

## Abstract

Cement is a major component of the engineered barrier system in proposed underground repositories for low- and intermediate-level radioactive waste. The interaction between the hyperalkaline solutions derived from the degradation of cement and the rocks hosting such repositories may change the physical and chemical properties of the host rocks. The Hyperalkaline Plume in Fractured Rock (HPF) project at the Grimsel Test Site (Switzerland) addresses this issue in the context of a fractured crystalline host rock (granite).

The granite at Grimsel is characterized by the presence of ductile shear zones (Bossart & Mazurek, 1991), with thicknesses ranging up to at least meter to decameter scales. These shear zones include intensely deformed mylonitic bands with thicknesses up to several tens of centimeters. Brittle fractures developed in later stages of deformation, mainly within the mylonitic bands. These fractures, with thicknesses in the millimeter range, are at least partially filled with a porous fault gouge.

The HPF project, which is funded by ANDRA (France), JNC (now JAEA, Japan), NAGRA (Switzerland), SKB (Sweden); POSIVA (Finland) and the DOE (USA), included an underground field experiment (injection of a hyperalkaline solution in a hydraulic dipole setting, tracer transport experiments), small-scale laboratory experiments and structural and mineralogical characterization. In order to understand the interaction of the hyperalkaline solution with the fractured shear zone at the Grimsel Test Site, the laboratory and underground field experiments were analyzed by means of numerical modeling.

Initially, different sets of scoping calculations were performed to assess the spatial scale and magnitude of the mineralogical alteration associated with the injection of a hyperalkaline solution into a fracture at the Grimsel Test Site, and to aid in the design of the experiment. The contemplated duration of the experiment in the simulations ranged from 1 to 3 years. All concepts were based on one-dimensional reactive transport modeling of the interaction between an injected hyperalkaline solution and the mineralogy of the fault gouge filling the fracture. In addition, matrix diffusion into the wall rock was also considered in one of the conceptual models that were investigated. The two main conclusions from the entire set of scoping calculations were (1) that relatively large flow rates had to be implemented in the field in order to expect a significant amount of mineralogical alteration, and (2) that the precipitation of significant amounts of secondary minerals was only to be expected if the reactive surface areas of the primary minerals in the rock were at least close to the values of specific surface area measured with the BET technique. Other identified uncertainties were associated with the mineralogy of the potential secondary phases that could precipitate and with the magnitudes of mineral reaction rates.

After the experiments were started, one-dimensional flow and reactive transport models were applied to reproduce the breakthrough curves measured in the small-scale laboratory experiment (injection of a high-pH solution into a drill core containing a fracture). An important finding from this experiment was that the interaction between the hyperalkaline solution and the fault zone in Grimsel granite caused a significant reduction in the hydraulic conductivity of the rock core, even though the amount of mineral alteration was minor. The modeling results confirmed that the dissolution of primary minerals was kinetically controlled. The two modeling approaches (GIMRT and 3FLO) used rate constants based on published experimental results for the primary minerals and larger rate constants for the secondary minerals (simulating conditions close to local equilibrium for these secondary phases). In order to obtain a reasonable agreement between models and experimental results, reactive surface areas of the order of  $10^5 \text{ m}^2/\text{m}^3$  rock had to be used for both GIMRT and 3FLO. These values are much smaller than those measured

for the fault gouge filling the fracture, which are of the order of  $10^6 - 10^7 \text{ m}^2/\text{m}^3$  rock. However, the match between the simulations and the observations was improved by adding a small fraction of fine-grained mineral, which could explain the high initial peaks in Al and Si concentration. With the inclusion of this fine-grained fraction, the initial surface areas in the model were within the range of the measured specific surface areas of the fault gouge.

Tracer tests at the Grimsel Test Site were interpreted assuming both homogeneous (a) and heterogeneous (b) distributions of hydraulic conductivity of the shear zone.

