

# INFLUENCE DES ECOULEMENTS TRANSITOIRES SUR LA MOBILITE DU STRONTIUM DANS LES SOLS PARTIELLEMENT SATURES EN EAU

Pierre MAZET  
Octobre 2008  
ISRN/IRSN-2009/110

Laboratoire de Recherche sur le Stockage géologique des  
déchets et les transferts dans les Sols (LR2S) - Fontenay aux  
roses.



Système de management  
de la qualité IRSN certifié

# THÈSE

Présentée par

**Pierre MAZET**

Pour obtenir le titre de

**DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ JOSEPH FOURIER - GRENOBLE I**

(Arrêté ministériel du 30 mars 1992)

**Spécialité : Sciences de la Terre et de l'Univers**

---

## **INFLUENCE DES ECOULEMENTS TRANSITOIRES SUR LA MOBILITE DU STRONTIUM DANS LES SOLS PARTIELLEMENT SATURES EN EAU.**

---

**Directeur de thèse : Jean-Paul GAUDET**

Date et lieu de soutenance : 27 octobre 2008 à Fontenay aux Roses (92)

### COMPOSITION DU JURY :

Pr. Dmitri BUGAI	Université de Kiev	Rapporteur
Pr. Joel LANCELOT	Université de Nimes	Rapporteur
Pr. Patrick PIERSON	UJF Grenoble	Examineur
Dr. Christophe ARDOIS	ASN Nantes	Co-directeur de thèse
Dr. Jean-Paul GAUDET	IRHC, UJF Grenoble	Directeur de thèse
Dr. Nathalie VAN MEIR	IRSN/DEI/SARG/LR2S Fontenay aux roses	Invitée
Dr. Mohamed KRIMISSA	EDF/DRD, Chatou	Invité

Thèse préparée au Laboratoire de Recherche sur le Stockage géologique des déchets et les transferts dans les Sols, Institut de Radioprotection et de Sécurité Nucléaire, Direction de l'Environnement et de l'Intervention, Centre de Fontenay aux Roses ; et au Laboratoire National d'Hydraulique et Environnement, Électricité de France, Département de la Recherche et du Développement, Châtou (92).



**UNIVERSITE JOSEPH FOURIER GRENOBLE 1 - PIERRE MAZET**  
**Influence des écoulements transitoires sur la mobilité du strontium dans les sols partiellement saturés en eau.**

**RESUME**

La migration du strontium dans les sols de surface du Site Pilote de Tchernobyl est l'objet de ce travail.

Le transport réactif de  $^{85}\text{Sr}$ , a été étudié en laboratoire, sur des colonnes de sable éolien prélevé sur le terrain, en focalisant sur l'influence d'une **hydrodynamique non saturée transitoire** (cycles d'infiltration et de redistribution) associée à une **géochimie contrôlée** (concentrations constantes d'éléments majeurs et de strontium stable dans la solution d'alimentation).

Nous avons disposé pour cela d'un outil expérimental original, le banc d'auscultation gammamétrique, qui permet de suivre simultanément, de manière non-destructive et précise, les variations d'humidité du sol et la migration des radionucléides.

La première phase de cette étude a concerné la mise en œuvre du dispositif expérimental pour la mesure notamment des transitoires hydrauliques non saturés au sein des colonnes de sable. Plusieurs expériences de transport de  $^{85}\text{Sr}$  ont ensuite été effectuées en conditions hydriques différentes (saturées, non-saturées, permanentes et transitoires).

Dans la seconde phase, la modélisation des résultats expérimentaux a été réalisée à l'aide des codes de calcul HYDRUS-1D (approche phénoménologique mono-espèce chimique et coefficient de partage  $K_d$ ) et HYTEC (approche mécaniste géochimie/transport). La confrontation entre expérience et modélisation montre que, dans nos conditions opératoires, le transfert du  $^{85}\text{Sr}$  à travers ce milieu poreux peut être approché de façon « opérationnelle » en utilisant : 1) un modèle géochimique simplifié avec un coefficient de partage  $K_d$  dont la valeur peut-être déterminée indépendamment, avec la même géochimie de l'eau (il faut donc la connaître), par traçages sur colonnes saturées en eau, pour ce qui concerne l'aspect rétention dans le sol, 2) une réduction des transitoires hydrauliques non saturés à un régime hydraulique permanent saturé (ou non saturé) équivalent en lame d'eau cumulée pour ce qui concerne l'aspect hydrodynamique.

L'analyse de ces résultats et leur généralisation (domaine de validité) tendent à montrer que l'approche « lame d'eau +  $K_d$  », avec une géochimie de l'eau contrôlée, est satisfaisante lorsque la valeur numérique du coefficient  $K_d$  est assez forte ( $K_d \gg 1$ ), et qu'elle est peu sensible à la valeur de la teneur en eau. Par ailleurs, la présence d'eau immobile (~10%) constatée lors de traçages effectués en condition hydraulique non saturée permanente avec du tritium, est indétectable lors du transport de strontium. L'explication de ce résultat est attribuée aux temps de séjour caractéristiques impliqués, faibles pour le tritium et longs pour le strontium. Une conséquence importante est que dans la modélisation du transport du strontium (pour des successions de plusieurs infiltrations et redistributions) on peut alors s'affranchir d'une cinétique physique d'échange entre eau mobile et eau immobile et réduire ainsi l'effet de l'écoulement d'eau à la convection et à la dispersion.

La modélisation géochimique prenant en compte les espèces chimiques pertinentes, en compétition dans les phases liquides, solides et sur les interfaces, met en jeu des coefficients « intrinsèques », indépendants des variations de la géochimie de l'eau. Beaucoup plus générale, elle peut être utilisée pour tester, par exemple, l'influence d'une variation de la concentration d'un cation compétiteur (strontium stable, calcium) sur le transfert du Sr radioactif. Cette influence « géochimique » apparaît très forte par rapport à celle de la variation du degré de saturation du milieu poreux.



**MOTS CLEFS**

**Migration, radioéléments, strontium, Site Pilote de Tchernobyl, milieu poreux non saturé, écoulements transitoires, colonne, traceur, coefficient de partage  $K_d$ , géochimie, modélisation, Hydrus-1D, Hytec.**



Thèse préparée au sein  
Du Laboratoire d'étude des Transferts en Hydrologie et Environnement LTHE UMR n° 5564  
Et du Laboratoire de Recherche sur le Stockage géologique des déchets et les transferts dans les Sols  
IRSN/DEI/SARG/LR25

Et financée par  
L'Institut de Radioprotection et de Sécurité Nucléaire IRSN  
Et Electricité de France EDF



ABSTRACT

This work is devoted to the migration of strontium in the surface soils of Chernobyl.

The reactive transport of  $^{85}\text{Sr}$  was studied on laboratory columns, focusing on the influence of **transient unsaturated flow** (cycles of infiltration and redistribution) associated with **controlled geochemistry** (constant concentrations of major elements and stable strontium in water).

An original experimental tool (gamma attenuation system) allows us to follow at the same time the variations of humidity of the soil and the migration of radionuclide, in a non-destructing and definite way.

First stage of this study concerned the implementation of the experimental tool to measure transient hydraulic events within the columns of sand. Several experiments of transport of  $^{85}\text{Sr}$  were then performed with different water condition (saturated, unsaturated, permanent and transient flow).

Experimental results were simulated using the computer codes HYDRUS-1D (phenomenological approach with partition coefficient  $K_d$ ) and HYTEC (mechanistic geochemical/transport approach).

Confrontation between experience and modelling shows that, for our operating conditions, transfer of  $^{85}\text{Sr}$  can be predicted with an "operational" approach using : 1) simplified geochemical model with partition coefficient  $K_d$  concerning interactive reaction with the soil ( $K_d$  value determined independently on saturated column, with the same water geochemistry), 2) permanent saturated (or unsaturated) flow, taking into account the cumulated infiltrated water during unsaturated transient hydraulic events concerning hydrodynamic.

Generalization of these results (area of validity) suggests that the "cumulated infiltrated water +  $K_d$ " approach can be use, for controlled water geochemistry, when the numerical value of  $K_d$  is fairly strong ( $K_d \gg 1$ ), and that it is insensitive to the value of the water content.

Moreover, the presence of immobile water (~10%) recorded with tritium transport, is undetectable with strontium. Explanation of this result is allocated to the different characteristic time residence implicated with tritium (short) and strontium (long). Consequence of this result is that modelling transport of strontium, for our operating conditions (for a series of infiltrations and drainages), doesn't need to take into account physical kinetics of exchange between mobile and immobile water and reduce the effect of flow to convection and dispersion.

Geochemical modelling takes into account appropriate species in competition and uses "intrinsic" coefficient, independents of the variations of the water chemistry. More general, this approach can be used to test, for example, the influence of the concentration of isotopes or other species (stable strontium and calcium for our instance) on the transfer of radioactive Sr. This geochemical influence appears to be very strong on the mobility of strontium compared to the one from variation of water saturation in the porous media.



---

KEYWORDS

---

Solute transport, radionuclide, strontium, Chernobyl Pilot Site, unsaturated porous media, transient flow, column, tracer, partition coefficient  $K_d$ , geochemistry, modelling, Hydrus-1D, Hytec.



Thesis prepared within  
Laboratory of study of Transfers in Hydrology and Environment LTHE UMR n° 5564  
And Research laboratory on the geological Stocking of waste and transfers in Soil  
IRSN/DEI/SARG/LR2S

And financed by  
Institute of Radioprotection and Nuclear Safety IRSN  
And Electricity of France EDF

---



## REMERCIEMENTS

---

Juillet 2003, je prends connaissance d'un sujet de thèse proposé par l'Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire. Rapidement je prends contact et « passe » un entretien des plus mémorables avec mon interlocuteur. Je viens de faire la connaissance de Monsieur Dewiere.

Quelques mois plus tard, je suis doctorant au Laboratoire de recherche sur le stockage géologique des déchets et les transferts dans les sols à Fontenay aux Roses, l'aventure commence !!!

Parmi la liste des personnes que j'aimerais remercier au terme de ce travail, je tiens tout particulièrement à commencer par Monsieur Lionel Dewiere. Hydrogéologue, spécialiste du transport de soluté en milieu souterrain et initiateur de ce projet, son soutien depuis la candidature jusqu'à l'aboutissement du travail fut tout simplement essentiel. Je le remercie de m'avoir fait partager ses nombreuses connaissances, ses idées, ses conseils, ses critiques et ses encouragements concernant le sujet mais aussi pour nos longues discussions « multicritères » passionnées et passionnantes. Encore Merci Lionel.

Je remercie l'IRSN et plus particulièrement Messieurs Jean-Marc Perez et Didier Gay du Service d'Analyse des Risques liés à la Géosphère pour m'avoir accueilli au sein de leur équipe et avoir rendu possible cette étude. Je remercie également Electricité De France pour avoir cofinancé ce projet par l'intermédiaire du Laboratoire National d'Hydraulique et Environnement et plus particulièrement Messieurs Mohamed Krimissa et Tim Kestens.

J'adresse évidemment un grand merci à Jean-Paul Gaudet du Laboratoire d'Etude des Transferts en Hydrologie et Environnement pour avoir accepté de diriger cette thèse. La réussite de ce travail est en grande partie due à son expérience dans la Recherche, ses qualités scientifiques, humaines et son implication et sa patience durant toute la thèse, et que dire de la dernière ligne droite...

Je tiens pareillement à remercier Denise Stammose, Christophe Ardois et Nathalie Van Meir d'une part pour leur accueil chaleureux au sein du labo, leur confiance et leur aide précieuse administrative et technique (classement ICPE de la zone de travail, autorisation d'utilisation de la source d'américium, rapatriement, installation et prise en mains du banc) et d'autre part pour m'avoir si souvent aidé en géochimie.

J'adresse mes plus sincères remerciements à Messieurs Dmitry Bugaï de l'Institute of Geological Science de Kiev et Joël Lancelot de l'université des sciences de Nîmes pour avoir accepté de s'intéresser à mon travail en tant que rapporteurs. Merci également à Monsieur Patrick Pierson pour avoir accepté de faire partie du jury.

Cette thèse restera pour moi une expérience scientifique passionnante, associée de plus à une aventure humaine inoubliable. Pour cette raison, je souhaite associer de nombreuses personnes à ces remerciements : Stéphanie Szenknect du CEA de Grenoble pour sa grande disponibilité notamment lors du rapatriement du dispositif gammamétrique dans la continuité de son travail de thèse ; Monsieur Woo du CEA de Saclay pour ses interventions déterminantes sur le banc d'auscultation et son logiciel de pilotage ; toutes les personnes du bâtiment 76/2 du centre de Fontenay aux Roses : (au rez-de-chaussée) Justo Cabrera, Jean-Michel Matray, Karim Ben Slimane et Hamel Rejeb pour toutes les discussions agréables sur les choix de vie et les expériences diverses, (à l'étage) Aurélie Mifsud, Elisabeth Tinseau (E.T. ;-), Isabelle Devol-Brown, Sylvain Bassot, Sébastien Savoy, Claire-Marie Duluc, Vincent Rebour, Françoise et les Magalies et MM Guillaume Grimier et Laurent Guignard (désolé je pouvais pas m'en empêcher ;-)

Mais aussi les co-thésards : Gonzagues Du Suaux de la Croix, Thomas Le Druinnellec, Victoria Altinier, Charles Wittebroodt et la relève : Majda, Fethi et Joaquim (le bout du tunnel... de Tournemire, n'est plus très loin ;-)

Merci encore à Benoît Roger, Nadia Audouin et Sylvain Lemius pour leur sympathie, leur présence et leur aide au laboratoire et les moments passés ensemble à l'extérieur.

Merci à vous tous pour la bonne ambiance de travail durant ces années, vos réflexions et votre humour... Merci à la machine à café et à la machine à chocolat (et surtout à celui qui l'approvisionnait).

Je salue aussi la section foot du centre de FAR dont les séances du lundi soir permettent de bien commencer la semaine... selon les conditions météo et l'état du terrain ; et également mes très



chers collègues de DEA, l'excellent hydro-géo-chimico-karsto-logue-écrivain marseillais Thomas Cavalera et le non moins talentueux hydro-géo-karsto-décho-radio-volleyeur Rémi de la Vaissière. Merci les gars pour tous les bons moments.

Par ailleurs, bien qu'il arrive parfois qu'un thésard ne dorme pas beaucoup (!), je souhaite remercier le Père François et sa résidence étudiante Lanteri pour son accueil et les connaissances que j'ai pu y faire : salut Elgar, Sébastien, Maxime...

Merci à Loïc Trébaol pour m'avoir initié durant les deux années d'intermède entre le DEA et la thèse, au métier de consultant en Environnement et encouragé finalement dans mon choix de faire une thèse.

Merci à mes ex-amis de Montpellier (avant que je les trahisse pour « monter à Paris ») : Thomas, Mathieu, Loïc, Dam et Priscille, Seb et Delf, Anne et Francky Boy l'expat', pour toutes les soirées à chaque fois qu'on a l'occasion de se retrouver.

Finalement, je tiens à remercier profondément ma famille, Maman-no, Hélène, Jarlath, Guy, Laure et Maureen, Isabelle, Jean-Claude, Claude, Patrick, Mimi, Pauline et mes beaux (Jérôme, Hermann, Quentin et Anicet) ; Merci à tous pour votre soutien, votre affection et m'avoir toujours aidé et encouragé à satisfaire mon goût, mon envie et ma curiosité pour toutes choses et toutes personnes. Et évidemment MERCI Clémence qui a eu la « joie », pour le meilleur et pour le pire, de participer intensément à cette aventure, de supporter l'insupportable et de trouver encore le temps et l'énergie pour nous enrichir d'une incroyable petite Elsa (Quoi c'est ça ? Où est la tête du 'codile ?)... En avant pour de nouvelles aventures !!!

A Mamie, Papé et Bon-papa.

## SOMMAIRE

LISTE DES FIGURES	11
LISTE DES TABLEAUX	17
LISTE DES SYMBOLES ET ABREVIATIONS	19
INTRODUCTION GENERALE	25

### CHAPITRE I. APPROCHE THEORIQUE ET METHODOLOGIQUE DE L'ECOULEMENT DE L'EAU ET DU TRANSPORT DE SOLUTE EN MILIEU POREUX NON-SATURE 35

<b>I.1 ECOULEMENT DE L'EAU EN MILIEU POREUX NON-SATURE</b>	<b>37</b>
I.1.1 Echelle d'étude et teneur en eau	37
I.1.2 Mouvement de l'eau dans un sol non-saturé	39
I.1.3 Caractéristiques hydrauliques d'un sol non-saturé – $h(\theta)$ et $K(\theta)$	45
<b>I.2 MODELES D'INTERACTIONS CHIMIQUES SOLUTE/MATRICE SOLIDE A L'EQUILIBRE</b>	<b>50</b>
I.2.1 Approche opérationnelle (isotherme de sorption et $K_d$ )	50
I.2.2 Approche mécaniste (Modèles géochimiques)	53
<b>I.3 TRANSPORT EN MILIEU POREUX NON-SATURE</b>	<b>54</b>
I.3.1 Variable caractéristique	54
I.3.2 Flux de solutés	55
I.3.3 Modélisation du transport de soluté en milieu poreux non-saturé	59
<b>I.4 DYNAMIQUE DES SYSTEMES ET METHODE DES MOMENTS</b>	<b>71</b>
I.4.1 Dynamique des systèmes	71
I.4.2 Méthode des moments	74
<b>I.5 CODES UTILISES</b>	<b>76</b>
I.5.1 HYDRUS-1D : Modélisation du transport avec une seule espèce	76
I.5.2 HYTEC : Modélisation du transport multi-espèces (géochimie/transport)	77
I.5.3 Autres codes pour l'optimisation de paramètres	79
<b>I.6 SYNTHESE</b>	<b>81</b>

### CHAPITRE II. MATERIELS ET METHODES 89

<b>II.1 MILIEU POREUX</b>	<b>89</b>
<b>II.2 CONDITIONS CLIMATIQUES DANS LA REGION DE TCHERNOBYL</b>	<b>92</b>
<b>II.3 EAU SYNTHETIQUE DE TCHERNOBYL</b>	<b>93</b>
<b>II.4 ELEMENTS CHIMIQUES ETUDIES</b>	<b>95</b>
II.4.1 Le tritium $^3\text{H}$	95
II.4.2 Le strontium 85	97
<b>II.5 PREPARATION DES COLONNES</b>	<b>103</b>
II.5.1 Choix des colonnes	103
II.5.2 Technique de remplissage des colonnes	104
II.5.3 Mise en eau des colonnes	106
II.5.4 Conditionnement chimique des colonnes	106
<b>II.6 FONCTIONNEMENT DES COLONNES</b>	<b>108</b>
II.6.1 Ecoulement permanent	108
II.6.2 Ecoulement transitoire	113
<b>II.7 DISPOSITIF EXPERIMENTAL DE MESURE DES PROFILS</b>	<b>116</b>
II.7.1 Caractéristiques du banc gammamétrique	117
II.7.2 Application à la mesure du profil de teneur en eau $\theta(z)$ au sein des colonnes	118
II.7.3 Application à la mesure du profil d'activité totale $A(z)$ du radioélément au sein des colonnes	120
II.7.4 Vérification de l'homogénéité de remplissage de la colonne	121
<b>II.8 SYNTHESE</b>	<b>125</b>

