

# Modélisation du transport réactif du césium dans un double milieu poreux

*Club castem, 20/11/06*

Sébastien CADALEN <sup>†</sup>, Michel QUINTARD <sup>\*</sup>

<sup>†</sup> CEA Saclay, DEN/DM2S/SFME/MTMS

<sup>\*</sup> IMF Toulouse, GEMP



# Plan

- Contexte et objectifs
- Choix du cas d'étude
- Modèle conceptuel du milieu
- Homogénéisation par la méthode de prise en moyenne volumique
- Changement d'échelle macro-pore → échelle de Darcy
- Résultats et validation
- Conclusion et perspectives

# Contexte et objectifs

- Maitrise des risques liés à l'entreposage des déchets radioactifs
- Scénario de fuite de césium et/ou strontium
- Infiltration des polluants en subsurface
- Comprendre les interactions chimie/transport
- Approche expérimentale → colonne instrumentée (C. Latrille, DPC)
- Approche modélisation → changement d'échelle

## Cas d'étude

- Matériau : sable de Fontainebleau et illite du Puy ( $\approx 5\%$ )
- Polluant : césium
- Conditions géochimiques : concentration élevée en potassium

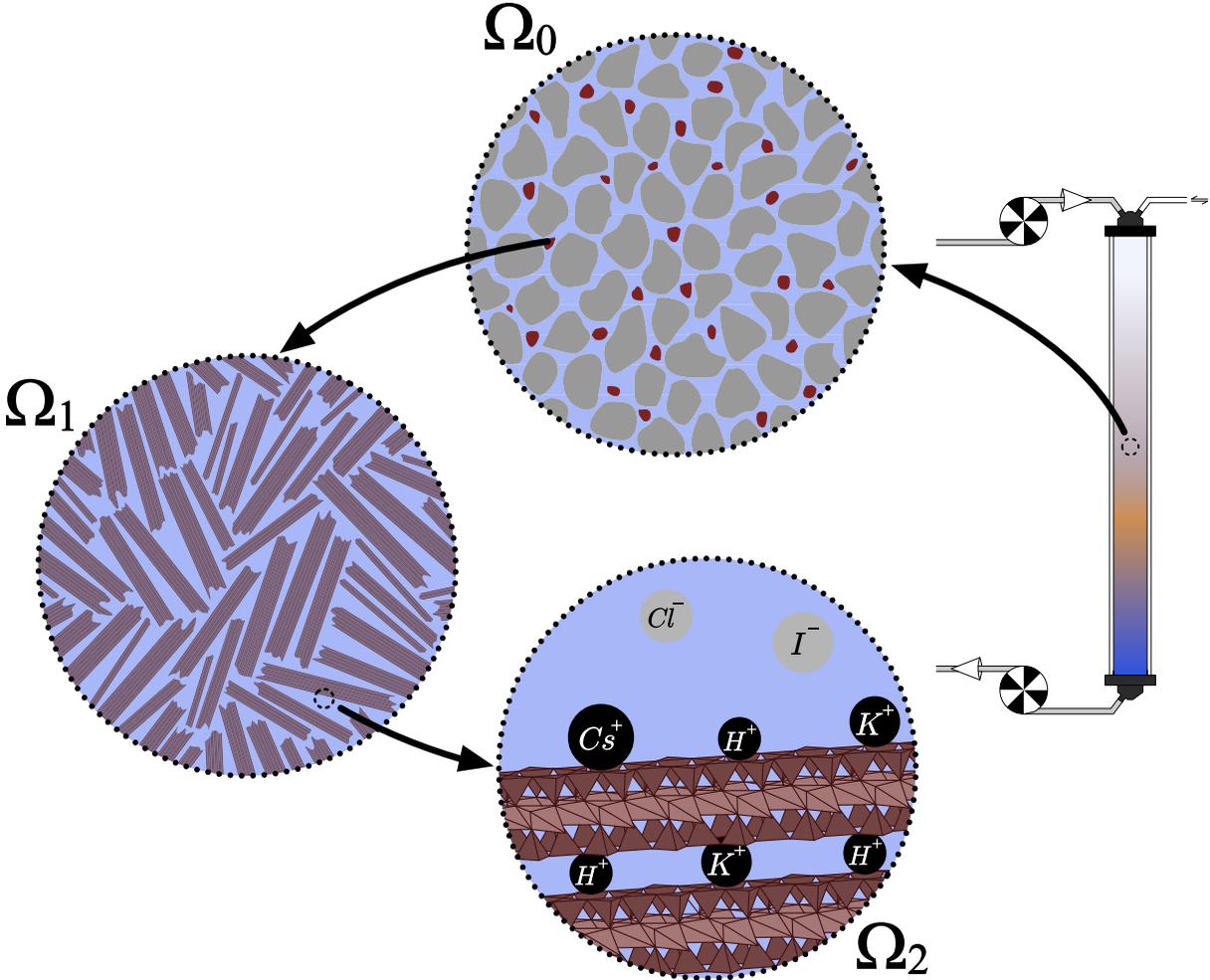
### Phénomènes physiques

- Transport convectif et diffusif dans le fluide
- Diffusion dans les agrégats d'argile

### Phénomènes chimiques

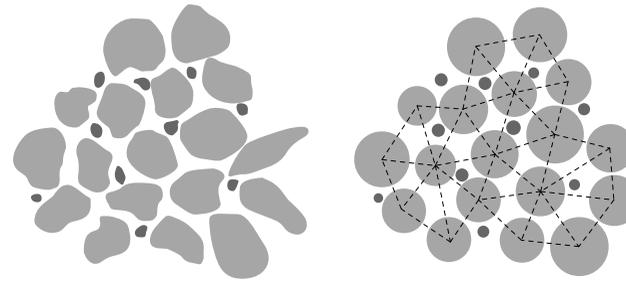
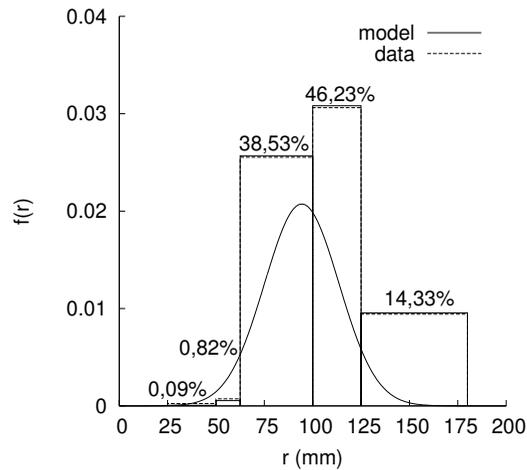
- Sorption à la surface des feuillets d'argile
- Réversibilité
- Non-linéarité

# Modèle conceptuel du milieu poreux

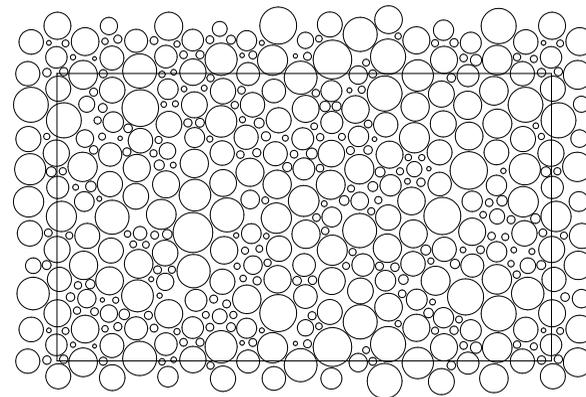
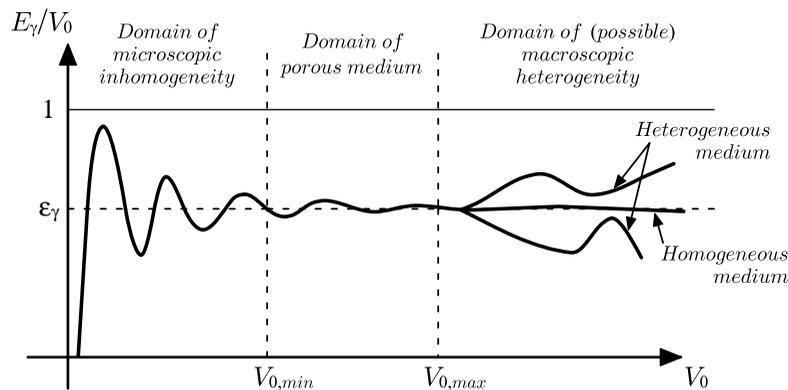