- a) Although this approach was based on a relatively simple model (isotropic hydraulic properties identical for all dipole configurations), peak arrival times and the shape of the breakthrough curves were generally reproduced. A long-lasting tailing seems to be induced by a continuous release of low levels of tracer in the injection interval, possibly by diffusion from stagnant zones in the surrounding formation or from the test equipment. The modeling systematically overpredicted tracer concentrations in the effluent for all dipole configurations, as if the amount of tracer was a factor of 3 to 5 lower than injected. It is difficult to explain this trend by adding complexity to the flow field within the shear zone plane or by using different boundary conditions. It has been hypothesized that unexpected tracer losses may have resulted from the injection into features corresponding to intervals other than the ones used directly in the experiment, although this effect has not been confirmed by the presence of high-pH conditions in any of these other intervals.
- b) Dipole experiments were interpreted using different concepts to reconcile transport processes and radionuclide migration within a shear zone altered by high-pH fluid. Parameter fits were possible for a multiple fracture-matrix approach, as well as for a two-dimensional heterogeneous medium approach. Discrimination between these two approaches was not possible, although the extended dipole flow field geometry, the quite dissimilar breakthrough curves measured for experiments with different dipole geometries and the measured lateral spreading of the high-pH plume favored the heterogeneous porous medium approach. Using a heterogeneous porosity distribution, together with an empirical Kozeny-Carman equation that relates porosity and hydraulic conductivity, a heterogeneous flow field could be calculated for the shear zone. This flow field was used to predict the interaction of the hyperalkaline solution with the shear zone. Calculations were also performed to predict the spreading of Cs, Co and Eu radionuclide tracers within the shear zone altered by high-pH interaction. It has been shown that the calculated Cs, Co and Eu breakthroughs and their concentration distributions depend on the assumptions on sorption behavior. In addition, the observed decrease in hydraulic conductivity of the system, which is observed both in the field and in small-scale core infiltration experiments, and the related changes in the flow field, which are linked to mineral alteration, will strongly influence the migration of radionuclides.

Two-dimensional reactive transport modeling of the geochemical evolution of the system was also performed. Preliminary modeling with GIMRT and a first comparison with experimental observations showed an important retardation in Na and K experimental breakthrough compared to the model, which was partly due to the change in the flow field during the experiment and most probably due to chemical retardation (sorption) of both Na and K. Also, the fact that the concentrations at extraction at steady-state were the same as the concentrations at injection pointed to a channeling effect, which gradually prevented mixing of the injected solution with the surrounding groundwater. These results also indicated that there was a strong possibility that secondary mineral precipitation in the shear zone was only minor and therefore difficult to detect. Modeling with 3FLO suggested the following conclusions:

- Na and K concentrations in the effluent could be reproduced if a sorption term were assumed. Otherwise, the initial flow and transport model was consistent with the observations.
- The values of Na and K concentrations at late stages of the experiment are in fairly good agreement with the experimental observations, although the shapes of the breakthrough curves are not identical.
- The trends in Ca, Al and Si concentration in the effluent were globally well simulated, although the magnitudes were not.
- The observed trends and orders of magnitude of the pH breakthroughs at the observation wells were reproduced, although they occurred slightly too fast at the wells further away from injection (99.008 and 98.004).
- The increase in the injection pressure was reproduced but the modeled values were too high, suggesting that the precipitation-induced permeability reduction was overestimated.
- The evolution of the breakthrough curves corresponding to the dipole tests performed under high-pH conditions was not reproduced. The model does not predict the formation of any preferential pathway with time, which is necessary to reproduce the experimental results.

Overall, the major conclusion from the modeling of the laboratory and field experiments can be summarized as follows:

- Injection of the high-pH solution modifies the hydraulic conductivity of the flow field, significantly altering tracer travel times and even the geometry of the flow field. The results of the field experiment point to a channeling effect, which severely limits mixing of the injected high-pH solution with background Grimsel groundwater at late stages of the experiment.
- Relatively little pH buffering of the hyperalkaline plume by the Grimsel granite occurs, indicating that the use of kinetic formulation for the mineral dissolution was appropriate.
- The fracture zone appears to be sufficiently heterogeneous and random that it is unlikely that the results from other tests can be predicted deterministically. However, the basic assumption is that the average or ensemble behavior, given the stochastic nature of the hydraulic conductivity, porosity and mineral distributions, can still be understood.
- Adequate matching of major cation retardation (and, by implication, the retardation of radionuclides like Cs that sorbs according to an ion exchange mechanism) may require a more sophisticated and comprehensive ion exchange and/or surface complexation model.

