



**IRSN**

INSTITUT  
DE RADIOPROTECTION  
ET DE SÛRETÉ NUCLÉAIRE

## Modèles physico-chimiques implémentés dans MELODIE



Document réalisé sous  
système de management  
de la qualité certifié

Pôle radioprotection, environnement, déchets  
et crise

Service d'expertise des déchets radioactifs et de la radioactivité naturelle

---

---

**RESUME**

Le logiciel MELODIE est développé en vue de réaliser des évaluations de performance de stockages de déchets radioactifs. Il permet de modéliser le relâchement à l'échelle du stockage et la migration des radionucléides jusqu'aux exutoires de la géosphère. Le présent rapport décrit les modèles physico-chimiques implémentés dans le code de calcul MELO, qui constitue le principal programme du logiciel MELODIE.

---

---

**ABSTRACT**

The MELODIE software is developed to evaluate the integrated performance of radioactive waste repositories. MELODIE describes the release and the migration of the radionuclides from the repository to the outlets of the geosphere. The present report describes the physico-chemical phenomena computed in the MELO code which constitutes the main computer program of the software MELODIE.

---

---

## Table des matières

<b>ECOULEMENT DE L'EAU .....</b>	<b>3</b>
<b>1 ECOULEMENT EN MILIEU SATURE.....</b>	<b>3</b>
1.1 NAPPES CAPTIVES .....	4
1.2 NAPPES LIBRES.....	5
<b>2 ECOULEMENT EN MILIEU NON SATURE.....</b>	<b>5</b>
<b>TRANSPORT DES RADIONUCLEIDES.....</b>	<b>7</b>
<b>1 GENERALITES - HYPOTHESES .....</b>	<b>7</b>
<b>2 MECANISMES .....</b>	<b>7</b>
2.1 - HYDRODISPERSIVITE.....	7
2.2 - INTERACTIONS PHYSICO-CHIMIQUES .....	8
2.2.1 ADSORPTION-DESORPTION.....	8
2.2.2 LIMITE DE SOLUBILITE .....	9
2.2.3 - DECROISSANCE RADIOACTIVE .....	9
2.2.4 - FILIATION RADIOACTIVE.....	10
2.2.5 - EQUATION GLOBALE DU TRANSPORT .....	11

# ÉCOULEMENT DE L'EAU

Le milieu naturel dans lequel l'eau circule est par hypothèse un milieu poreux continu équivalent. Ainsi, les propriétés physiques du milieu sont considérées comme des grandeurs moyennes traduisant, à l'échelle du volume élémentaire représentatif (VER) choisi, la résultante des hétérogénéités apparentes de la roche.



Les hétérogénéités importantes du milieu sont modélisées par des éléments mono dimensionnels en 2D ou bi-dimensionnel en 3D quand leur épaisseur est petite devant le pas d'espace utilisé.

En milieu saturé, tous les vides sont occupés par l'eau. On distingue d'une part les nappes captives sans surface libre ni zone non saturée qui sont soumises à une pression supérieure à la pression atmosphérique, d'autre part les nappes libres dans les aquifères comprenant une zone non saturée au-dessus d'une zone saturée. Pour ces dernières, la surface libre de la nappe caractérisant la limite entre les deux zones est à la pression atmosphérique; dans la zone non saturée, la phase gazeuse est supposée immobile et est en équilibre à la pression atmosphérique. Par ailleurs, les propriétés physiques de l'eau (densité et viscosité) peuvent être perturbées ou non par la présence des éléments transportés.

## 1 ÉCOULEMENT EN MILIEU SATURÉ

Les équations générales de l'écoulement sont les suivantes.

### ➤ Equation de continuité ou de bilan de masse d'eau

Elle s'écrit :

$$\operatorname{div}(\rho \vec{U}) + \frac{\partial}{\partial t}(\rho \omega) + \rho q = 0 \quad (1)$$

avec :

- $\vec{U}$  : vitesse de Darcy ( $\text{m} \cdot \text{an}^{-1}$ ),
- $\rho$  : masse volumique de l'eau ( $\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$ ),
- $\omega$  : porosité totale du milieu (-),
- $q$  : terme d'apport externe ( $\text{an}^{-1}$ ).

