

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**

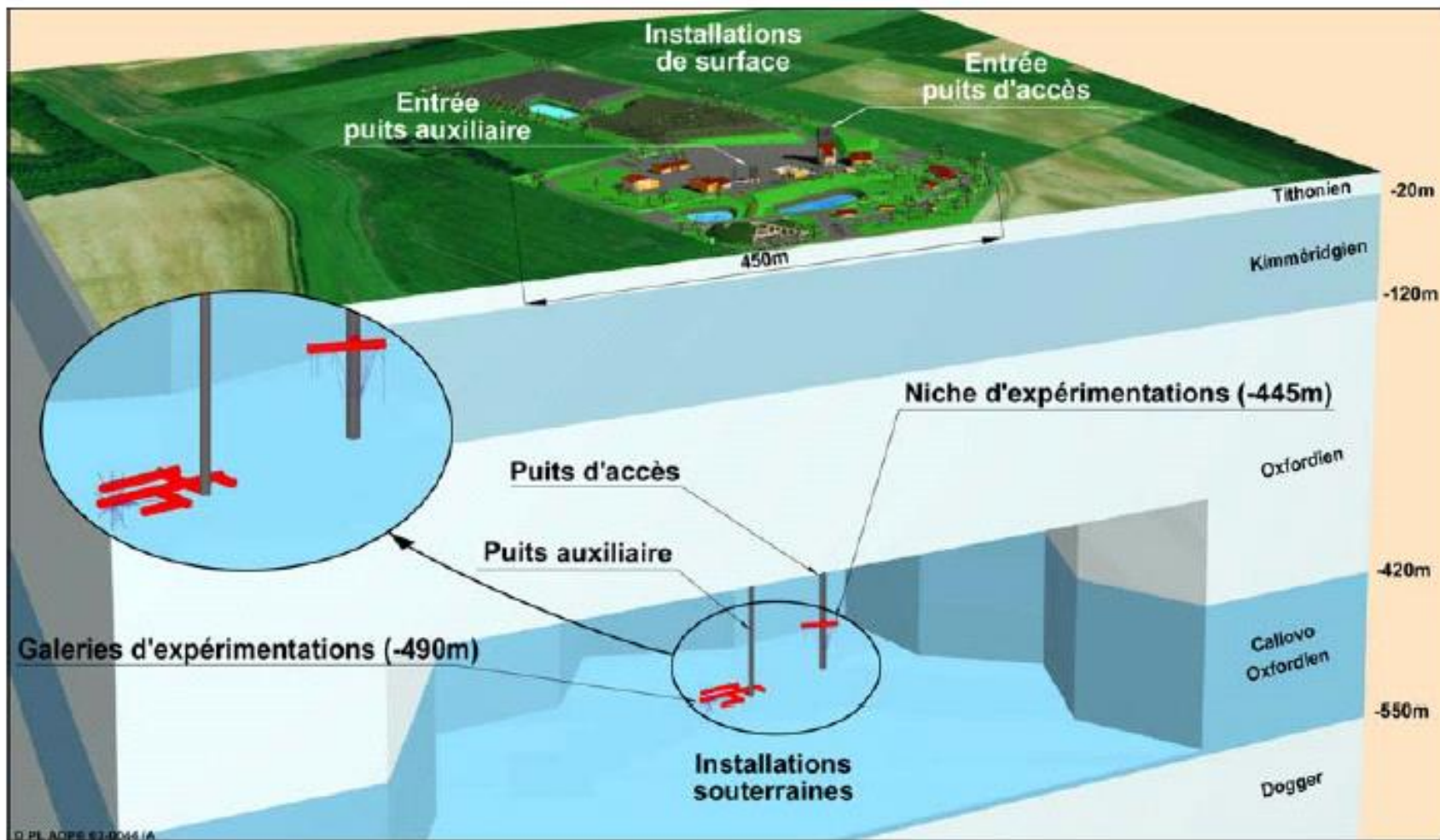
Le contexte

- **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

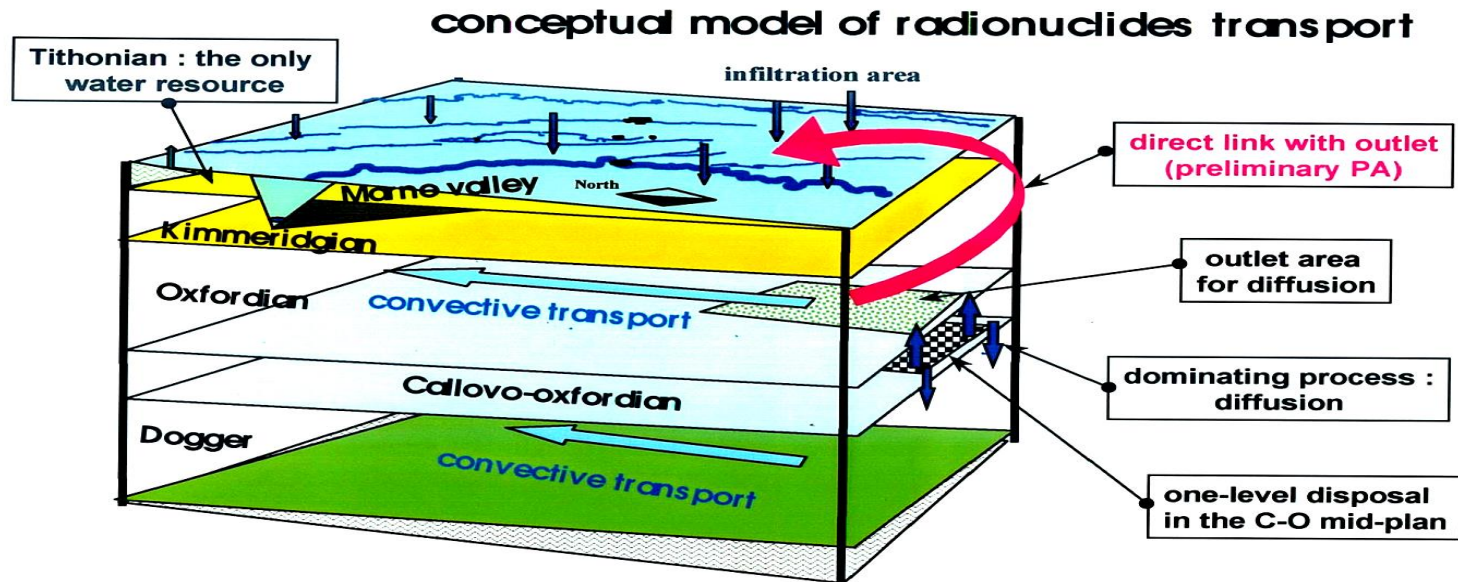
Laboratoire souterrain - Bures



Laboratoire de Bure (Meuse) – couche d'argile

Propriétés générales

Experimental program in the Meuse/Haute Marne URL



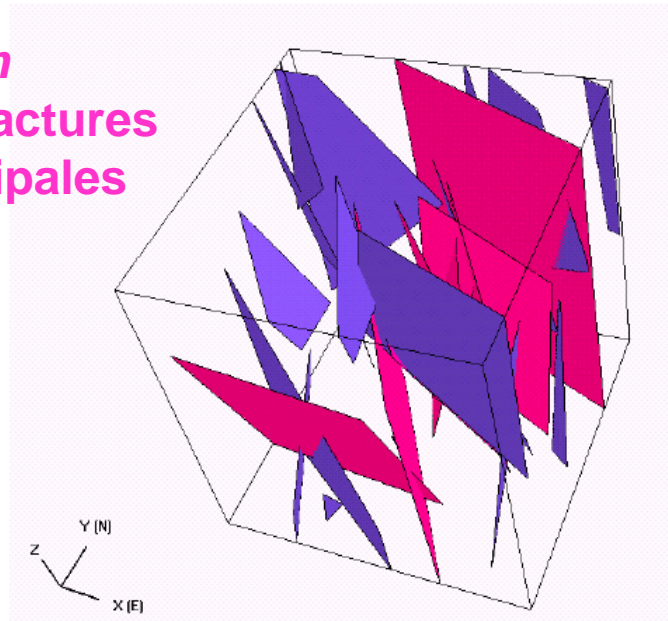
© ANDRA - DS/SR/PL Nat. Lab. USA december 10.-20. 2000



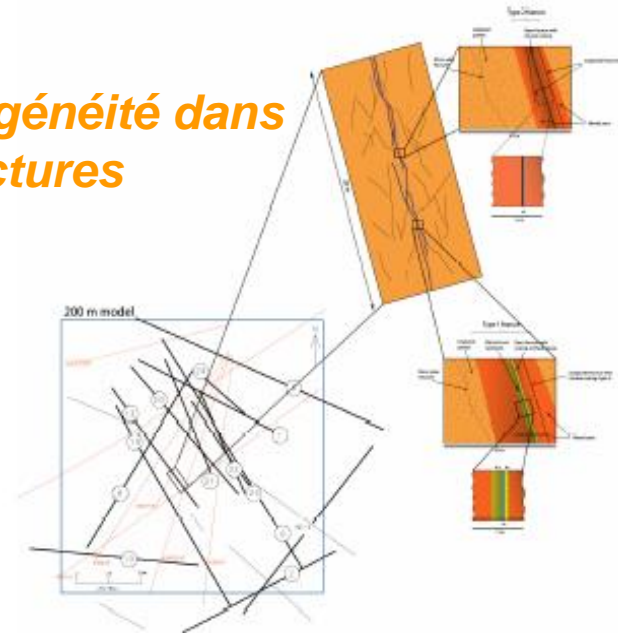
- Paramètres des équations mal connus
 - => études paramétriques (>1000 simulations 3D)
 - => résolutions rapides (qqes heures sur PC)
- Calculs sur des temps allant de 10 kans à 10 Mans
- Échelles spatiales allant de 1 m à 25 km
- Milieux aux propriétés fortement discontinues

Aspö : Bloc fracturé à 3 niveaux d'hétérogénéité

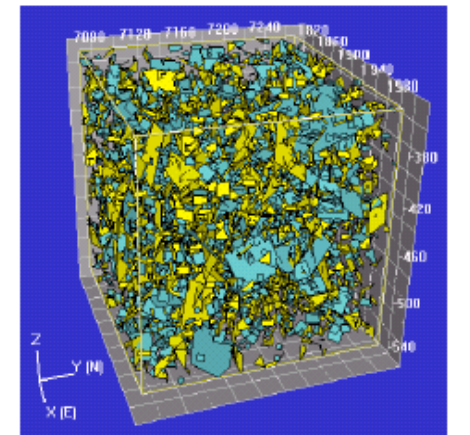
200 m
30 Fractures
principales



Hétérogénéité dans
les fractures



Fracturation de fond
5000 fractures de
2 à 10 mètres



Background fractures coloured by set, Shallow set (blue), NNF (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 (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 sureté 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)