# Simplification géométrique

On caractérise la géométrie fine à l'échelle du pore par la porosité et la granulométrie



On définit un Volume Élémentaire Représentatif de notre milieu poreux

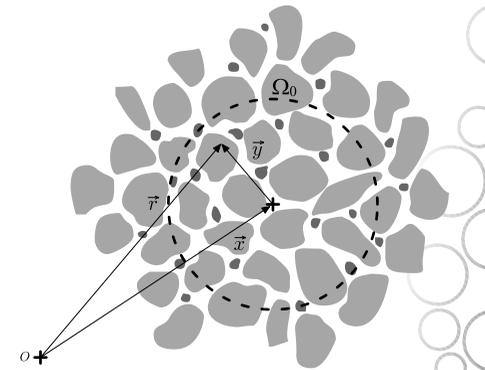


# Prise en moyenne volumique

On intègre les équations sur un volume de référence, *in fine* cela revient à introduire un filtre spatial dans les équations. Pour cela on introduit des grandeurs moyennes sur les phases

$$\langle \psi \rangle_i |_{\vec{x}} = \frac{1}{V_0} \int_{\Omega_i |_{\vec{x}}} \psi(\vec{r}) d\Omega \quad (\text{globale})$$

$$\langle \psi \rangle_i^i |_{\vec{x}} = \frac{1}{V_i} \int_{\Omega_i |_{\vec{x}}} \psi(\vec{r}) d\Omega \quad (\text{intrinsèque})$$



On décompose les grandeurs en une partie moyenne et des déviations

$$\psi = \langle \psi \rangle_i^i + \tilde{\psi}_i$$

# Équations locales

$$\partial_t c_\alpha = -\vec{\nabla} \cdot (\vec{u}_\alpha c_\alpha - D_\alpha \vec{\nabla} c_\alpha)$$

$$\partial_t (r_\beta c_\beta) = -\vec{\nabla} \cdot (-D_\beta \vec{\nabla} c_\beta)$$