## Zusammenfassung

Zement ist eine Hauptkomponente des Barrierensystems in geplanten Untertage-Lagern für schwach- und mittelradioaktive Abfälle. Die Wechselwirkungen zwischen hochalkalischen Lösungen, die von der Zementersetzung stammen, und dem umgebenden Gestein könnten die chemischen und physikalischen Eigenschaften des Wirtgesteins verändern. Das Projekt „Hyperalkaline Plume in Fractured Rock (HPF)“ im Felslabor Grimsel (Schweiz) untersucht diese Problematik in Zusammenhang mit einem geklüfteten kristallinen Wirtgestein (Granit).

Der Grimsel-Granit oder -Granodiorit wird charakterisiert durch das Vorhandensein von duktilen Scherzonen (Bossart & Mazurek, 1991), die eine Mächtigkeit im Meter- bzw. Dekameterbereich erreichen können. Diese Scherzonen enthalten intensiv deformierte Mylonitbänder mit einer Mächtigkeit bis zu einigen Dezimetern. In einem späteren Deformationsstadium bildeten sich hauptsächlich in den Mylonitbändern sprödeformierte Klüfte. Diese Klüfte mit einer Mächtigkeit im Millimetermassstab können teilweise eine poröse Füllung eine so genannte „fault gouge“ enthalten.

Das HPF-Projekt, welches von ANDRA (Frankreich), JNC (heute JAEA, Japan), NAGRA (Schweiz), SKB (Schweden), POSIVA (Finnland) und dem DOE (USA) finanziert wurde, beinhaltete ein Feldexperiment untertage mit einer Injektion einer hochalkalischen Lösung in einem hydraulischen Dipolfliessfeld mit Tracer-Experimenten und kleinskalige Laborexperimente sowie strukturelle und mineralogische Untersuchungen. Um die Wechselwirkung der hochalkalischen Lösung mit der geklüfteten Scherzone im Felslabor Grimsel zu verstehen, wurden die Labor- und Feldexperimente mit Hilfe numerischer Modellierungen analysiert.

Zu Beginn wurden verschiedene Überschlagsrechnungen, so genannte „scoping calculations“, zur Abschätzung der räumlichen Ausdehnung und des Ausmasses der mineralogischen Veränderung durch die Injektion einer hochalkalischen Lösung in eine Klufftzone und zum Design des Feldexperimentes durchgeführt. Die in Betracht gezogene Dauer des Experimentes in den Simulationen war in dem Bereich von 1 bis 3 Jahren. Alle Konzepte basierten auf ein-dimensionalen reaktiven Transportmodellierungen mit einer Wechselwirkung zwischen der injizierten hochalkalischen Lösung und dem Mineralbestand der Klufftfüllung. Zusätzlich wurde in einem konzeptuellen Modell auch die Matrixdiffusion in das Nebengestein berücksichtigt. Die zwei Hauptschlussfolgerungen aller Überschlagsrechnungen waren (1), dass relativ grosse Fließraten im Feldexperiment implementiert werden müssten, um überhaupt eine signifikante mineralogische Veränderung erwarten zu können, und (2), dass signifikante Ausfällungen von Sekundärmineralien nur erwartet werden können, wenn die reaktiven Oberflächen der Primärmineralien im Gestein vergleichbar sind mit denen mit der BET-Technik gemessenen spezifischen Oberflächen. Andere identifizierte Unsicherheiten stehen in Zusammenhang mit der Identität der potentiellen Sekundärphasen, die ausfallen können, und den Reaktionsraten der Mineralauflösung und -fällung.

