



HAL
open science

Altération des verres avec le modèle GRAAL2

Maxime Delcroix, Pierre Frugier, Catherine Noiriél

► **To cite this version:**

Maxime Delcroix, Pierre Frugier, Catherine Noiriél. Altération des verres avec le modèle GRAAL2. JSI ISEC, Jun 2024, Marcoule, France. 2024. cea-04738835

HAL Id: cea-04738835

<https://cea.hal.science/cea-04738835v1>

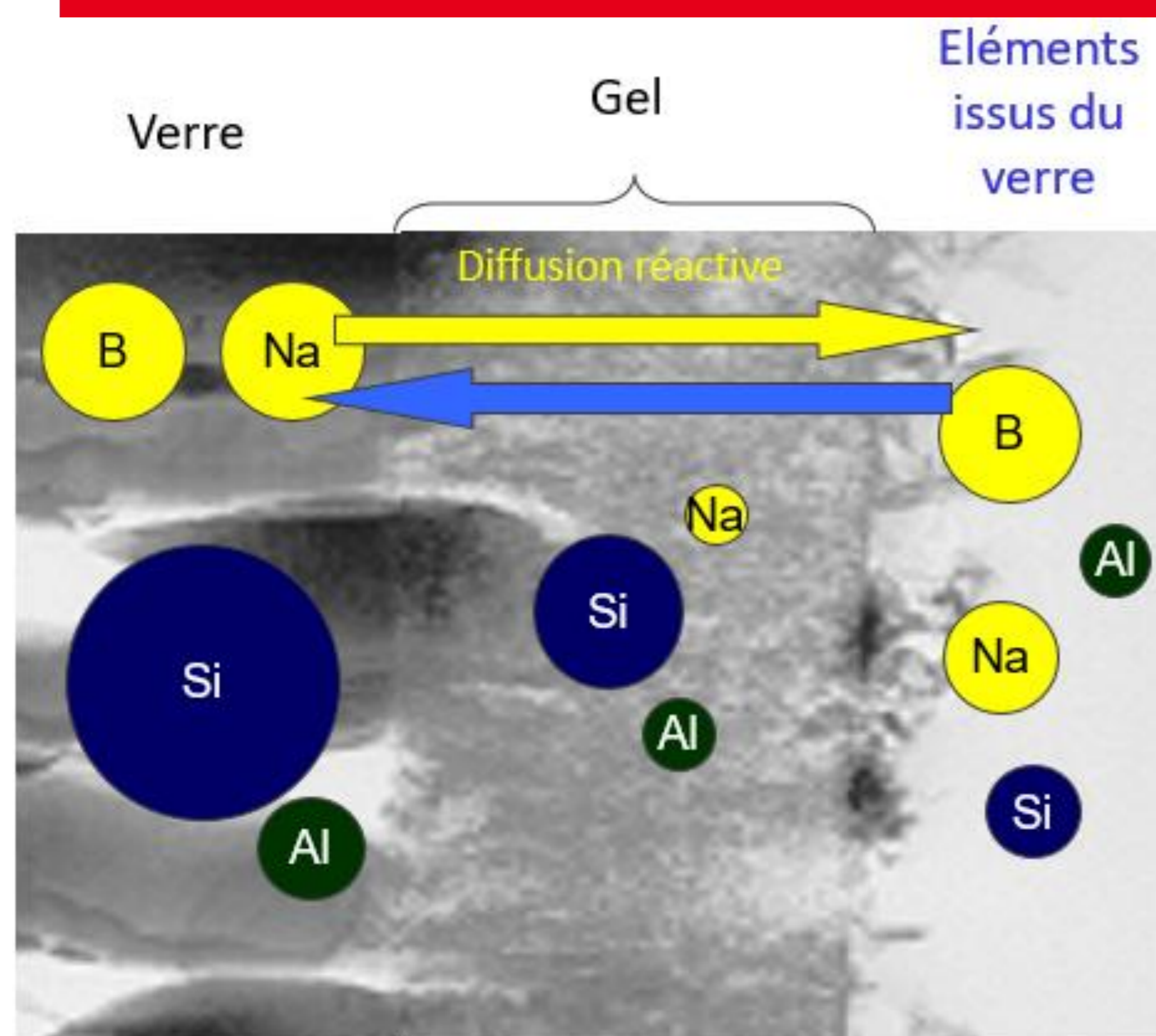
Submitted on 15 Oct 2024

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

Mots-clefs : verre, altération, gel, modélisation, GRAAL, incertitude, qualification

