



Combining innovative experimental approaches and cross-scale reactive transport modelling for assessing coupled hydrogeochemical processes at interfaces in deep geological repositories for radioactive waste

Jenna Poonoosamy, Martina Klinkenberg, Mara Lönartz, Yuankai Yang, Guido Deissmann, Felix Brandt, and Dirk Bosbach

Forschungszentrum Jülich GmbH, 52425 Jülich, Germany

Correspondence: Jenna Poonoosamy (j.poonoosamy@fz-juelich.de)

Published: 10 November 2021

Abstract. Deep geological repositories with a multi-barrier concept are foreseen by various countries for the disposal of high-level radioactive waste. A reliable and consistent assessment of the safety of these repositories over time scales of some hundred thousand years requires an advancement of process understanding. Simulation tools need to be developed for a close-to-reality description of repository evolution scenarios. This is especially required to resolve the challenging task of comparing and assessing the safety of different repository concepts in different host rocks within the German site-selection process. The construction of underground galleries and geotechnical barriers in the host rock formation and the emplacement of nuclear waste packages will create perturbations induced by chemical, thermal and pressure gradients at the interfaces of the different barriers, leading to mineral dissolution and precipitation to achieve re-equilibration. Such coupled hydrogeochemical processes generate non-linear responses in transport and mechanical properties of barrier materials and host rocks, which have to be taken into account for a more rigorous assessment of repository system evolution.

Reactive transport modeling (RTM) can be applied to investigate these perturbations and processes across temporal and spatial scales, from the micro-scale at interfaces via the repository near field to the entire repository system – information not accessible through experiments alone. Although RTM is capable of addressing highly complex hydrogeochemical phenomena, the application of RTM codes to real systems is impeded by the often simplified description of coupled processes. To enhance the predictive capabilities of reactive transport models and to gain fundamental insights into the coupling between solute and radionuclide transport properties (e.g., permeability and diffusivity) of porous media and dissolution/precipitation processes, we conducted experiments on “simplified” chemical systems combined with pore-scale and continuum-scale reactive transport modelling to study processes in isolation, with the final aim of improving conceptual approaches for process couplings implemented in reactive transport codes.

In this context, we investigated the effects of coupled mineral dissolution and precipitation in porous media on changes in permeability using flow-through experiments conducted in a magnetic resonance imaging scanner, which enabled the in situ investigation of porosity evolution in combination with monitoring changes in permeability and mineralogy. Our observations showed that classical implementations in reactive transport codes such as the Kozeny–Carman equation (Carman, 1937) failed to reproduce the changes in permeability and that more sophisticated approaches are required (Poonoosamy et al., 2020a, b). Moreover, we developed a novel “lab-on-a-chip” setup, i.e., micronized counter diffusion reactors with in operando 3D Raman tomography (Poonoosamy et al., 2019, 2020c), which enables evaluation of the alteration in pore architecture and study of the effect of coupled mineral dissolution and precipitation on the diffusive transport of solutes and radionuclides in porous media. Our approach enables the development of process-based theoretical models which allow for improvements in RTM codes and for predicting the evolution of perturbed interfaces in waste repositories, thus building

confidence in the predictive capabilities of reactive transport models and reducing uncertainties with respect to future repository evolution.

Kurzfassung. Für die Endlagerung hochradioaktiver Abfälle sind in verschiedenen Ländern tiefegeologische Endlager mit einem Multibarrierenkonzept vorgesehen. Eine verlässliche Bewertung der Sicherheit dieser Endlager über Zeiträume von mehreren hunderttausend Jahren erfordert ein verbessertes Verständnis der dort ablaufenden Prozesse. Hierfür bedarf es der Entwicklung von Simulationswerkzeugen, die eine realitätsnahe Beschreibung der Entwicklung von Endlagersystemen ermöglichen. Dies ist insbesondere im Hinblick auf die im deutschen Standortauswahlverfahren bestehende Herausforderung eines Vergleichs verschiedener Endlagerkonzepte in unterschiedlichen Wirtsgesteinen erforderlich. Der Auffahrung von Strecken und die Errichtung geotechnischer Barrieren im Wirtsgestein und die Einlagerung der Abfallgebände führen zur Ausbildung von chemischen, mechanischen und thermischen Gradienten an den Grenzflächen der unterschiedlichen Barrierematerialien, in deren Folge es zur Auflösung oder Ausfällung von Mineralen kommen kann. Derartige gekoppelte hydrogeochemische Prozesse haben nichtlineare Auswirkungen auf die Transporteigenschaften und die mechanischen Eigenschaften von Barrierematerialien und Wirtsgestein, die bei der Bewertung der Entwicklung des Endlagersystems berücksichtigt werden müssen.