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

avec $\overline{\overline{K}}$: le tenseur de perméabilité tensor, h la charge hydraulique dépendant de la pression capillaire, θ 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, θ the water content ($\theta = \omega S$ with S the saturation) and λ 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)

- ✓ ϕ porosité (constante)
- ✓ R retard linéaire, Freundlich, Langmuir
- ✓ D tenseur de diffusion-dispersion
- ✓ Φ terme source, u vitesse de Darcy
- ✓ λ décroissance, S échange précipitation

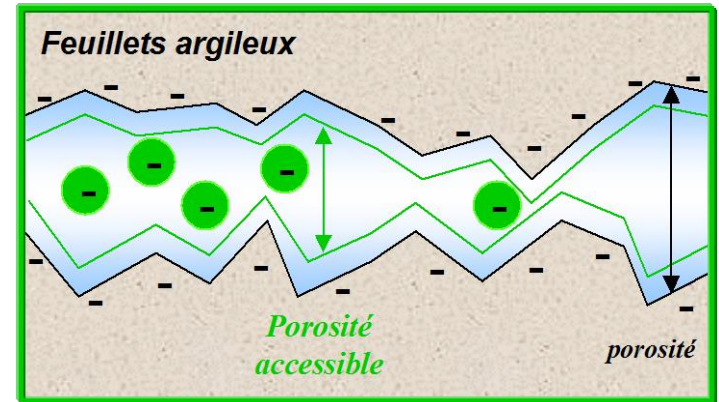
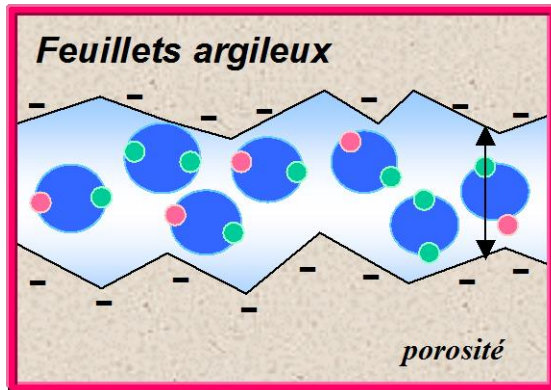
La décroissance radioactive

- 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.

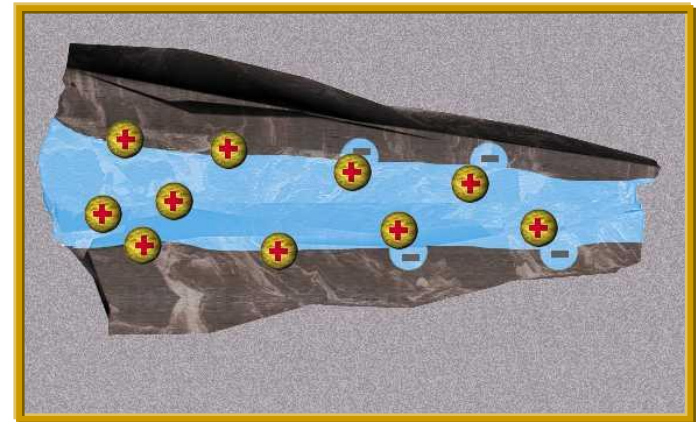
Ex : Une chaîne comportant 6 radionucléides :
 $Cm^{245} \rightarrow Pu^{241} \rightarrow Am^{241} \rightarrow Np^{237} \rightarrow U^{233} \rightarrow Th^{229}$

	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 Kd 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 Non Intégré

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

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

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

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

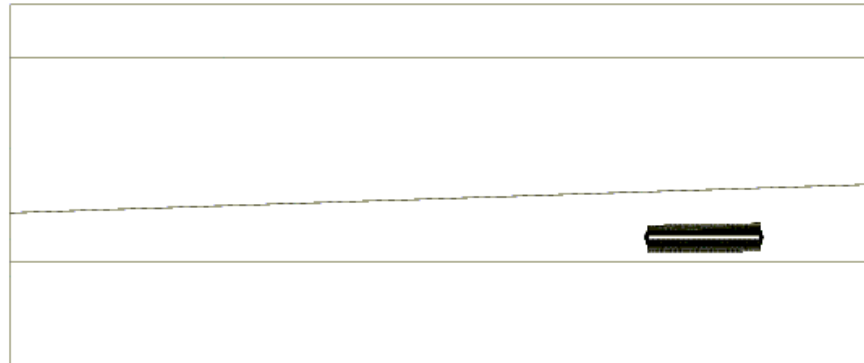
- ✓ Tenseurs de diffusion pleins (dispersivité)
- ✓ Propriétés discontinues et fortement hétérogènes des matériaux
- ✓ Fort rapport d'aspect de la géométrie discrétisée
- ✓ Les concentrations doivent rester positives
- ✓ Bonne précision sur les concentrations et les flux
- ✓ Rapidité et robustesse du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

