

# **Problématique du stockage de radio-nucléides en milieux naturels**

**Laboratoire SFME/MTMS**

# PLAN DE L'EXPOSE

- **Le contexte – Les déchets nucléaires**
- **Présentation de sites de stockages envisagés**
- **Description générale des phénomènes physiques**
- **Exemples de difficultés numériques**
- **Quelques applications**
- **Conclusions**

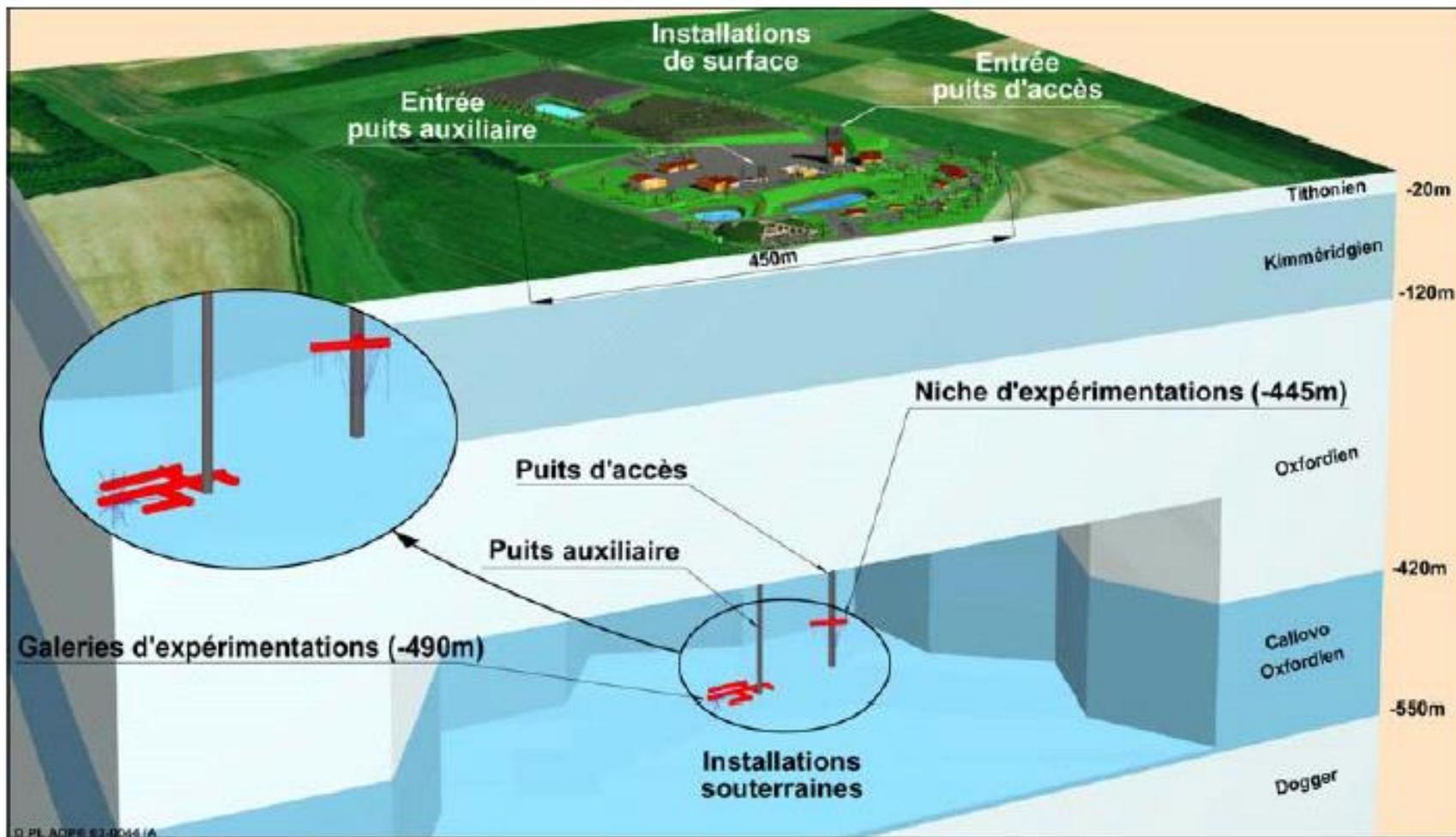
# Le contexte

- **La France produit plus de 70 % de l'énergie électrique avec des centrales nucléaires**
  - **Ces centrales produisent des déchets nocifs qu'il faut stocker de manière fiable**
- 
- **La loi Bataille (1991) impose 3 axes de recherche dans la gestion des déchets nucléaires :**
    - **La transmutation pour réduire le volume et la toxicité**
    - **Le stockage en milieu naturel profond pour un stockage permanent éventuellement réversible**
    - **L'entreposage et le conditionnement des déchets pour des temps de l'ordre de 300 ans.**