Mit Hilfe von reaktiven Stofftransportmodellen (RTM) können diese Prozesse über verschiedenste zeitliche und räumliche Skalen, d.h. von der Mikroskala an Grenzflächen über das Endlagernahfeld bis hin zum gesamten Endlagersystem untersucht und analysiert werden – Informationen, die durch Experimente allein nicht zu erhalten sind. Obwohl man mit RTM hochkomplexe hydrogeochemische Phänomene erfassen kann, wird die Anwendung von RTM-Codes auf reale Systeme durch die oft vereinfachte Beschreibung gekoppelter Prozesse erschwert. Um die Prognosefähigkeit reaktiver Stofftransportmodelle zu verbessern und grundlegende Einblicke in die Kopplung zwischen den Lösungs- und Radionuklidtransport kontrollierenden Eigenschaften (z. B. Permeabilität und Diffusivität) poröser Medien und den Auflösungs-/Ausfällungsprozessen zu gewinnen, haben wir Experimente an „vereinfachten“ chemischen Systemen in Kombination mit reaktiven Stofftransportmodellierungen auf dem Poren- und Kontinuummaßstab durchgeführt, um Prozesse isoliert zu betrachten, mit dem letztendlichen Ziel, die konzeptionellen Ansätze für die in reaktiven Transportcodes implementierten Prozesskopplungen zu verbessern.

In diesem Zusammenhang haben wir die Auswirkungen von Mineralauflösung und -ausfällung in porösen Medien auf Veränderungen der Permeabilität untersucht, indem wir Durchflusseexperimente in einem Magnetresonanztomographen durchgeführt haben, welche die In-situ-Untersuchung der Porositätsentwicklung in Kombination mit dem Monitoring von Veränderungen der Permeabilität und Mineralogie ermöglichten. Unsere Beobachtungen zeigten, dass die klassischen Implementierungen in reaktiven Transportcodes wie die Kozeny–Carman-Gleichung (Carman, 1937) die Veränderungen der Permeabilität nicht reproduzieren können und dass hierfür differenziertere Ansätze erforderlich sind (Poonoosamy et al., 2020a, b). Des Weiteren haben wir einen innovativen „Lab-on-a-Chip“-Aufbau für mikronisierte Gegendiffusionsexperimente in Kombination mit in operando 3D-Ramantomographie entwickelt (Poonoosamy et al., 2019, 2020c), der es ermöglicht, die Veränderung der Porenarchitektur zu erfassen und die Auswirkungen der gekoppelten Mineralauflösung und -ausfällung auf den diffusiven Transport von gelösten Stoffen und Radionukliden in porösen Medien zu untersuchen. Unser Ansatz erlaubt die Entwicklung prozessbasierter theoretischer Modelle zur Verbesserung von RTM-Codes zur Prognose von Prozessen an Grenzflächen in Endlagern. Hierdurch können das Vertrauen in die Prognosefähigkeiten reaktiver Stofftransportmodelle gestärkt und die Ungewissheiten in Bezug auf die zukünftigen Entwicklungen in Endlagersystemen verringert werden.

Financial support. This research has been supported by the Helmholtz-Association (grant no. SO-093) and the Federal Ministry of Education and Research (grant no. 02NUK053A).

References

- Carman, C.: Fluid flow through granular beds, *Transactions, Institution of Chemical Engineers*, 15, 150–166, 1937.
- Poonoosamy, J., Westerwalbesloh, C., Deissmann, G., Mahrous, M., Curti, E., Churakov, S. V., Klinkenberg, M., Kohlheyer, D., von Lieres, E., Bosbach, D., and Prasianakis, N. I.: A microfluidic experiment and pore scale modelling diagnostics for assessing mineral precipitation and dissolution in confined spaces, *Chem. Geol.*, 528, 119264, <https://doi.org/10.1016/j.chemgeo.2019.07.039>, 2019.
- Poonoosamy, J., Klinkenberg, M., Deissmann, G., Brandt, F., Bosbach, D., Mäder, U., and Kosakowski, G.: Effects of

- solution supersaturation on barite precipitation in porous media and consequences on permeability: Experiments and modelling, *Geochim. Cosmochim. Ac.*, 240, 43–60, <https://doi.org/10.1016/j.gca.2019.11.018>, 2020a.
- Poonoosamy, J., Haber-Pohlmeier, S., Deng, H., Deissmann, G., Klinkenberg, M., Gizatullin, B., Stapf, S., Brandt, F., Bosbach, D., and Pohlmeier, A.: Combination of MRI and SEM to Assess Changes in the Chemical Properties and Permeability of Porous Media due to Barite Precipitation, *Minerals*, 10, 226, <https://doi.org/10.3390/min10030226>, 2020b.
- Poonoosamy, J., Soulaine, C., Burmeister, A., Deissmann, G., Bosbach, D., and Roman, S.: Microfluidic flow-through reactor and 3D Raman imaging for in situ assessment of mineral reactivity in porous and fractured porous media, *Lab Chip.*, 12, 2562–2571, <https://doi.org/10.1039/d0lc00360c>, 2020c.