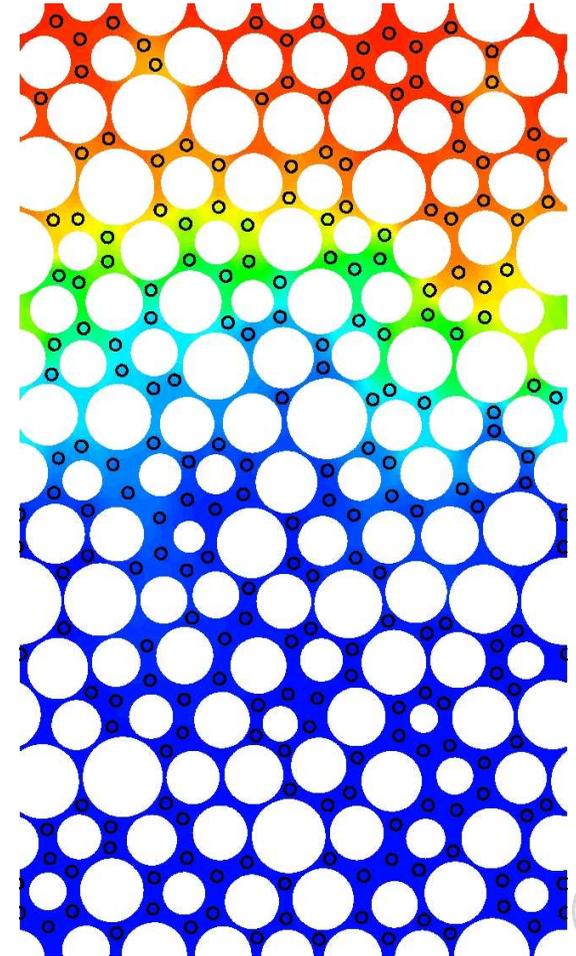
Retard dû à la rétention chimique

$$r_\beta = 1 + \rho_\beta f_d(c_\beta)$$

- $CL_1$  sur  $\Omega_{\alpha s}$  :  $\vec{n}_{\alpha s} \cdot \vec{\nabla} c_\alpha = 0$
- $CL_2$  sur  $\Omega_{\alpha\beta}$  :  $\vec{n}_{\alpha\beta} \cdot \vec{\nabla} c_\alpha = \vec{n}_{\alpha\beta} \cdot \vec{\nabla} c_\beta$
- $CL_3$  sur  $\Omega_{\alpha\beta}$  :  $c_\alpha = c_\beta$

Deux nombres adimensionnels

$$Pe = \frac{\|\langle \vec{u}_\alpha \rangle_\alpha\| l_\alpha}{D_\alpha}, \quad \tau_\beta = \frac{D_\beta}{\langle r_\beta \rangle_\beta D_\alpha}$$



# Équations moyennées

On applique l'opérateur de prise en moyenne sur chacune des phases

$$\partial_t C_\alpha = -\vec{\nabla} \cdot \left( Pe \vec{U}_\alpha C_\alpha + \left\langle \vec{u}_\alpha \tilde{c}_\alpha \right\rangle_\alpha^\alpha - \vec{\nabla} C_\alpha - \langle \vec{n}_\alpha \tilde{c}_\alpha \rangle_{\alpha\beta}^\alpha \right) - \epsilon_\alpha^{-1} \Gamma_{\alpha\beta}$$

$$\partial_t (R_\beta C_\beta) = \vec{\nabla} \cdot \tau_\beta \left( \vec{\nabla} C_\beta + \langle \vec{n}_\beta \tilde{c}_\beta \rangle_{\alpha\beta} \right) + \epsilon_\beta^{-1} \Gamma_{\alpha\beta}$$

On reconnaît les termes classiques de convection et de diffusion...  
... et des termes faisant intervenir les déviations, ils sont à l'origine de la dispersion, la tortuosité...

On calcule les champs  $\tilde{c}_\alpha$  et  $\tilde{c}_\beta \rightarrow$  problème de fermeture

$$\mathcal{F} = \mathcal{D} - \mathcal{M}$$
$$\{\partial_t \tilde{c}_\alpha = \dots\} = \{\partial_t c_\alpha = \dots\} - \{\partial_t C_\alpha = \dots\}$$

## Problème de fermeture

Diverses hypothèses nous permettent de simplifier le problème

- Séparation des échelles
- Interfaces statiques
- Périodicité du milieu

On aboutit à la résolution de trois problèmes de fermeture simplifiés  
 → de nature intégrro-différentielle, en régime permanent

$$\begin{array}{l}
 \vec{\nabla} \cdot \left( Pe \vec{u}_\alpha \vec{b}_{\alpha\alpha} - \vec{\nabla} \vec{b}_{\alpha\alpha} \right) = -Pe \vec{u}_\alpha + \epsilon_\alpha^{-1} \vec{s}_\alpha \quad \text{sur } \Omega_\alpha \\
 \vec{\nabla} \cdot \left( -\tau_\beta \vec{\nabla} \vec{b}_{\beta\alpha} \right) = -\epsilon_\beta^{-1} \vec{s}_\alpha \quad \text{sur } \Omega_\beta \\
 \text{CL}_1 \quad \vec{n}_\alpha \cdot \vec{\nabla} \vec{b}_{\alpha\alpha} = -\vec{n}_\alpha \quad \text{sur } \Omega_{\alpha s} \\
 \text{CL}_2 \quad \vec{b}_{\alpha\alpha} - \vec{b}_{\beta\alpha} = 0 \quad \text{sur } \Omega_{\alpha\beta} \\
 \text{CL}_3 \quad \vec{n}_\alpha \cdot \vec{\nabla} \vec{b}_{\alpha\alpha} + \vec{n}_\beta \cdot \left( \tau_\beta \vec{\nabla} \vec{b}_{\beta\alpha} \right) = -\vec{n}_\alpha \quad \text{sur } \Omega_{\alpha\beta} \\
 \vec{s}_\alpha = \left\langle \vec{n}_\alpha \cdot \vec{\nabla} \vec{b}_{\alpha\alpha} \right\rangle_{\alpha\beta}
 \end{array}$$