# LE STOCKAGE

**Le site géologique**  
**Les infrastructures du stockage**  
**Les colis**

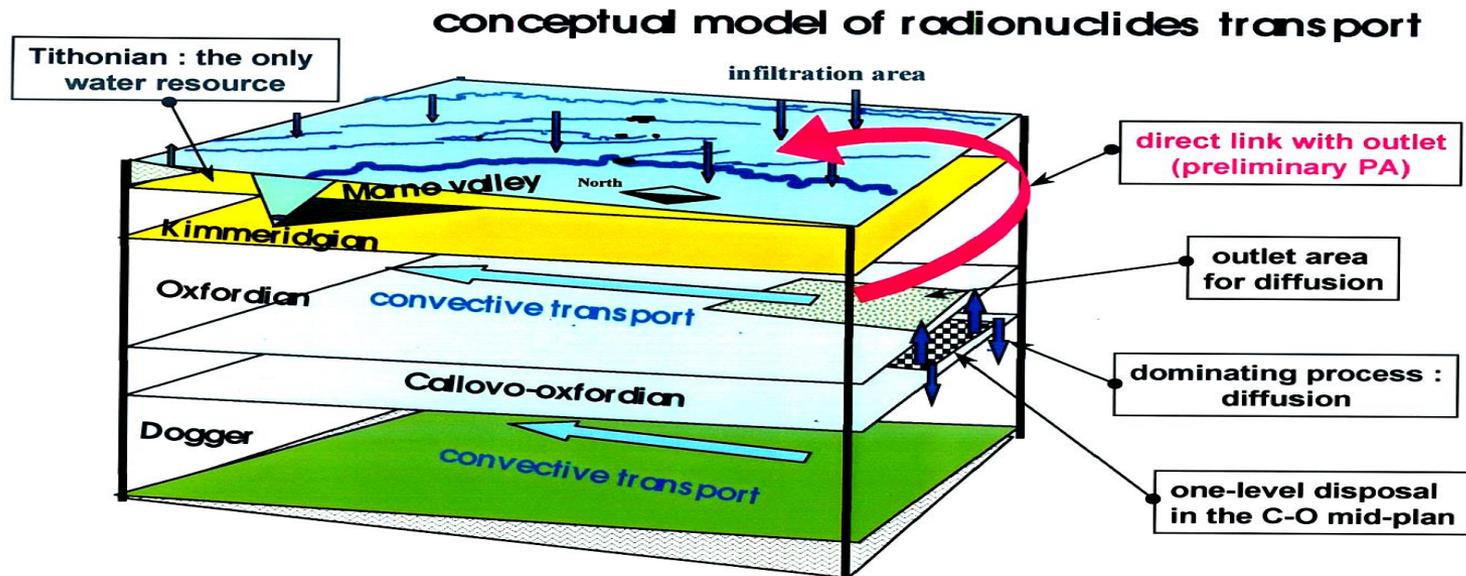
# Laboratoire souterrain - Bures



## Laboratoire de Bure (Meuse) – couche d'argile

# Propriétés générales

Experimental program in the Meuse/Haute Marne URL



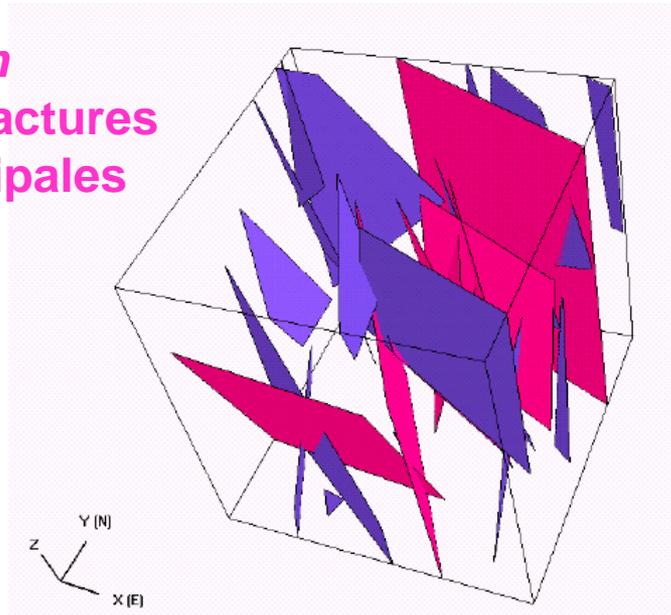
© ANDRA - DS/SR/PL Nat. Lab. USA december 10.-20. 2000



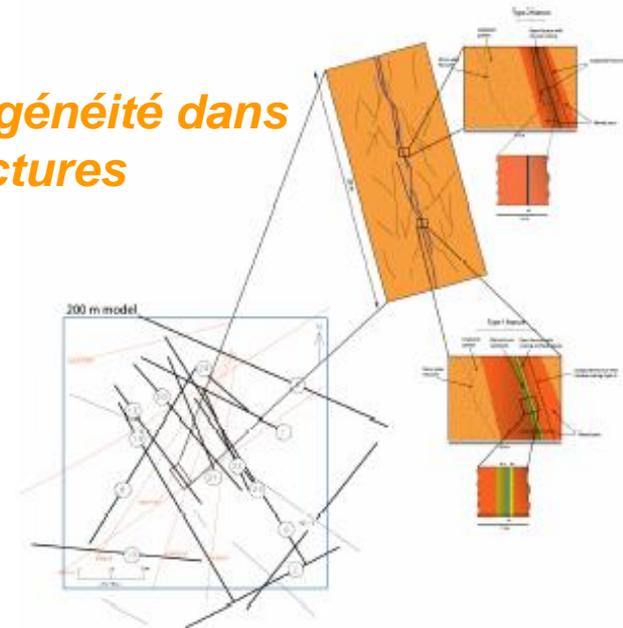
- Paramètres des équations mal connus
  - => études paramétriques (>1000 simulations 3D)
  - => résolutions rapides (qqes heures sur PC)
- Calculs sur des temps allant de 10 kans à 10 Mans
- Échelles spatiales allant de 1 m à 25 km
- Milieux aux propriétés fortement discontinues

# Aspö : Bloc fracturé à 3 niveaux d'hétérogénéité

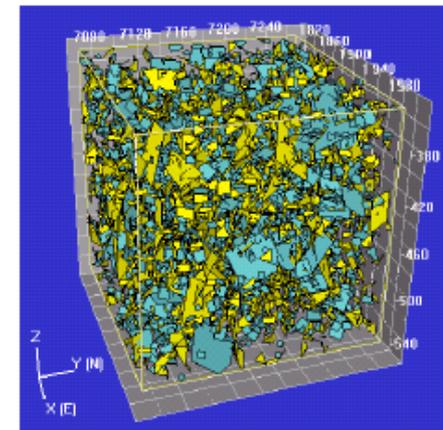
200 m  
30 Fractures  
principales



Hétérogénéité dans  
les fractures



Fracturation de fond  
5000 fractures de  
2 à 10 mètres



Background fractures coloured by set, Shallow set (blue), NNW (yellow).

# Les colis

- **Contiennent des déchets thermiques très actifs ( $T > 100\text{ C}$  avant stockage).**
- **Contiennent des déchets non thermiques mais à vie très longue.**
- **La nature du centre des colis est variable :**
  - ✓ Bitumes
  - ✓ Vitrifiés
  - ✓ Béton mélangé aux déchets
- **Parfois une enveloppe en acier puis béton**
- **Parfois directement une enveloppe de béton**
- **Le colis doit rester intègre  $> 100$  ans si on veut la réversibilité du stockage**
- **Le colis doit confiner ou réguler le dégazage ( $\text{H}_2$ ) des boues organiques**
- **Le colis doit prévenir l'échappement des radio nucléides sur la durée la plus longue possible ( $>1000$  ans)**

# Les phénomènes physiques

**La chimie**

**L'hydraulique**

**La mécanique**

**La thermique**

**Le transport**

# Les 10000 premières années

- **Échelle 0 – 10000 ans :**

- ⇒ Dissolution des colis et chimie associée – MOP dans cast3M. (Claude Mugler, Ph. Montarnal, ...)
- ⇒ Gonflement des argiles, étude de l'endommagement des ouvrages – couplage HM dans cast3m (jeux de données). (P. Maugis, C. Lepotier).
- ⇒ Dégazage d'Hydrogène (Pression > 80 bars) – développement diphasique en cours (jeux de données).
- ⇒ Resaturation du milieu (Richards disponible en l'absence de gaz piégé - **DARCYSAT**)
- ⇒ Aspects thermiques (THM dans cast3m pour applications spécifiques)

- ⇒ **Bilan :**

- ⇒ Chimie, mécanique, hydraulique, écoulement diphasique, transport de RNs. Localisé près du stockage (quelques mètres). **Nécessite des développements dans Cast3m.**
- ⇒ Thèses Sébastien Cadalen (Richards), Nicolas Bouillard (Couplage chimie-transport)

# Aux grandes échelles de temps (calculs de sûreté ANDRA).

- **Échelle 1000 – 100000 ans : rejet hors du colis**
  - ⇒ étude au grandes échelles, milieu saturé
  - ⇒ On utilise les résultats de la dissolution des colis et à la chimie associée comme termes sources
  - ⇒ Plus d'évolution thermique ou mécanique étudiées
- **Chimie simplifiée**
  - ⇒ sorption modélisée par un coefficient de retard
  - ⇒ précipitation, constante cinétique par espèce
- **Passage petites – grandes échelles (alvéole/stockage)**
  - ⇒ calcul sur une alvéole
  - ⇒ résultat sommés puis calcul sur un module
- **Développements disponibles de longue date dans cast3m**  
=> **DARCYTRA, TRAJ, ALEA, TRANSGEN** (plus récent) ...