**CHAPITRE III. ECOULEMENT DE L'EAU EN CONDITION NON-SATUREE ET TRANSFERT NON-REACTIF (TRACEUR DE L'EAU) 133**

<b>III.1 PROPRIETES HYDRODYNAMIQUES DU SABLE EOLIEN DE TCHERNOBYL – <math>h(\theta)</math> &amp; <math>K(\theta)</math></b>	<b>133</b>
III.1.1 Conductivité hydraulique à saturation $K_{sat}$ – Perméamètre	134
III.1.2 Courbe de rétention d'eau $h(\theta)$ – Profils hydrostatiques	136
III.1.3 Courbe de conductivité hydraulique $K(\theta)$ - Infiltrations à débit constant	139
III.1.4 Ajustement de fonctionnelles hydrodynamiques non-saturées : Brooks & Corey (1964) et Van Genuchten/Mualem (1980)	141
<b>III.2 TRANSITOIRES HYDRAULIQUES</b>	<b>145</b>
III.2.1 Mise en œuvre et suivi d'écoulements transitoires non-saturés	145
III.2.2 Modélisation des écoulements transitoires	148
<b>III.3 TRANSFERT NON REACTIF (TRAÇAGES TRITIUM)</b>	<b>149</b>
<b>III.4 SYNTHESE</b>	<b>157</b>

**CHAPITRE IV. INTERACTIONS SOL/SOLUTE & TRANSPORT REACTIF DE STRONTIUM 85 165**

<b>IV.1 CARACTERISATIONS DES INTERACTIONS SOL/SOLUTE</b>	<b>165</b>
IV.1.1 Expériences sur colonnes - Condition dynamique	166
IV.1.2 Expériences en réacteur fermé « batch » - Condition statique	177
<b>IV.2 TRANSPORT REACTIF DE STRONTIUM 85 EN CONDITION HYDRAULIQUE NON-SATUREE</b>	<b>178</b>
IV.2.1 Conditionnement chimique des colonnes	178
IV.2.2 Transport en condition hydraulique non-saturée permanente	180
IV.2.3 Transport en condition hydraulique non saturée transitoire	184
<b>IV.3 SYNTHESE</b>	<b>199</b>

**CHAPITRE V. - MODELISATIONS ET DISCUSSIONS 207**

<b>V.1 MODELISATIONS</b>	<b>207</b>
V.1.1 Modélisation « opérationnelle »	207
V.1.2 Modélisation couplée géochimie/transport	216
<b>V.2 DISCUSSION SUR LE CHOIX D'UNE MODELISATION</b>	<b>227</b>
V.2.1 Interprétations des coefficients $K_d$ mesurés	227
V.2.2 Différence entre méthode « batch » et colonne	228
V.2.3 Coefficient $K_d$ d'un isotope radioactif et d'un élément stable :	230
<b>V.3 RETOUR SUR LE TRANSPORT DE <math>^{85}\text{Sr}</math></b>	<b>231</b>
V.3.1 Influence des conditions hydrauliques	231
V.3.2 Influence de la concentration de strontium stable et du fond géochimique	236
V.3.3 Discussion autour de la dispersion	237
V.3.4 Evolution à cote fixe	239
<b>V.4 RESUME ET CONCLUSIONS SUR L'APPROCHE OPERATIONNELLE</b>	<b>240</b>
<b>CONCLUSIONS &amp; PERSPECTIVES</b>	<b>245</b>
REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES	253
ANNEXES	259

## LISTE DES FIGURES

### CHAPITRE I

- Figure I-1 : a) Localisation sur le terrain et b) représentation schématique de la zone non-saturée d'un sol (Van Genuchten & Wierenga, 1976). ..... 35
- Figure I-2 : Représentation schématique des processus d'écoulements et de rétention auxquels un soluté est soumis lors de son transfert à travers la zone non saturée d'un sol. .... 36
- Figure I-3 : Définition de l'Elément de Volume Représentatif d'un milieu poreux (d'après Gaudet, 1978). ..... 37
- Figure I-4 : Illustration des vitesses définies à l'échelle de l'EVR : Différence entre vitesse de pore  $v$  et vitesse « fictive » de Darcy  $q$ . ..... 38
- Figure I-5 : Illustration de la conservation de la masse d'eau au sein de l'EVR. .... 43
- Figure I-6 : Fonctionnelle de Van Genuchten pour la courbe de rétention d'eau  $h(\theta)$ . ..... 46
- Figure I-7 : Fonctionnelle de Brooks et Corey pour la courbe de rétention d'eau  $h(\theta)$ . ..... 48
- Figure I-8 : Représentation schématique des courbes principales en humidification (MWC) et en drainage (MDC) lors d'un cycle hystérétique (extrait de Szenknect, 2003). ..... 49
- Figure I-9 : Classification des principaux isothermes de sorption. .... 51
- Figure I-10 : Hétérogénéités des vitesses d'écoulement dans un milieu poreux. .... 57
- Figure I-11 : Représentation du principe de la Dynamique des systèmes. Pour un système linéaire,  $S(t)$  correspond au produit de convolution de  $E(t)$  par la Distribution des Temps de Séjours DTS, dont la transformée de Laplace est la fonction de transfert du système (Jury et al., 1986). ..... 71
- Figure I-12 : Représentation des moments temporels d'ordre 0, 1 et 2 d'une courbe de percée  $C(t)$  correspondant à la réponse du système. .... 74
- Figure I-13 : Représentation schématique de la structure du code couplé géochimie/transport HYTEC et de ses différents modules hydrodynamiques (RT1D, METIS et R2D2) et géochimique (CHESS) (<http://hytec.ensmp.fr>). ..... 78
- Figure I-14 : Diagramme des actions successives opérées à chaque pas de temps par le code couplé HYTEC.  $T$  correspond à la concentration totale du soluté,  $\sim T$  à la concentration en phase mobile,  $\mathcal{E}$  est l'opérateur de transport (hydrodynamique) et  $R$  l'opérateur réactionnel (géochimie) - (van der Lee et al., 2002). ..... 79

### CHAPITRE II

- Figure II-1 : (a) Localisation géographique du Site Pilote IRSN, du site de prélèvement de Pripyat Zaton (clearing 2) et de la centrale nucléaire de Tchernobyl (ChNPP) - (b) Analyses géologiques des carottes prélevées entre le Site Pilote et Pripyat Zaton (d'après Bugai et al., 2001). ..... 90
- Figure II-2 : Distribution de taille des particules en volume du sable de Pripyat Zaton. .... 90

Figure II-3 : Observations au MEB du sable de Pripjat Zaton, grossissement (a) x 35 et (b) x 400 (Ardois et al., 2002), .....	92
Figure II-4 : Colonne et pied de colonne en plexiglas fabriqués pour les expériences de transport en condition hydraulique non saturée.....	104
Figure II-5 : (a) Profils de concentration en phase liquide à T0, T1= 150 h et T2= 300 h et (b) Courbes de Percée obtenues aux profondeurs N1= 30 cm et N2= 60 cm lors du dimensionnement du conditionnement chimique en strontium stable à la concentration arbitraire de 10 en phase liquide d'une colonne de sable de Tchernobyl de longueur L= 60 cm à saturation naturelle – Résultats obtenus avec le code de transport Hydrus-1D : Vitesse de pore v= 40 cm/h et Kd= 20 L/Kg.....	107
Figure II-6 : Dispositif expérimental utilisé pour les expériences de transfert sur les petites colonnes saturées – Etude des propriétés de sorption du strontium 85 sur le sable éolien de Tchernobyl (extrait de Szenknect, 2003) . .....	110
Figure II-7 : Dispositif expérimental utilisé pour les expériences de transfert sur les grandes colonnes non-saturées (extrait de Szenknect, 2003).....	112
Figure II-8 : Première infiltration d'un pulse de <sup>85</sup> Sr. ① Injection d'un créneau d'eau marqué au <sup>85</sup> Sr. ② Suivi de la courbe de percée de l'eau en pied de colonne. ③ Mesure du profil d'activité du <sup>85</sup> Sr à l'équilibre hydrostatique après 24 heures. ....	114
Figure II-9 : Cycles d'infiltrations – redistributions par injection de créneaux d'eau d'alimentation non marquée. ① Injection des créneaux. ② Suivi des courbes de percée de l'eau en pied de colonne. ③ Mesure des profils d'activité du <sup>85</sup> Sr à l'équilibre hydrostatique par cycle de 24 heures.....	114
Figure II-10 : Représentation des conditions opératoires appliquées sur les colonnes de sable de Tchernobyl dans le cadre des expériences de transport de strontium 85 en régime hydraulique non-saturé transitoire.....	115
Figure II-11 : Prise de vue du banc d'auscultation gammamétrique IRSN (bâti, colonne, bloc émetteur et bloc détecteur) permettant l'acquisition de données sur le transfert de radionucléide au sein de colonne de sol, saturée ou non-saturée en eau, avec une résolution spatiale et temporelle fine. ....	117
Figure II-12 : Evolution du nombre de coups par seconde d'américium241 mesuré en fonction du temps de comptage d'acquisition (a) à travers une colonne de sable saturée en eau et (b) sans colonne.....	119
Figure II-13 : Cône d'ouverture de la sonde gamma (extrait de Barthès et al., 2003).....	120
Figure II-14 : Profil d'activité mesuré avec la sonde gamma (temps de comptage= 600 secondes) en présence d'une source étalon ponctuelle de <sup>85</sup> Sr (A <sub>0</sub> = 12,95 kBq) placée au sein d'une colonne de sable. ....	121
Figure II-15 : Profils de masse volumique $\rho_d(z)$ obtenus initialement sur 3 colonnes de sable sec (colonne 4 $\rho_d(z)_{moyen} = 1,83 \text{ g.cm}^{-3}$ , colonne 5 $\rho_d(z)_{moyen} = 1,81 \text{ g.cm}^{-3}$ et colonne 6 $\rho_d(z)_{moyen} = 1,81 \text{ g.cm}^{-3}$ ). ....	122

### **CHAPITRE III**

Figure III-1 : Photo du perméamètre à charge constante installé au laboratoire pour déterminer la conductivité à saturation $K_{sat}$ du sable de Tchernobyl. ....	134
--	-----

<i>Figure III-2 : Profils de teneur en eau mesurés lors de la première mise en eau d'une colonne (saturation totale) et lors des saturations suivantes (saturation naturelle).</i> .....	135
<i>Figure III-3 : Evolution du débit <math>Q</math> en sortie du perméamètre en fonction de la différence de charge <math>\Delta H</math> imposée, (correction faite des pertes de charge liées au système d'alimentation).</i> .....	136
<i>Figure III-4 : Profils hydrostatiques obtenus pour différentes suctions <math>hL</math> imposées en pied de colonne (a) sur une colonne de 45,5 cm de hauteur initialement à saturation naturelle (b) sur une colonne de 65,5 cm de hauteur initialement à saturation totale (1<sup>er</sup> drainage).</i> .....	138
<i>Figure III-5 : Evolution (a) du profil de teneur en eau le long de la colonne et (b) de la teneur en eau à 3 profondeurs différentes, lors d'une infiltration à débit constant <math>Q=40\text{ml/h}</math> (<math>q=2\text{cm/h}</math>) effectuée sur une colonne de sable de Tchernobyl, initialement drainée avec une succion <math>hL</math> de 84 cm. La teneur en eau moyenne obtenue est de <math>\theta = 0,17</math>.</i> .....	140
<i>Figure III-6 : Ajustement des fonctionnelles (a) de Brooks et Corey (1964) et (b) de Van Genuchten/Mualem (1980) sur les données expérimentales établies lors des tests de drainages et d'infiltrations sur les colonnes de sable éolien de Tchernobyl.</i> .....	144
<i>Figure III-7 : Evolution des profils de teneur en eau <math>\theta(z)</math>, dans une colonne de sable éolien de Tchernobyl initialement drainée en imposant une succion <math>hL = -84</math> cm, suite à l'application d'un créneau d'eau d'une durée de 15 minutes avec une vitesse de Darcy <math>q=10,2</math> cm/h – Phase 1 : Infiltration, Phase 2 : Redistribution.</i> .....	146
<i>Figure III-8 : Evolution de la teneur en eau à 8,6 cm de profondeur lors de l'application d'une série de trois infiltrations/redistributions (<math>q=10,2</math> cm/h pendant <math>\Delta t=15</math> minutes) sur une colonne de sable éolien de Tchernobyl de 64 cm de hauteur initialement drainée en imposant une succion constante de 84 cm en pied de colonne. ...</i>	147
<i>Figure III-9 Estimation de la qualité des valeurs des paramètres de Van Genuchten/Mualem calées indépendamment sur nos données expérimentales <math>\theta(h)</math> et <math>K(\theta)</math> – Comparaison entre approche numérique (code Hydrus-1D) et données expérimentales de teneur en eau pour les mêmes conditions que celles de la Figure III-8.</i> .....	148
<i>Figure III-10 : Courbe de percée obtenue lors du traçage du circuit hydraulique (absence de sable) pour le dispositif expérimental utilisé pour la colonne n°6 à l'aide d'eau tritiée (activité=5600 Bq, débit <math>Q=100</math> ml/h)</i> .....	150
<i>Figure III-11 : Profils de teneur en eau mesurés avec le banc gammamétrique durant le traçage avec du tritium de la colonne 6. La teneur en eau moyenne le long de la colonne est de <math>\theta= 0,25</math> (saturation naturelle).</i> .....	151
<i>Figure III-12 : Courbe de percée du traçage tritium effectué à saturation naturelle sur la colonne de sable n°6 et ajustements des modèles de transport Convection/Dispersion CDE et Mobile-Immobile MIM.</i> .....	152
<i>Figure III-13 : Courbe de percée obtenue lors du traçage du circuit hydraulique (absence de sable) pour le dispositif expérimental utilisé pour la colonne n°8 à l'aide d'eau tritiée (activité= 970 Bq, débit <math>Q= 206</math> ml/h).</i> .....	153
<i>Figure III-14 Profils de teneur en eau mesurés avec le banc gammamétrique durant le traçage avec du tritium de la colonne 8. La teneur en eau moyenne le long de la colonne est de <math>\theta= 0,28</math> (saturation naturelle).</i> .....	154

Figure III-15 : Courbe de percée du traçage avec du tritium à saturation naturelle de la colonne de sable n°8 et ajustements des modèles de transport Convection/Dispersion CDE et Mobile-Immobilisé MIM. .... 155

#### **CHAPITRE IV**

Figure IV-1 : Données expérimentales (symboles) et ajustements de la solution analytique correspondant à nos conditions opératoires (Équation IV-1, traits pleins) pour les courbes de percée de tritium mesurées sur les colonnes P4, P5 et P7. .... 169

Figure IV-2 : Evolution des concentrations en cations mesurée en sortie de la colonne P7 en fonction du volume écoulé lors du conditionnement géochimique. .... 171

Figure IV-3 : Courbes de percée expérimentales du strontium stable et ajustements analytiques de l'Équation IV-2 (en faisant varier le facteur de retard  $R$  et la dispersivité  $\alpha$ ) pour les colonnes P4 à P7 (a) et P1 à P3 (b) en fonction du nombre de volumes de pore..... 174

Figure IV-4 : Courbes de percée expérimentale et simulée du  $^{85}\text{Sr}$  sur la colonne P4..... 175

Figure IV-5 : Courbes de percée expérimentale et simulée du  $^{85}\text{Sr}$  sur la colonne P7..... 176

Figure IV-6 : Représentation des profils d'équilibre sol/solution calculés pour la concentration de strontium stable en solution vis-à-vis du sable éolien de Tchernobyl, en fonction de la profondeur dans la colonne et suites aux conditionnements géochimiques des colonnes 6 et 8..... 179

Figure IV-7 : Evolution du profil de teneur en eau  $\theta(z)$ , mesuré avec le banc gammamétrique, au sein de la colonne de sable n°6, lors de la mise en place du régime hydrodynamique permanent à la teneur en eau moyenne  $\theta_{\text{moyen}} = 0,2$  (vitesse de Darcy  $q = 4,1 \text{ cm/h}$ )..... 182

Figure IV-8 : Evolution du profil d'activité totale de  $^{85}\text{Sr}(z)$ , mesuré avec le banc gammétrique, durant l'expérience de transport en régime hydraulique permanent non saturé dans la colonne 6. .... 182

Figure IV-9 : Evolution de la profondeur  $Z_r(t)$  du centre de masse du profil de  $^{85}\text{Sr}$  (moment spatial d'ordre 1) en fonction du temps lors de l'expérience de transport sur colonne de sable de Tchernobyl en régime hydraulique insaturé permanent ( $\theta=0,2$  et  $q=4,1 \text{ cm.h}^{-1}$ )..... 183

Figure IV-10 : Profil de teneur en eau  $\theta(z)$  obtenu à l'équilibre hydrostatique en imposant une succion constante de 84 cm en pied de la colonne 6. .... 184

Figure IV-11 : Premier profil d'activité totale de  $^{85}\text{Sr}(z)$  mesuré avec le banc gammamétrique suite à l'injection en haut de la colonne n°6 du premier créneau ( $q=5,1 \text{ cm.h}^{-1}$  pendant 30 minutes) d'eau synthétique marquée avec une activité de radioélément  $A(^{85}\text{Sr}) = 85 \text{ KBq}$  - Résultats de la mesure des deux profils suivants après injection de deux créneaux supplémentaires d'eau synthétique identique au premier mais non marqué en radioélément. .... 186

Figure IV-12 : Premier profil d'activité totale de  $^{85}\text{Sr}(z)$  mesuré avec le banc gammamétrique suite à l'injection en haut de la colonne n°8 du premier créneau d'eau synthétique marquée avec une activité de radioélément  $A(^{85}\text{Sr}) = 165,5 \text{ KBq}$  - Résultats de la mesure des trois profils suivants après injection de trois créneaux

supplémentaires d'eau synthétique identique au premier ( $q=10,2 \text{ cm.h}^{-1}$ pendant 15 minutes) mais non marqué en radioélément.....	187
Figure IV-13 : Allure des transitoires hydrauliques étudiés.....	189
Figure IV-14 : Profils d'activité totale de $^{85}\text{Sr}(z)$ mesurés dans le lit de sable de la colonne n°6 avec le banc gammamétrique, suite à l'injection de 4 puis 8 transitoires d'eau synthétique de type PM ( $q= 5,1 \text{ cm/h}$ pendant $\Delta t=30$ minutes).....	190
Figure IV-15 : Evolution du profil d'activité totale de $^{85}\text{Sr}(z)$ mesuré dans le lit de sable de la colonne n°6, suite à l'injection de 11, 22, 30 puis 41 créneaux d'eau synthétique de type PII ( $q= 10,2 \text{ cm.h}^{-1}$ pendant $\Delta t=15$ minutes).....	191
Figure IV-16 : Profils de masse volumique $\rho_d(z)$ de la colonne 6 – Visualisation de la décompaction du haut du lit de sable survenue durant l'expérience de transport de $^{85}\text{Sr}$ en condition hydraulique non-saturée transitoire. ....	192
Figure IV-17 : Profils d'activité totale de $^{85}\text{Sr}(z)$ mesurés dans le lit de sable de la colonne n°8 avec le banc gammamétrique, suite à l'injection de 4, 8 puis 10 créneaux d'eau synthétique de type PII ( $q= 10,2 \text{ cm.h}^{-1}$ pendant $\Delta t=15$ minutes).....	193
Figure IV-18 : Evolution du profil d'activité totale de $^{85}\text{Sr}(z)$ mesuré dans le lit de sable de la colonne n°8, suite à l'injection d'un créneau d'eau synthétique de type PF ( $q= 1,53 \text{ cm.h}^{-1}$ pendant $\Delta t=207$ minutes).....	194
Figure IV-19 : Evolution du profil d'activité totale de $^{85}\text{Sr}(z)$ mesuré dans le lit de sable de la colonne n°8, suite à l'injection d'une série de 13 créneaux d'eau synthétique de type PI2 ( $q= 12,7 \text{ cm.h}^{-1}$ pendant $\Delta t=12$ minutes). ....	195
Figure IV-20 : Mesure, en continu, à deux cotes fixes, de l'évolution de la teneur en eau $\theta(t)$ et de l'activité totale de $^{85}\text{Sr}(t)$ lors de l'application en haut de colonne de deux créneaux d'eau synthétique de type PII ( $q= 10,2 \text{ cm.h}^{-1}$ pendant $\Delta t=15$ minutes) sur la colonne 8. ....	196
Figure IV-21 : Mesure en continu de l'évolution de la teneur en eau $\theta(t)$ et de l'activité totale de $^{85}\text{Sr}(t)$ à la profondeur de 25,5 mm (partie descendante du profil) lors de l'application d'un transitoire plus long de type PF ( $q= 1,53 \text{ cm.h}^{-1}$ pendant $\Delta t=207$ minutes) sur la colonne 8.....	197