## Modèle homogénéisé

L'impact de  $\tilde{c}_\alpha$  et  $\tilde{c}_\beta$  sur l'évolution des concentrations moyennes est modélisé par des coefficients effectifs calculés via le problème de fermeture.

$$\partial_t C_\alpha = -\vec{\nabla} \cdot \left( \vec{U}_{\alpha\alpha} C_\alpha + \vec{U}_{\alpha\beta} C_\beta - \overline{\overline{K}}_{\alpha\alpha} \cdot \vec{\nabla} C_\alpha - \overline{\overline{K}}_{\alpha\beta} \cdot \vec{\nabla} C_\beta \right) - \epsilon_\alpha^{-1} \Gamma_{\alpha\beta}$$

$$\partial_t (R_\beta C_\beta) = -\vec{\nabla} \cdot \left( \vec{U}_{\beta\alpha} C_\alpha + \vec{U}_{\beta\beta} C_\beta - \overline{\overline{K}}_{\beta\alpha} \cdot \vec{\nabla} C_\alpha - \overline{\overline{K}}_{\beta\beta} \cdot \vec{\nabla} C_\beta \right) + \epsilon_\beta^{-1} \Gamma_{\alpha\beta}$$

$$\Gamma_{\alpha\beta} = h_{\alpha\beta} (C_\alpha - C_\beta)$$

On reconnaît certains termes classiques

- la dispersion hydrodynamique  $\overline{\overline{K}}_{\alpha\alpha}$  ( $m^2 \cdot s^{-1}$ )
- la vitesse convective  $\vec{U}_{\alpha\alpha}$  ( $m \cdot s^{-1}$ )
- le coefficient d'échange linéaire  $h_{\alpha\beta}$  ( $s^{-1}$ )

# La procedure

1. Définition et maillage de la géométrie du VER
2. Calcul du champs de vitesse (*Stokes*,  $Re \ll 1$ )
3. Résolution des problèmes de fermeture
4. Calcul des coefficients effectifs
5. Résolution du système homogénéisé
6. Résolution des équations locales
7. Validation de la méthode par comparaison

# Castem

Opérateurs liés à la mécanique des fluides en éléments finis (KONV, LAPN, ...)

→ Les petits +

Grande flexibilité pour tester rapidement un algorithme

- Couplage implicite/explicite de diverses équations (KOPS 'CHANINCO')
- Imposer une relation intégrale sur une variable (RELA)
- Imposer une relation de périodicité en implicite (RELA)

Possibilité de tester plusieurs méthodes de résolution (KRES)