# Hydraulique non saturée (DARCYSAT)

Équation de Richards (milieu poreux non déformable, gaz à pression atmosphérique)

$$C(h) \frac{\partial h}{\partial t} - \operatorname{div}(\overline{\overline{K}}(\theta) \vec{\nabla}(h)) = 0$$

avec  $\overline{\overline{K}}$  : le tenseur de perméabilité tensor,  $h$  la charge hydraulique dépendant de la pression capillaire,  $\theta$  la contenance d'eau (porosité x saturation),  $C$  le coefficient d'emmagasinement.

$$\nabla \cdot \left[ \overline{\overline{D}} \vec{\nabla} C - \vec{U} C \right] = \left( \frac{\partial \theta R C}{\partial t} + \lambda \theta R C \right)$$

where  $\overline{\overline{D}}$  is the dispersion / diffusion tensor,  $R$  the retardation factor,  $\theta$  the water content ( $\theta = \omega S$  with  $S$  the saturation) and  $\lambda$  the radioactive decay.

Équation de Darcy.

$$\vec{V} = -\frac{\overline{\overline{k}} \cdot k_r}{\mu} \cdot (\vec{\nabla} p + \rho \cdot g \cdot \vec{\nabla} z) = -\overline{\overline{K}} \cdot \vec{\nabla} h$$

# Equations de transport – saturé (DARCYTRA, TRANSGEN)

Description de l'évolution spatiale et temporelle de radionucléides :

- ✓ convection, diffusion, dispersion
- ✓ précipitation dissolution par espèce et par élément
- ✓ sorption modélisés par un coefficient de retard linéaire ou non
- ✓ décroissance radio-active et chaînes de filiation

$$\frac{\partial(R_i \phi_e \cdot C_i)}{\partial t} = \text{div} \left( \overline{D_i^*} \cdot \vec{\nabla} C_i - C_i \cdot \vec{U} \right) - \lambda_i \cdot \phi_e \cdot R_i \cdot C_i + \sum_{j \in I} \sigma_{ij} \lambda_j \cdot \phi_e \cdot R_j \cdot C_j + \phi_e \cdot S_i + Q_i$$

$$\cdot \frac{\partial(1 - \phi_e) \rho_s F_i}{\partial t} + (1 - \phi_e) \cdot \lambda_i \cdot \rho_s F_i - \sum_{j \in I} \sigma_{ij} \lambda_j \cdot (1 - \phi_e) \cdot \rho_s F_j = -\phi_e \cdot S_i$$

+ Conditions initiales

+ Conditions aux limites  
(concentrations, flux diffusif,  
conditions mixtes mposés)

- ✓  $\phi$  porosité (constante)
- ✓ R retard linéaire, Freundlich, Langmuir
- ✓ D tenseur de diffusion-dispersion
- ✓  $\Phi$  terme source, u vitesse de Darcy
- ✓  $\lambda$  décroissance, S échange précipitation

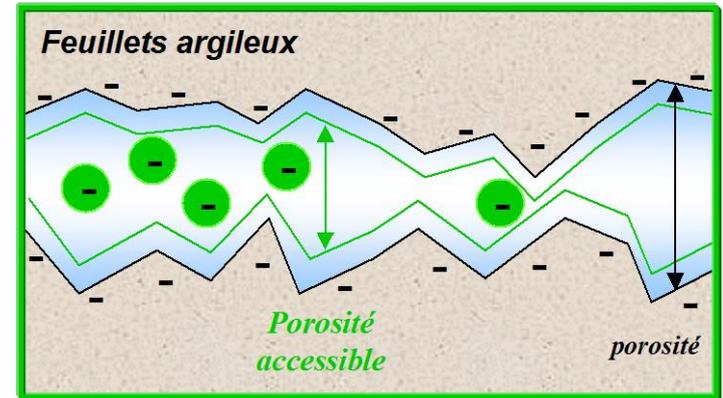
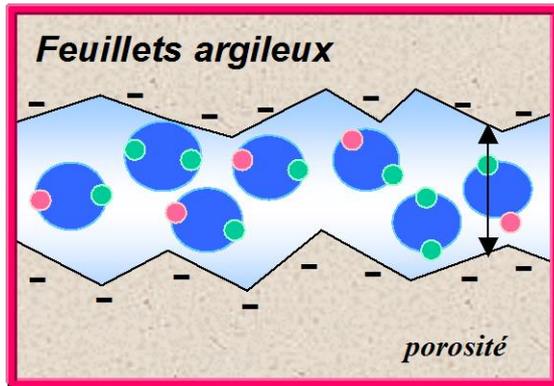
# La décroissance radioactive

- Un radioélément voit sa masse décroître d'un facteur 2 toutes les T années (T est appelé période de demi-vie).
- La masse disparue est transmise à un élément « fils » qui apparaît en conséquence :  
**=>  $X(N) \rightarrow Y(N-4) \rightarrow Z(N-8) \dots$**   
où N est le nombre de nucléons  
la chaîne s'arrête lorsqu'un élément stable (non radioactif) est produit.
- Les chaînes peuvent être ramifiées.
- Un radio nucléide peut donner naissance à un grand nombre d'espèces.

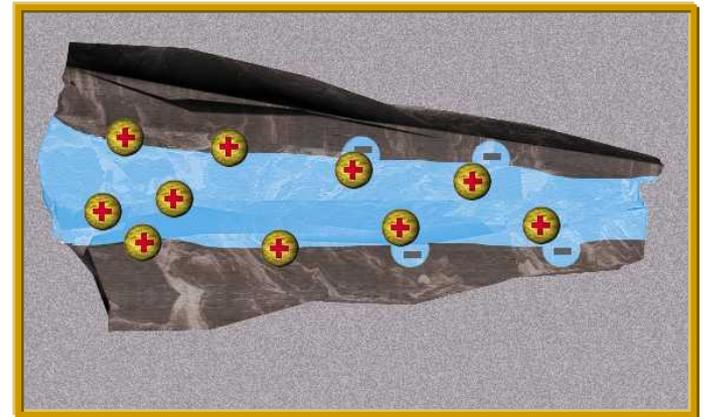
Ex : Une chaîne comportant 6 radionucléides :  
 $Cm^{245} \rightarrow Pu^{241} \rightarrow Am^{241} \rightarrow Np^{237} \rightarrow U^{233} \rightarrow Th^{229}$

	Période (ans)
$Cm^{245}$	8500
$Pu^{241}$	14,4
$Am^{241}$	433
$Np^{237}$	2.14e+6
$U^{233}$	1.59e+5
$Th^{229}$	7340

# Retard dans les argiles



- Les anions (I129) sont repoussés => porosité plus faible, mais moins d'interaction avec les parois (retard diminué)
- Les cations à l'inverse sont attirés, ce qui favorise la sorption à la paroi.