Nachdem das Experiment gestartet war, versuchte man mit ein-dimensionalen Fließ- und reaktiven Transportmodellen die Durchbruchkurven eines kleinskaligen Laborexperimentes, bei dem eine Hoch-pH-Lösung in einen Bohrkern mit einer Klufftzone injiziert wurde. Eine wichtige Aussage des Experimentes war, dass die Wechselwirkung zwischen der hochalkalischen Lösung und der Klufftzone im Grimsel-Granit zu einer signifikanten Reduktion der hydraulischen Durchlässigkeit des Bohrkernes führen kann, auch wenn die Veränderungen des Mineralbestandes gering sind. Die Modellierresultate bestätigten, dass Auflösung von Primärmineralien kinetisch kontrolliert wird. In den zwei Modellieransätze (GIMRT und 3FLO) wurden für die Auflösung der Primärmineralien Geschwindigkeitskonstanten gebraucht, die auf publizierten Resultaten von Experimenten beruhen. Für die Sekundärmineralien wurden

grössere Geschwindigkeitskonstanten angenommen, um die Bedingungen eines lokalen Gleichgewichts für diese Sekundärphasen simulieren zu können. Zur Erreichung einer akzeptablen Übereinstimmung zwischen dem Modell und den Resultaten des Experimentes wurde von beiden Modellen, GIMRT und 3FLO, reaktive Mineraloberflächen in der Grössenordnung von  $10^5 \text{ m}^2/\text{m}^3$  angenommen. Diese Werte sind kleiner als die gemessenen Werte für die Kluftfüllung („fault gouge“), die in der Grössenordnung von  $10^6 - 10^7 \text{ m}^2/\text{m}^3$  liegen. Jedoch konnte die Übereinstimmung zwischen der Simulation und den Beobachtungen verbessert werden, indem man einen kleinen Anteil von feinstkörnigem Material hinzufügte, um den anfänglich hohen Peak in der Al- und Si-Konzentration erklären zu können. Mit der Berücksichtigung dieses Feianteils war die initiale Oberfläche in dem Modell innerhalb der Bandbreite der gemessenen spezifischen Oberflächen der Kluftfüllung.

Tracerversuche im Felslabor Grimsel wurden unter der Annahme sowohl einer (a) homogenen als auch (b) heterogenen Verteilung der hydraulischen Durchlässigkeit der Scherzone interpretiert.

- a) Obwohl dieser Ansatz auf einem relativ einfachen Modell mit isotropen hydraulischen Eigenschaften, die identisch für alle Dipol-Konfigurationen sind, beruht, konnte die Peak-Ankunftszeit und die Form der Durchbruchkurve ungefähr reproduziert werden. Die langanhaltende messbare Konzentration am Ende der Durchbruchkurve (sogenanntes „tailing“) scheint durch das progressive Freisetzen von Tracer im Injektionsintervall bedingt zu sein, ermöglicht durch die Diffusion aus Bereichen mit stagnierendem Fluid in der umgebenden Formation oder durch das verwendete Testequipment. Die Modellierung überschätzt systematisch die Tracerkonzentration im Ausfluss bei allen Dipolkonfigurationen. Der rückgerechnete Tracergehalt war ein Faktor von 3 bis 5 tiefer als injiziert. Es ist schwierig, diesen Trend zu erklären, indem man zusätzlich Komplexität in das Fliessfeld innerhalb der Scherzonenebene einbaut oder andere Randbedingungen benutzt. Es wurde die Hypothese aufgestellt, dass der unerwartete Tracerverlust durch die Injektion in mit dem Testintervall korrespondierende Bereiche hervorgerufen wurde. Dieser Effekt konnte aber nicht bestätigt werden – an keiner Stelle ausserhalb der Scherzonenintervalle wurden Hoch-pH-Bedingungen gefunden.
- b) Dipol-Experimente wurden mit unterschiedlichen Konzepten interpretiert, um die Transportprozesse und die Migration von Radionukliden innerhalb einer Scherzone, die durch hoch-pH-Lösung verändert wurde, in Einklang bringen zu können. Eine Parameterübereinstimmung wurde zum einen mit Hilfe eines Ansatzes erreicht, der das Vorhandensein mehrfacher Klüfte und der Matrix zur Grundlage hat, zum anderen mit einem zweidimensionalen heterogenen Ansatz. Die Diskriminierung zwischen diesen beiden Ansätzen war nicht möglich, obgleich die erweiterte Dipol-Fliessgeometrie und die gemessenen leicht unterschiedlichen Durchbruchkurven der Experimente mit verschiedenen Dipolgeometrien, sowie die gemessene laterale Ausdehnung der Hoch-pH-Fahne, den heterogenen porösen Ansatz favorisieren. Mit dem Gebrauch einer heterogenen Porositätsverteilung zusammen mit einer empirischen Kozeny-Carman-Gleichung, die Porosität und hydraulische Leitfähigkeit verbindet, konnte ein heterogenes Fliessfeld der Scherzone berechnet werden. Dieses Fliessfeld wurde benutzt, um die Wechselwirkung der hochalkalischen Lösung mit der Scherzone vorherzusagen. Berechnungen wurden auch ausgeführt zur Vorhersage der Ausdehnung von Radionuklidtracern (Cs, Co und Eu) innerhalb der Scherzone nachdem diese durch die hoch-pH-Wechselwirkung verändert wurde. Es konnte gezeigt werden, dass die berechneten Cs, Co und Eu Durchbruchkurven und ihre Konzentrationsverteilung abhängig sind von der Annahme der Sorptionseigenschaften. Der beobachtete Rückgang der hydraulischen Durchlässigkeit des Systems, welches sowohl im Feld als auch im kleinskaligen Bohrkern-Infiltrationsexperiment beobachtet wurde, und die damit verbundene

