

RÉSUMÉ

Titre : Modélisation du transport réactif par diffusion dans un milieu à faible perméabilité – Simulations MIN3P-THCm des expériences de diffusion dans la bentonite comprimée effectuées par le Groupe de travail chimique sur les systèmes de barrières ouvragées (EBS TF-C)

Rapport n° : NWMO TR-2014-23

Auteurs : Mingliang Xie¹, Pejman Rasouli¹, K. Ulrich Mayer¹ et Kerry T. B. MacQuarrie²

Société : ¹Département des sciences de la Terre, de l'océan et de l'atmosphère, Université de la Colombie-Britannique,
²Département de génie civil, Université du Nouveau-Brunswick

Date : Décembre 2014

Résumé

Le transport réactif principalement régi par diffusion est un processus important dans les systèmes de barrières ouvragées envisagés pour l'analyse à long terme de la sûreté des dépôts géologiques en profondeur de combustible nucléaire irradié. Dans le cadre des travaux du Groupe de travail chimique sur les systèmes de barrières ouvragées (EBS TF-C) d'Äspö, quatre ensembles d'expériences comparatives systématiques ont été entreprises. Benchmark I est un ensemble d'expériences de *through-diffusion* visant à examiner les propriétés de diffusion du sel, sans échange d'ions, dans la montmorillonite-Na ou -Ca homoionique purifiée. Benchmark II comprend trois expériences de complexité croissante portant sur la diffusion, la dissolution minérale cinétique et l'échange d'ions. Benchmark III comprend un ensemble d'expériences d'échange d'ions Na/Ca et Ca/Na à partir d'échantillons de montmorillonite-Na et -Ca homoionique comprimée (initialement) de diverses densités. Benchmark IV est basé sur une expérience de diffusion à travers un échantillon de bentonite obtenu d'une expérience in situ. Pour simuler ces expériences, un modèle de diffusion multicomposants (MCD) semi-empirique a été mis en œuvre dans le code MIN3P-THCm de modélisation du transport réactif, lui permettant de simuler la diffusion d'un mélange d'ions à travers des milieux poreux en prenant en considération les coefficients de diffusion propres aux espèces et les interactions électrostatiques dans la solution.

Le code MIN3P-THCm, en combinaison avec le modèle MCD et le logiciel d'estimation des paramètres PEST, fournit un moyen d'estimer à la fois les paramètres de porosité et de tortuosité à partir d'expériences de diffusion. Les analyses numériques des expériences de *through-diffusion* dans la montmorillonite-Na et -Ca (Benchmark I) concordaient très bien quant aux résultats expérimentaux. Les simulations révèlent également qu'en augmentant la force ionique de la solution, les paramètres de diffusion (c.-à-d., le coefficient de diffusion effectif D_e , la porosité effective Φ_e et la tortuosité effective T_e) augmentent aussi. Les résultats de simulation numérique du cas Benchmark II concordent également bien avec les résultats expérimentaux. L'étalonnage modèle a montré que les résultats de simulation étaient sensibles aux variations d'épaisseur des couches supérieure et inférieure de l'échantillon de bentonite. Les simulations des cas Benchmark III ont généralement surestimé les concentrations de Ca^{2+} en comparaison avec les données

expérimentales, alors que la concentration de Na^+ est en bonne concordance avec les observations. Ce résultat peut s'expliquer soit par les incertitudes associées avec les données expérimentales attribuables aux inexactitudes liées aux concentrations ioniques, qui ont été mesurées indirectement, ou par le fait que le mécanisme d'échange d'ions peut différer de celui de la simulation (par exemple, l'échange d'ions des espèces complexes comme le CaCl^+ (Sposito et autres 1983)). Les résultats simulés obtenus avec le code MIN3P-THCm pour les cas Benchmark IV, plus complexes, concordent très bien avec les résultats obtenus avec le code de transport réactif CrunchFlow. Les résultats de simulation pour les trois scénarios simulés avec le code MIN3p-THCm montrent que les données expérimentales sont mieux reproduites lorsqu'un plus grand nombre de processus géochimiques sont considérés, ce qui indique que la clé d'une bonne simulation réside dans l'identification adéquate des processus en jeu.