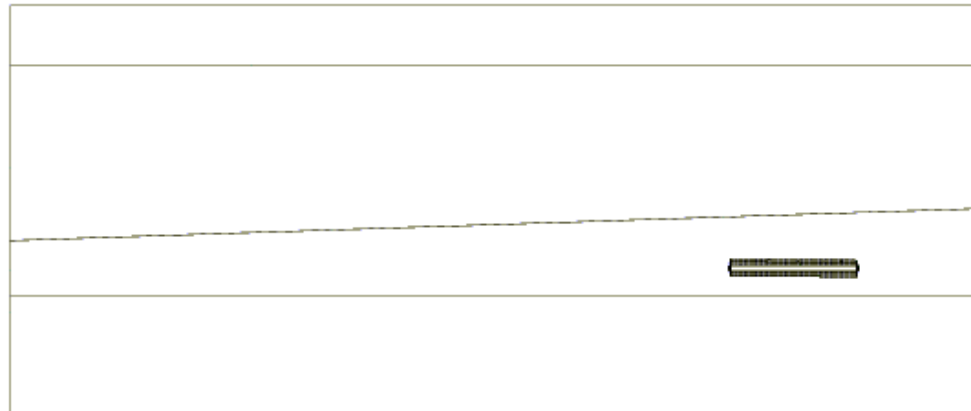
A -12.

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.



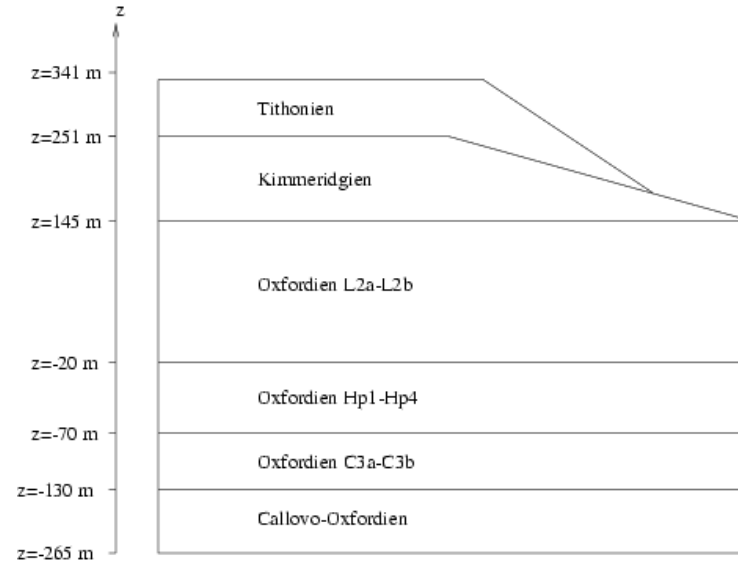
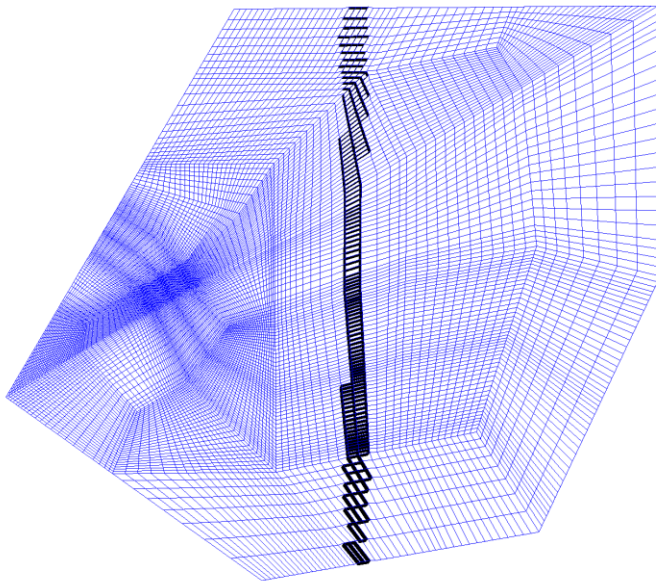
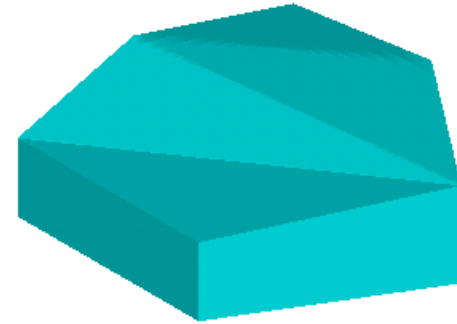
Application – Calcul de sûreté ANDRA

Cas du site de Bure

Scénario d'évolution normale

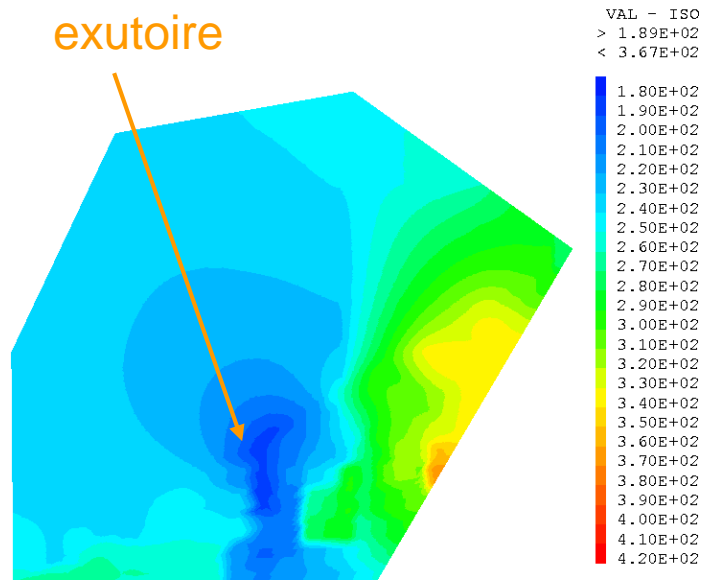
Calcul à grande échelle – évolution normale