## **CHAPITRE V**

Figure V-1 : Evolution du profil de $^{85}\text{Sr}$ dans la colonne n°6 durant l'application du régime hydraulique permanent non saturé décrit Tableau IV.9 – Comparaison des résultats obtenus expérimentalement XP et par modélisation avec Hydrus-1D (Modèle CDE défini Tableau V-1).....	208
Figure V-2 : Comparaison entre données expérimentales et simulations effectuées avec Hydrus-1D pour la migration du profil de $^{85}\text{Sr}$ en condition hydraulique non-saturée transitoire dans les colonnes de sable éolien de Tchernobyl 6 et 8 – Les valeurs des paramètres utilisés sont ceux du Tableau V-2 pour l'aspect transport et rétention et ceux des fonctionnelles de Van Genuchten/Mualem du Tableau III-3 pour les courbes $h(\theta)$ et $K(\theta)$ . ....	211



<i>Figure V-3 : Simulation, avec Hydrus-1D, du transport de strontium 85 en condition d'écoulement non-saturé transitoire dans la colonne 8 par un régime non-saturé permanent équivalent en lame d'eau cumulée ayant percolée dans la colonne.....</i>	<i>213</i>
<i>Figure V-4 : illustration de la distance moyenne Zr parcourue par un traceur de l'eau (<math>k_d=0 \text{ L.Kg}^{-1}</math>) en régime permanent, selon la teneur en eau <math>\theta</math> à laquelle a lieu l'écoulement. ....</i>	<i>214</i>
<i>Figure V-5 : Courbes de percée expérimentales et simulées des cations en solution pour la colonne saturée P1 (<math>[\text{Sr}^{2+}]=4,5.10^{-8} \text{ mol.L}^{-1}</math>). ....</i>	<i>220</i>
<i>Figure V-6 : Courbes de percée expérimentales et simulées des cations en solution pour la colonne saturée P3 (<math>[\text{Sr}^{2+}]=2,2.10^{-6} \text{ mol.L}^{-1}</math>). ....</i>	<i>221</i>
<i>Figure V-7 : Courbes de percée expérimentales et simulées des cations en solution pour la colonne saturée P4 (<math>[\text{Sr}^{2+}]=8,2.10^{-6} \text{ mol.L}^{-1}</math>). ....</i>	<i>221</i>
<i>Figure V-8 : Courbes de percée expérimentales et simulées des cations en solution pour la colonne saturée P5 (<math>[\text{Sr}^{2+}]=5,5.10^{-5} \text{ mol.L}^{-1}</math>). ....</i>	<i>222</i>
<i>Figure V-9 : Courbes de percée expérimentales et simulées des cations en solution pour la colonne saturée P6 (<math>[\text{Sr}^{2+}]=8,8.10^{-5} \text{ mol.L}^{-1}</math>). ....</i>	<i>222</i>
<i>Figure V-10 : Courbes de percée expérimentales et simulées des cations en solution pour la colonne saturée P7 (<math>[\text{Sr}^{2+}]=9,6.10^{-5} \text{ mol.L}^{-1}</math>). ....</i>	<i>223</i>
<i>Figure V-11 : Evolution simulée du profil de <math>^{85}\text{Sr}</math> suite à l'injection de 10 créneaux d'eau de type PII, en haut de la colonne 6, avec une succion constante imposée en pied de colonne de 84 cm. <math>[\text{Sr}]=5.10^{-8} \text{ mol.L}^{-1}</math> et <math>[\text{Ca}]=77,3.10^{-6} \text{ mol.L}^{-1}</math> .....</i>	<i>225</i>
<i>Figure V-12 : Scénario identique à la figure précédente, hormis la concentration en calcium. <math>[\text{Sr}]=5.10^{-8} \text{ mol.L}^{-1}</math> et <math>[\text{Ca}]=540.10^{-6} \text{ mol.L}^{-1}</math> .....</i>	<i>226</i>
<i>Figure V-13 : Interprétation graphique de la mesure du coefficient <math>K_d</math> d'un isotope radio-actif par méthode statique «batch» (<math>K_d=\text{Cs}/\text{Caq}</math>) et dynamique par traçage sur colonne (<math>K_d=d\text{Cs}/d\text{Caq}</math>). ....</i>	<i>229</i>
<i>Figure V-14 : Evolution de la profondeur du centre de masse du profil de <math>^{85}\text{Sr}</math> en fonction de la lame d'eau cumulée infiltrée dans la colonne non-saturée 8.....</i>	<i>232</i>
<i>Figure V-15 : Evolution du facteur de retard <math>R=1+(\rho d * K_d / \theta)</math> en fonction du coefficient <math>K_d</math> pour les deux valeurs extrêmes de teneur eau <math>\theta_r</math> et <math>\theta_{\text{sat}}</math> prises respectivement égales à 0,02 et 0,4. La masse volumique <math>\rho d</math> est fixée à <math>1,9 \text{ g.cm}^{-3}</math>. ....</i>	<i>235</i>
<i>Figure V-16 : Evolution de la largeur à mi-hauteur FWHM des profils de <math>^{85}\text{Sr}</math> dans la colonne en fonction de la lame d'eau cumulée – Présence de rupture de pente au niveau des changements de type de transitoire appliqué (différentes vitesses de pore). ....</i>	<i>238</i>

## **LISTE DES TABLEAUX**

---

---

### **CHAPITRE I**

Tableau I-1 : Valeurs des temps de séjour moyen  $T_s$  et des variances  $Var$  suite à l'injection d'une fonction de Dirac en entrée du système pour quelques modèles caractéristiques. .... 75

### **CHAPITRE II**

Tableau II-1 : Comparaison de la composition théorique de l'eau synthétique et des analyses en SAA de l'eau de nappe prélevée en aval de la tranchée pour la période 1998-2001. (#Analyses effectuées sur 19 échantillons uniquement)..... 94

Tableau II-2 : Caractéristiques des trois principaux isotopes radioactifs du strontium (Nuclides 2000, 1999). . 98

Tableau II-3 : Caractéristiques physiques des colonnes de sable de Tchernobyl utilisées pour les expériences de transport en conditions insaturées. .... 105

### **CHAPITRE III**

Tableau III-1 : Teneurs en eau moyennes obtenues lors des tests d'infiltrations à débit constant effectués sur une colonne de sable éolien de Tchernobyl, de 65,5 cm de hauteur, initialement drainée avec une succion  $h_L$  de 84 cm, pour établir la courbe de conductivité hydraulique  $K(\theta)$ . .... 139

Tableau III-2 : Equations des courbes caractéristiques de rétention d'eau  $\theta(h)$  et de conductivité hydraulique  $K(\theta)$  reliant la hauteur manométrique de l'eau  $h$  et la conductivité hydraulique  $K$ , à la teneur en eau  $\theta$  du sol (i.e. le degré de saturation) pour les fonctionnelles de Brooks & Corey (1964) et Van Genuchten/Mualem (1980).  
..... 141

Tableau III-3 : Valeurs des paramètres des fonctionnelles de Brooks & Corey et Van Genuchten/Mualem ajustées sur nos données expérimentales. .... 142

Tableau III-4 : Conditions expérimentales des traçages au tritium (traceur non-réactif) effectués sur les colonnes en écoulements non-saturés, préalablement à l'injection de  $^{85}\text{Sr}$  (traceur réactif)..... 149

### **CHAPITRE IV**

Tableau IV-1 : Propriétés physiques des petites colonnes saturées et conditions opératoires utilisées pour le conditionnement géochimique des lits de sable. .... 166

Tableau IV-2 : Comparaison des temps de transfert du tritium mesurés, en calculant le moment d'ordre 1 de la solution analytique ajustée avec  $D$  ( $T_{sm}$ ), et calculés à partir des paramètres géométriques ( $T_s = \varepsilon.L.A/Q$ ) pour les colonnes P4, P5 et P6..... 169

Tableau IV-3 : Facteur de retard  $R$ , dispersivité  $\alpha$  et  $K_d$  du strontium déduits de l'ajustement numériques des courbes de percées (Équation IV-2) du strontium lors du conditionnement géochimique des petites colonnes saturées en eau..... 173

Tableau IV-4 : Conditions des expériences de transfert de  $^{85}\text{Sr}$  effectuées sur les petites colonnes portées préalablement à l'équilibre géochimique sol/solution et à saturation en eau. .... 175

<i>Tableau IV-5 : Concentrations de strontium stable testées et valeurs des Kd obtenues pour les expériences de transport de <sup>85</sup>Sr sur colonnes de sable éolien de Tchernobyl saturées en eau (condition dynamique).</i> .....	176
<i>Tableau IV-6 : Concentrations de strontium stable explorées et valeurs des coefficients Kd obtenues lors de l'analyse des propriétés de sorption du <sup>85</sup>Sr sur le sable éolien de Tchernobyl effectuée en réacteur fermé « batch » (condition statique).</i> .....	177
<i>Tableau IV-7 : Propriétés physiques des colonnes 6 et 8.</i> .....	178
<i>Tableau IV-8 : Paramètres pris en compte pour la simulation du conditionnement chimique des colonnes 6 et 8.</i> .....	179
<i>Tableau IV-9 : Conditions expérimentales utilisées pour l'expérience de transport de <sup>85</sup>Sr en régime permanent insaturé dans la colonne 6.</i> .....	180
<i>Tableau IV-10 : Caractéristiques des écoulements des quatre transitoires hydrauliques étudiés.</i> .....	189
<b><u>CHAPITRE V</u></b>	
<i>Tableau V-1 : Valeurs des paramètres utilisés dans Hydrus-1D pour simuler la migration du <sup>85</sup>Sr dans la colonne n°6 en régime permanent insaturé.</i> .....	207
<i>Tableau V-2 : Valeurs des paramètres utilisés avec Hydrus-1D pour simuler la migration du <sup>85</sup>Sr en condition hydraulique non-saturé transitoire dans les colonnes de sable éolien de Tchernobyl 6 et 8.</i> .....	210
<i>Tableau V-3 : Principaux équilibres chimiques en solution</i> .....	217
<i>Tableau V-4 : Equilibres d'échange sable – solution considéré pour le site d'échange Argile.</i> .....	218
<i>Tableau V-5 : Valeurs des constantes de sélectivité <sup>CH</sup>k<sub>X/Na</sub> calculées pour le module de géochimie CHESS du code de transport HYTEC pour les cations en solution dans chaque colonne.</i> .....	223

## LISTE DES SYMBOLES ET ABREVIATIONS

Symbole Abréviation	Signification	Unité
$\alpha$	Dispersivité du milieu poreux	m
$\varepsilon$	Porosité géométrique	-
$\theta$	Teneur en eau volumique	-
$\Theta$	Teneur en eau normalisée	-
$\theta_{im}$	Fraction d'eau immobile	-
$\theta_m$	Fraction d'eau mobile	-
$\theta_r$	Teneur en eau résiduelle du milieu poreux	-
$\theta_{sat}$	Teneur en eau à saturation du milieu poreux	-
$\Psi$	Potentiel de l'eau du sol	J. m <sup>-3</sup>
$\Psi_c$	Potentiel capillaire (ou matriciel) de l'eau du sol	J. m <sup>-3</sup>
$\Psi_o$	Potentiel osmotique de l'eau du sol	J. m <sup>-3</sup>
$\Psi_g$	Potentiel gravitaire de l'eau du sol	J. m <sup>-3</sup>
$\Psi_t$	Potentiel tensiométrique de l'eau du sol	J. m <sup>-3</sup>
$\rho_d$	Masse volumique du milieu poreux sec (diphasique) ou masse volumique sèche	kg.m <sup>-3</sup>
$\rho_l$	Masse volumique du liquide	kg.m <sup>-3</sup>
$\rho_s$	Masse volumique du solide	kg.m <sup>-3</sup>
BM	Bilan de Masse	
$C_{aq}$	Concentration résidente de soluté en phase aqueuse	mol.m <sup>-3</sup>
CDE	Modèle de Convection-Dispersion	
CEC	Capacité d'Echange Cationique du sol	mol.kg <sup>-1</sup>
$C_s$	Concentration résidente de soluté en phase solide	mol.m <sup>-3</sup>
$C_t$	Concentration résidente totale de soluté dans le milieu poreux	mol.m <sup>-3</sup>
D	Coefficient de dispersion hydrodynamique	m <sup>2</sup> .s <sup>-1</sup>
$D_0$	Coefficient de diffusion moléculaire dans l'eau libre	m <sup>2</sup> .s <sup>-1</sup>
$D_e$	Coefficient de diffusion effectif	m <sup>2</sup> .s <sup>-1</sup>
$D_p$	Coefficient de diffusion de pore	m <sup>2</sup> .s <sup>-1</sup>
$d_p$	Diamètre des particules du sol	m
DRX	Diffraction de Rayons X	
e	Indice des vides	-
EPIC	Experimental Platform In Chernobyl	
EVR	Elément de Volume Représentatif	m <sup>3</sup>
f	Fraction du volume d'eau qui participe à l'écoulement	-
g	Accélération de la pesanteur	m.s <sup>-2</sup>

h	Hauteur manométrique (pression, tension ou succion de l'eau du sol)	m
H	Charge hydraulique	m
$j_c$	Flux molaire de soluté transporté par convection	$\text{mol.m}^2.\text{s}^{-1}$
$j_d$	Flux molaire de soluté transporté par diffusion	$\text{mol.m}^2.\text{s}^{-1}$
$j_s$	Flux molaire total de soluté	$\text{mol.m}^2.\text{s}^{-1}$
$\overline{K}$	Tenseur de conductivité hydraulique du milieu poreux	$\text{m.s}^{-1}$
$\overline{\overline{K}}_{\text{sat}}$	Tenseur de conductivité hydraulique du milieu poreux saturé en eau	$\text{m.s}^{-1}$
K	Constante d'équilibre	-
$K(\theta)$	Conductivité hydraulique relative	$\text{m.s}^{-1}$
Kd	Coefficient de distribution du soluté entre les phases solide et liquide	$\text{m}^3.\text{kg}^{-1}$
$K_F$	Constante de Freundlich	$\text{m}^3.\text{mol}^{-1}$
$k_M$	Coefficient cinétique de transfert de masse de soluté entre les fractions d'eau mobile et immobile	$\text{s}^{-1}$
$K_{MN}$	Coefficient de sélectivité apparent qui caractérise l'équilibre d'échange entre M et N	-
$k_{\text{réac}}$	Constante cinétique de la réaction	$(\text{mol.l}^{-1})^{1-n}.\text{s}^{-1}$
L	Longueur caractéristique du transport par convection	m
LR2S	Laboratoire de Recherche sur le Stockage géologique des déchets et les transferts dans les Sols	
LTHE	Laboratoire d'étude des Transferts en Hydrologie et Environnement	
MEB	Microscope Electronique à Balayage	
MIM	Modèle Mobile-Immobilisé	
$m_l$	Masse de liquide	kg
$m_s$	Masse de solide	kg
$m_t$	Masse de milieu poreux (triphase)	kg
p	Pression ( $p_{\text{air}}$ pression de l'air, $p_l$ pression de l'eau du sol)	Pa
Pe	Nombre de Péclet	-
HYTEC	Code couplé géochimie-transport (1-D)	
q	Vitesse au sens de Darcy	$\text{m.s}^{-1}$
Q	Débit d'eau	$\text{m}^3.\text{s}^{-1}$
R	Facteur de retard du soluté réactif par rapport à l'eau	-
S	Section de colonne	$\text{m}^2$
$S^\circ$	Degré ou taux de saturation	-
SAA	Spectrophotométrie d'Absorption Atomique	
T	Tortuosité du milieu poreux	-
$T^\circ$	Température	K

Ts	Temps de séjour moyen dans le système considéré	s
v	Vitesse de pore ou vitesse microscopique moyenne	m.s <sup>-1</sup>
V <sub>l</sub>	Volume de liquide	m <sup>3</sup>
V <sub>p</sub>	Volume de pore	m <sup>3</sup>
V <sub>s</sub>	Volume de solide	m <sup>3</sup>
V <sub>t</sub>	Volume de milieu poreux (triphase)	m <sup>3</sup>
ZNS	Zone Non Saturée	



Introduction

générale





**Introduction générale**

Parmi les préoccupations environnementales actuelles, la modification de l'effet de serre et le réchauffement climatique de la troposphère sont largement prioritaires. Pourtant, d'autres compartiments de la biosphère sont également concernés par les activités humaines et méritent largement d'être étudiés, préservés et/ou réhabilités. Les sols et la ressource en eau souterraine sont de ceux là.

La contamination des sols et des aquifères par les métaux lourds et les radionucléides artificiels est à la fois très préoccupante et hautement symbolique. On a longtemps pensé que le pouvoir auto-épurateur des sols était pratiquement infini. De très nombreux exemples démontrent qu'il n'en est rien. Les causes d'augmentation de la contamination des sols et aquifères sont nombreuses et variées : activités industrielles et agricoles intensives (passées et présentes), élargissement des zones urbaines avec imperméabilisation et lessivage, explosion de la consommation (rejets, trafic routier, déchets...).

Nous avons choisi d'illustrer cette problématique en étudiant le transfert d'un radionucléide dans le sol de surface et dans l'aquifère de la zone d'exclusion de Tchernobyl. Cette étude s'inscrit dans l'ensemble des efforts de recherche opérés à l'IRSN depuis 1999 en étroite collaboration avec le CEA et deux organismes de recherche ukrainiens (Institut Ukrainien de Radioécologie (UIAR), Institut des Géosciences (IGS)) sur le thème de l' « identification et la quantification des mécanismes de transfert des radioéléments dans l'environnement », s'appuyant sur le travail de terrain réalisé sur le site pilote à proximité de la centrale de Tchernobyl - Projet EPIC (Experimental Platform In Tchernobyl). Les travaux présentés ici sont également dans la continuité du travail effectué par Stéphanie Szenknect (2003) sur la migration du césium et du strontium dans le sable éolien de Tchernobyl. L'IRSN est un organisme agissant en qualité d'expert de la gestion des sites pollués par les produits radioactifs. Le laboratoire IRSN/DEI/SARG/L2RS (laboratoire de Recherche sur le Stockage géologique des déchets et les transferts dans les Sols - Fontenay-aux-roses) conduit des activités de recherche, notamment sur le stockage de surface et les sites pollués par les radioéléments, pour atteindre une meilleure compréhension des mécanismes de dissémination des radionucléides dans l'Environnement.

De son côté, EDF s'intéresse fortement à la propreté radiologique et à la sûreté de ses centrales nucléaires de production électriques (CNPE), ce qui conduit à des études des transferts de polluants radioactifs dans les sols par le vecteur eau.

L'IRSN et EDF possédant ainsi des objectifs communs de recherche et développement, ce travail est financé par les deux organismes.

Le site pilote de Tchernobyl, son équipement et son contexte sont largement développés dans les travaux de Stéphanie Szenknect (Szenknect S., 2003 ; Szenknect S. et al., 2005 et Szenknect S. et al., 2008). Les travaux précédents, menés par les différentes équipes intervenantes sur ce site pilote, ont été effectués en parallèle sur le terrain et en laboratoire, et ont notamment permis de décrire (Bugai D. et al., 2002 ; Dewiere L., 2002 ; Dewiere L. et al, 2004) :

- la géologie locale,
- la nature physique et géochimique d'une tranchée de déchets radioactifs enterrés,
- la nature des particules radioactives présentes au sein de la tranchée,
- les propriétés hydrodynamiques du site pilote,
- les processus géochimiques de rétention sur le sable éolien de Tchernobyl pour le césium 137 et le strontium 90 (cinétique de sorption, isotherme de sorption),
- et le rôle d'une diminution de la teneur sur le transport (expériences sur colonnes en condition hydraulique non saturée et écoulement permanent).

