : dégradation en milieu sous-saturé (un sol hors nappe phréatique) à saturé (une mine ou une carrière noyée), interactions avec leur environnement solide. Les résultats de cette démarche peuvent alors fournir des éléments de réponse (a) aux problèmes posés par le vieillissement du déchet inerté et son impact sur l'environnement (interactions avec l'hydrosphère puis la biosphère) ; (b) sur le rôle du milieu géologique dans le confinement (interaction avec la géosphère) sur le long terme ; (c) quant à l'amélioration des procédés d'inertage des déchets. L'intérêt essentiel de cette démarche réside dans la validation au moins partielle de modèles prédictifs concernant l'évolution de déchets inertés soumis aux aléas d'une altération oxydante dans une tranche pelliculaire supérieure de la géosphère. Seule l'analyse du milieu naturel, en effet, est susceptible de fournir aux paramètres intensifs nécessaires à la modélisation, des valeurs « géologiquement réalistes » concernant des processus dont la durée pourra dépasser la centaine voire plusieurs milliers d'années.

### PERSPECTIVES D'EXTENSION DE L'APPROCHE ANALOGIQUE

Les travaux réalisés ou en cours au sujet des analogues naturels montrent les limites de l'approche analogique. Il n'existe pas d'analogie totale entre un centre de stockage de déchets ultimes et quelque système géologique que ce soit, et, dans le milieu naturel, il demeurera pratiquement impossible de trouver l'exacte réplique d'un produit né de l'activité humaine tel un déchet inerté. Cependant, il faut conserver présent à l'esprit que seule la référence à des systèmes naturels peut introduire les échelles de temps et d'espace compatibles avec le problème de l'évaluation de la stabilité des déchets ultimes inertés. C'est pour cette raison qu'il apparaît judicieux d'envisager une approche plus souple de la démarche analogique. L'avenir de la démarche analogique devrait reposer moins sur le seul comportement d'un matériau naturel analogue d'un déchet inerté, que sur le comportement dans le milieu naturel (géosphère et hydrosphère) des éléments qui le constituent, pris par groupes ou individuellement, formant ou non des entités minérales. Ainsi, le milieu naturel serait-il toujours utilisé comme un « laboratoire » pour mieux comprendre les processus physico-chimiques susceptibles de contrôler à long terme la distribution des éléments dans le déchet inerté et son environnement.

Un autre aspect de l'approche analogique, peut-être pas assez évoqué, doit être également mentionné. Dans le cas où les éléments toxiques présents dans les déchets ne sont que très faiblement représentés dans le milieu naturel, ou même absents, il serait possible, comme pour les radionucléides (technétium, protactinium, plutonium, ...) et les terres

rars (Chapman et al, 1984), de rechercher dans la géosphère des éléments ayant un comportement chimique analogue. Ainsi le thallium monovalent, élément très toxique, dans un milieu exempt de soufre, peut être mis en parallèle avec le potassium ou le rubidium (Vlasov, 1966). Il en est de même pour le vanadium qui sous sa forme  $VO_4^{(2-)}$  présente un comportement identique à  $PO_4^{(2-)}$  (Nriagu, 1985). Outre son potentiel pour la démarche analogique, cet aspect pose aussi le problème de la compétition entre éléments voisins, qu'il ne faudra pas ignorer au cours de travaux futurs.

### L'ANALOGIE « ÉTENDUE » : CONTOUR D'UNE DÉMARCHE ENVISAGEABLE

A partir des expériences passées (Piantone, 1989 ; Côme et Chapman, 1990 ; Petit et Gascoyne, 1992), il est possible de concevoir une démarche moins stricte que celle définie initialement. Elle pourrait être bâtie autour de plusieurs directions majeures, combinées en vue d'établir, pour le court terme et long terme, un scénario réaliste de l'évolution d'un déchet soumis aux sollicitations évolutives du milieu naturel. Ce scénario serait bâti à partir d'observations naturalistes et de leur quantification par un modèle d'équilibre thermodynamique.