# Les modèles disponibles - sorption

- Le  $K_d$  et coefficient de retard  $R$ :

$C_i^{sorbé} = C_i^{sorbé}(C_i)$ $C_i^{sorbé} = Kd_i \cdot C_i$	coefficient de retard constant $Kd_i$ ; Coefficient de distribution
$C_i^{sorbé} = \frac{A_i^l \cdot C_i}{B_i^l + C_i}$	isotherme de Langmuir $A_i^l$ et $B_i^l$ constantes
$C_i^{sorbé} = A_i^f \cdot (C_i)^{1/n_i}$	isotherme de Freundlich $A_i^f$ constante
$C_i^{sorbé} = f(C_i)$	Fonction quelconque de la concentration en solution <b>Non Intégré</b>

$$R_i = 1 + \left( \frac{1 - \phi_e}{\phi_e} \right) \rho_s Kd_i$$

$$R_i = 1 + \left( \frac{1 - \phi_e}{\phi_e} \right) \rho_s \frac{A_i^l}{C_i + B_i^l}$$

$$R_i = 1 + \left( \frac{1 - \phi_e}{\phi_e} \right) \rho_s A_i^f \cdot C_i^{\frac{1-n}{n}}$$

# Les modèles disponibles

- **Le tenseur de diffusion-dispersion :**  $\overline{\overline{D_i^*}} = \overline{\overline{D_{ei}}} + \overline{\overline{D}}$

$$\text{avec, } \overline{\overline{D}} = \alpha_T \cdot \|\vec{U}\| \cdot \delta_{ij} + \frac{(\alpha_L - \alpha_T) \cdot u_i \cdot u_j}{\|\vec{U}\|}$$

- **Les conditions mixtes :**

$$A(t) \overline{\overline{D_i^*}} \overrightarrow{\text{grad}C_i} + B(t) \cdot C_i = E(t)$$

- **La précipitation par élément :**

$$S_i = \omega_i \cdot (C_i^{sat} - C_i) \cdot \delta_i \quad \begin{array}{ll} \delta_i = 0 & \text{si } F_i = 0 \text{ et } C_i < C_i^{sat} \\ \delta_i = 1 & \text{sinon} \end{array}$$

$$C_i^{sat} = C_{elem}^{sat} \cdot \frac{\phi_e \cdot R_i \cdot C_i + (1 - \phi_e) \cdot \rho_s F_i}{\sum_{j \in elem} (\phi_e \cdot R_j \cdot C_j + (1 - \phi_e) \cdot \rho_s F_j)}$$

## Et le reste ?

- **Les couplages HM, THM, Chimie-transport, etc..., ont fait l'objet d'études (ou de thèses) dans cast3m.**
- **Il existe des jeux de données qui tournent avec succès sur des applications particulières. Ces jeux de données font appels à des opérateurs de discrétisation élémentaires de cast3m (MHYB, MATP ...) ou plus élaborés (DARCYTRA ...).**
- **Du travail reste à faire pour en faire des opérateurs cast3m à vocation plus universelle.**

# Les aspects numériques

## Besoins impératifs

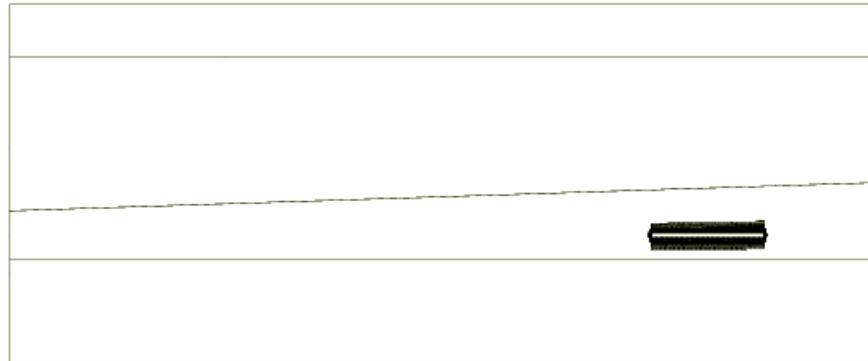
- ✓ Tenseurs de diffusion pleins (dispersivité)
- ✓ Propriétés discontinues et fortement hétérogènes des matériaux
- ✓ Fort rapport d'aspect de la géométrie discrétisée
- ✓ Les concentrations doivent rester positives
- ✓ Bonne précision sur les concentrations et les flux
- ✓ Rapidité et robustesse du code



# **SIMULATIONS NUMERIQUES ILLUSTRATION DE PROBLEMES RENCONTRES**

## **Benchmark COUPLEX 1 Calcul sur le site de l'Est**

# Cas complexe 1 - EFMH



VAL - ISO  
>=1.30E+01  
<=-3.00E+00

A -12.

B -10.

C -8.0

D -6.0

E -4.0

## Couplex 1

- Équation de transport diffusion-convection iode I\_129
- Calcul sur 10 Mans
- Domaine de 25 km x 500 m
- EFMH

# Couplex 1 - VF

VAL - ISO  
>-1.30E+01  
<-3.00E+00

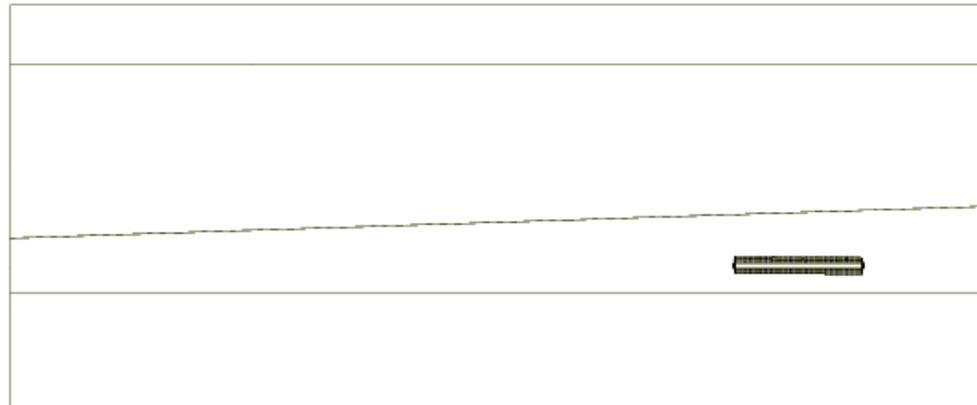
A -12.

B -10.

C -8.0

D -6.0

E -4.0



rapport vertical disp/diff

# Bilan Couplex 1

- **Importance d'avoir des schémas monotones (en gros qui ne provoquent pas d'oscillation artificielle de la solution). C'est essentiel en cas de couplage chimie-transport.**
- **Précision des flux : EFMH ou VF MPFA**
- **Maillages fins => solveurs performants nécessaires.**
- **Supporter des distorsions de maillage**
- **Accepter des tenseurs de diffusivité hétérogènes et anisotropes (voire pleins).**

# NOS CHOIX

- **3 discrétisations : EFMH, VF MPFA, VF « New »**
  - diffusion-convection implicite EFMH : cas courants.
  - diffusion VF MPFA–convection VF upwind implicites
- **Schéma en temps ordre 1 en général**
- **Solveurs :**
  - direct multithread pour petits cas (< 100000 ddl)
  - itératif (BCGSTAB) avec préconditionneurs ILU0, ILUT et pivoting (pour plus de 500000 mailles)
- **Enjeux :**
  - robustesse sur cas ANDRA
  - 100 mille à 1 million de mailles avec temps réalistes.