Notre travail concerne des expérimentations de laboratoire et des modélisations se focalisant sur le transport réactif du strontium 90 et sur l'influence des écoulements d'eau transitoires dans les sols partiellement saturés en eau.

Le scénario retenu pour notre étude correspond à une contamination de soluté réactif, présent initialement à la surface d'un sol, et migrant vers la nappe phréatique à travers la zone non saturée en eau, lieu des cycles d'infiltration et de redistribution générés par les événements pluvieux. On se place ici dans le cas où l'évaporation et les extractions racinaires sont nulles.

**L'aspect expérimental** repose sur l'utilisation d'un outil original (banc d'auscultation gammamétrique) permettant de suivre simultanément l'évolution spatio-temporelle des profils de

teneur en eau et d'activité totale lors de la migration d'un radionucléide émetteur gamma au sein d'une colonne de sable. L'objectif de cette partie étant d'acquérir les données expérimentales qui serviront de support d'analyse des mécanismes physico-chimiques, puis ultérieurement de référence pour la modélisation. La **modélisation** s'appuie sur différentes conceptualisations (selon les conditions d'essais) : écoulements d'eau permanents et uniformes, écoulements transitoires, transport convectif, dispersif, avec ou sans eau immobile, prise en compte d'une seule espèce chimique ou plusieurs espèces en compétition.

Pour ce qui concerne les expériences de transport, nous avons choisi d'explorer les conditions opératoires suivantes :

- Milieu poreux : Le **sable éolien de Tchernobyl** est représentatif de la nature du sol sur la majeure partie du site pilote. Ce sable est maintenant bien connu physiquement (granulométrie) et chimiquement (minéralogie) suite aux études effectuées notamment par le laboratoire L2RS (IRSN). Ce type de sol constitue par ailleurs un milieu poreux modèle assez simple justifiant notamment l'hypothèse de milieu poreux rigide et homogène, très utile dans une démarche de découplage des phénomènes et de modélisation.
- Éléments chimiques : Les solutés étudiés dans le cadre de notre étude de transport sont les radionucléides strontium 85 et tritium. Le strontium 90 (émetteur bêta de période de demi-vie 29,14 ans) fait parti des éléments ayant été dispersés dans l'environnement lors de l'accident de la centrale de Tchernobyl. Cet élément révèle d'autre part une mobilité non négligeable dans la zone non saturée du sol et dans l'aquifère sous-jacent. Sa migration, notamment à partir des tranchées, vers la nappe phréatique a ainsi déjà pu être mesurée (présence d'un panache de concentrations)(Dewiere L. et al., 2004). Cependant pour des raisons de technique expérimentale (nature du rayonnement) et de sécurité dans la gestion des déchets radioactifs (période de demi-vie plus courte) notre choix s'est porté sur l'utilisation du radio-isotope relais, le **strontium 85** (émetteur gamma de période de demi-vie 64,8 jours). Le **tritium** (émetteur alpha de période de demi-vie 12,3 ans) est également un élément radioactif ayant été expulsé dans l'environnement lors de l'explosion du réacteur nucléaire de Tchernobyl. Cependant, son utilisation dans nos essais est plutôt liée à ses propriétés de traceur pour la caractérisation des propriétés hydrodynamiques des

milieux poreux (en raison de son caractère non interactif avec la phase solide). Cet élément nous sert par ailleurs de référence concernant le transfert de solutés non-réactifs ou très faiblement réactif.

- Hydrodynamique : L'essentiel des expériences de transport a été effectué en conditions hydrauliques **non saturées transitoires** afin d'observer le comportement migratoire des solutés présents au sein d'un sol lors d'événements pluvieux. D'autres expériences de migration en condition hydraulique **saturée et non saturée permanente** ont par ailleurs été réalisées afin de servir à la fois de référence hydrodynamique et de complément d'étude concernant la rétention.
- Géochimie : Afin d'observer l'influence propre aux phénomènes hydrodynamiques transitoires sur la migration du strontium radioactif en condition hydraulique non saturée, les expériences de transport sont effectuées à « **géochimie constante** », répétées pour différentes valeurs de concentrations en strontium stable.

L'organisation de ce manuscrit est la suivante :

Le chapitre I propose une approche théorique et décrit une méthodologie d'étude de l'écoulement de l'eau et du transport de soluté en milieu poreux non saturé. Il positionne ce travail par rapport aux études précédentes et précise les codes de calculs utilisés.

Le chapitre II décrit le matériel expérimental, le sol, les éléments chimiques, la géochimie des eaux utilisée et la méthodologie mise en oeuvre.

Le chapitre III est consacré aux écoulements d'eau et au transport d'un traceur de l'eau. Il fournit les courbes caractéristiques reflétant les propriétés hydrodynamiques du sol. Les modélisations des écoulements de l'eau et du transport d'un élément non réactif sont confrontées aux résultats expérimentaux.

Le chapitre IV présente la partie la plus novatrice de ce travail : l'étude de l'interaction sol/soluté et du transport de  $^{85}\text{Sr}$  en écoulement d'eau non saturée transitoire.

Le chapitre V développe des interprétations et des discussions fondées sur l'analyse et des modélisations des résultats expérimentaux. Les limites des modélisations sont discutées, notamment dans le cadre d'une éventuelle modélisation opérationnelle à minima de coefficients.



# Chapitre I

## Approche théorique et méthodologique

de l'écoulement de l'eau et du transport de soluté en  
milieu poreux non-saturé





# SOMMAIRE CHAPITRE I

<b>CHAPITRE I. APPROCHE THEORIQUE ET METHODOLOGIQUE DE L'ÉCOULEMENT DE L'EAU ET DU TRANSPORT DE SOLUTE EN MILIEU POREUX NON-SATURE</b>	<b>35</b>
--	-----------

<b>I.1 ÉCOULEMENT DE L'EAU EN MILIEU POREUX NON-SATURE</b>	<b>37</b>
I.1.1 Echelle d'étude et teneur en eau	37
I.1.1.1 <i>Élément de Volume Représentatif (EVR)</i>	37
I.1.1.2 <i>Teneur en eau volumique (<math>\theta</math>)</i>	38
I.1.2 Mouvement de l'eau dans un sol non-saturé	39
I.1.2.1 <i>Le potentiel hydrique total <math>\Psi</math> de l'eau</i>	40
I.1.2.2 <i>Les équations de l'écoulement de l'eau</i>	41
I.1.3 Caractéristiques hydrauliques d'un sol non-saturé – $h(\theta)$ et $K(\theta)$	45
I.1.3.1 <i>Fonctionnelles de Van Genuchten</i>	46
I.1.3.2 <i>Fonctionnelles de Brooks et Corey</i>	47
<b>I.2 MODELES D'INTERACTIONS CHIMIQUES SOLUTE/MATRICE SOLIDE A L'ÉQUILIBRE</b>	<b>50</b>
I.2.1 Approche opérationnelle (isotherme de sorption et $K_d$ )	50
I.2.2 Approche mécaniste (Modèles géochimiques)	53
<b>I.3 TRANSPORT EN MILIEU POREUX NON-SATURE</b>	<b>54</b>
I.3.1 Variable caractéristique	54
I.3.2 Flux de solutés	55
I.3.2.1 <i>Flux par Convection</i>	56
I.3.2.2 <i>Flux par dispersion hydrodynamique</i>	56
I.3.2.3 <i>Flux total de soluté</i>	58
I.3.3 Modélisation du transport de soluté en milieu poreux non-saturé	59
I.3.3.1 <i>Transport non-réactif</i>	60
I.3.3.2 <i>Transport réactif (mono et multi-espèces)</i>	63
I.3.3.3 <i>Influence des écoulements transitoires sur la mobilité d'un soluté en milieu poreux non saturé</i>	68
<b>I.4 DYNAMIQUE DES SYSTEMES ET METHODE DES MOMENTS</b>	<b>71</b>
I.4.1 Dynamique des systèmes	71
I.4.2 Méthode des moments	74
<b>I.5 CODES UTILISES</b>	<b>76</b>
I.5.1 HYDRUS-1D : Modélisation du transport avec une seule espèce	76
I.5.2 HYTEC : Modélisation du transport multi-espèces (géochimie/transport)	77
I.5.3 Autres codes pour l'optimisation de paramètres	79
<b>I.6 SYNTHÈSE</b>	<b>81</b>

**Liste des Figures du chapitre I**

Figure I-1 : a) Localisation sur le terrain et b) représentation schématique de la zone non-saturée d'un sol (Van Genuchten & Wierenga, 1976). ..... 35

Figure I-2 : Représentation schématique des processus d'écoulements et de rétention auxquels un soluté est soumis lors de son transfert à travers la zone non saturée d'un sol. .... 36

Figure I-3 : Définition de l'Elément de Volume Représentatif d'un milieu poreux (d'après Gaudet, 1978). ..... 37

Figure I-4 : Illustration des vitesses définies à l'échelle de l'EVR : Différence entre vitesse de pore  $v$  et vitesse « fictive » de Darcy  $q$ . ..... 38

Figure I-5 : Illustration de la conservation de la masse d'eau au sein de l'EVR. .... 43

Figure I-6 : Fonctionnelle de Van Genuchten pour la courbe de rétention d'eau  $h(\theta)$ . .... 46

Figure I-7 : Fonctionnelle de Brooks et Corey pour la courbe de rétention d'eau  $h(\theta)$ . .... 48

Figure I-8 : Représentation schématique des courbes principales en humidification (MWC) et en drainage (MDC) lors d'un cycle hystérétique (extrait de Szenknect, 2003). ..... 49

Figure I-9 : Classification des principaux isothermes de sorption. .... 51

Figure I-10 : Hétérogénéités des vitesses d'écoulement dans un milieu poreux. .... 57

Figure I-11 : Représentation du principe de la Dynamique des systèmes. Pour un système linéaire,  $S(t)$  correspond au produit de convolution de  $E(t)$  par la Distribution des Temps de Séjours DTS, dont la transformée de Laplace est la fonction de transfert du système (Jury et al., 1986). .... 71

Figure I-12 : Représentation des moments temporels d'ordre 0, 1 et 2 d'une courbe de percée  $C(t)$  correspondant à la réponse du système. .... 74

Figure I-13 : Représentation schématique de la structure du code couplé géochimie/transport HYTEC et de ses différents modules hydrodynamiques (RT1D, METIS et R2D2) et géochimique (CHESS) (<http://hytec.ensmp.fr>). ..... 78

Figure I-14 : Diagramme des actions successives opérées à chaque pas de temps par le code couplé HYTEC.  $T$  correspond à la concentration totale du soluté,  $\sim T$  à la concentration en phase mobile,  $\mathcal{L}$  est l'opérateur de transport (hydrodynamique) et  $R$  l'opérateur réactionnel (géochimie) - (van der Lee et al., 2002). .... 79

**Chapitre I. Approche théorique et méthodologique de l'écoulement de l'eau et du transport de soluté en milieu poreux non-saturé**

Les éléments rappelés dans ce chapitre concernent les mécanismes prépondérants intervenants dans l'étude des transferts d'eau et de solutés en milieu poreux et plus particulièrement dans la zone partiellement saturée en eau des sols. Cette synthèse s'appuie notamment sur les analyses bibliographiques récentes suivantes : (Février, 2001), (Marcos, 2001), (Gaidi, 2002) et (Szenknect, 2003).

Un milieu poreux non-saturé en eau est un milieu triphasique constitué d'une matrice solide, d'une phase liquide et d'une phase gazeuse (Figure I-1). La migration d'un soluté réactif à travers un sol non-saturé résulte simultanément de l'expression des processus d'écoulement et de rétention auxquels le soluté est soumis (Figure I-2). La modélisation la plus complète de ce type de transport impose donc un couplage de modèles de transport hydrodynamique et d'interactions physico-chimiques, engendrant un outil numérique capable de résoudre simultanément le système d'équations résultant de l'analyse physico-chimique et les équations aux dérivées partielles décrivant l'écoulement de l'eau.

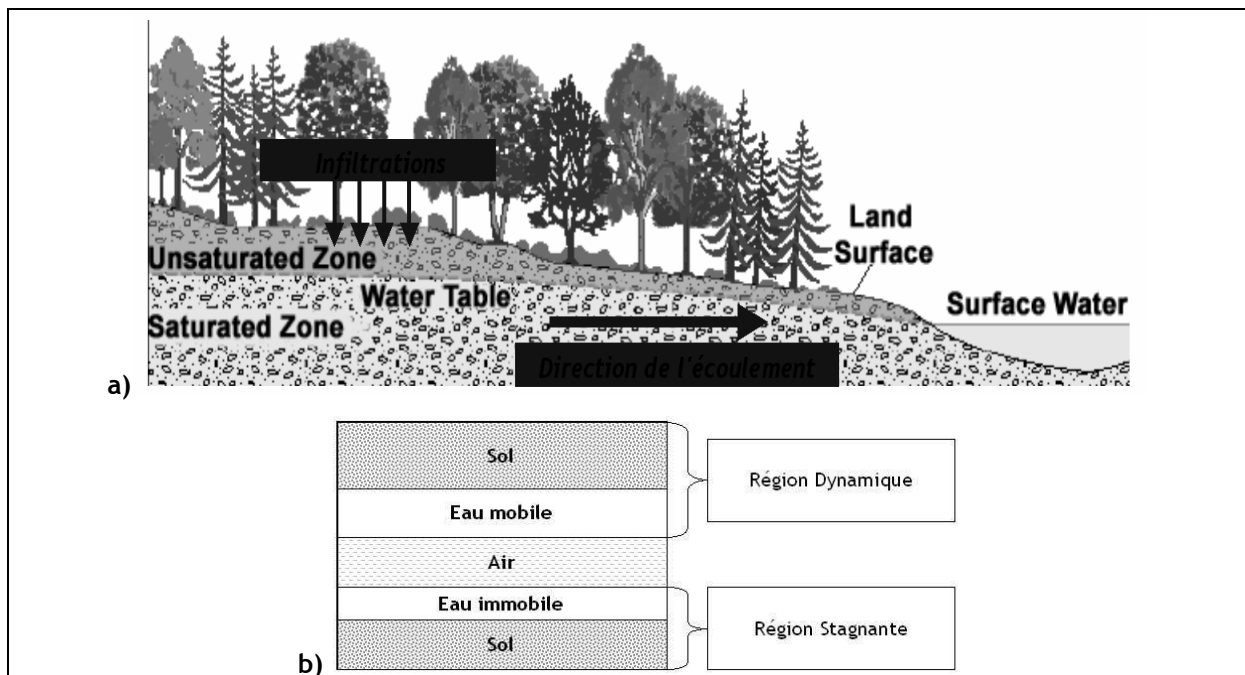


Figure I-1 : a) Localisation sur le terrain et b) représentation schématique de la zone non-saturée d'un sol (Van Genuchten & Wierenga, 1976).

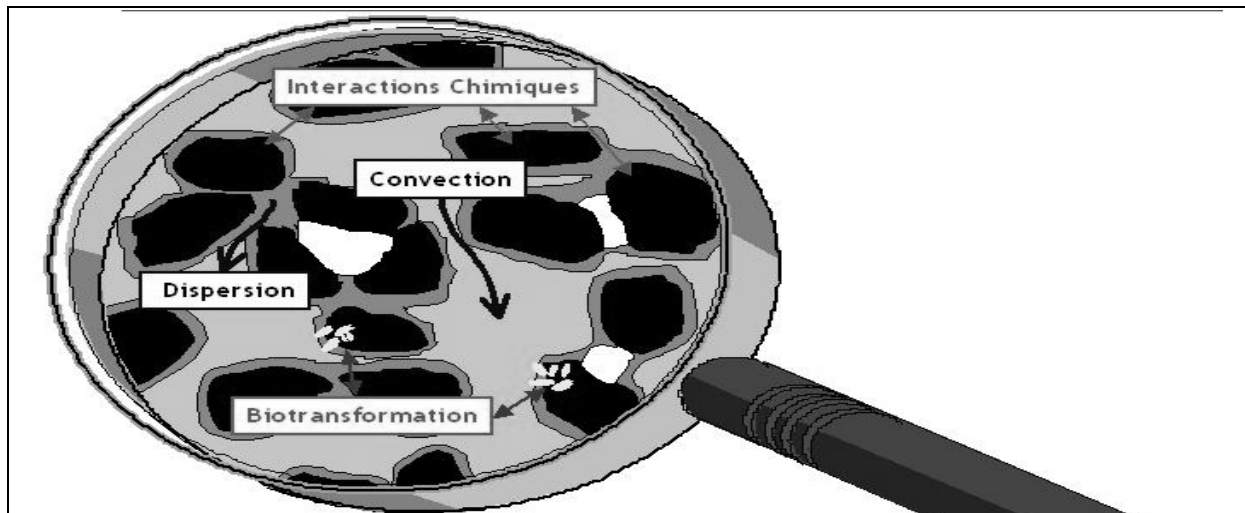


Figure I-2 : Représentation schématique des processus d'écoulements et de rétention auxquels un soluté est soumis lors de son transfert à travers la zone non saturée d'un sol.

L'étude du transport d'un soluté dans les sols requiert donc la connaissance préalable :

- des **propriétés hydrodynamiques du sol** (lois et paramètres décrivant l'écoulement de l'eau à l'intérieur du milieu poreux),
- des **réactions chimiques homogènes et hétérogènes du soluté** dans les phases liquide, solide et gazeuse.

Dans ce chapitre, nous présentons d'abord la modélisation de l'hydrodynamique des sols non saturés et les relations caractéristiques  $h(\theta)$  et  $K(\theta)$  correspondantes. Nous abordons ensuite les modèles d'interactions physico-chimiques (ou de rétention) entre soluté et phase solide.

Les mécanismes retenus pour décrire la migration des solutés dans les sols non saturés en eau et les équations permettant leur modélisation sont rappelés. Notre analyse bibliographique retient essentiellement les travaux concernant l'influence des écoulements transitoires sur la mobilité des solutés dans les sols non saturés.

Nous décrivons finalement les différentes méthodologies utilisables dans le cadre de telles études et plus particulièrement l'approche « dynamique des systèmes » largement employée en génie des procédés.

## I.1 Ecoulement de l'eau en milieu poreux non-saturé

---

---

### I.1.1 Echelle d'étude et teneur en eau

L'écoulement de l'eau dans un milieu poreux se fait au sein du réseau poral des vides interstitiels de la phase solide. A l'échelle microscopique, échelle classique de la mécanique des fluides, l'eau représente un milieu continu et les variables définies pour décrire son comportement symbolisent des quantités physiques « réelles », mesurables, en un point du fluide (ex : vitesse de pore  $v$  ou pression). Cependant, une description fine du milieu poreux à cette échelle s'avère complexe car la complexité géométrique et les hétérogénéités spatiales liées à la structure et la texture du milieu sont importantes.

#### I.1.1.1 Elément de Volume Représentatif (EVR)

Pour palier cette difficulté de représentation du sol, l'échelle d'étude généralement employée pour l'écoulement de l'eau et le transport de soluté est celle de l'Elément de Volume Représentatif (EVR). L'EVR est défini comme le volume minimal du milieu poreux à partir duquel certaines propriétés intrinsèques de celui-ci apparaissent homogènes, comme par exemple la masse volumique  $\rho_d$  (Figure I-3).