➤ **Loi de Darcy**

Elle s'écrit :

$$\vec{U} = \frac{\bar{k}}{\mu} (\overrightarrow{grad} p + \rho g \overrightarrow{grad} z) \quad (2)$$

où :

- $\bar{k}$  : tenseur de perméabilité intrinsèque du milieu ( $m^2$ ),
- $\mu$  : viscosité dynamique ( $kg \cdot m^{-1} \cdot an^{-1}$ ),
- $p$  : pression ( $kg \cdot m^{-1} \cdot an^{-2}$ ),
- $g$  : accélération de la pesanteur ( $m \cdot an^{-2}$ ),
- $z$  : cote à partir d'un niveau de référence (m).

Dans le cas d'une masse volumique de l'eau constante, elle s'exprime par :

$$\vec{U} = -\bar{K} \overrightarrow{grad} h \quad (3)$$

avec :

- $\vec{U}$  : vitesse de Darcy ( $m \cdot an^{-1}$ ),
- $\bar{K}$  : tenseur de perméabilité ( $m \cdot an^{-1}$ ) des hydrogéologues, caractérisant l'aptitude du milieu à laisser circuler l'eau sous un gradient de charge donné,
- $h$  : charge hydraulique (m).

La charge hydraulique s'exprime par :

$$h = \frac{p}{\rho g} + z \quad (4)$$

Les équations (1) et (3) permettent d'écrire l'équation générale de l'écoulement.

## 1.1 NAPPES CAPTIVES

L'équation de l'écoulement s'écrit :

$$\text{div}(\bar{K} \overrightarrow{grad} h) = S_s \frac{\partial h}{\partial t} + q \quad (5)$$

où :

- $S_s$  : coefficient d'emménagement spécifique des nappes captives qui caractérise l'aptitude d'un milieu à stocker l'eau ( $m^{-1}$ ),
- $q$  : débit d'eau injectée ou prélevée par  $m^3$  de milieu ( $an^{-1}$ ).

avec :

$$\bar{K} = \bar{k} \frac{\rho g}{\mu}$$

L'équation de l'écoulement de l'eau peut être calculée soit, en régime permanent en considérant la variation de la charge hydraulique en fonction du temps égal à zéro, soit en régime transitoire.

## 1.2 NAPPES LIBRES

L'équation de l'écoulement s'écrit :

$$\text{div}(\bar{K}(h - \sigma)\overrightarrow{\text{grad}h}) = \omega_d \frac{\partial h}{\partial t} + Q \quad (6)$$

où :

- $\omega_d$  : emmagasinement de nappe libre ou porosité de drainage (-),
- $h - \sigma$  : variation du niveau de la nappe (m),
- $Q$  : débit d'eau injectée ou prélevée par  $\text{m}^2$  de milieu ( $\text{m} \cdot \text{an}^{-1}$ ).

## 2 ÉCOULEMENT EN MILIEU NON SATURÉ

L'écoulement de l'eau en milieu non saturé est décrit par l'équation de Richards qui prend la forme suivante :

$$\text{div}(K(h)\overrightarrow{\text{grad}h}) = (S_s S + \omega C(h)) \frac{\partial h}{\partial t} \quad (5)$$

avec :

- $K$  : perméabilité ( $\text{m} \cdot \text{an}^{-1}$ ),
- $S$  : saturation en eau (-),
- $C(h)$  : capacité de rétention spécifique ( $\text{m}^{-1}$ ).

On peut utiliser la teneur en eau  $\theta$  à la place de la saturation : c'est le rapport entre le volume d'eau et le volume total du milieu :  $\theta = S\omega$

La variation effective de saturation est généralement limitée entre deux bornes : la saturation irréductible (ou résiduelle)  $S_r$  désigne la fraction d'eau qui ne peut pas être déplacée par un gradient de pression. La saturation maximale  $S_m$  désigne la fraction d'eau maximale que le milieu accueille lors d'une imbibition. Elle tient compte de poches d'air résiduelles qui sont retenues par capillarité. On appelle teneur en eau effective la quantité :

$$\theta_r = \frac{S - S_r}{S_m - S_r}$$

Le comportement du milieu non saturé dépend de deux relations essentielles caractéristiques du matériau : la courbe de perméabilité relative  $k_r$  et la courbe de succion. La courbe de perméabilité relative  $k_r$  décrit la variation de la perméabilité à l'eau en fonction de la teneur en eau et la courbe de succion décrit la variation de la pression capillaire en fonction de la teneur en eau. Pour prendre en compte les propriétés hydrauliques des sols en milieux non saturés différentes formulations sont proposées dans la littérature. Les relations suivantes sont disponibles dans MELO.