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

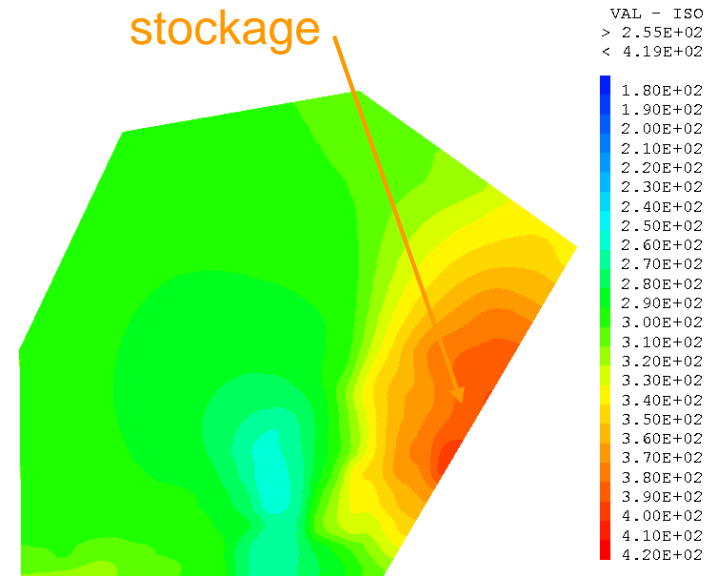


Calcul de sûreté : l'hydraulique

- 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.



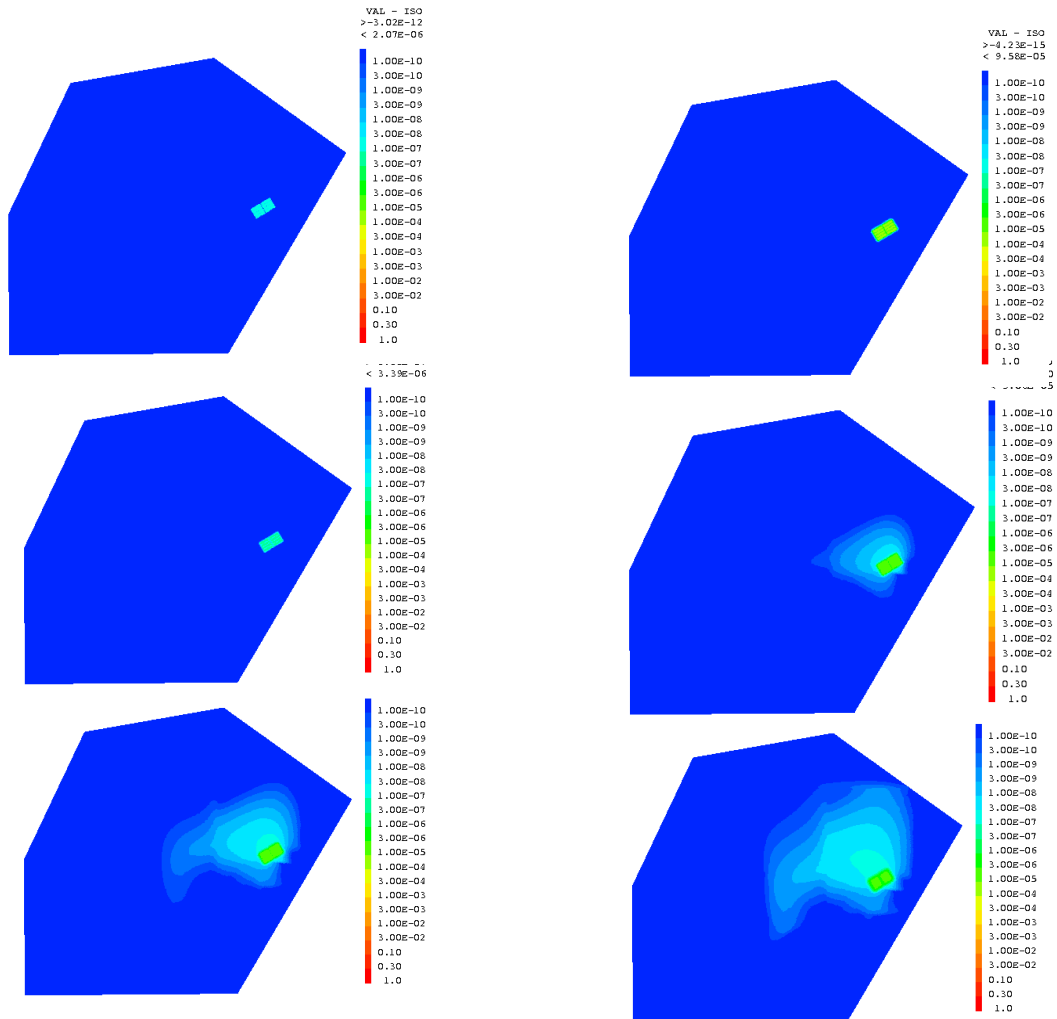
Coupe de charge à -30m



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.