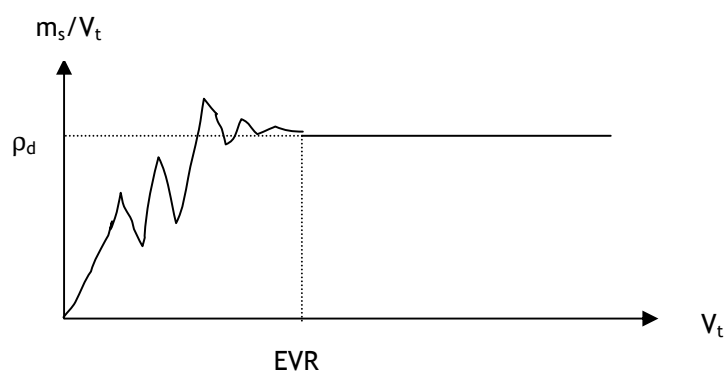


Figure I-3 : Définition de l'Elément de Volume Représentatif d'un milieu poreux (d'après Gaudet, 1978).

Une fois ce changement d'échelle effectué, le milieu poreux peut être considéré comme un milieu continu. Les valeurs des variables définies à cette échelle représentent alors des quantités moyennes sur l'ensemble de l'EVR. Ainsi, la vitesse de Darcy  $q$  exprime la vitesse moyenne « fictive » de l'eau à travers une section perpendiculaire à la vitesse. La vitesse moyenne  $v$ , à l'intérieur du réseau poral est supérieure à  $q$  (Figure I-4 d'après Pallud, 2000).

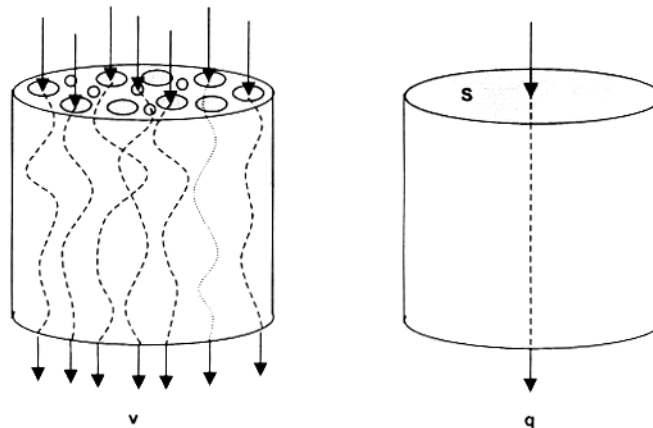


Figure I-4 : Illustration des vitesses définies à l'échelle de l'EVR : Différence entre vitesse de pore  $v$  et vitesse « fictive » de Darcy  $q$ .

#### 1.1.1.2 Teneur en eau volumique ( $\theta$ )

La première variable descriptive utilisée pour décrire l'écoulement de l'eau dans un sol non-saturé est la teneur en eau volumique  $\theta$ , définie par le rapport entre le volume d'eau contenu dans l'EVR  $V_l$  et le volume total de l'EVR  $V_t$ . Ses valeurs sont bornées par deux données caractéristiques du sol considéré :

- la teneur en eau résiduelle  $\theta_r$ ,
- la teneur en eau à saturation  $\theta_{sat}$ .

Soit :

$\theta = \frac{V_l}{V_t} \text{ avec } \theta_r \leq \theta \leq \theta_{sat}$	<b>Équation I-1</b>
---	---------------------

On utilise parfois la notion de teneur en eau normalisée  $\Theta$ , (variable entre 0 et 1) définie par la relation :

$$\Theta = \frac{\theta - \theta_r}{\theta_{\text{sat}} - \theta_r} \quad \text{Équation I-2}$$

La porosité géométrique  $\varepsilon$  du milieu poreux est déterminée aussi à l'échelle de l'EVR. Elle indique le rapport entre le volume total des vides (ensemble des pores contenant les phases liquide et gazeuse) et le volume de l'EVR. Sa formulation est la suivante :

$\varepsilon = \frac{V_l + V_g}{V_t}$	<b>Équation I-3</b>
---------------------------------------	---------------------

avec  $V_g$  et  $V_l$  respectivement volumes gazeux et liquide contenus dans l'EVR.

Dans les conditions naturelles, certains interstices du milieu poreux restent inaccessible au fluide en raison de la présence d'air piégé. La teneur en eau à saturation reste donc généralement inférieure à la porosité géométrique du milieu poreux ( $\theta_{\text{sat}} < \varepsilon$ ), on parle alors de teneur en eau à saturation naturelle  $\theta_{\text{sat.nat}}$ .

Enfin, dans les sols non-saturés, le rapport entre la teneur en eau volumique  $\theta$  et la porosité géométrique  $\varepsilon$  permet de connaître le degré de saturation  $S$  du milieu défini par la relation :

$$S = \frac{\theta}{\varepsilon} \quad \text{Équation I-4}$$

### **I.1.2 Mouvement de l'eau dans un sol non-saturé**

Comme tout autre flux de matière, le mouvement de l'eau dans un sol résulte de la présence d'un gradient de potentiel : l'écoulement s'effectuant des points où le potentiel est élevé vers ceux où il est plus faible.

La compréhension de l'écoulement de l'eau dans le sol nécessite donc une étape préalable de description des potentiels de l'eau dans le sol.



1.1.2.1 Le potentiel hydrique total  $\Psi$  de l'eau

L'énergie totale de l'eau en un point du sol correspond à la somme de son énergie cinétique et son énergie potentielle.

$$E_{\text{totale}} = E_{\text{cinétique}} + E_{\text{potentielle}} \quad \text{Équation I-5}$$

Etant données les faibles vitesses d'écoulement, dues à la petite taille des pores, habituellement rencontrées dans les milieux poreux, l'ordre de grandeur de l'énergie cinétique est souvent négligeable devant celui de l'énergie potentielle :  $E_{\text{cinétique}} \ll E_{\text{potentielle}}$

on écrit alors

$$E_{\text{totale}} \approx E_{\text{potentielle}} \quad \text{Équation I-6}$$

L'état énergétique de l'eau dans le sol en un point est en fait couramment appréhendé par l'intermédiaire du **potentiel hydrique total  $\Psi$** , définie comme étant la densité volumique d'énergie potentielle de l'eau du sol (en  $\text{J.m}^{-3}$ ). Ce potentiel est composé principalement :

1. **du potentiel de gravité  $\Psi_g$** , lié à la position du fluide dans le champ gravitationnel et donné par la relation suivante

$$\Psi_g = -\rho_l \cdot g \cdot (z - z_0) = -\rho_l \cdot g \cdot z \quad \text{Équation I-7}$$

$g$  : accélération gravitationnelle,

$\rho_l$  : masse volumique de l'eau,

l'axe  $z$  étant orienté vers le bas avec  $z_0 = 0$  pris comme référence,

2. **du potentiel osmotique  $\Psi_o$** , lié à la concentration d'éléments dissous contenus dans l'eau du sol,
3. **Et du potentiel tensiométrique  $\Psi_t$** , assimilable (lorsque le sol est indéformable, la force ionique négligeable et la pression de l'air constante et égale à la pression atmosphérique  $P_0$ ) au **potentiel matriciel ou capillaire  $\Psi_c$**  donné par la relation suivante :

$$\Psi_c = P_l - P_0 = \rho_l \cdot g \cdot h \quad \text{Équation I-8}$$

Avec  $p_l$  pression de l'eau liquide et  $h$  hauteur manométrique (en mètres) au point considéré.

Dans la zone non-saturée, où la pression  $P_l$  de l'eau est inférieure à la pression atmosphérique  $P_0$ ,  $h$  prend des valeurs négatives et est appelé **Tension** ou **Succion**. Dans la zone saturée, la pression exercée sur l'eau est supérieure à la pression atmosphérique,  $h$  est positif et appelée **pression hydrostatique**. Au niveau de la surface libre de la nappe,  $h$  est nulle, par définition.

Le potentiel osmotique  $\Psi_o$  est généralement négligé dans le calcul du potentiel total de l'eau en faisant l'hypothèse de concentrations très faibles, et/ou d'une répartition homogène des concentrations dans la solution du sol. Si cette simplification se révèle inadéquate pour les régions arides où des espèces chimiques peuvent s'accumuler à cause de l'évaporation (et éventuellement précipiter), elle est parfaitement justifiée dans notre cas. Le potentiel hydrique total  $\Psi$  de l'eau d'un sol non-saturé est donc souvent pris en compte sous sa forme réduite suivante :

$$\Psi = \Psi_g + \Psi_c = \rho_l \cdot g \cdot (h - z) \quad \text{Équation I-9}$$

Darcy (1856) introduit la notion de charge hydraulique  $H$ , en exprimant le potentiel total de l'eau sous la forme d'une énergie par unité de poids (unité qui correspond à une pression exprimée en hauteur d'eau équivalente) par la relation suivante :

$$H = \frac{\Psi}{\rho g} \quad \text{Équation I-10}$$

Enfin, dans le cadre de nos hypothèses simplificatrices présentées ci-dessus, si l'on considère un écoulement mono-directionnel avec l'axe  $z$  orienté vers le bas, on obtient (en notant que le potentiel matriciel dépend de la teneur en eau) :

$$H(\theta) = h(\theta) - z \quad \text{Équation I-11}$$

#### 1.1.2.2 Les équations de l'écoulement de l'eau

L'écoulement de l'eau dans le sol est régi par deux lois de référence :

##### 1. La loi de conservation de la masse,

**2. Une loi dynamique représentant la proportionnalité entre la densité de flux et le gradient du potentiel énergétique total de l'eau, source du mouvement,**

Dans l'ensemble de ce chapitre, les équations de l'écoulement de l'eau dans le sol sont établies de façon mono-directionnelle, parfois précédées de leur forme tridirectionnelle.

Les résultats obtenus sur colonne en laboratoire permettent en effet généralement de se limiter à une étude mono-directionnelle. De plus, en conditions naturelles, les transferts de masse dans la zone non-saturée, à l'échelle du terrain, sont essentiellement soumis à des gradients de potentiels verticaux. Enfin, nous rappelons pour convention l'orientation positive de l'axe z vers le bas.

En condition saturée, la teneur en eau volumique  $\theta$  est constante dans le temps et dans l'espace. Elle est égale à la teneur en eau volumique à saturation  $\theta_{\text{sat}}$ . La loi dynamique utilisée dans ce cas est la relation phénoménologique linéaire de Darcy (1856). Cette relation relie la densité de flux volumique d'eau « moyen »  $q$ , ou vitesse de Darcy, au gradient de charge hydraulique  $H$  :

$$\vec{q} = -\overline{\overline{K}}_{\text{sat}} \overrightarrow{\text{grad}}(H) \quad \text{Équation I-12 : Formule de Darcy}$$

avec  $\overline{\overline{K}}_{\text{sat}}$  ( $\text{m.s}^{-1}$ ) tenseur de conductivité hydraulique à saturation du milieu poreux. Ce paramètre a une valeur constante, caractéristique du milieu poreux considéré.

L'expression mono-directionnelle de cette formule I-12 suivant l'axe z s'écrit :

$$q = -K_{\text{sat}} \frac{dH}{dz} \quad \text{Équation I-13}$$

Dans le cas général d'un milieu à taux d'humidité variable, la variation de masse d'eau dans un EVR pendant un temps  $\Delta t$  est égale à la différence entre la quantité d'eau entrant et la quantité d'eau sortant de l'EVR pendant ce même laps de temps (Figure I-5).

Ceci conduit à l'équation aux dérivées partielles appelée « Equation de continuité » ou bilan de masse :

$$\frac{\partial}{\partial t}(\rho_l \theta) + \frac{\partial}{\partial z}(\rho_l q) = 0 \quad \text{Équation I-14 : Equation de continuité}$$

Dans le milieu naturel, la masse volumique de l'eau du sol est considérée comme constante et l'expression précédente peut alors être simplifiée selon :

$$\frac{\partial \theta}{\partial t} + \frac{\partial q}{\partial z} = 0 \quad \text{Équation I-15}$$

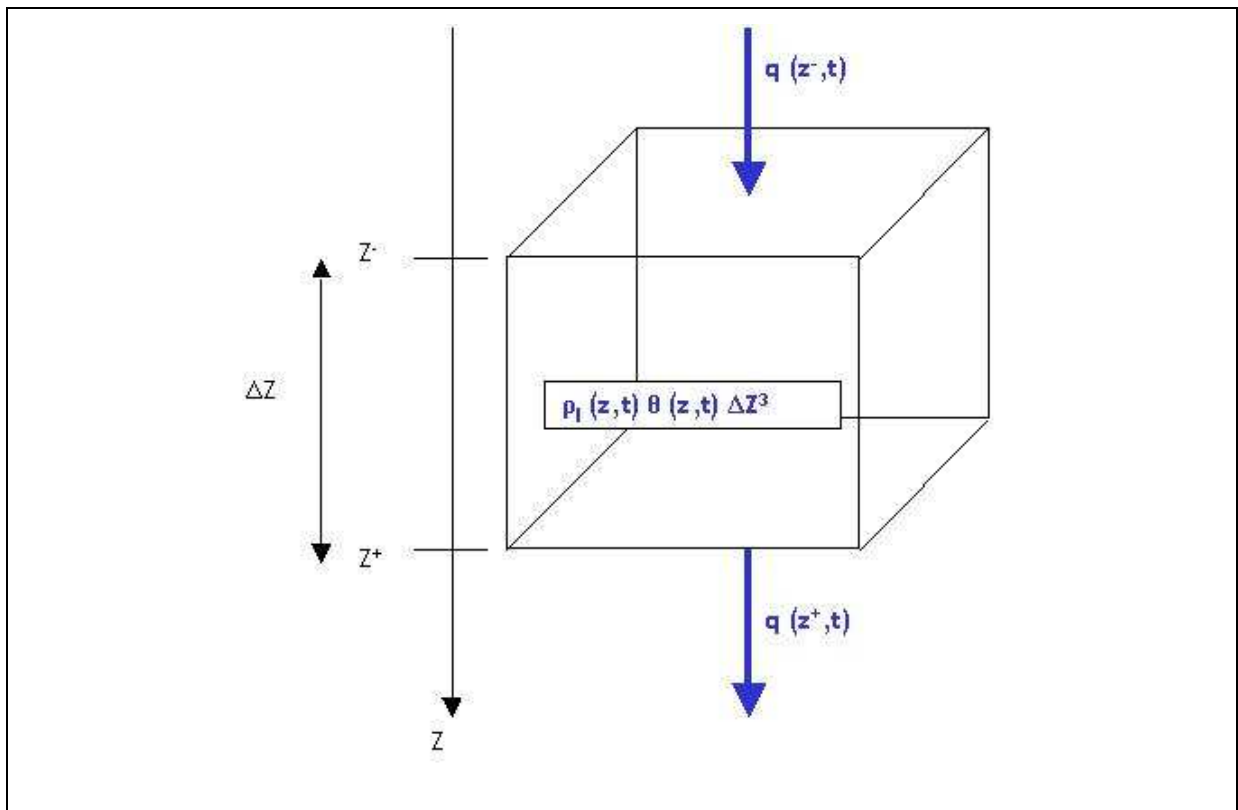


Figure I-5 : Illustration de la conservation de la masse d'eau au sein de l'EVR.

En revenant au milieu saturé, où il n'y a pas de variation de la teneur en eau volumique, on peut écrire (en tri-directionnel) :

$$\text{div } \vec{q} = 0 \quad \text{Équation I-16}$$

L'intégration de la formule de Darcy dans la formule de conservation de masse permet ainsi d'obtenir la formule de Laplace, expression mathématique décrivant l'écoulement de l'eau dans un sol saturé :

$$\boxed{\operatorname{div}(\overrightarrow{\operatorname{grad}} H) = 0} \quad \text{Équation I-17 : Formule de Laplace}$$

En milieu poreux non-saturé, la teneur en eau volumique  $\theta$  évolue dans le temps et dans l'espace tout en restant comprise entre  $\theta_{\text{sat}}$  et  $\theta_r$ . Nous considérerons ici deux types d'écoulement : (i) un régime transitoire, correspondant au régime d'écoulement rencontré réellement dans les conditions naturelles et (ii) le cas particulier du régime permanent (la teneur en eau et la vitesse de Darcy sont constantes en tout point de l'espace).

*Dans le cas particulier du régime d'écoulement permanent, par définition, toutes les dérivées partielles par rapport au temps sont nulles et donc :  $\frac{\partial \theta}{\partial t} = 0$ .*

La loi dynamique utilisée ici est celle de Buckingham (1907) qui élargit le domaine d'application de la formule de Darcy (équation I-12) aux sols non-saturés en considérant une conductivité  $K(\theta)$  dépendante de la teneur en eau :

$$\boxed{\vec{q} = -\overline{K}(\theta) \overrightarrow{\operatorname{grad}}(H)} \quad \text{Équation I-18 : Formule de Darcy-Buckingham}$$

Son expression mono-directionnelle suivant l'axe z est :

$$q = -K(\theta) \frac{dH}{dz} \quad \text{Équation I-19}$$

L'expression tri-directionnelle de la loi de conservation de masse, établie précédemment s'écrit :

$$\boxed{\operatorname{div} \vec{q} = -\frac{\partial \theta}{\partial t}} \quad \text{Équation I-20}$$

Pour obtenir l'expression décrivant de façon générale l'écoulement de l'eau dans un sol non-saturé, les deux lois décrites ci-dessus doivent être simultanément vérifiées. Pour cela, on intègre la formule de Darcy-Buckingham dans la formule de conservation de masse. L'équation obtenue est appelée formule de Richards (1931):

$$\boxed{\text{div}[\overline{K(\theta)} \cdot \overrightarrow{\text{grad}H}] = \frac{\partial \theta}{\partial t}} \quad \text{Équation I-21 : Formule de Richards}$$

L'expression mono-directionnelle, exprimée par rapport à la variable descriptive  $h$ , de cette formule, suivant l'axe  $z$ , s'écrit :

$$C(h) \cdot \frac{\partial h}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial z} \cdot \left[ K(h) \cdot \left( \frac{\partial h}{\partial z} - 1 \right) \right] \quad \text{Équation I-22}$$

où la fonction  $C(h) = \frac{\partial \theta}{\partial h}$  (en  $m^{-1}$ ) est appelée capacité spécifique du sol.

Les variables  $h$  et  $\theta$ , ainsi que la conductivité hydraulique  $K$ , varient simultanément et sont liées.

La résolution de l'équation de l'écoulement de l'eau en milieu poreux non saturé (formule de Richards) nécessite alors de connaître les expressions de  $h(\theta)$  et  $K(\theta)$ . Appelées respectivement courbes caractéristiques de rétention d'eau et de conductivité hydraulique, ces courbes, objets du paragraphe suivant, sont généralement abordées et définies par l'intermédiaire de fonctionnelles phénoménologiques.

### **I.1.3 Caractéristiques hydrauliques d'un sol non-saturé - $h(\theta)$ et $K(\theta)$**

L'évolution, dans un sol non-saturé, de la pression  $h$  de l'eau en fonction de la teneur en eau volumique  $\theta$  est fortement liée aux propriétés texturales (caractéristiques minéralogiques, granulométrie...) et structurales (dimension et organisation du réseau poral) du milieu poreux.

De la même façon, la courbe caractéristique de conductivité hydraulique  $K(\theta)$  représente l'évolution de la conductivité hydraulique  $K$  en fonction de la teneur en eau volumique  $\theta$ . Liée à la courbe caractéristique de rétention d'eau, cette courbe dépend également des propriétés texturales et structurales du milieu poreux.

Pour pouvoir prédire ou modéliser l'écoulement de l'eau dans un sol non-saturé, il faut disposer de fonctions permettant leur estimation. Dans cette optique, plusieurs types de fonctionnelles (approche phénoménologique/empirique) ont ainsi été établies. Les plus couramment utilisées, en milieu non saturé, sont celles de Van Genuchten (1980) et de Brooks et Corey (1964).