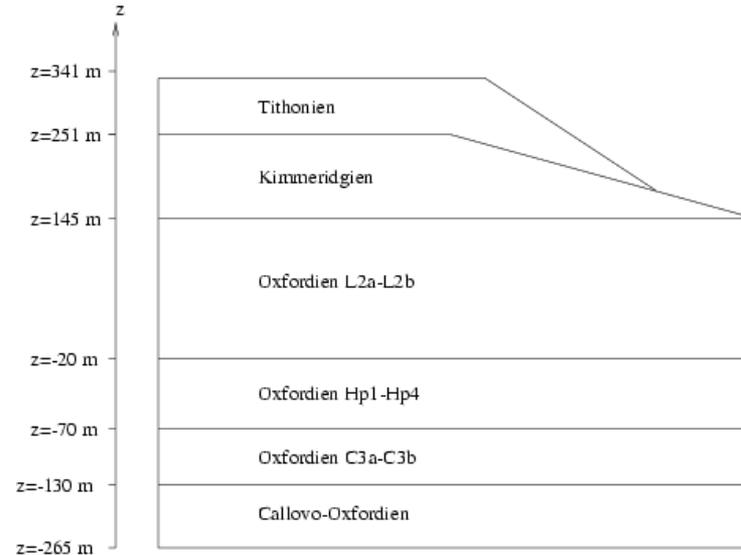
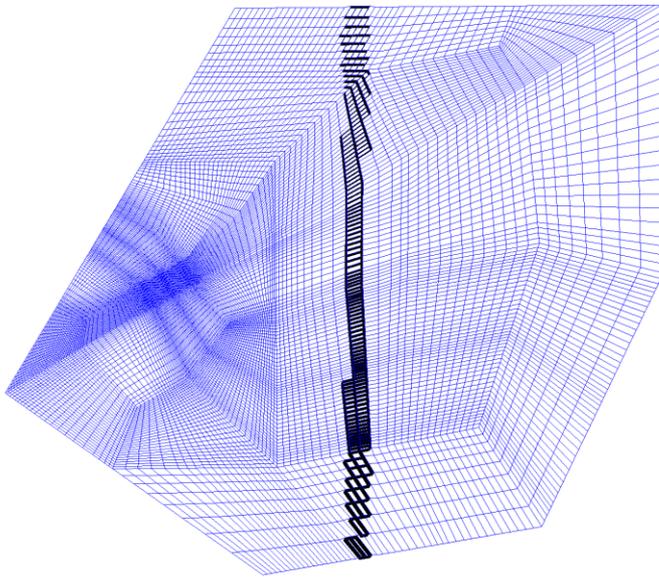
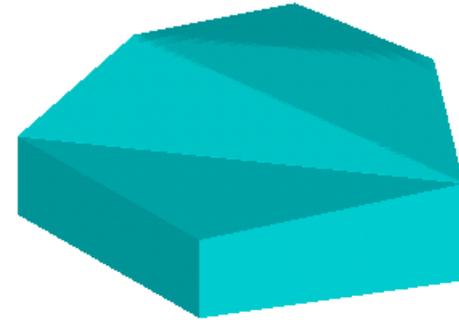
# **Application – Calcul de sûreté ANDRA**

## **Cas du site de Bure**

### **Scénario d'évolution normale**

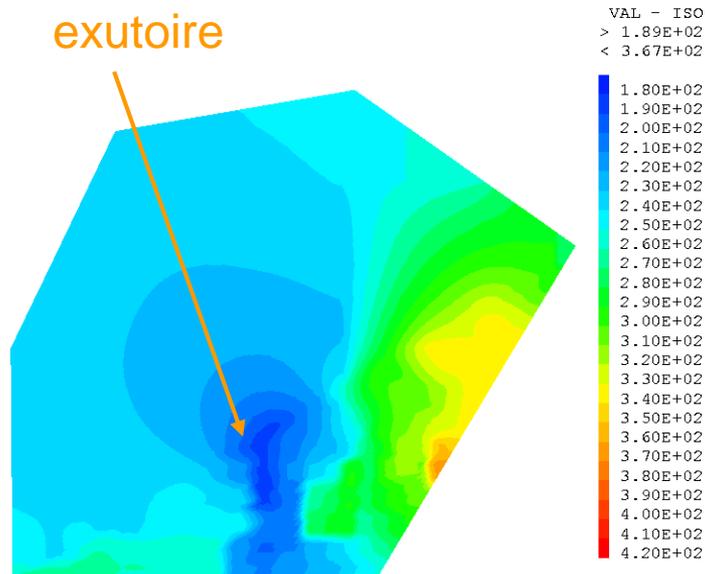
# Calcul à grande échelle – évolution normale

- **Objectif :**
- site 3D réaliste.
- 480000 mailles Les hexaèdres sont très déformés loin de la source et réguliers près du stockage.

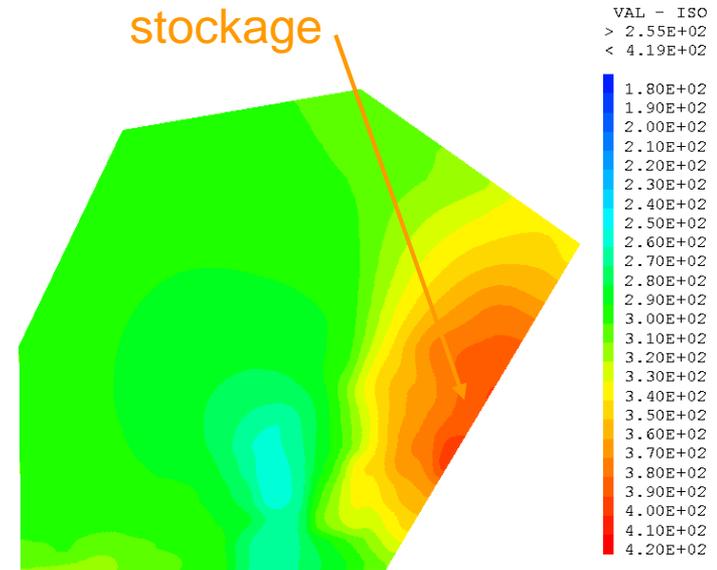


# Calcul de sûreté : l'hydraulique

- Calculs avec VF et EFMH. Résultats comparables.
- Pour les VF : solveur BICGSTAB, préconditionneur ILU0. Pour les EFMH, ( BICGSTAB ou gradient conjugué). Env 10-15 minutes.
- La matrice globale obtenue est mieux conditionnée en VF qu'en EFMH => environs 100 itérés au lieu de 600.