Pour la perméabilité relative  $k_r$  en fonction de la teneur en eau :

Loi de Van Genuchten	$k_r = \sqrt{\theta_r} \left(1 - \left(1 - \theta_r^{1/n}\right)^n\right)^2$
Loi de Brooks et Corey	$k_r = \theta_r^k$
Loi linéaire	$k_r = \theta_r$
Loi polynomial	$k_r = 10^{a \times \theta_r^2 + (b-2 \times a) \times \theta_r + a - b}$
Loi exponentielle en fonction de la succion	$k_r = e^{-a \times \Psi}$ où $\Psi$ est la succion $\Psi = h - z$

Pour la courbe de succion en fonction de la teneur en eau :

Loi de Van Genuchten	$\theta_r = \frac{1}{(1 + (a\Psi)^n)^m}$ avec $m = 1 - \frac{1}{n}$
Loi puissance	$\Psi = b \times \theta_r^{-1/a}$
Loi linéaire	$\Psi = \theta_r - 1$
Loi polynomiale	$\Psi = \frac{1}{a} \left( \frac{1}{\theta_r^{1/c}} - 1 \right)^{1/b}$

La capacité de rétention spécifique, qui est non nulle uniquement en milieu non saturé, désigne la capacité du milieu à stocker ou déstocker de l'eau par une variation de saturation. Elle est liée à la succion par la relation :

$$C(h) = \frac{dS}{d\Psi} = \frac{1}{\omega} \frac{d\theta}{d\Psi}$$

# TRANSPORT DES RADIONUCLÉIDES

## 1 GENERALITES - HYPOTHESES

Le transport des radionucléides en solution concerne d'une part les éléments qui sont inclus dans des combinaisons chimiques formant des sels solubles dans l'eau, d'autre part des sels dits "insolubles" qui peuvent cependant être transportés en solution à l'état de traces. Tous ces éléments transportés sont dits "en solution" dans la mesure où ils ne constituent pas une phase mobile différente de la phase fluide (l'eau du milieu naturel).

Quand des éléments en solution sont transportés par un fluide en mouvement, on définit, pour caractériser le transport, la concentration de chacune des substances en solution par unité de volume du fluide (appelée "concentration volumique").

Le code MELO prend en compte, pour le transfert des radionucléides, les mécanismes de convection, de dispersion et de diffusion anisotrope, ainsi que les interactions physico-chimiques avec le milieu, la décroissance et la filiation radioactives.

## 2 MECANISMES

### 2.1 - HYDRODISPERSIVITE

Les flux dispersif et diffusif sont supposés obéir à la loi de Fick. La phase immobile comprend essentiellement la phase solide, mais également la phase liquide immobile liée à la phase solide par les forces d'attraction moléculaire.

Le transport hydro-dispersif des radionucléides sans prise en compte des interactions physico-chimiques avec le milieu, de la décroissance et de la filiation radioactive est formulé par l'équation suivante :

$$\operatorname{div}(\overline{\overline{D}} \overrightarrow{\operatorname{grad}} C - \vec{U}C) = (\omega - \omega_c) \frac{\partial C'}{\partial t} + \omega_c \frac{\partial C}{\partial t} \quad (8)$$

avec :

- $\omega_c$  : porosité cinématique (-),
- $C$  : concentration volumique dans la phase mobile de l'eau ( $\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$ ),
- $C'$  : concentration volumique dans la phase immobile de l'eau ( $\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$ ),
- $\overline{\overline{D}}$  : tenseur de diffusion-dispersion ( $\text{m}^2 \cdot \text{an}^{-1}$ ),