Le gel dans son environnement



Description du cj2 en eau pure (verre à 4 oxydes)

Le gel, élément principal à modéliser :

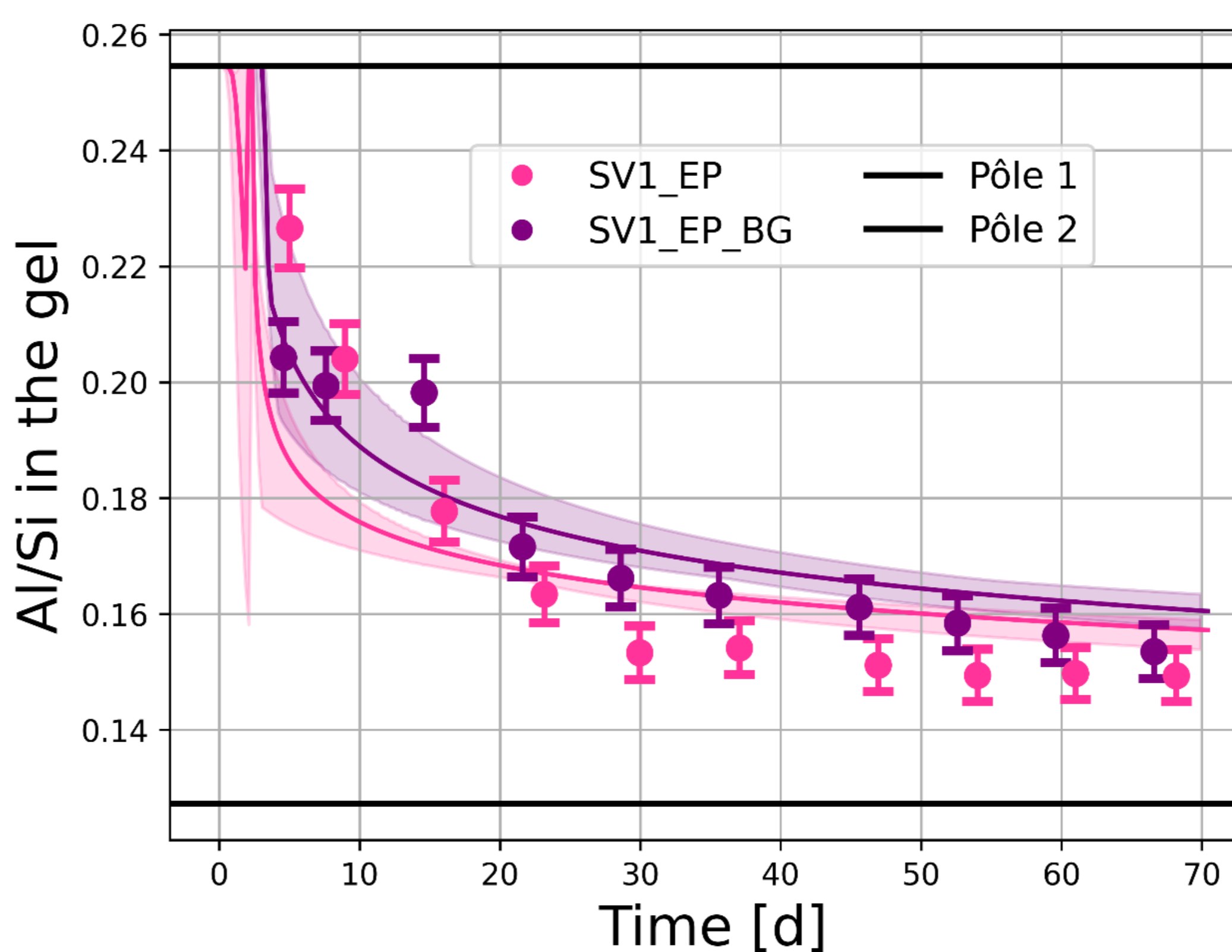
- Phase amorphe se formant lors de l'altération du verre,
- Possède un pouvoir passivant,
- Composition héritée du verre et influencée par l'environnement.