→ Les petits -

Pré-traitement, maillage de géométries complexes

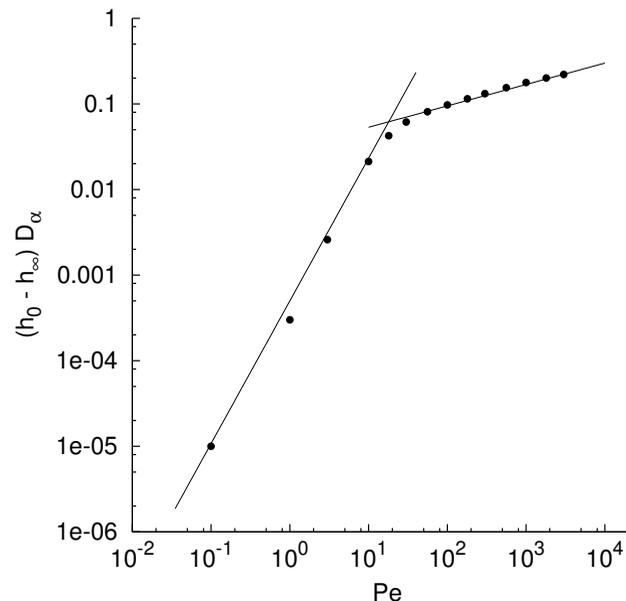
Post-traitement

## Coefficient d'échange

Les solutés diffusent à travers l'interface  $\Omega_{\alpha\beta}$ . À l'échelle de la colonne le milieu est représenté par un continuum, les interfaces ne sont plus représentées. Le coefficient  $h_{\alpha\beta}$  intègre les flux sur cette interface.

Ce coefficient augmente avec le  $Pe$ , on distingue deux régimes.

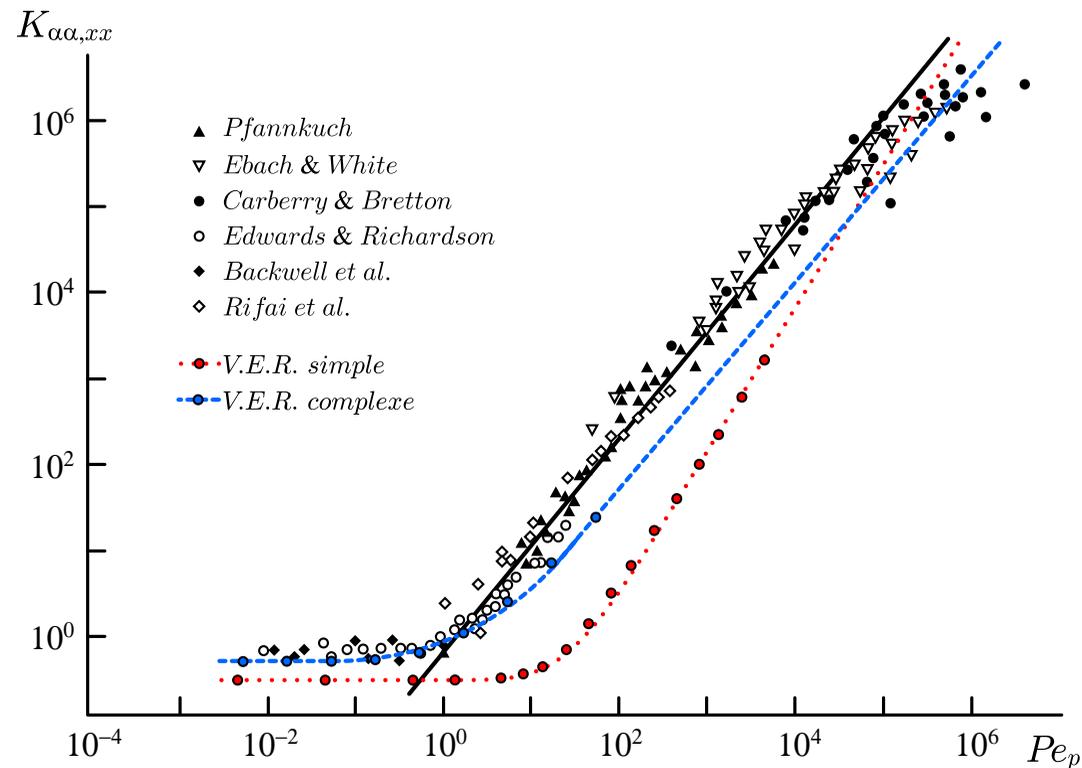
En régime diffusif l'échange est suffisamment important pour maintenir l'équilibre ( $C_\alpha \approx C_\beta$ ) alors qu'en régime dispersif l'effet double-milieu prend toute son importance.