La démarche étendue comprendrait ainsi :

1- Une caractérisation poussée du produit (le déchet ultime stabilisé), minéralogique, chimique, permettant d'établir une « carte d'identité » très fidèle du matériau initial, volet indispensable de cette démarche. Elle a plusieurs buts : (a) permettre la recherche de sites naturels comportant soit des gisements de métaux, soit des roches ou minéraux sur lesquels pourront s'appliquer le raisonnement analogique ; (b) permettre la recherche ou l'estimation de données thermodynamiques concernant le matériau de départ nécessaires aux calculs d'équilibres. Dans la mesure où cela est possible, une opération identique peut être envisagée sur des matériaux de « même ordre » stockés depuis plusieurs années sur des aires soumises aux aléas climatiques ou déjà mis en décharge. Cette phase permettra de connaître l'évolution à court terme des matériaux, et apportera les données nécessaires à la validation du scénario pour des temps intermédiaires.

2- A partir de sites naturels identifiés en 1 (a) ci-dessus, l'analyse des processus de dégradation (dissolution, dissolution incongruente, précipitation) qui, pour les minéraux, les groupes d'éléments ou les éléments sélectionnés, régissent à long terme les lois d'équilibre.

3- En fonction des données obtenues par l'observation des déchets inertés et du milieu naturel, la compilation, pour les éléments sélectionnés, d'une base cohérente de données thermodynamiques établie à partir de bases existantes ou à défaut, pour les valeurs manquantes, estimées à partir de modèles (Tardy et Garrels, 1977 ; Vieillard et Tardy, 1988 ; Holland, 1989 ; Vieillard 1994).

4- Une modélisation des équilibres thermodynamiques intervenant au cours de l'altération du déchet inerté, raisonna-

blement envisageable à ce niveau, et la détermination du produit final le plus stable en fonction des conditions physiques et chimiques supposées. Ainsi, l'étude conjointe du déchet et du milieu naturel, et la modélisation, permettront d'une part, de définir les phases déterminantes intervenant au cours des processus de dégradation ; et, d'autre part, de valider les données thermodynamiques utilisées pour l'établissement du modèle. Les codes de calcul utilisés pour cette modélisation pourraient être sélectionnés, d'une part parmi ceux des outils ayant fait leurs preuves, notamment à l'occasion de « benchmarks » internationaux (Read et al., 1990) tels EQ3NR, WATEQ, MINEQL, DISSOL, utilisés dans le domaine des Sciences de la Terre pour la modélisation de la dégradation des matériaux géologiques (environnement de systèmes hydrothermaux, verres naturels, champs géothermaux, dépôts minéraux soumis à l'altération météorique,...) et artificiels (verres utilisés pour le conditionnement des déchets radioactifs) ; d'autre part, parmi des codes permettant de calculer les équilibres en minimisant l'énergie libre des systèmes thermodynamiques tels CEQCSY (Lehmann et Fabriol, 1989). Pour ces calculs il n'apparaît pas, a priori, nécessaire de prendre en compte la cinétique (dissolution et précipitation) car elle est pour le milieu minéral encore mal définie. D'ailleurs, il n'existe pas encore de modèle fiable prenant en compte le long terme, et l'analyse du milieu naturel en zone sous-saturée montre que l'approche par l'équilibre est tout à fait raisonnable. Cette démarche pourrait être aussi utilisée dans la définition des essais projetés dans le cadre des travaux de normalisation française (AFNOR, 1995). Actuellement, il apparaît très difficile de tenir compte du facteur temps dans l'établissement des normes d'essais. L'utilisation de la démarche précédente dans la définition des phases minérales « intermédiaires » et « ultimes » de dégradation des déchets inertés autoriserait le classement des déchets en fonction de l'innocuité des phases néoformées et de leur pouvoir de fixation des ions toxiques, et la mise au point des protocoles de vieillissement artificiels nécessaires à la mise en œuvre de normes plus pertinentes que celles actuellement en vigueur.

## CONCLUSIONS

Le stockage ou la banalisation de déchets ultimes provenant d'activités industrielles ou domestiques pose le problème de leur impact à court et à long terme sur l'écosystème. Il apparaît nécessaire de réaliser des scénarios prospectifs vraisemblables, à court terme et à long terme, de dégradation de déchets inertés. Pour des raisons pratiques seule l'approche analogique, de préférence « étendue » comme proposée ici, établissant un parallèle entre des matériaux naturels et les matériaux artificiels, peut apporter des valeurs réalistes pour des processus dont la durée pourra dépasser la centaine d'années voire plusieurs milliers d'années. L'intérêt de la démarche « étendue » réside dans la validation des modèles thermodynamiques qui constitueront une partie des

modèles de sûreté à établir autour des stockages de déchets. Enfin, outre ce point capital, il faut conserver à l'esprit le rôle que peut présenter une telle démarche dans le cadre d'une stratégie de communication en matière de déchets.