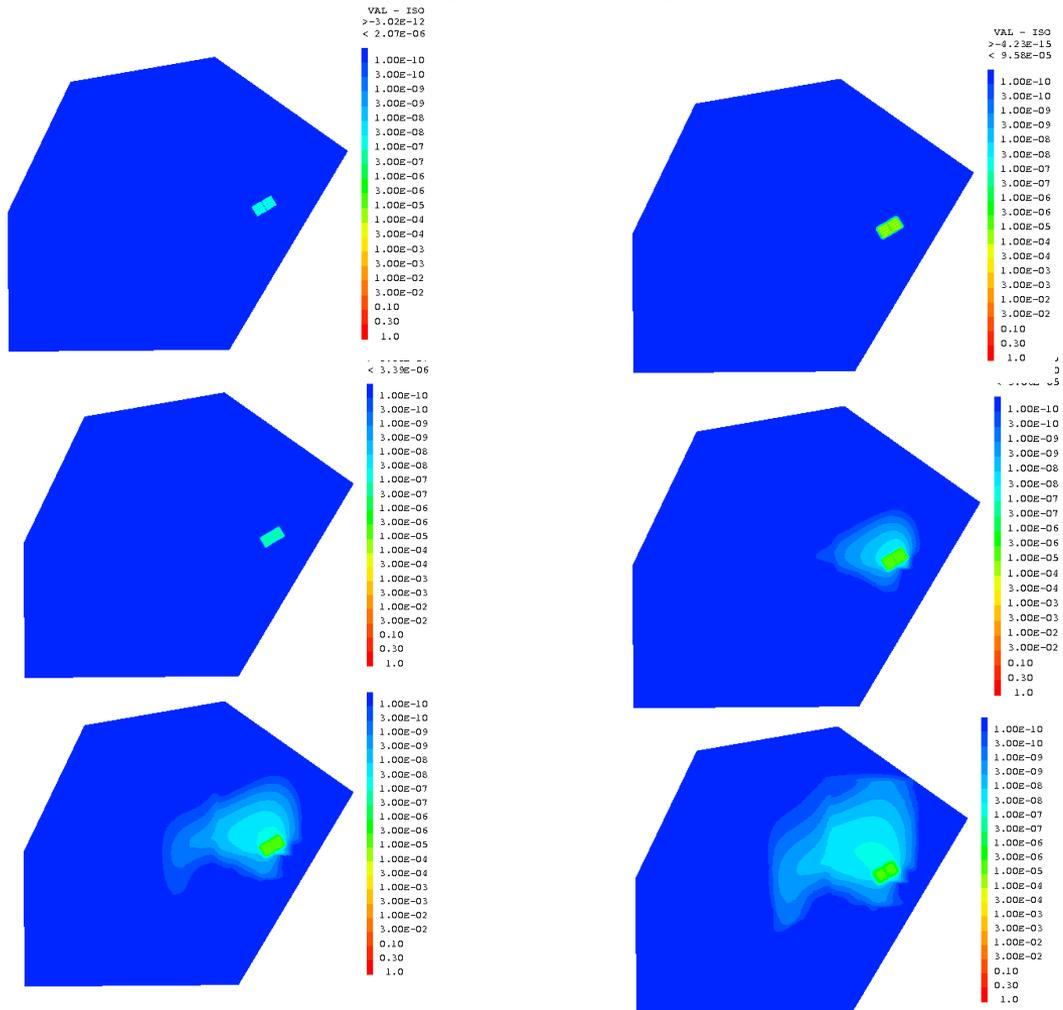
Coupe de charge à -30m



Coupe de charge dans le stockage

# Champ de concentration I129 dans l'oxfordien

## Coupe dans le plan horizontal z = - 130 m



Propagation aux différentes dates :  
t = 11 000 ans  
t = 50 000 ans  
t = 100 000 ans  
t = 300 000 ans  
t = 500 000 ans  
t = 1 000 000 ans

# Calcul de sûreté : le Transport VF

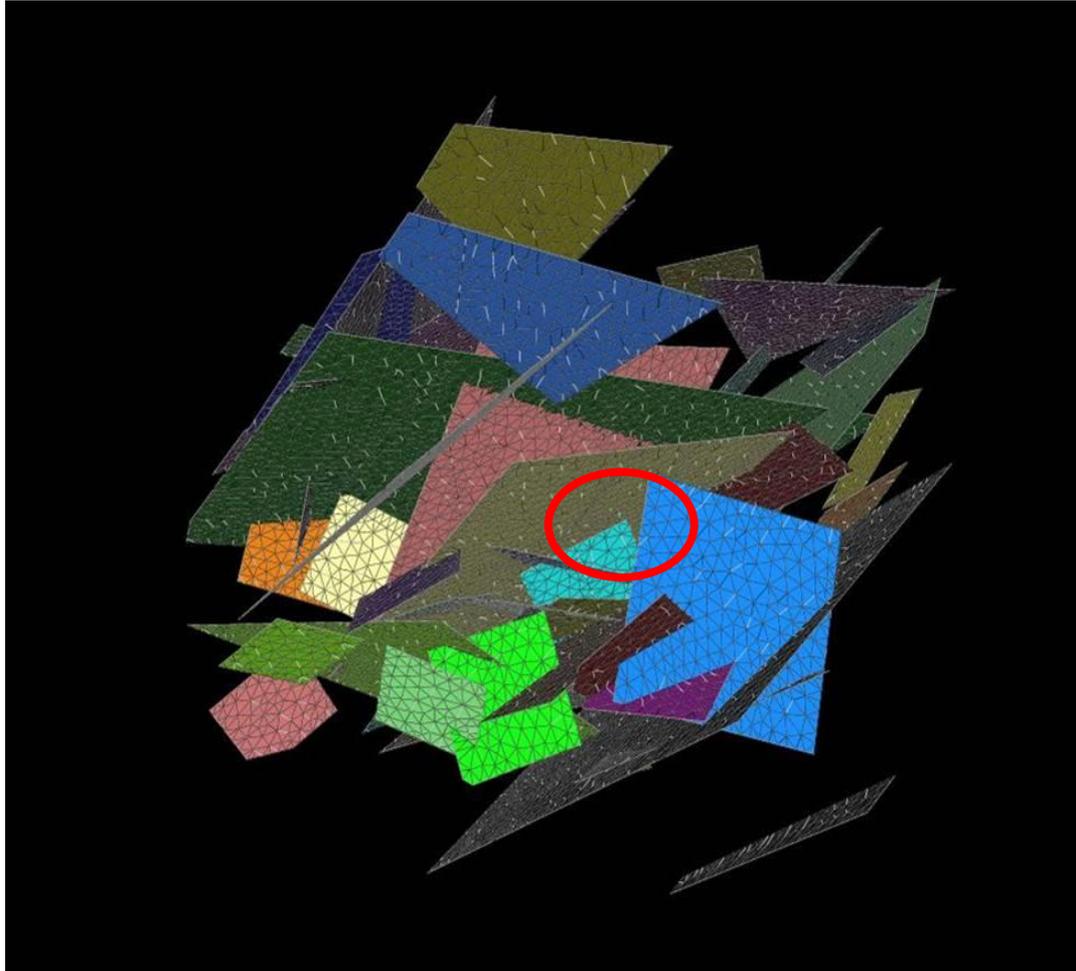
- **Transport**
- 1 million d'années. 1600 pas de temps de 100 ans à 5000 ans.
- Solveur itératif BICGSTAB, préconditionneur ILU0. (plus tard ILUT ou ILUDP)
  
- **Observations :**
- Valeurs négatives 10000 fois plus petites que la concentration moyenne.
- Avec Porflow, on constate également des oscillations.
- Remarque : il n'existe pas à notre connaissance de méthodes monotones sur tout type de maillage.
  