# Disperion hydrodynamique

On retrouve un comportement similaire à celui d'un sable réel : un régime diffusif affecté par la tortuosité pour des vitesses faibles, suivi d'un régime de transition et d'un régime dispersif régit par une loi puissance.

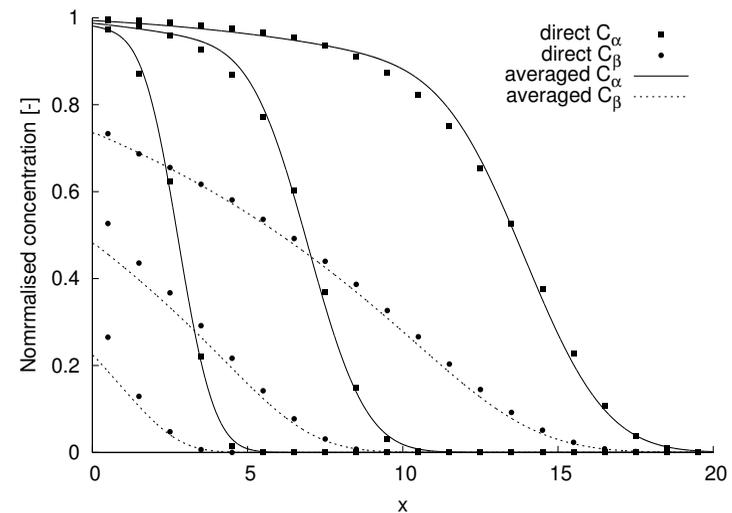
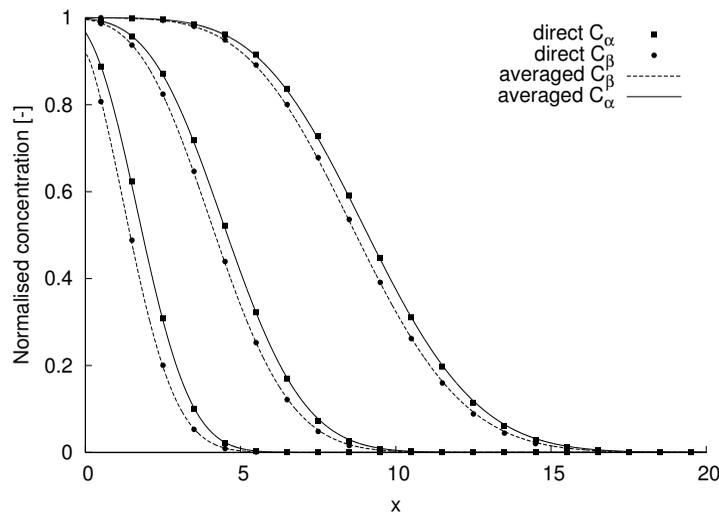
$$K_{\alpha\alpha,xx} = 1 + \langle n_{\alpha,x} \times b_{\alpha\alpha,x} \rangle_{\alpha\beta}^{\alpha} - Pe \langle \tilde{u}_{\alpha,x} \times b_{\alpha\alpha,x} \rangle_{\alpha} = \tau + \lambda_L (Pe)^{m_L}$$



# Validation de la méthode

On compare une solution du modèle homogénéisé à la solution moyennée du problème direct.

	$Pe$	$r_\beta$	$\epsilon_\alpha$	$\epsilon_\beta$
a	$10^1$	5	0.4	0.041
b	$10^3$	1	0.4	0.041



# Conclusion

→ Prise en moyenne volumique

- Hiérarchisation des processus
- Estimation des coefficients effectifs et leur domaine de validité
- Limitation : milieux naturels complexes, hétérogénéités à toutes les échelles

→ Castem

- Prise en main demandant de l'investissement et du temps
- Maléabilité du 'code recherche'
- Proximité des développeurs

→ Perspectives (fin de thèse : septembre 2007)

- Interprétation de données expérimentales
- Écoulement diphasique air/eau à l'échelle du pore (*Stokes-Cahn-Hilliard*)