Le modèle GRAAL2

Modèle prédictif implémenté dans un code de chimie-transport réactive (HYTEC) :

- Prédire les quantités de verre altéré en condition de stockage,
- Prédire la composition chimique de la solution, vecteur de l'interaction avec l'environnement,

Modélisation du gel grâce à des compositions aux limites (pôles) qui encadrent la composition réelle :



Les pôles sont définis via trois paramètres clés :

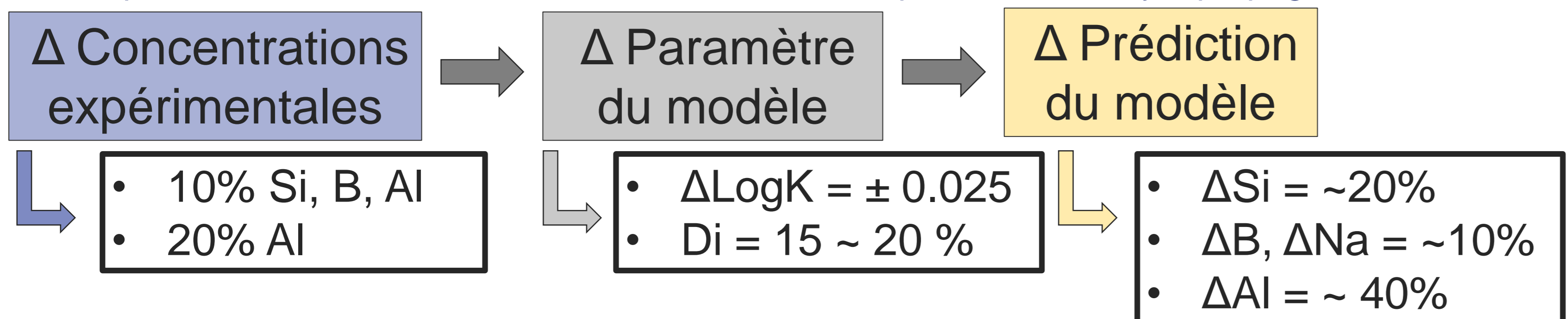
- Composition (Al/Si), fixé par l'utilisateur
- Constante de solubilité (**LogK**), estimé via des calculs géochimiques à partir des **données expérimentales**
- Diffusion (**Di**), estimé via une loi de Newton et une dichotomie de minimisation des écarts carré entre **données expérimentales** et modélisées

Modélisation d'un gel pour deux expérience identiques à S/V = 1cm⁻¹ (surface de verre/volume de solution), en eau pure (EP) et en boîte à gant (BG) avec un jeu de deux pôles