- **Résultats:**
- Bonnes comparaisons à des cartes de concentrations de Nammu et Porflow.
- Temps de calcul : 5h sur une machine à 2GO de mémoire vive et à fréquence de 3Ghz.

# Calcul de sûreté : le Transport EFMH

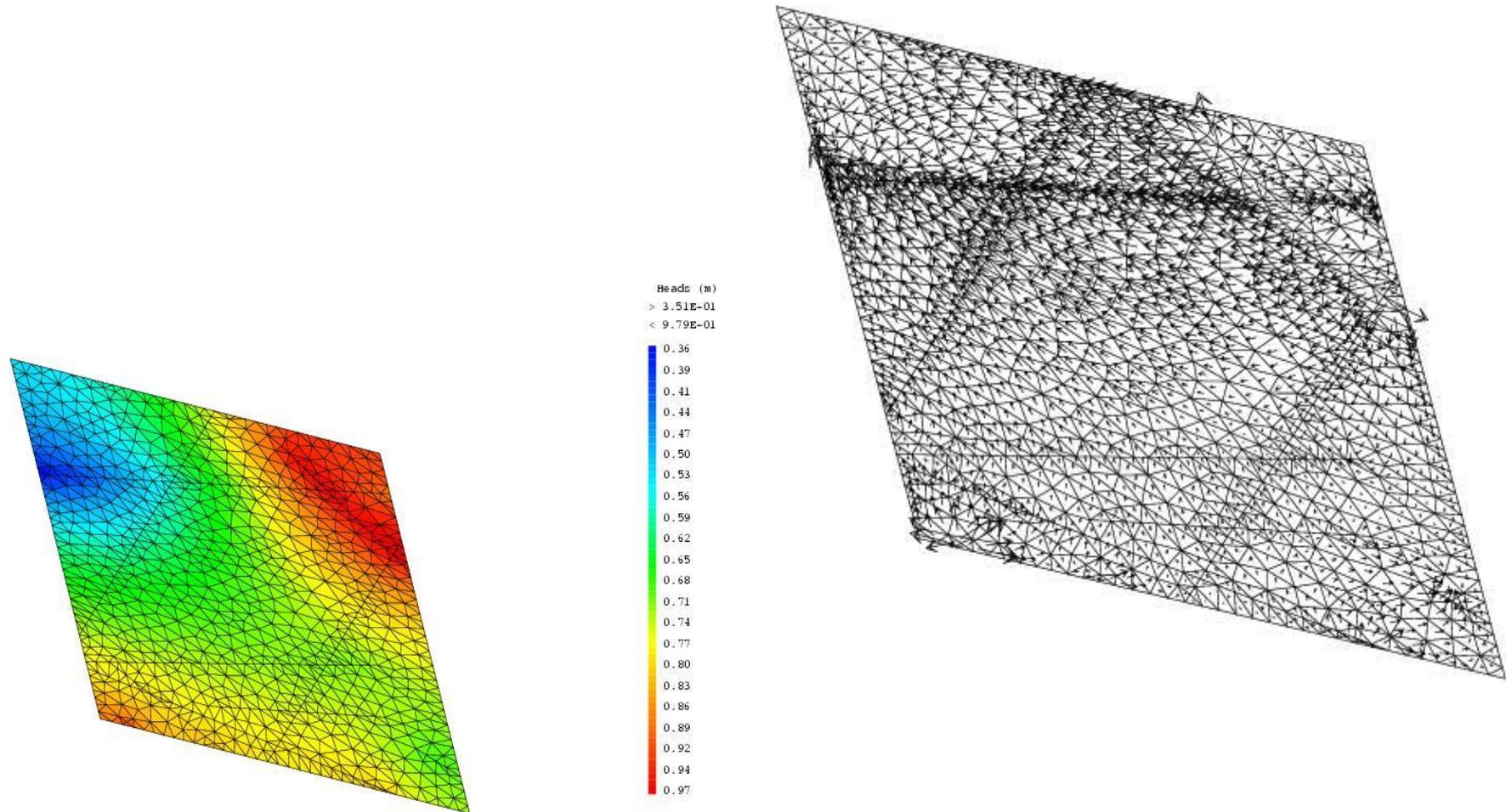
- **Observations :**
  - Nécessité de rajouter de la diffusion numérique pour atteindre un Péclet de maille de 0,2
  - Maillage d'hexaèdres à angle droit pour mass-lumping
  - Valeurs négatives 1000 fois plus petites que la concentration moyenne.
- 
- **Résultats:**
  - Bonnes comparaisons à des cartes de concentrations de Nammu, Porflow et castem VF.
  - Temps de calcul : plus importants car 3 fois plus de degrés de liberté qu'en VF.