Veränderung des Fliessfeldes, die mit der Veränderung der Minerale in Verbindung steht, werden die Migration der Radionuklide stark beeinflussen.

Mit Hilfe von zweidimensionalen reaktiven Transportmodellierungen wurde die geochemische Entwicklung des Systems modelliert. Im Vergleich zu den vorläufigen Resultaten der Modellierungen mit GIMRT zeigt sich im Experiment eine starke Retardierung beim Durchbruch von Na und K, welche teilweise auf die Veränderungen im Fliessfeld während des Experimentes und höchstwahrscheinlich auf die chemische Retardierung (Sorption) von Na und K zurückzuführen ist. Auch die Tatsache, dass die Konzentration auf der Extraktionsseite unter stationären Bedingungen gleich hoch war wie die Konzentration auf der Injektionsseite, weist auf einen bevorzugten Fliesspfad ("channelling effect") hin, der graduell die Mischung der injizierten Lösung mit dem umgebenden Grundwasser verhinderte. Diese Ergebnisse zeigen auch, dass es möglicherweise nur zu kleineren Ausfällungen von Sekundärmineralien in der Scherzone kam, und es daher schwierig sein könnte, diese zu detektieren. Die Modellierungen mit 3FLO legen die folgenden Schlussfolgerungen nahe:

- Die Na- und K-Konzentration im Ausfluss konnte reproduziert werden, wenn ein Sorptionsterm angenommen wurde. Ansonsten war das initiale Fliess- und Transportmodell konsistent mit den Beobachtungen.
- Die Werte der Na- und K-Konzentrationen im späteren Experimentstadium waren in guter Übereinstimmung mit den experimentellen Beobachtungen, im Gegensatz zur Form der Durchbruchkurven.
- Der Trend in den Ca-, Al- und Si-Konzentrationen im Ausfluss konnten im Allgemeinen gut simuliert werden, nicht so die absoluten Werte.
- Die beobachteten Trends und die Grössenordnung des pH-Durchbruchs in den Beobachtungsbohrungen konnte reproduziert werden, obwohl der Durchbruch bei den weiter von der Injektion entfernt liegenden Bohrungen (BOHP 99.008 und 98.004) etwas zu schnell stattfand.
- Die Erhöhung des Injektionsdruckes konnte reproduziert werden, jedoch waren die modellierten absoluten Drücke zu hoch, was darauf hinweist, dass die durch die Ausfällungen erfolgte Permeabilitätsreduktion überschätzt wurde.
- Die Entwicklung der Durchbruchkurven, korrespondierend mit den Dipoltests unter Hoch-pH-Bedingungen, konnte nicht reproduziert werden. Das Modell kann die zeitabhängige Bildung von bevorzugten Fliesspfaden nicht vorhersagen, was nötig wäre um diese Experimentdaten zu reproduzieren.