Qualification de la modélisation

Propagation de l'incertitude analytique au travers de la modélisation

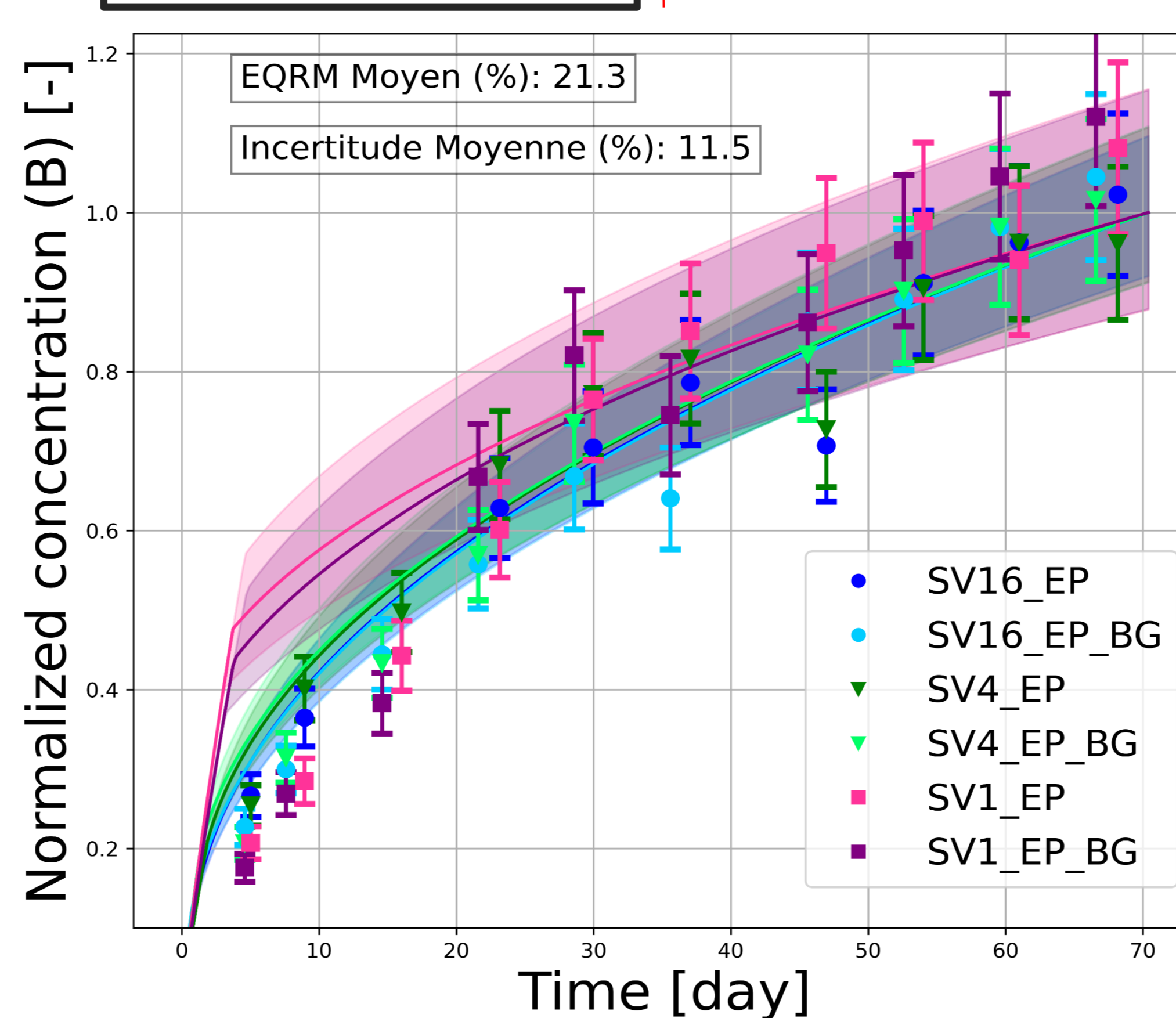
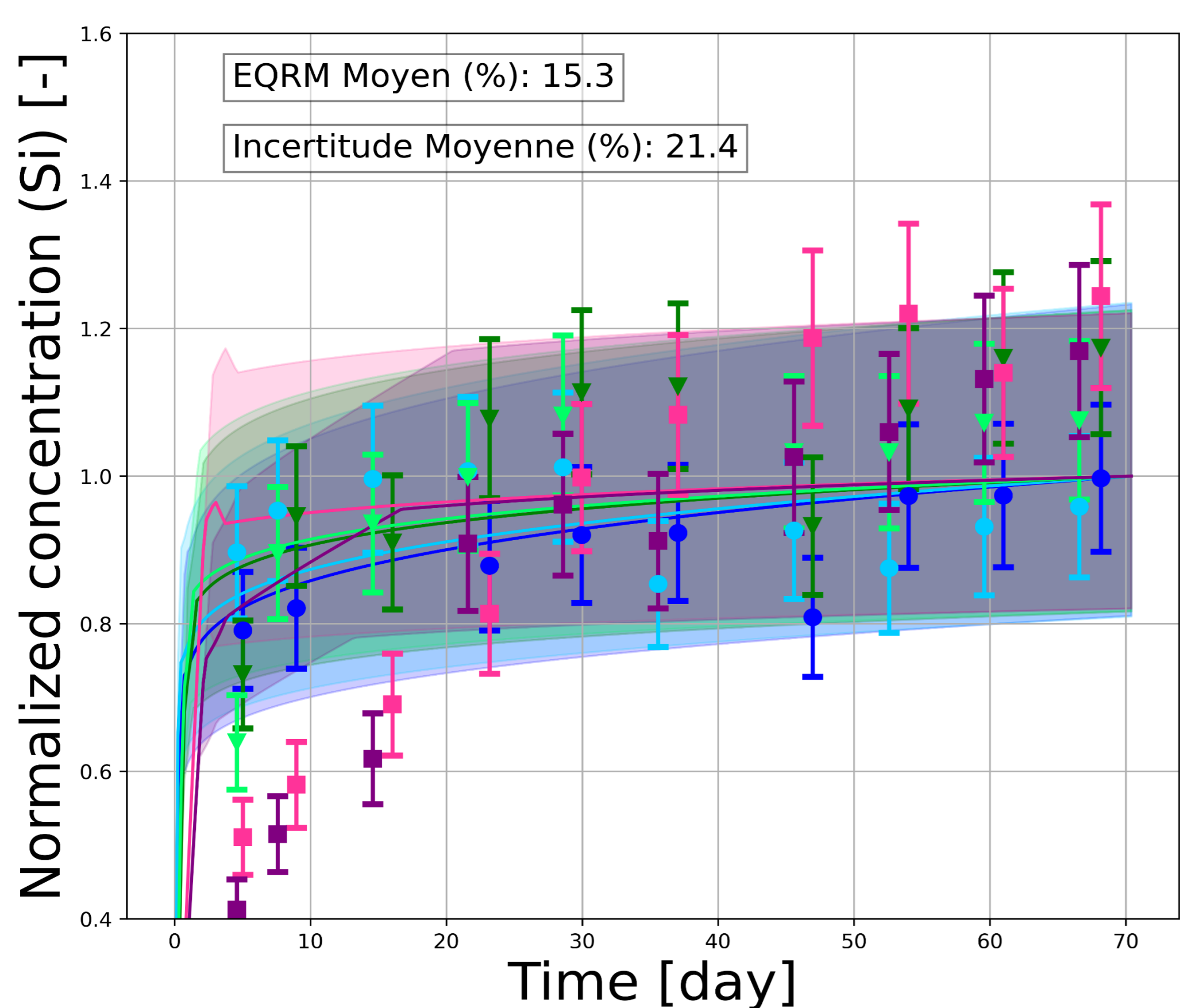
Les paramètres du modèle étant issus des données expérimentales, il y a propagation de celles-ci