En pratique, ces courbes caractéristiques peuvent être estimées soit par le calcul à partir de données telles que la distribution granulométrique du sol (Szenknect, 2003), soit de façon expérimentale par quelques essais d'hydrodynamique (cf. Chapitre III).

### 1.1.3.1 Fonctionnelles de Van Genuchten

a) Courbe caractéristique de rétention d'eau  $h(\theta)$

Dans l'approche de Van Genuchten (1980), la courbe de rétention d'eau est donnée par la relation :

$$\Theta = \frac{\theta - \theta_r}{\theta_{sat} - \theta_r} = \left[ 1 + \left( \frac{h}{h_g} \right)^n \right]^{-m} \quad \text{Équation I-23}$$

Dans cette relation,  $h$  représente la hauteur manométrique de l'eau du sol (en cm),  $h_g$  est le paramètre de normalisation en pression (en cm) et  $m$  et  $n$  sont des paramètres de forme de la

courbe liés par l'expression :  $m = 1 - \frac{k_m}{n}$  avec  $k_m$  réel positif.

La variation de  $h$  en fonction de  $\theta$  par cette approche est illustrée Figure I-6.

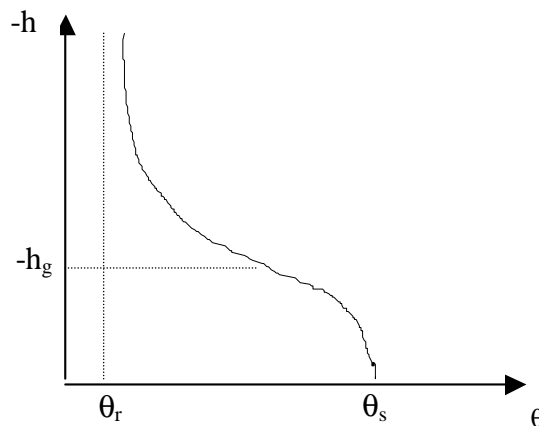


Figure I-6 : Fonctionnelle de Van Genuchten pour la courbe de rétention d'eau  $h(\theta)$ .

b) Courbe caractéristique de conductivité hydraulique  $K(\theta)$

La courbe caractéristique de conductivité hydraulique  $K(\theta)$  est obtenue en intégrant la courbe caractéristique de rétention d'eau  $h(\theta)$  dans l'expression générique suivante (Mualem et Dagan, 1978), illustrant la géométrie du réseau poral d'un sol pour la plupart des modèles capillaires :

$$\frac{K}{K_{\text{sat}}} = \Theta^a \left[ \frac{\int_0^\Theta h^{-(1+b)} d\Theta}{\int_0^1 h^{-(1+b)} d\Theta} \right]^2 \quad \text{Équation I-24}$$

avec  $b$  paramètre propre au modèle capillaire utilisé et  $a$  paramètre associé à la tortuosité du milieu poreux.

Pour obtenir l'expression analytique de la relation décrivant la courbe caractéristique de conductivité hydraulique  $K(\theta)$ , Van Genuchten introduit dans son approche de la rétention d'eau des valeurs de  $k_m$  entières. Ces valeurs sont liées au modèle de tubes capillaires choisi pour décrire la géométrie du réseau poral.

Pour le modèle de Burdine (1953),  $k_m = 2$ , et

$$m = 1 - \frac{2}{n} \quad \text{Condition de Burdine}$$

Tandis que pour celui de Mualem (1976),  $k_m = 1$ , et

$$m = 1 - \frac{1}{n} \quad \text{Condition de Mualem}$$

Dans l'approche de Van Genuchten, la courbe de conductivité hydraulique  $K(\theta)$ , obtenue avec la condition de Mualem, s'écrit alors :

$$\frac{K}{K_{\text{sat}}} = \Theta^a \left[ 1 - \left( 1 - \Theta^{\frac{1}{m}} \right)^m \right]^2 \quad \text{Équation I-25}$$

$a$  étant un paramètre lié à la tortuosité du milieu poreux.

### 1.1.3.2 Fonctionnelles de Brooks et Corey

a) Courbe caractéristique de rétention d'eau  $h(\theta)$



Dans l'approche de Brooks & Corey (1964), la courbe de rétention d'eau est donnée par la relation :

$$\begin{cases} \Theta = \frac{\theta - \theta_r}{\theta_{sat} - \theta_r} = \left(\frac{h_{bc}}{h}\right)^\lambda & \text{pour } h \leq h_{bc} < 0 \\ \theta = \theta_{sat} & \text{pour } h_{bc} \leq h \leq 0 \end{cases} \quad \text{Équation I-26}$$

Dans cette relation,  $h$  représente la hauteur manométrique de l'eau du sol (en cm),  $h_{bc}$  est le paramètre de normalisation en pression (en cm) et  $\lambda$  le paramètre de forme de la courbe.

L'allure de la courbe  $h(\theta)$  dans cette approche est présentée Figure I-7.

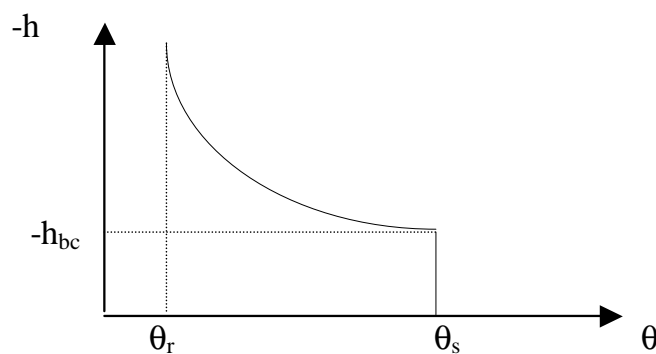


Figure I-7 : Fonctionnelle de Brooks et Corey pour la courbe de rétention d'eau  $h(\theta)$ .

b) Courbe caractéristique de conductivité hydraulique  $K(\theta)$

La courbe caractéristique de conductivité hydraulique  $K(\theta)$  de Brooks et Corey s'obtient de la même façon que celle de Van Genuchten en intégrant la courbe caractéristique de rétention d'eau dans l'expression générique de Mualem et Dagan (1978). La courbe caractéristique de conductivité hydraulique  $K(\theta)$  ainsi obtenue s'écrit :

$$\frac{K}{K_{sat}} = \Theta^{a+2+\frac{2}{\lambda}} \quad \text{Équation I-27}$$

Avec  $a$  paramètre lié à la tortuosité du milieu poreux et  $\lambda$  paramètre de forme de la courbe  $h(\theta)$ .

Les deux jeux de deux fonctionnelles, décrivant les courbes caractéristiques d'un sol non-saturé, nécessitent donc la détermination préalable de 6 paramètres :

$\theta_r$ ,  $\theta_{sat}$ ,  $h_g$ ,  $m$ ,  $K_{sat}$  et  $a$  pour les fonctionnelles de Van Genuchten/Mualem ;

$\theta_r$ ,  $\theta_{sat}$ ,  $h_{bc}$ ,  $\lambda$ ,  $K_{sat}$  et  $a$  pour les fonctionnelles de Brooks et Corey.

On peut noter que la courbe caractéristique de rétention d'eau, liée comme on l'a vu aux propriétés géométriques et minéralogiques du sol, peut ne pas être unique pour un sol donné. Le phénomène d'hystérésis (ou mémoire hydrique des sols), dû à l'agencement du réseau poral et à l'ensemble des cycles antérieurs d'infiltration/drainage que le sol a subi, peut générer un ensemble de courbes contenues généralement entre deux courbes enveloppes appelées branches principales en humidification (MWC) et en drainage (MDC) (Figure I-8).

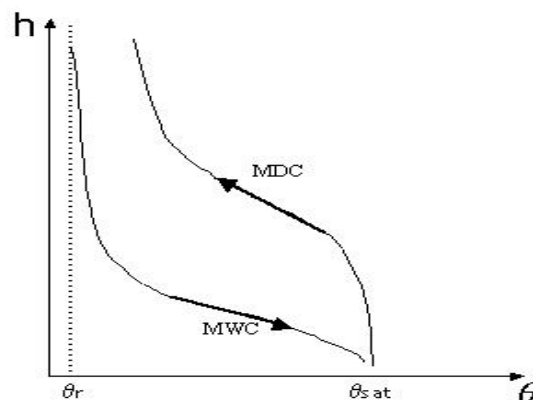


Figure I-8 : Représentation schématique des courbes principales en humidification (MWC) et en drainage (MDC) lors d'un cycle hystérétique (extrait de Szenknect, 2003).

L'effet d'hystérésis peut être important lors de l'infiltration de l'eau dans des sols initialement secs, au profil de teneur en eau non uniforme, mais son influence dans les conditions naturelles est généralement masquée par les hétérogénéités et la variabilité spatiale des sols (Vachaud et Thony, 1971). Nous n'avons pas pris en compte cet effet dans la présente étude.

## I.2 Modèles d'interactions chimiques soluté/matrice solide à l'équilibre

---

---

En milieu naturel, les solutés présents dans les écoulements souterrains ne sont généralement pas transportés de façon inerte dans le milieu poreux mais interagissent avec les autres phases (solide et gazeuse). La modélisation du transport de solutés dans les milieux poreux doit alors tenir compte de ces interactions, pouvant jouer un rôle prépondérant dans la répartition des concentrations de l'élément étudié au sein du milieu poreux.

En se plaçant dans le cas où le soluté n'interagirait qu'avec la matrice solide du milieu poreux, la prise en compte des interactions liquide/solide peut être appréhendée de deux façons :

- Soit de façon globale, en ne considérant qu'une seule espèce chimique, par des modèles empiriques tels que les isothermes de sorption et les  $K_d$  correspondants,
- Soit de façon plus explicite, à l'aide de modèles mécanistes décrivant les réactions géochimiques d'espèces en compétition tels que l'échange d'ions ou la complexation de surface par exemple.

### I.2.1 Approche opérationnelle (isotherme de sorption et $K_d$ )

L'approche opérationnelle consiste à caractériser la globalité des processus de rétention du soluté sur la matrice solide par l'intermédiaire d'une seule loi établie sur la répartition du soluté entre la phase aqueuse et la phase solide.

Cette loi, appelée « isotherme de sorption », est généralement obtenue à partir d'expériences réalisées dans des réacteurs fermés (tubes à essais ou « batch »), à une température et une pression données et en absence d'écoulement. Elle se présente sous la forme :

$$C_s = f(C_{aq}) \quad \text{Équation I-28}$$

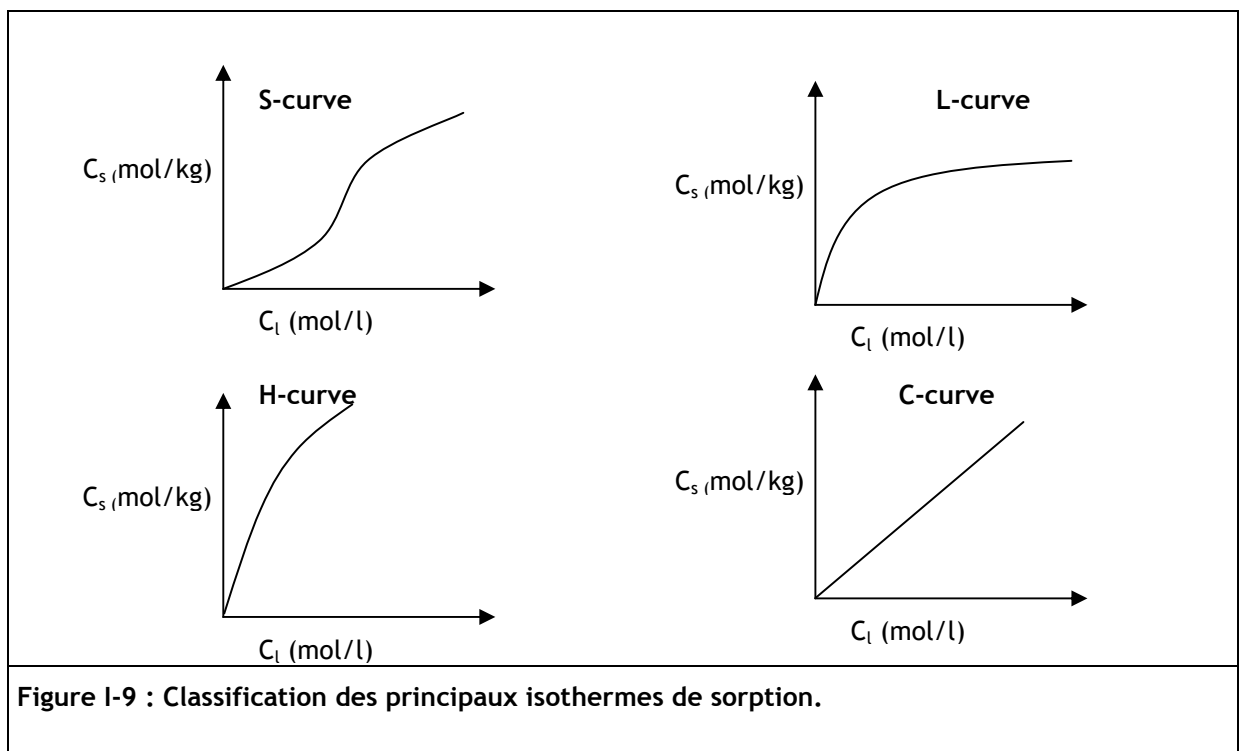
où  $C_s$  est la concentration ( $\text{mol.kg}^{-1}$  de solide) de l'élément sorbé sur le solide et  $C_{aq}$  la concentration ( $\text{mol.L}^{-1}$  de solvant) de l'élément présent dans la phase aqueuse.

La détermination de la concentration d'élément sorbé  $C_s$  se fait généralement par différence entre la concentration totale initiale  $C_{ini}$  et la concentration de soluté  $C_{aq}$  mesurée en phase aqueuse une fois l'équilibre atteint. On effectue ensuite un bilan de matière dans le tube à essai, au sein duquel on peut écrire :

$$C_{ini} = C_s \times \frac{msol}{V_{eau}} + C_{aq} \quad \text{Équation I-29}$$

Avec dans le tube :  $V_{eau}$  le volume d'eau ( $cm^3$ ),  $msol$  la masse de la phase solide (g).

La forme de l'isotherme obtenue permet de distinguer différents scénarios de sorption. Les 4 classes d'isotherme les plus fréquemment rencontrées (Sposito, 1984) et pouvant être décrites par des relations fonctionnelles sont présentées Figure I-9.



L'analyse de ces courbes permet de déterminer un comportement global du soluté vis-à-vis de la sorption :

S-curve : La sorption augmente ici brutalement à partir d'une certaine concentration de soluté.

L-curve : Isotherme de Langmuir, l'allure de la courbe montre ici l'apparition d'un effet de saturation des sites de sorption pour les fortes concentrations. La relation fonctionnelle

permettant de décrire ce modèle suppose alors l'existence d'un nombre fini de sites de sorption :

$$C_s = S_{\max} \cdot \frac{K \cdot C_{aq}}{1 + K \cdot C_{aq}} \quad \text{Équation I-30}$$

Avec  $S_{\max}$  nombre maximum de sites de sorption par kg de sol et K constante relative à l'énergie des sites de sorption.

H-curve : Isotherme de Freundlich, l'allure de la courbe révèle cette fois une grande affinité du solide pour le soluté et pas de saturation apparente. Ce modèle peut être décrit par une relation fonctionnelle du type :

$$C_s = K_d \cdot C_{aq}^n \quad \text{Équation I-31}$$

avec  $0 < n < 1$  et  $K_d$  coefficient de partage ou de distribution.

C-curve : Cas particulier d'isotherme de Freundlich pour lequel  $n=1$ . Appelé isotherme linéaire, la courbe montre ici une rétention de type linéaire, caractérisée par un rapport constant entre la quantité fixée sur le solide et la concentration en solution :

$$C_s = K_d \cdot C_{aq} \quad \text{Équation I-32}$$

Dans ce cas, le soluté décrit le « modèle de  $K_d$  ».

La description empirique des processus de rétention d'un soluté par des isothermes correspond à une approche des phénomènes à l'échelle macroscopique. Cette méthode ne permet pas de distinguer les mécanismes chimiques associés à la rétention - des mécanismes différents peuvent être représentés par la même isotherme - (Reardon, 1983 ; Davis et Kent, 1990). Mais étant donné la complexité des phénomènes mis en jeu, lors du transport d'un soluté dans un sol, l'approche globale ou empirique reste une méthode « opérationnelle » souvent utilisée pour la caractérisation des phénomènes de rétention sur la phase solide. L'approche par  $K_d$  se justifie en fait notamment lorsque l'on souhaite décrire le comportement « moyen » du soluté lors de son transfert et que les conditions expérimentales lors de la détermination des isothermes sont réellement représentatives des conditions dans lesquelles le  $K_d$  est par la suite employé (domaine de validité très restreint).

### **I.2.2 Approche mécaniste (Modèles géochimiques)**

L'approche géochimique de la rétention des solutés répond aux insuffisances parfois constatées de l'approche par isotherme. Cette approche, plus explicite, consiste à mettre en équations et à prendre en compte la plupart des réactions chimiques impliquant le soluté étudié. Les réactions à l'interface solide/liquide entraînant des phénomènes de rétention sont alors conceptualisées par des modèles tels que la complexation de surface ou l'échange d'ions. Les données à introduire dans les modèles géochimiques sont principalement les éléments chimiques considérés, les réactions chimiques qu'ils subissent et leurs constantes d'équilibre, d'éventuels taux cinétiques et des paramètres tels que les capacités d'échange cationique.

La principale contrainte de l'approche géochimique est le nombre de paramètres nécessaires pour faire fonctionner correctement les modèles. En particulier, les bases de données thermodynamiques ne fournissent pas toujours les constantes dont l'utilisateur a besoin, se contredisent parfois ou ne spécifient pas toujours la source des informations. Les données cinétiques sont pratiquement inexistantes. L'utilisateur se voit donc dans l'obligation de hiérarchiser les phénomènes afin de simplifier au maximum le modèle et limiter ainsi le nombre de paramètres à introduire dans le modèle.

Dans la suite de ce travail, nous comparons les résultats numériques obtenus par les deux types d'approches (globale et géochimique) pour modéliser nos résultats expérimentaux de transport de  $^{85}\text{Sr}$  au sein des colonnes de sable. Cet exercice a alors notamment pour objectif de vérifier et définir le plus précisément possible le domaine d'application envisageable pour l'approche moyenne par  $K_d$ .

## I.3 Transport en milieu poreux non-saturé

---

### I.3.1 Variable caractéristique

La variable caractéristique généralement utilisée pour l'étude du transport de soluté en milieu poreux est la concentration résidente totale  $C_t$  définie dans l'EVR par :

$$C_t = \frac{\text{quantité de soluté contenu dans l'EVR}}{\text{volume total de l'EVR}} = \frac{Q}{V_t} \quad \text{Équation I-33}$$

La quantité  $Q$  de soluté peut être exprimée soit par sa masse  $M$  (en kg) soit par son nombre de moles  $N$ . L'unité du volume total de l'EVR est généralement le  $m^3$ . L'unité de  $C_t$  est donc soit le  $kg.m^{-3}$  soit la  $mole.m^{-3}$ .