Die Hauptschlussfolgerungen der Modellierung der Labor- und Feldexperimente können wie folgt zusammengefasst werden:

- Die Injektion von Hoch-pH-Lösung modifiziert die hydraulische Durchlässigkeit des Fliessfeldes, und verändert damit signifikant die Tracerverweildauer und die Geometrie des Fliessfeldes. Die Resultate des Feldexperimentes weisen auf die Ausbildung von bevorzugten Fliesswegen ("channelling effect") hin, welche stark das Vermischen der injizierten Hoch-pH-Lösung mit dem Grimsel-Grundwasser in einer späteren Experimentphase limitiert.
- Es tritt eine relativ geringe Pufferung der Hoch-pH-Fahne durch den Grimsel-Granit auf, die zeigt, dass die kinetische Formulierung der Mineralauflösung angebracht ist.
- Die Kluftzone erscheint so heterogen und willkürlich, dass es unwahrscheinlich ist, die Resultate von anderen Tests deterministisch vorhersagen zu können. Das durchschnittliche

oder Gesamtverhalten des Systems konnte wegen des stochastischen Charakters der hydraulischen Durchlässigkeit, sowie der Porositäts- und Mineralverteilung jedoch verstanden werden.

- Um zwischen Modellierung und Experiment eine adäquate Übereinstimmung für die Retardation der Hauptkationen (und implizit, für die Retardation von Radionukliden wie Cs, welches gemäss Ionenaustauschmechanismen sorbiert) zu erreichen, sind vermutlich verfeinerte und umfassendere Ionenaustausch und/oder Oberflächen-Komplexierungsmodelle erforderlich.

## Résumé

Le ciment est l'un des composants principaux de la barrière ouvragée destinée au confinement des déchets dans les sites de stockage pour déchets de faible et de moyenne activité. L'interaction entre les solutions hyperalcalines provenant de la dégradation du ciment et la roche hôte peut affecter les propriétés physiques et chimiques de cette dernière. La question est traitée dans le cadre du projet « panache hyperalcalin en roche fracturée » (Hyperalkaline Plume in Fractured Rock, HPF) et ce, dans le contexte d'une roche hôte cristalline fracturée.

Le granite (ou granodiorite) du Grimsel est caractérisé par la présence de zones de cisaillement (Bossart & Mazurek 1991), dont l'épaisseur peut atteindre plusieurs mètres, voire plusieurs dizaines de mètres. Ces zones de cisaillement comprennent des bandes mylonitiques fortement déformées de plusieurs dizaines de centimètres d'épaisseur. Des fractures cassantes se développent lors d'étapes de déformation ultérieures, en particulier dans ces bandes mylonitiques. Ces fractures de la taille du millimètre sont, au moins partiellement, remplies d'une très poreuse gouge de faille.

Le projet HPF, soutenu par l'ANDRA (France), JNC (Japon), NAGRA (Suisse), SLB (Suède) et DOE (USA), comprend une expérimentation de terrain souterraine (injection d'une solution hyperalcaline dans un agencement de dipôles, expériences de traçage), d'expérimentations en laboratoire à petite échelle et de caractérisation minéralogique. Pour comprendre les interactions entre solution hyperalcaline et zone de cisaillement au Laboratoire Souterrain du Grimsel, ces expérimentations ont été accompagnées de modélisation numérique.

Une série de calculs préliminaires ont d'abord permis d'estimer l'échelle spatiale et l'ampleur de l'altération minéralogique causée par l'injection de la solution hyperalcaline dans une fracture du Laboratoire Souterrain du Grimsel. Ces calculs ont par ailleurs servi à dimensionner l'expérimentation. Les simulations préliminaires couvrent une durée expérimentale de 1 à 3 ans. Toutes sont conçues sur la base d'un modèle de transport réactif à une dimension simulant l'interaction de la solution hyperalcaline et les minéraux de la gouge de faille remplissant la fracture. La diffusion matricielle dans la roche adjacente a été considérée dans une seule de ces simulations. Les deux conclusions principales de la série de calculs préliminaires sont: (1) pour atteindre une quantité significative d'altération minérale, des débits relativement importants sont nécessaires; (2) des minéraux secondaires seraient précipités en quantités significatives seulement si les surfaces réactives des minéraux primaires de la roche étaient pour le moins très proches des surfaces spécifiques mesurées par la méthode BET. Par ailleurs, des incertitudes sont apparues quant aux possibles assemblages minéralogiques des précipités secondaires et quant à leurs taux cinétiques de formation.