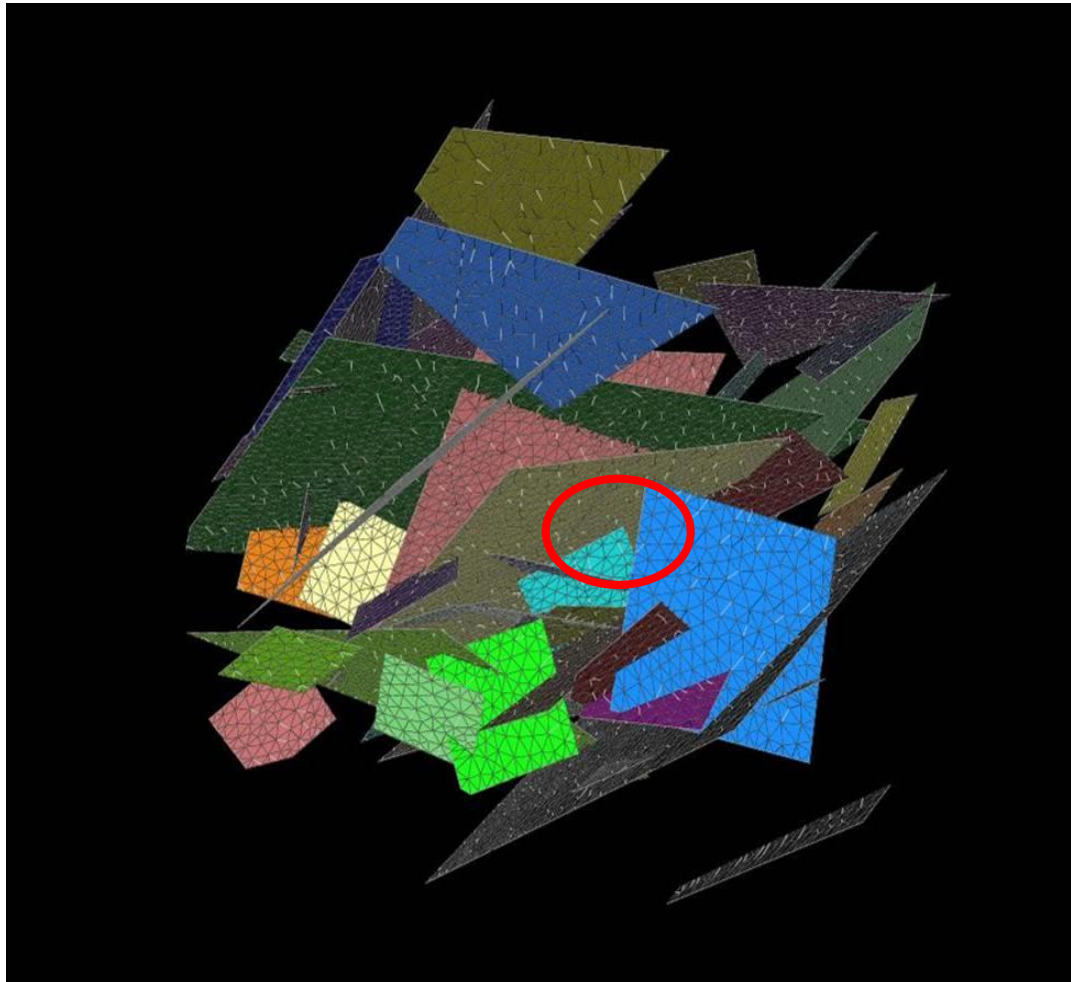
- **Résultats:**
- Bonnes comparaisons à des cartes de concentrations de Nammu et Porflow.
- Temps de calcul : 5h sur une machine à 2GO de mémoire vive et à fréquence de 3Ghz.