De façon générale, un soluté peut, s'il réagit avec la matrice solide du milieu poreux, se trouver à la fois dissous dans la phase liquide et fixé sur la phase solide. La concentration résidente totale  $C_t$  du soluté dans l'EVR s'écrit alors :

$$C_t = \theta \cdot C_{aq} + \rho_d \cdot C_s \quad \text{Équation I-34}$$

avec

$\theta$  teneur en eau volumique (sans unité),

$\rho_d$  masse volumique de la phase solide (en  $kg.m^{-3}$ ),

$C_{aq}$  et  $C_s$  concentrations respectives de soluté dans les phases liquide et solide à l'échelle de l'EVR, et elles-mêmes définies par les relations suivantes :

$$C_{aq} = \frac{Q_{aq}}{V_t} = \frac{Q_{aq}}{\theta \cdot V_t} \quad \text{Équation I-35}$$

$$C_s = \frac{Q_s}{V_s} = \frac{Q_s}{\rho_d \cdot V_t} \quad \text{Équation I-36}$$

avec

$Q_{aq}$  quantité de soluté présent en phase liquide,

$V_l$  volume de la phase liquide,

$Q_s$  quantité de soluté fixé sur la phase solide,

$V_s$  volume de la matrice solide.

Dans le cas d'un traceur de l'écoulement, le soluté ne réagit pas avec la matrice solide et se trouve uniquement présent en phase liquide, la concentration résidente totale s'écrit alors :

$$C_t = \theta \cdot C_{aq} \quad \text{Équation I-37}$$

### **I.3.2 Flux de solutés**

La modélisation mécaniste du transport de solutés en milieu poreux non-saturé nécessite une étude et une description plus détaillée des processus d'écoulement. Cette étape est généralement réalisée en étudiant le flux de matière au sein de la phase aqueuse à l'aide de molécules possédant un comportement proche de celui de la molécule d'eau. Ces éléments sont appelés « traceurs de l'écoulement ».

L'idéal est de pouvoir utiliser des molécules d'eau marquées par des isotopes soit de l'hydrogène (deutérium  $^2\text{H}$ , tritium  $^3\text{H}$ ) soit de l'oxygène ( $^{18}\text{O}$ ). La plupart des sols étant chargés négativement (notamment en présence de phases argileuses), certains anions (solutés interagissant peu avec la matrice solide) permettent également un bon traçage de l'eau. Les plus couramment utilisés sont les chlorures, les bromures et les sulfates. Cependant, des phénomènes d'exclusions anioniques, peuvent parfois venir fausser la caractérisation de l'écoulement par une arrivée précoce du soluté par rapport à la vitesse d'écoulement moyen.

Dans un milieu poreux homogène, les flux de matière (d'un traceur de l'écoulement) dans la phase liquide sont essentiellement attribués à deux phénomènes :

- la convection,
- et la dispersion hydrodynamique.



### 1.3.2.1 Flux par Convection

Le transport par convection correspond à l'entraînement du soluté par l'eau en mouvement. Il se caractérise par la vitesse convective  $v$  des molécules ou vitesse de pore dans la phase liquide du milieu poreux. Cette vitesse  $v$  est reliée au flux d'eau moyen  $q$  ou vitesse de Darcy par la teneur en eau volumique  $\theta$  suivant la relation :

$$v = \frac{q}{\theta} \quad \text{Équation I-38}$$

Le flux de soluté  $J_c$  transporté au sein de la phase liquide du milieu poreux uniquement par convection est donné par la formule :

$$J_c = q \cdot C_{aq} \quad \text{Équation I-39}$$

avec

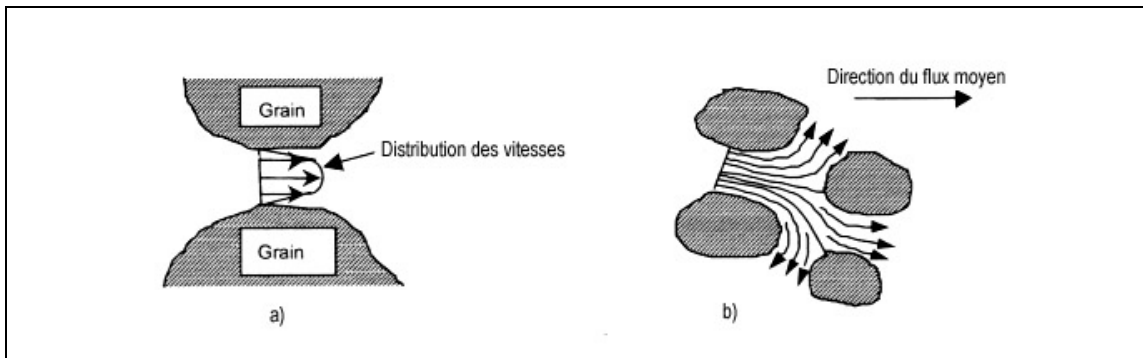
$J_c$  le flux massique ( $\text{kg} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ ) ou molaire ( $\text{mol} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ ) convectif,

et  $C_{aq}$  la concentration massique ou molaire de soluté dans la phase aqueuse.

### 1.3.2.2 Flux par dispersion hydrodynamique

Le flux par dispersion hydrodynamique résulte lui-même de deux phénomènes : la dispersion mécanique et la diffusion moléculaire :

la dispersion mécanique provient de l'hétérogénéité des vitesses d'écoulement dans le milieu poreux. Elle se caractérise par un coefficient de dispersion mécanique  $D_m$  englobant les effets de dispersion cinématique et de dispersion dynamique (Bear, 1972) ayant tendance à étaler le soluté autour du front convectif pur (Figure I-10)



**Figure I-10 : Hétérogénéités des vitesses d'écoulement dans un milieu poreux.**

- a) Illustration de la dispersion dynamique (variations des vitesses d'écoulement d'une ligne de courant à une autre)
- b) Illustration de la dispersion cinématique (variations de la longueur des lignes de courant au sein du milieu poreux)

la diffusion moléculaire est un phénomène indépendant de la vitesse du fluide. Elle provient de l'agitation des molécules qui tend à homogénéiser la concentration de soluté dans le milieu (migration des molécules des zones à fortes concentrations vers celles à faibles concentrations). Le flux  $J_D$ , massique ( $\text{kg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$ ) ou molaire ( $\text{mol}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$ ), de soluté transporté uniquement par diffusion moléculaire, suit généralement la première loi de Fick et peut être calculé à partir de la relation suivante :

$$J_D = -D_e \cdot \frac{\partial C_{aq}}{\partial z} \quad \text{Équation I-40}$$

où  $D_e$  est le coefficient de diffusion effectif ( $\text{m}^2\cdot\text{s}^{-1}$ ).

La dispersion hydrodynamique se caractérise globalement par un coefficient de dispersion  $D$  ( $\text{m}^2\cdot\text{s}^{-1}$ ) défini par la somme des coefficients de diffusion de pore  $D_p$  et de dispersion mécanique  $D_m$  :

$$D = D_p + D_m \quad \text{Équation I-41}$$

Où  $D_p$  est le coefficient de diffusion de pore  $D_p$  établi suivant la relation  $D_p = \frac{D_e}{\varepsilon}$ ,  $\varepsilon$  étant la porosité géométrique du milieu.

Le flux de soluté  $J_D$  transporté au sein de la phase liquide par dispersion hydrodynamique est donné par la formule :

$$J_D = -D \cdot \theta \cdot \frac{\partial C_{aq}}{\partial z} \quad \text{Équation I-42}$$

en  $\text{mol} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$  ou  $\text{kg} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$

Bear (1972) suggère que dans le cas d'un écoulement mono-dimensionnel, à partir d'une certaine vitesse de pore, la contribution du terme de diffusion moléculaire dans le calcul du coefficient de dispersion  $D$  peut être négligée devant celle de la dispersion cinématique.  $D$  peut alors être estimé par la relation suivante :

$$D = \alpha \cdot v \quad \text{Équation I-43}$$

avec  $\alpha$  (en mètre) coefficient de dispersivité (en m) du milieu poreux et  $v$  (en  $\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$ ) la vitesse de pore.

Dans le cadre d'expériences de transport sur colonnes de sols non-saturés, où les conditions sont assimilables aux critères de Bear, cette relation est souvent utilisée pour la détermination de  $D$ .

### 1.3.2.3 Flux total de soluté

En faisant l'hypothèse d'un écoulement de l'eau totalement homogène au sein du milieu poreux, le flux total de soluté  $J$  transporté au sein de la phase liquide se calcule alors en additionnant les flux transportés respectivement par convection,  $J_c$ , et par dispersion hydrodynamique,  $J_D$ . La formule permettant de calculer le flux total de soluté est donc :

$$J = J_c + J_D = q \cdot C_{aq} - D \cdot \theta \cdot \frac{\partial C_{aq}}{\partial z}$$

Équation I-44

Flux total de soluté (Convection et Dispersion)

### **I.3.3 Modélisation du transport de soluté en milieu poreux non-saturé**

Le transport d'un soluté en milieu poreux non-saturé (ou saturé) résulte simultanément, comme on l'a déjà vu, de l'expression des processus d'écoulement et de rétention à l'intérieur du milieu. Sa modélisation passe donc par le couplage de modèles d'hydrodynamiques et d'interactions physico-chimiques. Elle peut par ailleurs tenir compte, le cas échéant, d'effets cinétiques d'origine physique ou bien chimique.

L'utilisation d'un modèle possède par ailleurs toujours un domaine de validité (hypothèses d'équilibre thermodynamique, de réversibilité de sorption, etc...) qu'il faut toujours garder à l'esprit et essayer de définir le plus précisément possible. L'éventuel élargissement d'un domaine d'application (objet en partie de cette thèse pour ce qui concerne l'utilisation du modèle du  $K_d$  en régime hydraulique non saturé transitoire) devra donc être accompagné de l'information permettant de savoir dans quelles conditions cet élargissement peut être admis.

Pour ce qui concerne l'hydrodynamique, notre choix s'est porté sur deux modèles. Le premier, dit de simple porosité, fait intervenir uniquement les phénomènes convectifs et dispersifs dus à l'écoulement de l'eau (modèle Convection/Dispersion ou CDE). Le second, assimilable à un modèle de double porosité, et souvent employé dans les problématiques en milieu non saturé, permet quant à lui d'intégrer la présence d'une fraction d'eau mobile et d'une fraction d'eau immobile (modèle Mobile/Immobile ou MIM). Le choix entre les deux reposant finalement sur l'importance du rôle attribué aux hétérogénéités lors de l'analyse des processus d'écoulement du milieu étudié.

Ce paragraphe est consacré à la présentation, sous forme mono-dimensionnelle, des équations de quelques modèles de transport. Nous commençons par **le transport d'un soluté non-réactif** (tel que le tritium ou toute molécule assimilable à un traceur de l'eau) en utilisant une approche de transfert d'eau tout d'abord de type CDE puis de type MIM.

Nous poursuivons par **le transport d'un soluté réactif** en utilisant tout d'abord l'approche opérationnelle (ou globale par  $K_d$ ) associée au modèle de type CDE ou bien MIM. Nous finissons enfin par le transport réactif abordé de façon plus mécaniste par l'intermédiaire d'une approche multi-espèces du couplage géochimie/transport.

### 1.3.3.1 Transport non-réactif

#### 1.3.3.1.1 **Modèle Convection-Dispersion CDE (avec soluté non réactif)**

Avec le modèle de transfert CDE (Convection/Dispersion Equation), toute la phase liquide du milieu poreux est considérée comme un ensemble homogène participant à l'écoulement de l'eau au sein du réseau poral. Le flux de matière n'est alors soumis qu'aux phénomènes convectifs et dispersifs.

Par analogie avec le principe de conservation de masse d'eau dans un EVR, vu précédemment, la relation suivante décrit ce modèle basé cette fois sur le principe de conservation de masse de soluté :

$$\boxed{\frac{\partial C_t}{\partial t} = -\frac{\partial J}{\partial z}} \quad \text{Équation I-45}$$

avec J flux total de soluté correspondant à la somme des flux convectifs et dispersifs et  $C_t$  concentration résidente totale du traceur. On rappelle que  $J = J_c + J_D = q \cdot Caq - D \cdot \theta \cdot \frac{\partial Caq}{\partial z}$  et que  $C_t = \theta \cdot Caq$  dans le cas d'un traceur de l'écoulement.

La substitution de J et  $C_t$ , par les relations rappelées ci-dessus, dans la formule de conservation de masse permet alors d'obtenir l'équation générale du modèle de convection/dispersion, dont l'expression mono-dimensionnelle suivant l'axe z est :

$$\boxed{\frac{\partial(\theta \cdot Caq)}{\partial t} = -\frac{\partial}{\partial z} (q \cdot Caq - D \cdot \theta \cdot \frac{\partial Caq}{\partial z})} \quad \text{Équation I-46 : Expression mono-dimensionnelle générale du modèle de transport CDE pour un soluté non-réactif en milieu poreux non saturé.}$$

Dans le cas particulier d'un régime d'écoulement unidirectionnel et permanent, où la vitesse, la teneur en eau et la dispersion ne dépendent plus de l'espace et du temps, le développement de l'équation générale permet certaines simplifications dans le développement ci-dessous :

$$\theta \cdot \frac{\partial Caq}{\partial t} + Caq \cdot \frac{\partial \theta}{\partial t} = -q \cdot \frac{\partial Caq}{\partial z} - Caq \cdot \frac{\partial q}{\partial z} + D \cdot \left[ \theta \cdot \frac{\partial^2 Caq}{\partial z^2} + \frac{\partial Caq}{\partial z} \cdot \frac{\partial \theta}{\partial z} \right] + \theta \cdot \frac{\partial Caq}{\partial z} \cdot \frac{\partial D}{\partial z}$$

on obtient alors l'expression :

$$\frac{\partial Caq}{\partial t} + v \cdot \frac{\partial Caq}{\partial z} - D \cdot \frac{\partial^2 Caq}{\partial z^2} = 0$$

**Équation I-47 : Expression mono-dimensionnelle du modèle de transport CDE pour un soluté non-réactif en régime hydraulique non saturé permanent.**

avec  $v = \frac{q}{\theta}$  vitesse de pore ( $m \cdot s^{-1}$ )

Le paramètre caractéristique devant alors être déterminé dans ces conditions est le coefficient de dispersion D. Ce dernier regroupe à la fois les effets de la diffusion moléculaire et de la dispersion mécanique.

Ce coefficient est généralement appréhendé par l'intermédiaire de la relation établie par Bear (1972) et vue précédemment :  $D = \alpha \cdot v$  où  $\alpha$  est le coefficient de dispersivité du milieu poreux et v la vitesse de pore.

### I.3.3.1.2 Modèle Mobile-Immobile MIM (avec soluté non réactif)

Le modèle de transfert MIM (Mobile/Immobile), développé par Coats et Smith (1964), puis Van Genuchten et Wierenga (1976), Gaudet et al. (1977) permet quant à lui de prendre notamment en compte les effets cinétiques provoqués par la régionalisation de l'écoulement de l'eau et l'apparition de chemins préférentiels (non-équilibre physique) en réponse par exemple aux hétérogénéités texturales et structurales rencontrées en conditions naturelles dans les milieux poreux. Dans ce modèle, la phase liquide contenue dans le milieu poreux est divisée en deux régions distinctes :

une région d'eau mobile, au sein de laquelle le transfert de soluté est décrit par une équation de convection/dispersion,

une région d'eau immobile (eau pelliculaire liée à la matrice solide, zone d'eau morte ou de beaucoup plus faible conductivité), au sein de laquelle le transfert de soluté s'effectue principalement par diffusion moléculaire et pour laquelle la dispersion est considérée comme étant nulle. Le transfert de masse par diffusion entre la zone mobile et la zone immobile est généralement modélisé par une cinétique du premier ordre.

Ainsi en faisant l'hypothèse d'une répartition uniforme des teneurs en eau mobile et immobile, les équations du modèle MIM pour un écoulement permanent et unidirectionnel s'écrivent (Gaudet et al., 1977 ; Février, 2001 ; Szenknect, 2003) :

$$\frac{\partial C_m}{\partial t} + \frac{\theta_{im}}{\theta_m} \frac{\partial C_{im}}{\partial t} - D_m \frac{\partial^2 C_{im}}{\partial z^2} + v_m \frac{\partial C_m}{\partial z} = 0$$

Équation I-48 : Expression mono-dimensionnelle du modèle de transport MIM pour un soluté non-réactif en régime hydraulique non saturé permanent.

et 
$$\theta_{im} \left( \frac{\partial C_{im}}{\partial t} \right) = k_M (C_m - C_{im})$$

Avec

$$\theta = \theta_{im} + \theta_m$$

$C_m$  concentration résidente de soluté dans la fraction d'eau mobile ( $\text{kg.L}^{-1}$  ou  $\text{mol.L}^{-1}$ ),

$C_{im}$  concentration résidente de soluté dans la fraction d'eau immobile ( $\text{kg.L}^{-1}$  ou  $\text{mol.L}^{-1}$ ),

$\theta_m$  teneur en eau volumique mobile ( $\text{m}^3.\text{m}^{-3}$ ),

$\theta_{im}$  teneur en eau volumique immobile ( $\text{m}^3.\text{m}^{-3}$ ),

$D_m$  coefficient de dispersion dans la fraction d'eau mobile ( $\text{m}^2.\text{s}^{-1}$ ),

$v_m = q/\theta_m$  vitesse dans la fraction d'eau mobile ( $\text{m}.\text{s}^{-1}$ ),

$k_M$  coefficient cinétique de transfert de masse de soluté entre les fractions mobiles et immobiles ( $\text{s}^{-1}$ ).

Pour un traceur de l'écoulement, la totalité de la masse de soluté se trouve en phase liquide (Jury et Roth, 1990), on a donc :  $C_t = \theta.C_{aq} = \theta_m.C_m + \theta_{im}.C_{im}$

Les paramètres caractéristiques nécessaires pour ce modèle sont :

la fraction d'eau mobile  $f = \frac{\theta_m}{\theta}$  définissant le degré de régionalisation de l'écoulement, sachant que si  $f = 1$  alors l'écoulement est homogène et le modèle se réduit à CDE, le coefficient cinétique d'échange  $k_M$ , pour caractériser le flux de matière par diffusion entre les deux régions d'eau (si  $k_M = 0$  l'échange est nul et le soluté est donc transporté uniquement au sein de la région d'eau mobile par les phénomènes de convection/dispersion, mais de façon plus rapide que dans le cas d'un modèle CDE classique ; si  $k_M$  tend vers l'infini l'échange est très rapide, le système tend vers un nouvel équilibre où le soluté possède une concentration homogène dans tout le volume poral), et le coefficient de dispersion hydrodynamique  $D_m$  de la région mobile, la dispersion étant considérée comme nulle dans la fraction d'eau immobile ( $D_{im}=0$ ). On a alors  $D_m = \alpha \cdot v_m$  où  $\alpha$  est la dispersivité du milieu poreux et  $v_m$  la vitesse de pore dans la région d'eau mobile.

Ce modèle a été utilisé avec succès pour décrire l'écoulement de l'eau et le transport de soluté en condition hydrodynamique non-saturée (Gaudet et al., 1977 ; De Smedt et Wierenga, 1984 ; Bond et Wierenga, 1990 ; Maraqa et al., 1997 ; Fesch et al., 1998 a et b ; Kamra et al., 2001 ; Comegna et al., 2001 ; Février, 2001 ; Szenknect, 2003).

### 1.3.3.2 Transport réactif (mono et multi-especes)

#### **1.3.3.2.1 Approche opérationnelle à une seule espèce (isotherme de sorption et Kd)**

Dans l'approche opérationnelle globale, la totalité des interactions chimiques du soluté est intégrée et couplée à l'hydrodynamique (CDE ou MIM) du système par l'intermédiaire d'un modèle mono-élémentaire de rétention (Kd, Langmuir, Freundlich). Le modélisateur doit alors résoudre un système d'équations différentielles non linéaires couplées.

Le logiciel de modélisation par approche globale utilisé dans le cadre de notre étude est Hydrus-1D (Simunek J. et al., 1998). Nous avons choisi ce code de calcul car il permet de traiter les



phénomènes de transport réactif en condition saturée et non-saturée, pour des régimes d'écoulements permanents ou transitoires.