Une fois les expérimentations lancées, les simulations de transport réactif à une dimension ont servi à reproduire les courbes de percée mesurées à petite échelle en laboratoire (injection d'une solution à pH élevé dans un échantillon de roche fracturé). Une observation importante découlant de l'expérience est que l'interaction entre solution hyperalcaline et zone fracturée, telle qu'étudiée sur l'échantillon de granite du Grimsel, conduit à une diminution significative de la conductivité hydraulique, bien que l'étendue des altérations minérales soit faible. Les résultats des simulations confirment, en outre, que la dissolution des minéraux primaires est contrôlée par la cinétique. Dans les deux approches de modélisation (GIMRT et 3FLO), les constantes cinétiques des minéraux primaires proviennent de résultats publiés, tandis que des constantes plus élevées ont été utilisées pour les minéraux secondaires (ce qui revient à simuler des conditions proches de l'équilibre dans le cas des phases minérales secondaires). Pour obtenir un bon accord entre modèle et résultats expérimentaux, des surfaces spécifiques de l'ordre de  $10^5 \text{ m}^2/\text{m}^3$  de roche étaient nécessaires pour les deux approches, GIMRT et 3FLO.



Ces valeurs sont largement inférieures à celles mesurées sur la gouge de faille remplissant la fracture, de l'ordre de  $10^6 - 10^7 \text{ m}^2/\text{m}^3$  de roche. Les simulations ont pu être ajustées aux observations par la prise en compte, dans le modèle, d'une fraction de grains de petite taille; celle-ci permet en particulier d'expliquer les pics initiaux des concentrations de Al et Si. De plus, en incluant cette fraction de grains fins, les surfaces spécifiques initiales des modélisations étaient conformes à l'échelle de surfaces spécifiques mesurées dans la gouge de faille.

Les tests de traçage au Laboratoire Souterrain du Grimsel ont été interprétés en supposant une répartition soit (a) homogène, soit (b) hétérogène de la conductivité hydraulique dans la zone de cisaillement.

- a) Bien que cette approche soit construite sur un modèle très simple (propriétés hydrauliques isotropiques identiques pour toutes les configurations de dipôle), elle permet de bien reproduire l'arrivée du pic et la forme de la courbe de percée. Il semble que le relâchement progressif de traceur à partir de l'intervalle d'injection induise un effet de retard (« tailing ») important, probablement dû à la diffusion de traceur provenant, soit de zones de stagnation dans la roche adjacente, soit de l'équipement. Les simulations ont surestimé de manière systématique les concentrations de traceurs dans l'écoulement pour toutes les configurations de dipôles, comme si la quantité de traceur réellement injecté avait été inférieure d'un facteur 3 à 5. Il est difficile d'expliquer ce comportement en augmentant la complexité des champs d'écoulement dans le plan de la zone de cisaillement ou en utilisant d'autres conditions limites. Il a finalement été supposé que ces pertes inattendues avaient été causées par l'injection de traceur dans des intervalles autres que ceux prévus par l'expérience; cet effet n'a cependant pas été confirmé par un pH élevé dans un autre intervalle.
- b) Les expériences de dipôles ont été interprétées grâce à différents modèles intégrant les phénomènes de transport et la migration de radionucléides en zone de cisaillement altérée par un fluide à pH élevé. L'ajustement des paramètres a pu être réalisé pour un modèle de matrice rocheuse à multiples fractures, ainsi que pour un modèle deux dimensions en milieu hétérogène, sans qu'il soit possible d'opter de manière définitive pour l'un des deux modèles. Toutefois la géométrie du champ d'écoulement entre dipôles, la dissimilitude des courbes de percées mesurées sur des expériences de différentes géométries, de même que la dispersion latérale du panache à pH élevé, privilégient le modèle hétérogène en milieu poreux. Par l'application combinée d'une distribution de porosité hétérogène et d'une équation empirique selon Kozény-Carman qui associe la porosité à la conductivité hydraulique, il a été possible de calculer un champ d'écoulement hétérogène dans la zone de cisaillement. Le champ d'écoulement ainsi calculé a servi à prédire l'interaction entre fluide hyperalcalin et zone de cisaillement. Ces simulations ont également servi à prédire la dissémination des traceurs Cs, Co et Eu dans la zone de cisaillement altérée par les effets de pH élevé. Il en découle que les percées de Cs, Co et Eu calculées et la distribution des concentrations dépendent des hypothèses concernant leur comportement de sorption. Enfin, la diminution de la conductivité hydraulique observée tant sur le terrain que dans les expériences d'infiltration à petite échelle, d'une part, et les changements du champ d'écoulement qui en résultent et conduisent à l'altération des minéraux, d'autre part, influenceront de manière importante sur la migration des radionucléides.