Proximité modèle-expérience :

$$EQRM = \sqrt{\frac{1}{N} \sum \left(\frac{V_{sim} - V_{exp}}{V_{exp}} \right)^2}$$

Formule des écarts quadratique relatifs moyen



Prédiction des valeurs en silicium et en bore pour six expériences à S/V = 1, 4 ou 16 cm⁻¹ (surface de verre/volume de solution), en eau pure (EP) et en boîte à gant (BG). Valeurs normalisées à la prédiction maximale. Paramètres optimaux de modélisation (LogK et Di) déterminés indépendamment pour chaque expérience

Discussion

L'étude présentée ici, focalisée sur l'aspect propagation des incertitudes, permet d'évaluer les capacités prédictives du modèle et ainsi de valider les hypothèses de bases de celui-ci et ses équations, constituant le cœur du sujet de thèse.

Le système de pôles est également l'objet de questions que ce soit en nombre, en composition et justifié par rapport à l'utilisation de solution solides.

La méthodologie employée consiste à paramétrer le modèle de manière systématique et indépendante pour chaque expérience. Une étude statistique sur la variation des paramètres permet de choisir un jeu de paramètre unique dans un exercice de simulation tout en définissant son domaine de validité.

La démarche est soutenue par un logiciel développé dans le cadre de la thèse qui permet de gérer le nombre conséquent de modélisations liées à ce travail: **PyGraal**