Calcul de sûreté : le Transport EFMH

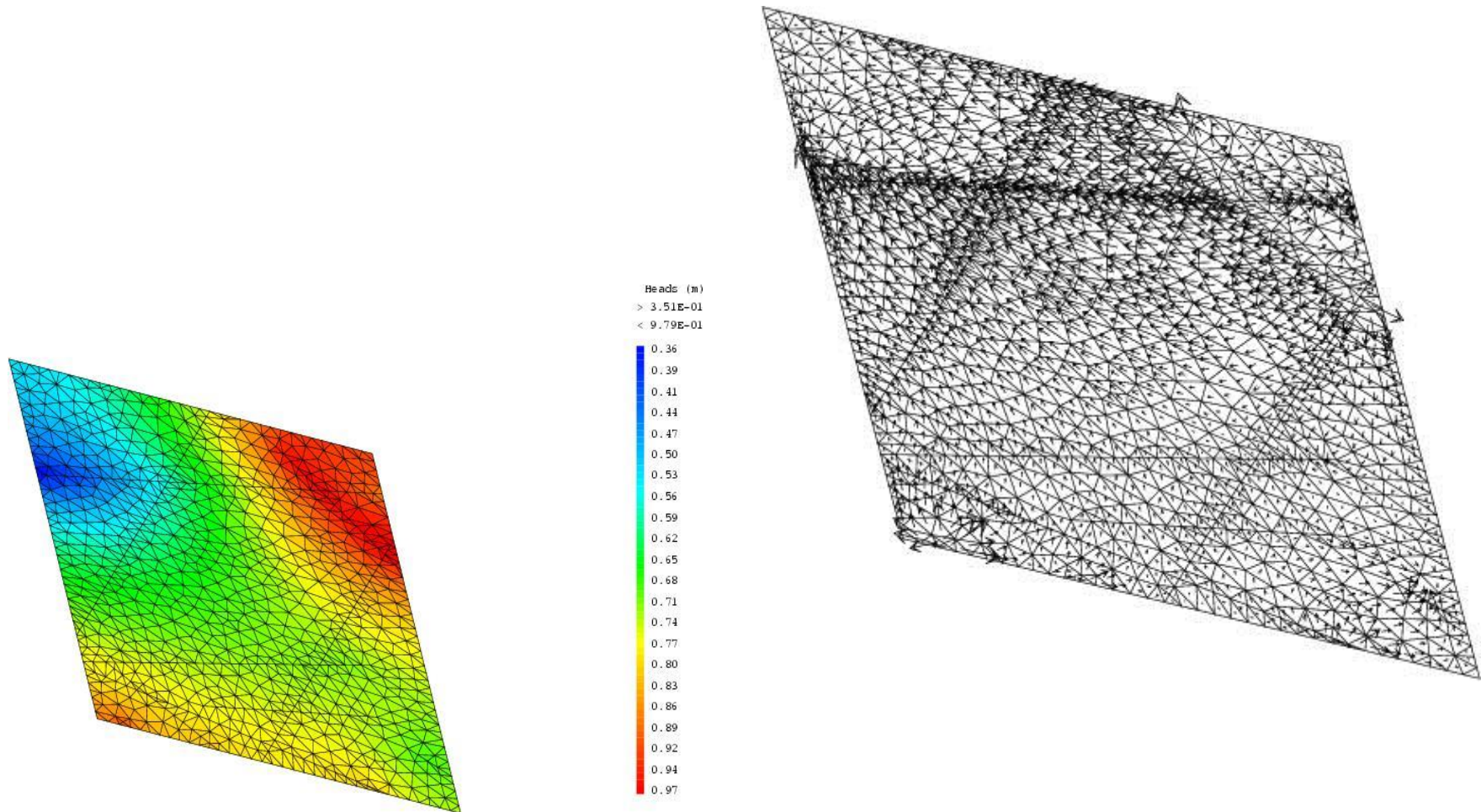
- **Observations :**
 - Nécessité de rajouter de la diffusion numérique pour atteindre un Péclet de maille de 0,2
 - Maillage d'hexaèdres à angle droit pour mass-lumping
 - Valeurs négatives 1000 fois plus petites que la concentration moyenne.
-
- **Résultats:**
 - Bonnes comparaisons à des cartes de 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**

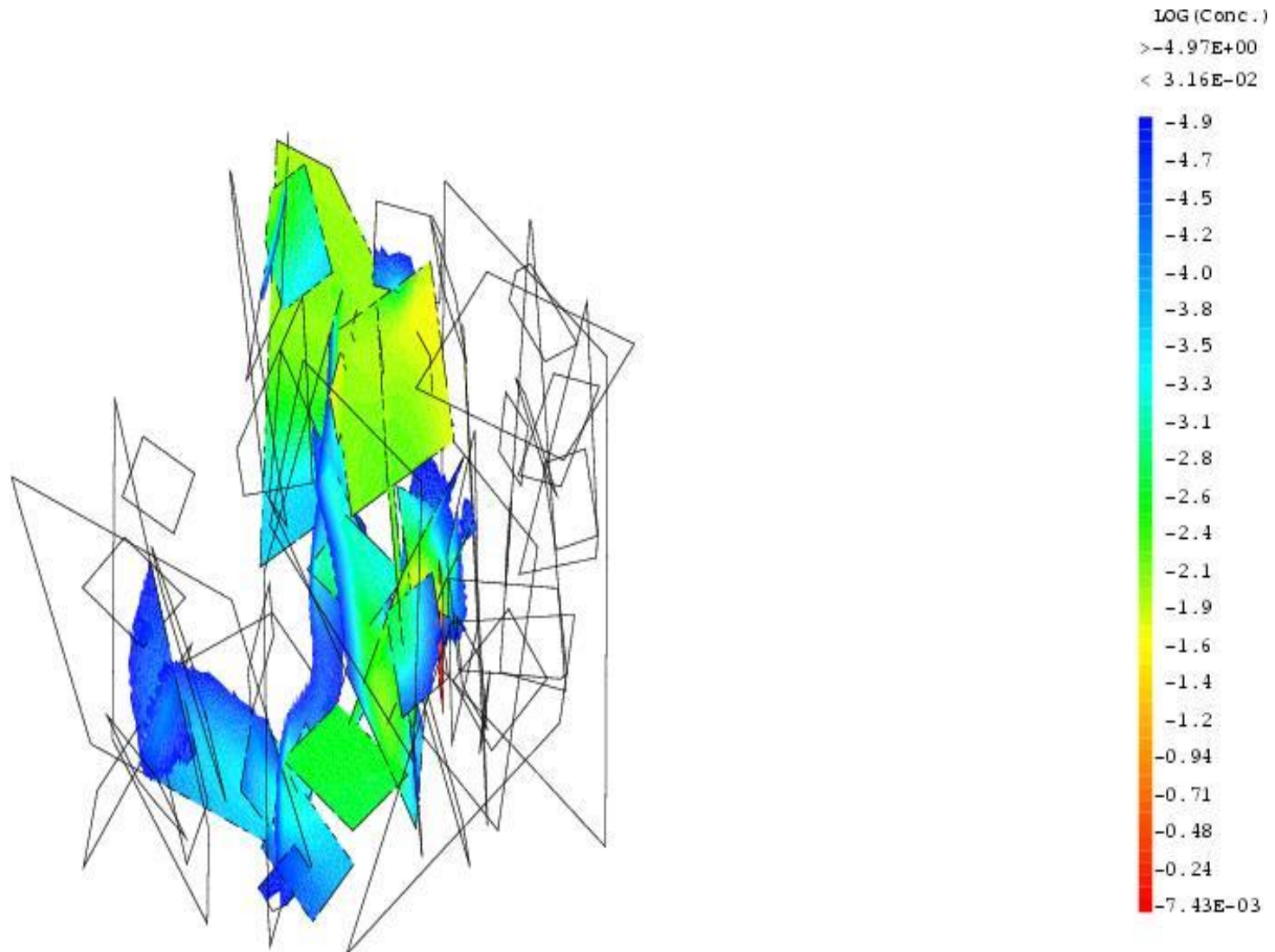
Maillage de 1200 fractures (env 50 représentées)