### \* B. Côme

ANTEA, Direction Technique, Avenue C. Guillemin - BP 6119 - 45061 Orléans Cedex 2

### \* P. Piantone

BRGM, Département Métallurgie et Géodynamique, Avenue C. Guillemin - BP 6009 - 45060 Orléans Cedex 2

Cet article est la publication scientifique n° 96-004 du BRGM. Il a été réalisé dans le cadre d'un projet financé à parts égales par les fonds de recherche scientifique du BRGM et de l'association Record.

## Bibliographie

- Afnor (1995). Projet de norme X30Y : Déchets - Méthodologie pour la détermination du comportement à long terme. 18 p.
- Brandberg, F., Grundfelt, B., Höglund, L.H., Karlsson, F., Skagius, K. et Smellie, J. (1993). *Studies of natural analogues and geological systems. Their importance to performance assessment*. SKB Rapport Technique, 93-05, 166 p.
- Chapman, N., McKinley, I. et Smellie, J. (1984). *The potential of natural analogues in assessing systems for deep disposal of high-level radioactive waste*. Rapport Technique SKB, n° 84-16, 103 p.
- Chapman, N. (1992). *Natural analogues : the state of play in 1992. High level radioactive waste management*, Proceeding of the Third International Conference, Las Vegas, Nevada, April 12-16, 1992, v. 2, pp 1695-1700.
- Côme, B. (1995). *Analogues naturels de déchets industriels : résultats d'une étude d'orientation*. Mines et Carrières-Industrie minière, 77, pp 39-43.
- Côme, B. et Chapman, N., éditeurs (1990). *Fourth natural analogue working group meeting and Poços de Caldas project final workshop*, Pitlochry, 18 to 22 June 1990, Scotland, Rapport CCE série sciences et techniques nucléaires, EUR 13014 EN, 276 p.
- Holland, T. (1989). *Dependance of entropy on volume for silicate and oxides mineral. A review and predictive model*. Amer. Min., 74, pp 5-13
- Lehmann, J. et Fabriol, R. (1989). *CEQCSY : un nouveau code de calcul d'équilibre des systèmes multiphasés*. Rapport CCE série Sciences et Techniques Nucléaires, EUR, 12299, 30 p.
- Miller, W., Alexander, R., Chapman, N., Mc Kinley, I. et Smellie, J. (1994). *Natural analogue studies in the geological disposal of radioactive wastes*. Studies in Environmental Sciences, 57, Elsevier, 393 p.
- Nriagu, J. (1985). *Phosphates minerals*. Springer Verlag, 442 p.
- Petit, J.C. (1990). *Design and performance assessment of radioactive waste forms : what can we learn from natural analogues ?* In. Côme, B. et Chapman, N ; Fourth natural analogue working group meeting and Poços de Caldas project final workshop : Pitlochry, 18 to 22 June 1990, Scotland. Rapport CEE série sciences et techniques nucléaires, EUR 13014 EN, pp 31-72.
- Petit, J. C. et Gascoyne, M. (1992). *Geochemistry of radioactive waste disposal : a French contribution*, Suppl. Iss., 1, 276 p.
- Piantone, P. (1989). *Analogues naturels de la migration des radioéléments en formations granitiques par l'étude des paléooltérations hydrothermales*. Rapport CCE série sciences et techniques nucléaires, EUR 12297 FR, 187 p.
- Read, D. et Broyd, T. W. (1990). *The Chemical international exercise : a geochemical benchmark within the MIRAGE Project-Second phase* in Radioactive Waste Management and Disposal, Elsevier Applied Science, pp 574-587.
- Tardy, Y. et Garrels, R.M. (1977). *Prediction of Gibbs energies of formation from the elements. II. Monovalent and divalent metal silicates*. Geochim. Cosmochim. Acta., 41, pp 87-92.
- Vieillard, P. (1994). *Prediction of enthalpy of formation based on refined crystal structures of multisite compounds : Part I. Theories and examples*. Geochim. Cosmochim. Acta., 58, pp 4049-4063.
- Vieillard, P. et Tardy, Y. (1988). *Estimation of enthalpies of formation of minerals based on their refined crystal structures*. Amer. J. Sci., 288, pp 997-1040.
- Vlasov, K. (1966). *Geochemistry and mineralogy of rare elements and genetic types of their deposits*. Vol. I - Geochemistry of Rare Metals. Israel Programm For Scientific Translation.