



Simulating the feedback between corrosive gas generation and water availability for the evaluation of radionuclide mobility in the context of radioactive waste disposal

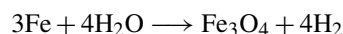
Laurin Wissmeier and Joachim Poppei

CSD Ingenieure AG, Schachenallee 29A, 5000 Aarau, Switzerland

Correspondence: Laurin Wissmeier (l.wissmeier@csd.ch)

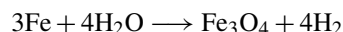
Published: 10 November 2021

Abstract. It has been recently recognized that the availability of liquid water may be a controlling factor in the feedback between the physical processes of variably saturated liquid and gas flow on the one hand, and various chemical processes such as metal corrosion in an underground storage facility for radioactive waste on the other hand (e.g., Huang et al., 2021, and reference therein). Iron corrosion in anoxic conditions produces hydrogen gas and consumes water, as expressed by the following stylized chemical equation (e.g., Diercks and Kassner, 1988; Senior et al., 2021):



Since water is an educt the corrosion reaction may be suspended or suppressed by the scarcity of water near the corroding surfaces. At the same time, gas pressure build-up through hydrogen generation may limit further water ingress. We developed a model that focuses on the close coupling between gas generation through iron corrosion and water availability. The feedback between iron corrosion, gas generation and liquid phase flow is considered by implementing the corrosion reaction in the subsurface flow and transport simulator PFLOTRAN (Hammond et al., 2012; Lichtner et al., 2015, 2020) making use of its coding provisions to implement source/sink terms for water and gas. These source/sink terms reflect the kinetics of the iron corrosion and its dependence on the educts, where the availability of water is approximated by the local liquid saturation. The model was applied to evaluate the mobility of radionuclides in, and their release from a hypothetical geological storage facility for radioactive waste. The radionuclides are traced through the emplacement chambers and drift by means of advective and diffusive transport. Parameter variations illustrate the influence of crucial modelling parameters on the simulation results.

Kurzfassung. Kürzlich wurde erkannt, dass die Verfügbarkeit von flüssigem Wasser ein entscheidender Faktor für die Wechselwirkung zwischen den physikalischen Prozessen der Strömungen unterschiedlich stark gesättigter Flüssigkeiten und Gase einerseits und verschiedenen chemischen Prozessen wie der Metallkorrosion in einem unterirdischen Lager für radioaktive Abfälle andererseits sein kann (z.B. Huang et al., 2021, und Literaturverweis darin). Die Korrosion von Eisen unter anoxischen Bedingungen erzeugt Wasserstoffgas und verbraucht Wasser, wie in der folgenden stilisierten Reaktionsgleichung dargestellt ist (z.B. Diercks und Kassner, 1988; Senior et al., 2021):



Da Wasser ein Edukt darstellt, kann die Korrosionsreaktion durch Wasserknappheit in der Nähe der korrodierenden Oberflächen ausgesetzt oder unterdrückt werden. Zudem kann der durch die Bildung von Wasserstoff entstehende Gasdruck das weitere Eintreten von Wasser begrenzen. Von den Autoren wurde ein Modell entwickelt,

dessen Schwerpunkt auf der engen Kopplung zwischen Gasbildung durch Eisenkorrosion und Wasserverfügbarkeit liegt. Die Wechselwirkung zwischen Eisenkorrosion, Gasbildung und der Strömung der flüssigen Phase wird durch Implementierung der Korrosionsreaktion in den Simulator für Strömung und Transport im Untergrund PFLOTRAN (Hammond et al., 2012; Lichtner et al., 2015, 2020), betrachtet, indem dessen Codierungsfunktionen zur Umsetzung von Quellen- und Senken-Termen für Wasser und Gas genutzt werden. Diese Quellen- und Senken-Terme spiegeln die kinetischen Prozesse der Eisenkorrosion und ihre Abhängigkeit von den Edukten wider, wobei die Verfügbarkeit von Wasser durch die lokale Flüssigkeitssättigung approximiert wird. Das Modell wurde verwendet, um die Mobilität von Radionukliden in und ihre Freisetzung aus einer hypothetischen geologischen Lagerstätte für radioaktive Abfälle zu beurteilen. Die Radionuklide werden mittels advektiven und diffusiven Transports durch die Einlagerungskammern und Stollen verfolgt. Veränderungen der Parameter veranschaulichen den Einfluss entscheidender Modellparameter auf die Simulationsergebnisse.

References

- Diercks, D. R. and Kassner, T. F.: Analysis of the corrosion of carbon steels in simulated salt repository brines and acid chloride solutions at high temperatures, Technical report, ANL/PPRNT-90-207, 7108935, <https://doi.org/10.2172/7108935>, 1988.
- Hammond, G. E., Lichtner, P. C., Lu, C., and Mills, R. T.: PFLOTRAN: Reactive flow and transport code for use on laptops to leadership-class supercomputers, in: Groundwater Reactive Transport Models, Bentham Science Publishers, Sharjah, UAE, 141–159, 2012.
- Huang, Y., Shao, H., Wieland, E., Kolditz, O., and Kosakowski, G.: Two-phase transport in a cemented waste package considering spatio-temporal evolution of chemical conditions, *npj Materials Degradation*, 5, 4, <https://doi.org/10.1038/s41529-021-00150-z>, 2021.
- Lichtner, P. C., Hammond, G. E., Lu, C., Karra, S., Bisht, G., Andre, B., Mills, R. T., Kumar, J., and Frederick, J. M.: PFLOTRAN User Manual: A Massively Parallel Reactive Flow and Transport Model for Describing Surface and Subsurface Processes, Technical Report, United States, LA-UR-15-20403, <https://doi.org/10.2172/1168703>, 2015.
- Lichtner, P. C., Hammond, G. E., Lu, C., Karra, S., Bisht, G., Andre, B., Mills, R. T., and Kumar, J.: PFLOTRAN Web page, PFLOTRAN: A Massively Parallel Reactive Flow and Transport Model for describing Surface and Subsurface Processes, available at: <http://www.pflogran.org> (last access: 22 June 2021), 2020.
- Senior, N. A., Martino, T., and Diomidis, N.: The anoxic corrosion behaviour of carbon steel in anoxic alkaline environments simulating a Swiss L/ILW repository environment, *Mater. Corros.*, 72, 131–140, <https://doi.org/10.1002/maco.202011780>, 2021.