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

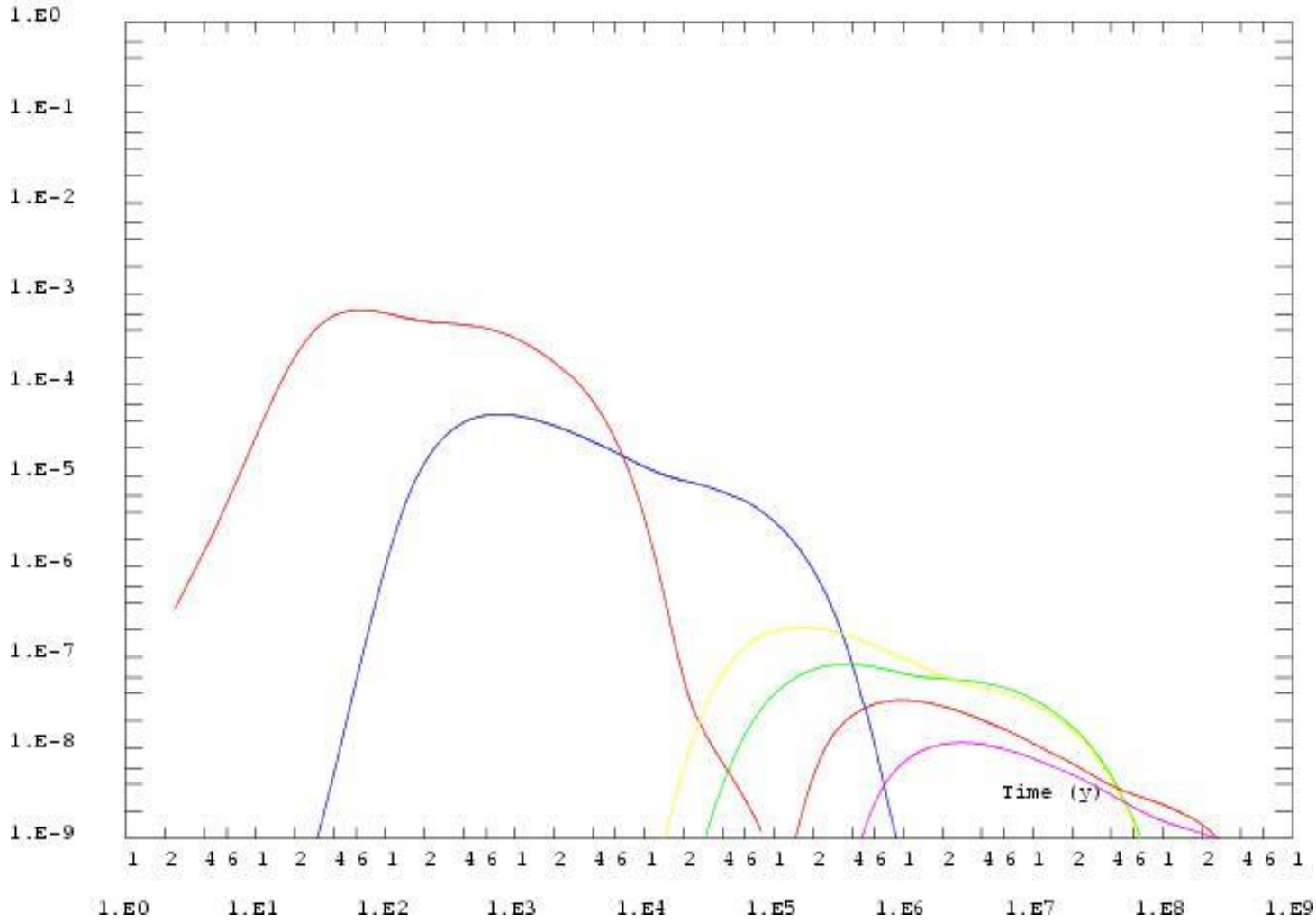


Main transport paths



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 (H₂, N₂) 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.