L'évolution géochimique du système a par ailleurs été simulée par un modèle de transport réactif à deux dimensions. Des simulations préliminaires avec GIMRT et une première comparaison avec des observations expérimentales montrent un retard important des percées de Na et K par rapport à celles du modèle. Ces différences sont en partie dues au changement du champ d'écoulement au cours de l'expérience et vraisemblablement aussi à la sorption chimique de Na et K. De plus, le fait qu'en condition stationnaire les concentrations au point d'extraction soient identiques à celle injectées indique un effet de « channeling »; celui-ci empêche le mélange

graduel de la solution injectée et de l'eau souterraine environnante. Ces résultats montrent, en outre, que la précipitation des minéraux secondaires dans la zone de cisaillement est vraisemblablement mineure et, par conséquent, difficile à détecter. Les simulations avec 3FLO suggèrent les conclusions suivantes:

- Les concentrations d'écoulement de Na et K peuvent être correctement reproduites si on ajoute un terme de sorption. Sinon, le modèle initial d'écoulement et de transfert produit des résultats conformes aux observations.
- A un stade ultérieur de l'expérience, les concentrations de Na et K correspondent raisonnablement bien aux observations expérimentales, bien que la forme des courbes de percée ne soit pas identique.
- L'évolution globale des concentrations d'écoulement de Ca, Al et Si est bien simulée, mais non les valeurs exactes.
- Les courbes de percée du pH sont bien reproduites au niveau des forages d'observation, tant du point de vue de l'évolution que de celui des valeurs. Aux forages les plus éloignés de l'injection (99-008 et 98.004), l'arrivée fut légèrement plus rapide que prévue.
- L'augmentation de la pression d'injection a bien été reproduite, mais les valeurs simulées sont trop élevées, comme si la diminution de la perméabilité occasionnée par les précipités avait été surestimée.
- Il n'a pas été possible de reproduire les courbes de percées correspondant aux tests de dipôle menés sous condition de pH élevé. Le modèle ne prédit pas la formation concomitante de cheminements préférentiels qui permettrait de reproduire correctement les résultats.

De manière générale, les conclusions principales résultant des simulations et des expérimentations peuvent être résumées de manière suivante :

- L'injection de solution à pH élevé modifie la conductivité hydraulique dans le champ d'écoulement, altérant significativement les temps de passage du traceur et même la géométrie du champ d'écoulement. Dans un stade avancé, les résultats de l'expérience de terrain révèlent un effet de « channeling » qui empêche le mélange de la solution à pH élevé et de l'eau souterraine du Grimsel.
- Le granite du Grimsel ne tamponne que légèrement le panache hyperalcalin, ce qui montre que la description des transformations minérales par une formulation cinétique est appropriée.
- Il semble que la zone fracturée soit suffisamment hétérogène et accidentelle pour qu'il soit peu probable que des résultats d'autres tests puissent être interprétés de manière déterministe. Toutefois, vu la nature stochastique de la conductivité hydraulique, de la porosité et de la répartition des minéraux, on peut supposer qu'il est possible d'appréhender le comportement moyen ou global du système.
- Le retard des cations majeurs (de même que celui des radionucléides tels que le Cs, un cation sorbé selon un mécanisme d'échange ionique) ne peut être simulé correctement que par un modèle plus sophistiqué et détaillé d'échange ionique et / ou de complexation de surface.