Le tenseur de diffusion-dispersion prend la forme suivante :

$$\bar{D} = \begin{pmatrix} D_L & 0 & 0 \\ 0 & D_L & 0 \\ 0 & 0 & D_L \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \alpha_L & 0 & 0 \\ 0 & \alpha_T & 0 \\ 0 & 0 & \alpha_T \end{pmatrix} \times |\vec{U}| + \omega d \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix}$$

avec :

- $\alpha_L$  : coefficient de dispersivité longitudinale dans le sens de l'écoulement (m),
- $\alpha_T$  : coefficient de dispersivité transversale dans le sens perpendiculaire à l'écoulement (m),
- $d$  : coefficient de diffusion moléculaire (m<sup>2</sup>.an<sup>-1</sup>).

## 2.2 - INTERACTIONS PHYSICO-CIMIQUES

La prise en compte des différents mécanismes géochimiques se traduit par un terme « source »  $Q$  dans l'équation de transport, traduisant la non-conservation de la matière :

$$\text{div}(\bar{D} \overrightarrow{\text{grad}} C - \vec{U}C) = (\omega - \omega_c) \frac{\partial C}{\partial t} + \omega_c \frac{\partial C}{\partial t} + Q \quad (9)$$

Le terme « source »  $Q$  s'exprime en masse de l'élément considéré par unité de volume de milieu poreux et par unité de temps (kg.m<sup>-3</sup>.an<sup>-1</sup>) et représente :

- une disparition d'éléments du milieu poreux s'il est positif,
- une arrivée d'éléments dans le milieu poreux s'il est négatif.

Les mécanismes physico-chimiques retenus se limitent à l'adsorption-désorption et à la prise en compte de la limite de solubilité du radionucléide.

### 2.2.1 ADSORPTION-DESORPTION

La fixation d'éléments en solution sur les particules minérales conduit à définir une quantité d'éléments liés à la phase solide. On utilise généralement une concentration massique  $F$ , représentant la masse d'éléments adsorbés par unité de masse du solide.

A un instant donné, dans l'unité de volume du milieu poreux, la masse de solide est  $(1 - \omega)\rho_s$  (où  $\rho_s$  est la masse volumique du solide et  $\omega$  la porosité), et la masse d'éléments liés au solide est donc  $(1 - \omega)\rho_s F$ .

Le modèle globalise les échanges de radionucléides entre phase liquide et phase solide en supposant la proportionnalité, en tout point du milieu traversé, entre les concentrations en phase liquide et phase solide.

Le modèle suppose que :

- chaque radionucléide se déplace indépendamment des autres, c'est-à-dire que les phénomènes d'interaction entre les radionucléides sont négligés,
- la fixation des radionucléides en solution sur la matrice minérale du milieu géologique se fait de manière réversible, instantanée et suit une loi linéaire en fonction de la concentration.

Dans le cas d'un milieu poreux, nous avons :

$$F = K_d C$$

où :

- $F$  : concentration massique adsorbée par unité de masse de la phase solide (-),  
 $K_d$  : coefficient de distribution de l'élément considéré ( $\text{m}^3 \cdot \text{kg}^{-1}$ ).

En admettant cette relation linéaire entre les concentrations en phase liquide et en phase solide, il vient :

$$\text{div}(\overline{D} \overrightarrow{\text{grad}} C - \vec{U}C) = \omega_c \left(1 + \frac{\omega - \omega_c}{\omega_c} K' + \frac{1 - \omega}{\omega_c} \rho_s K_d\right) \frac{\partial C}{\partial t} \quad (10)$$

On appelle généralement le terme :

$$R = 1 + \frac{\omega - \omega_c}{\omega_c} K' + \frac{1 - \omega}{\omega_c} \rho_s K_d$$

le "coefficient de retard" dû à l'adsorption sur la phase solide et à la rétention dans la phase fluide immobile. Il correspond à un coefficient multiplicateur de la porosité, qui modifie la vitesse apparente de transfert des éléments (en comparaison à la vitesse de l'écoulement).

### 2.2.2 LIMITE DE SOLUBILITE

La prise en compte de la limite de solubilité du radionucléide se traduit en chaque point du modèle par un bilan de masse. La concentration  $C$  dans la phase mobile est comparée à chaque fin de pas de temps à la limite de solubilité du radionucléide dans le milieu considéré.