**Milieu fracturé (ASPO)  
Essais de traçage  
Réseaux de fractures 2D dans 3D**

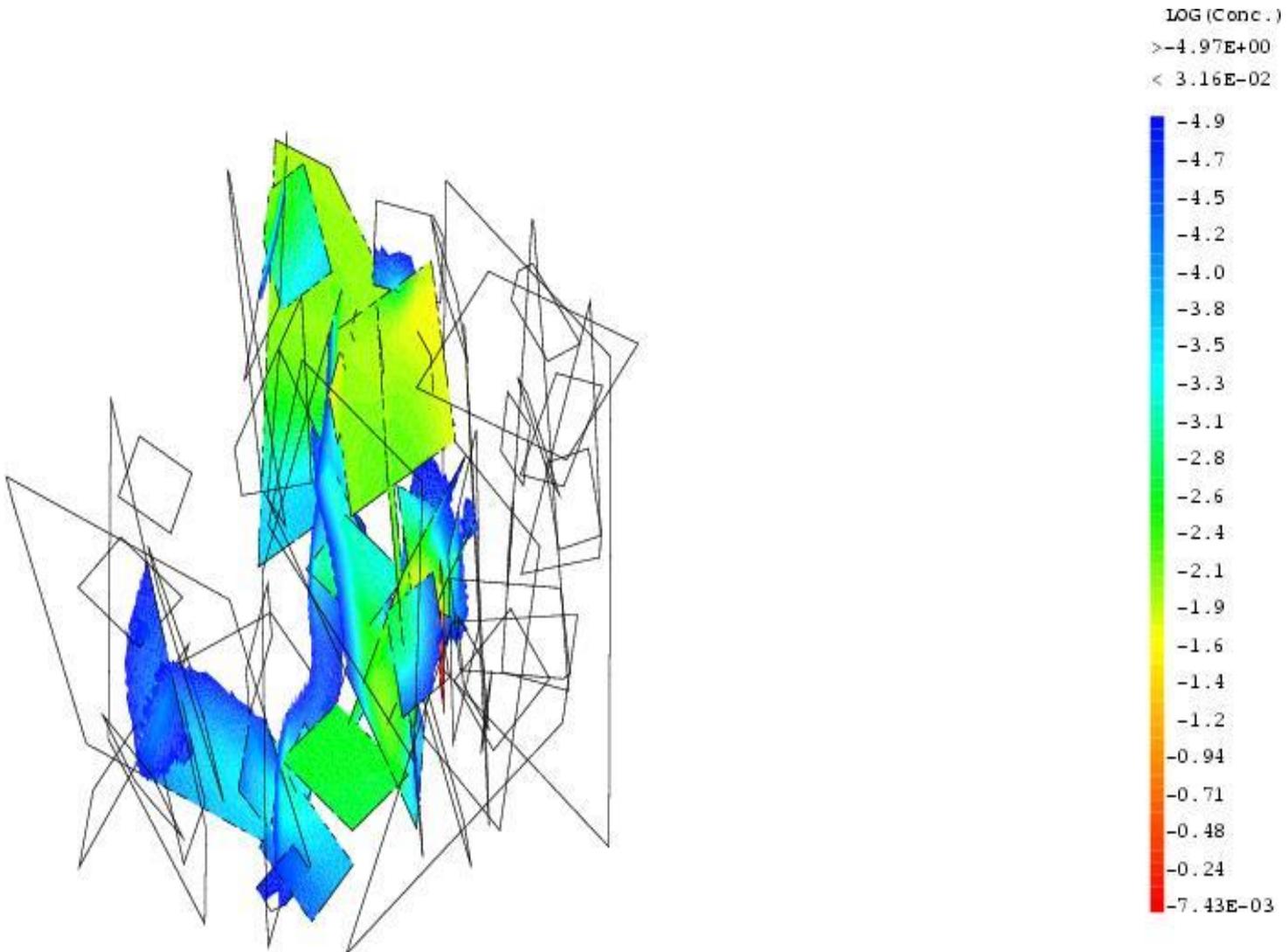
# Maillage de 1200 fractures (env 50 représentées)



# Charge et écoulement sur une fracture isolée pour l'exemple. Discrétisation EFMH 2D dans du 3D

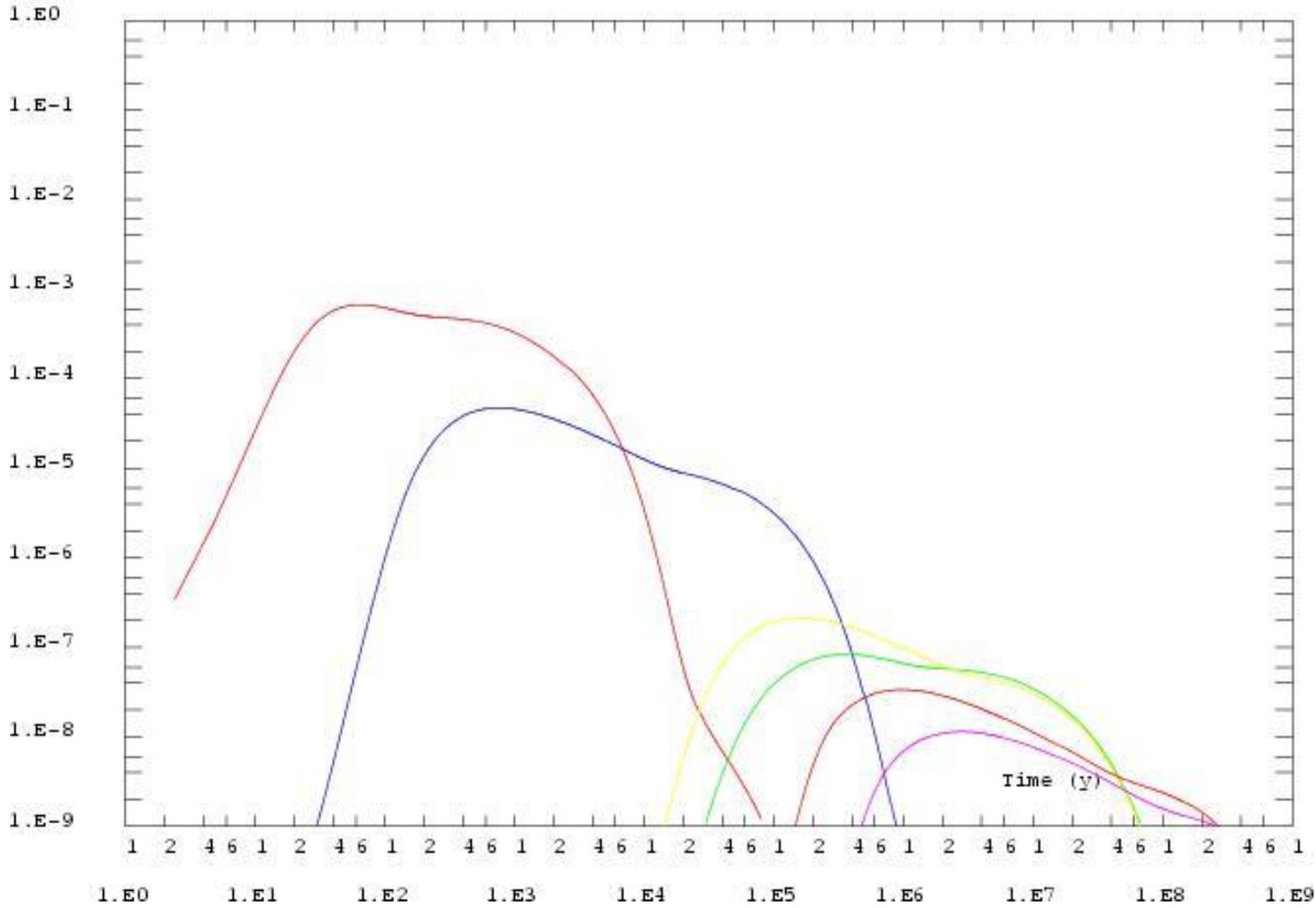


# Main transport paths



# Transport (Diffusion dans le bloc 3D calculé par fonction de Green)

Total Flux (1/y)



- Iodine
- Calcium
- Cesium
- Radium
- Technecium
- Americium

$T_{max} = 10^9 y$

# Conclusions

- **De nombreux outils opérationnels :**
- Le transport de RNs en milieu saturé hétérogène ou fracturé avec une gamme étoffée de modèles physiques.
- Une approche diphasique simplifiée (Richard) opérationnelle.
- De nombreux schémas de discrétisations et solveurs disponibles
- **Les perspectives :**
- Un opérateur diphasique Cast3m capable de gérer la dissolution des gaz (H<sub>2</sub>, N<sub>2</sub>) et la migration des RNs.
- Améliorer les modèles de dispersivité en non saturé.
- Poursuivre le travail numérique sur les schémas respectant la monotonie
- Décomposition de domaine pour le couplage petites/grandes échelles.