Si  $C$  est supérieure à cette limite, la différence est ajoutée à un terme « excédentaire » stocké dans un tableau de travail. La valeur en ce point prend la valeur de la limite de solubilité. Si la valeur est inférieure le terme « excédentaire » récupéré du tableau de travail est ajouté à l'équation et le bilan est de nouveau effectué.

### 2.2.3 - DECROISSANCE RADIOACTIVE

En l'absence de transport, la loi de décroissance radioactive s'exprime par:

$$\frac{\partial C}{\partial t} = -\lambda C$$

avec :

$\lambda$  : constante de décroissance radioactive de l'élément ( $\text{an}^{-1}$ ).

La décroissance radioactive fait "disparaître", par unité de temps, la masse  $\lambda C$  par unité de volume de la phase liquide. Pour la ramener à l'unité de volume du milieu poreux, il convient de la multiplier par  $\omega'$ .

L'équation de transport devient :

$$\text{div}(\overline{D} \overrightarrow{\text{grad}} C - \vec{U}C) = \omega' \frac{\partial C}{\partial t} + \lambda \omega' C \quad (11)$$

S'il existe une concentration  $F$  adsorbée pour la phase solide, celle-ci va également décroître selon la même loi :

$$\frac{\partial F}{\partial t} = -\lambda F$$

Cette disparition est ici exprimée en masse par unité de temps et par unité de masse de solide. Pour la ramener à l'unité de volume de milieu poreux, il faut la multiplier par  $(1 - \omega)\rho_s$ . Dans le cas d'une adsorption linéaire et réversible  $F = K_d C$ , l'équation (11) devient :

$$\text{div}(\overline{D} \overrightarrow{\text{grad}} C - \vec{U}C) = \omega' R \frac{\partial C}{\partial t} + \lambda R \omega' C \quad (12)$$

#### 2.2.4 - FILIATION RADIOACTIVE

Si un élément  $i$  disparaît par décroissance radioactive, il engendre par filiation un élément  $j$  différent. Pour l'équation du transport de l'élément  $j$ , un terme supplémentaire est ajouté correspondant à une apparition. L'équation de transport devient :

$$\text{div}(\overline{D} \overrightarrow{\text{grad}} C_j - \vec{U}C_j) = \omega' \frac{\partial C_j}{\partial t} + \omega' \lambda_i \frac{M_j}{M_i} C_i \quad (13)$$

avec :

$\lambda_i$  : constante de décroissance radioactive de l'élément  $i$  ( $\text{an}^{-1}$ ),  
 $\frac{M_j}{M_i}$  : rapport des masses des éléments  $j$  et  $i$  (-),

S'il existe une concentration  $F_i$  de l'élément  $i$  adsorbée sur la phase solide, celle-ci va se transformer en élément  $j$  par filiation. Dans le cas d'une adsorption linéaire et réversible pour l'élément  $i$  et l'élément  $j$ , l'équation (13) de transport de l'élément  $j$  devient :

$$\text{div}(\overline{D} \overrightarrow{\text{grad}} C_j - \vec{U}C_j) = \omega' R_j \frac{\partial C_j}{\partial t} - \omega' R_i \lambda_i \frac{M_j}{M_i} C_i \quad (14)$$

avec :

- $R_i$  : "coefficient de retard" de l'élément i (-),  
 $R_j$  : "coefficient de retard" de l'élément j (-).

### 2.2.5 - EQUATION GLOBALE DU TRANSPORT

La prise en compte de tous les mécanismes décrits ci-dessus conduit à l'équation globale suivante pour le transport de l'élément j :

$$\text{div}[(\bar{\alpha} \times |\vec{U}| + \omega d)\overrightarrow{\text{grad}}C_j - \vec{U}C_j] = \omega' R_j \frac{\partial C_j}{\partial t} + \omega' \lambda_j R_j C_j - \omega' R_i \lambda_i \frac{M_j}{M_i} C_i \quad (15)$$

où :

- $\omega'$  : porosité cinématique dans le cas où la fraction d'eau immobile liée à la phase solide est supposée très peu envahie par les éléments transportés, porosité totale dans le cas inverse (-),