### I.3.3.2.1.1 Le modèle CDE (avec soluté réactif)

En se plaçant dans le cas d'un soluté réactif instable (ex : isotope radioactif), le bilan de masse de soluté au sein de l'EVR s'écrit :

$$\frac{\partial C_t}{\partial t} = -\frac{\partial J}{\partial z} - r_t$$

**Équation I-49 : Expression de conservation de la masse  
d'un soluté réactif radioactif au sein de l'EVR.**

où  $r_t = -\left[\frac{\partial C_t}{\partial t}\right] = \lambda \cdot C_t$  et  $\lambda$  (en  $s^{-1}$ ) exprime la décroissance radioactive de l'élément.

En émettant par ailleurs les hypothèses suivantes :

milieu poreux homogène,

écoulement permanent,

profil de teneur en eau uniforme,

ensemble de l'eau mobile,

décroissance identique dans toutes les phases du milieu,

transport de soluté uniquement en phase liquide,

et en rappelant que la concentration résidente totale d'un soluté réactif est donnée par la relation  $C_t = \theta \cdot C_{aq} + \rho_d \cdot C_s$ , l'équation de modélisation globale du transport d'une seule espèce réactive instable à partir du modèle CDE s'écrit :

$$\theta \cdot \frac{\partial C_{aq}}{\partial t} + \rho_d \cdot \frac{\partial C_s}{\partial t} = -q \cdot \frac{\partial C_{aq}}{\partial z} + D \cdot \theta \cdot \frac{\partial^2 C_{aq}}{\partial z^2} - \lambda \cdot (\theta \cdot C_{aq} + \rho_d \cdot C_s)$$

En intégrant ensuite un modèle de rétention du type isotherme linéaire ( $C_s = K_d \cdot C_{aq}$ ), l'équation permettant de connaître la concentration de soluté en phase aqueuse en fonction du temps et de l'espace s'écrit :

**Équation I-50 : Expression mono-dimensionnelle du modèle de transport CDE pour un soluté réactif instable en condition non saturée permanente.**

$$R \cdot \frac{\partial C_{aq}}{\partial t} = -v \cdot \frac{\partial C_{aq}}{\partial z} + D \cdot \frac{\partial^2 C_{aq}}{\partial z^2} - \lambda \cdot R \cdot C_{aq}$$

où  $R = 1 + \frac{\rho_d \cdot K_d}{\theta}$  est appelé facteur de retard. A noter que c'est cette relation qui a été validée expérimentalement en condition saturée pour de nombreux éléments, mais aussi en condition non-saturée permanente dans le cas du transport du strontium85 au sein de colonnes de sable de Tchernobyl dans le cadre de la thèse de S. Szenknect (2003).

### I.3.3.2.1.2 Le modèle MIM (avec soluté réactif)

L'utilisation du modèle d'écoulement Mobile/Immobile apparaît souvent mieux approprié en milieu poreux non-saturé, lorsque le rôle joué sur le transport de soluté par l'apparition de zones d'eau stagnante devient non négligeable.

Dans ce modèle, les concentrations de soluté dans la phase liquide  $C_{aq}$  et sur la phase solide  $C_s$  sont données par les relations suivantes :

$$C_{aq} = \frac{\theta_m}{\theta} \cdot C_m + \frac{\theta_{im}}{\theta} \cdot C_{im} = f \cdot C_m + (1-f) \cdot C_{im}$$

**Équations I-51**

$$C_s = \frac{N_m}{N_t} \cdot S_m + \frac{N_{im}}{N_t} \cdot S_{im} = f' \cdot S_m + (1-f') \cdot S_{im}$$

avec

$C_m$  concentration de soluté dans la phase liquide mobile (en  $\text{kg} \cdot \text{L}^{-1}$ ),

$C_{im}$  concentration de soluté dans la phase liquide immobile (en  $\text{kg} \cdot \text{L}^{-1}$ ),

$S_m$  concentration de soluté dans la phase solide au contact de l'eau mobile (en  $\text{kg} \cdot \text{kg}^{-1}$ ),

$S_{im}$  concentration de soluté en phase solide au contact de l'eau immobile (en  $\text{kg} \cdot \text{kg}^{-1}$ ),

$f = \theta_m / \theta$  fraction d'eau mobile,

$N_m$  nombre de sites réactifs en contact avec l'eau mobile,

$N_{im}$  nombre de sites réactifs en contact avec l'eau immobile,

$N_t$  nombre de sites réactifs total,

et  $f' = N_m / N_t$  fraction de sites réactifs en contact avec l'eau mobile.

La concentration résidente totale de soluté  $C_t$  dans l'EVR pour ce modèle s'écrit donc :

$$C_t = \theta_m C_m + \theta_{im} C_{im} + \rho_d [f' S_m + (1 - f') S_{im}] \quad \text{Équation I-52}$$

Si l'on émet, de plus, les hypothèses suivantes :

dans la région dynamique du sol (zone d'eau mobile et phase solide en contact avec elle), les concentrations de solutés sont considérées à l'équilibre,

dans la région stagnante (zone d'eau immobile et phase solide en contact avec elle), le processus de sorption est contrôlé par la diffusion à travers l'eau immobile (présence d'un gradient de concentration entre l'eau mobile et l'eau immobile). Le transfert de masse de soluté de l'eau mobile vers l'eau immobile suit une loi cinétique du premier ordre, caractérisée par un coefficient cinétique de transfert  $k_m$ ,

la réactivité des sites de surface du solide est la même au contact de l'eau mobile et immobile. La réaction de sorption est considérée comme instantanée dans les deux cas et prise en compte par l'intermédiaire d'une isotherme linéaire, d'où :

$$S_m = K_d \cdot C_m \quad \text{et} \quad S_{im} = K_d \cdot C_{im}$$

ainsi que les hypothèses suivantes :

milieu poreux homogène,

régime d'écoulement permanent,

profil de teneur en eau uniforme,

et transport de soluté par convection/dispersion uniquement en phase liquide mobile,

l'équation générale de modélisation globale du transport d'un soluté réactif à partir du modèle MIM, obtenue sur la base du principe de conservation de masse d'un élément dans l'EVR est :

$$\theta_m \frac{\partial C_m}{\partial t} + \theta_{im} \frac{\partial C_{im}}{\partial t} + \rho_d f' \frac{\partial S_m}{\partial t} + \rho_d (1 - f') \frac{\partial S_{im}}{\partial t} = -q \frac{\partial C_m}{\partial z} + D_m \theta_m \frac{\partial^2 C_m}{\partial z^2}$$

**Équation I-53 : Expression mono-dimensionnelle du modèle de transport MIM pour un soluté réactif en condition hydraulique non saturée permanente.**

dans laquelle  $\theta_{im} \frac{\partial C_{im}}{\partial t} = k_M (C_m - C_{im}) - \rho_d (1 - f') \frac{\partial S_{im}}{\partial t}$  exprime le transfert de masse entre l'eau mobile et immobile suivant une loi cinétique du premier ordre.

Enfin, si l'on suppose, bien que ce soit rarement le cas en conditions naturelles, que la répartition des sites réactifs à la surface de la phase solide est uniforme, soit  $f' = f$ , les relations précédentes peuvent encore s'écrire :

$$(\theta_m + f \cdot \rho_d \cdot K_d) \frac{\partial C_m}{\partial t} + (\theta_{im} + (1 - f) \cdot \rho_d \cdot K_d) \frac{\partial C_{im}}{\partial t} = -q \cdot \frac{\partial C_m}{\partial z} + D_m \theta_m \cdot \frac{\partial^2 C_m}{\partial z^2}$$

$$\text{et } (\theta_{im} + (1 - f) \cdot \rho_d \cdot K_d) \frac{\partial C_{im}}{\partial t} = k_M \cdot (C_m - C_{im})$$

### I.3.3.2.2 Approche multi-espèces chimiques ou couplée géochimie/transport

L'approche couplée géochimie/transport est davantage orientée vers une analyse et une description précise des mécanismes de rétention du soluté. L'espace du milieu étudié est discrétisé en cellules successives au sein desquelles s'effectue le couplage des processus hydrauliques (modèle CDE ou MIM) et chimiques. Le problème est résolu en traitant une seule équation différentielle pour le transport, et en recalculant les nouveaux équilibres chimiques (série d'équations algébriques) à chaque pas de temps.

Les mécanismes d'interactions les plus fins et les plus complexes peuvent ainsi être pris en compte, mais les temps de calculs nécessaires sont plus importants que lors d'une approche globale.

Phreeqc (Parkhurst et Appelo, 1999) et Hytec (Ecole des mines de Paris) sont deux exemples de logiciels de modélisation couplée géochimie/transport, parmi d'autres, pouvant être employés pour les problématiques de transport de solutés dans les sols.

Nous avons vérifié dans un premier temps, si, pour les conditions chimiques particulières de notre étude et en régime hydraulique non saturé permanent, les résultats obtenus pour le transport d'un radionucléide avec une approche globale (modèle hydrodynamique CDE et de sorption linéaire  $K_d$  avec le code de transport Hydrus-1D) concordaient avec ceux obtenus par modélisation géochimique à l'aide d'un modèle d'échange d'ions (modélisation couplé géochimie/transport avec Phreeqc). Les résultats de cette comparaison étant satisfaisants (Mazet, 2005), l'approche opérationnelle par  $K_d$  était évaluée favorablement pour nos conditions opératoires. L'étude portant sur la pertinence de l'utilisation du modèle opérationnel  $K_d$  pour des conditions hydrauliques non saturées transitoires pouvait donc maintenant être envisagée.

#### *1.3.3.3 Influence des écoulements transitoires sur la mobilité d'un soluté en milieu poreux non saturé*

Pour des raisons à la fois théorique (simplification des systèmes d'équations à résoudre), méthodologique (découplage des phénomènes étudiés) ou bien expérimentales (difficulté d'acquisition des données, durée de réalisation des expériences), l'étude des transferts de solutés à travers la zone non saturée est souvent appréhendée en régime hydrodynamique permanent (flux d'eau d'alimentation et teneur en eau au sein des colonnes constants).

Dans notre étude, l'appréhension de la migration des solutés dans les sols partiellement saturés en eau par un régime d'écoulement permanent laisse notamment en suspend les questions suivantes :

- Certains phénomènes physiques ou chimiques de transport, présents sur le terrain, liés aux augmentations et diminutions successives de saturation en eau dans le sol, ne sont-ils pas oubliés ?
- Ces phénomènes jouent-ils un rôle ou non quant au devenir d'un soluté dans un sol non saturé ?
- L'approche opérationnelle des phénomènes de sorption avec un modèle de  $K_d$ , du type linéaire et considéré constant, peut-elle encore être considérée comme satisfaisante en régime hydraulique non saturé transitoire ? si oui, dans quelles conditions ?

- L'approximation d'un écoulement non saturé permanent (nécessitant moins de données d'entrée, moins d'acquisition sur le terrain et moins de puissance et de temps de calculs) est-elle parfois satisfaisante ? si oui dans quels cas et pour quelle teneur en eau équivalente ? Comment appréhender alors le facteur de retard  $R$  et la dispersivité  $\alpha$  ?

Dans la littérature, la problématique des transitoires hydrauliques est essentiellement abordée expérimentalement dans le cadre :

- de la lixiviation des sols salés par apports intermittents d'eau,
- ou de l'infiltration simultanée d'eau et de soluté à la surface d'un sol.

Le scénario qui nous intéresse est l'avancée d'un front de soluté réactif, initialement présent dans le sol, lors de l'application successive de cycles d'infiltration/redistribution d'eau en équilibre géochimique avec la phase solide du sol. Bien que ce scénario corresponde à une réalité tout à fait envisageable sur le terrain, peu d'études lui ont été consacrées jusqu'à présent. La lecture des travaux concernant le sujet révèle par ailleurs quelque chose de tout à fait intéressant dans le sens où des conclusions paradoxales apparaissent concernant l'équivalence entre régime hydraulique non saturé transitoire et régime hydraulique non saturé permanent équivalent selon les conditions expérimentales explorées.

Certaines études montrent en effet que le transport d'un soluté non réactif (Dugui J.O. and Reeves M., 1976 ; Sandmann, 1996 ; Meyer-Windel S. et al., 1999, Wierenga P.J., 1977) ou réactif (Meyer-Windel S. et al., 1999), et notamment la distance parcourue, est identique quel que soit le régime hydraulique auquel il est soumis, à partir du moment où la quantité cumulée d'eau ayant percolé dans le sol est similaire.

Rambow J. (Rambow J. and Lennartz Bernd, 1993) et Zurmühl T. (Zurmühl T., 1998) montrent qu'un régime hydraulique permanent pour leurs conditions expérimentales n'apparaît pas suffisant pour représenter correctement les résultats obtenus en régime transitoire, probablement en raisons de

phénomènes de non-équilibre chimiques se manifestant durant les périodes de redistribution d'eau et d'une dispersion plus importante en transitoire.

La valeur « constante » à donner à la dispersivité  $\alpha$  dans le cadre d'un scénario en régime permanent ne semble pas évidente à déterminer. En effet, comme le souligne Wierenga P.J. (1977) la dispersion est généralement appréhendée par la relation  $D=\alpha.v$ . La dispersion est donc dépendante de la vitesse de pore et doit normalement être plus importante près de la surface (où l'amplitude des variations de vitesse de pore lors d'un épisode hydraulique transitoire sont importantes) que plus en profondeur où la teneur en eau est plus faiblement perturbée.

L'influence des écoulements hydrauliques non saturés transitoires sur la mobilité d'un soluté dans un milieu poreux semble donc dépendre en grande partie de la nature des interactions géochimiques entre le soluté et la matrice solide. La comparaison des temps caractéristiques des phénomènes impliqués dans le transport de l'élément apparaît comme une voie à explorer pour déterminer l'influence du régime hydraulique.

L'étude de l'évolution de la distance parcourue par le soluté en fonction de la lame d'eau cumulée ayant percolée dans le sol, sera également explorée.

#### Résolution numérique et analytique des problématiques de transport de soluté dans les sols :

Les équations ou les systèmes d'équations décrits précédemment, assortis des conditions initiales et aux limites d'intérêt, peuvent être résolus numériquement. Lorsqu'elles existent (coefficients constants ou linéarisations valables) on peut également utiliser des solutions analytiques.

## I.4 Dynamique des systèmes et Méthode des Moments

---

---

### I.4.1 Dynamique des systèmes

La dynamique des systèmes est un outil alternatif et complémentaire très puissant dans l'étude du transfert de soluté dans les sols.

Un système est un volume que l'on peut isoler, obéissant à la fois à des lois physico-chimiques et réagissant à des entrées en fournissant des signaux de sorties caractéristiques. Une parcelle de terrain ou bien une colonne de sol peuvent être considérées comme des systèmes.

La dynamique des systèmes permet de caractériser le comportement global du système en représentant son fonctionnement à partir d'une fonction de transfert  $F(t, p_i)$  (Figure I-11).

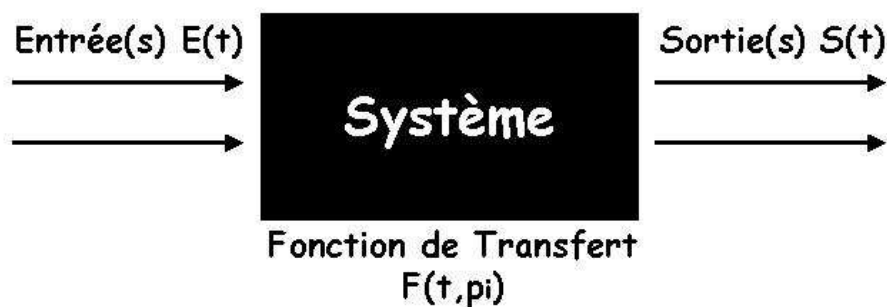


Figure I-11 : Représentation du principe de la Dynamique des systèmes. Pour un système linéaire,  $S(t)$  correspond au produit de convolution de  $E(t)$  par la Distribution des Temps de Séjours DTS, dont la transformée de Laplace est la fonction de transfert du système (Jury et al., 1986).

Dans cette approche, de type « boîte noire », le signal de sortie  $S(t)$  d'un système linéaire correspond au produit de convolution du signal d'entrée  $E(t)$  par la distribution des temps de séjours DTS, dont la transformée de Laplace est la fonction de transfert du système (Marcos, 2001 - p.60).

En pratique, la dynamique des systèmes est souvent utilisée pour identifier la fonction de transfert. Le travail consiste alors à :



- Appliquer tout d'abord proprement un signal d'entrée  $E(t)$ . Une impulsion de Dirac par exemple, fonction assimilable à une impulsion quasi instantanée, définie par

$$\delta(t)=0 \quad \forall t \neq 0$$

$$\int_{-\infty}^{+\infty} \delta(t).dt=1$$

Équation I-54 : La fonction de Dirac

est un signal fréquemment employé.

- Mesurer le signal de sortie  $S(t)$ ,
- Traiter le signal  $S(t)$  par la méthode des moments (cf.1.4.2),
- Mettre du « gris » dans la boîte (système) en intégrant les informations recueillies lors de l'analyse de  $S(t)$  dans la fonction de transfert.

La dynamique des systèmes permet de déterminer l'un des trois éléments caractéristiques du système (Entrée, Fonction de Transfert ou Sortie) connaissant les deux autres. L'application d'une telle approche peut alors permettre de prédire notamment la réponse du système à un signal d'entrée quelconque ou bien encore d'identifier une source (pollution, réaction géochimique) à partir de la mesure de la réponse. Si le système est linéaire, la fonction de transfert est caractérisée par un jeu de paramètres et une solution uniques. L'analyse des résultats obtenus lors de sollicitations successives bien choisies sur un système permet d'en vérifier la nature linéaire ou non.

Les modèles conceptuels de transfert d'éléments chimiques dans les sols sont nombreux. Nous discutons ici trois des plus couramment employés dans les problématiques de transfert dans les sols partiellement saturé en eau : le modèle piston, le modèle convection/dispersion et le modèle de non-équilibre physique mobile/immobile.

Dans le cas du **modèle piston**, si le signal d'entrée est une fonction de Dirac, alors la réponse impulsionnelle (ou distribution des temps de séjour) correspond également à une fonction de Dirac. Il n'y a dans ce cas **aucune dispersion** du signal. Ce type de modèle correspond à un cas limite, très simple et peu réel de déplacement purement convectif rarement rencontré dans les problématiques

de migration dans les sols. Son intérêt vient cependant du fait qu'il peut permettre une première approximation du temps de séjour moyen  $T_s$  au sein d'un système. Lorsque le signal d'entrée est quelconque, le signal de sortie est identique à lui-même décalé dans le temps.

Dans le **modèle convection/dispersion**, la réponse du système à un signal d'entrée de type Dirac est généralement une Gaussienne plus ou moins étalée dans le temps. Le temps de séjour ou temps convectif moyen  $T_s$  du centre de masse est identique au modèle piston. Ce modèle est plus proche de la réalité des mesures effectuées lors d'expériences de migration de soluté dans les sols. Le paramètre important ici est le coefficient de **dispersion D** calculable à partir de la **variance** de la gaussienne mesurée en sortie.

Dans le cas de l'injection d'un créneau sur une tranche de sol, l'équation de convection/dispersion permet également de calculer le temps de transfert (ou temps de séjour) et l'étalement du signal de réponse dû à la dispersion.

Pour appliquer correctement cette approche, quelques hypothèses doivent être vérifiées:

- Milieu poreux homogène à l'échelle macroscopique,
- Ecoulement permanent et uniforme (pas de variation du flux d'eau et de la teneur en eau en fonction du temps et de l'espace),
- Pas de changement de spéciation du soluté dans la phase liquide.

Enfin, en milieu poreux non saturé, lorsque la courbe de percée d'un traceur de l'eau présente une asymétrie caractérisée (front d'arrivée précoce et traînée bien prononcée), le **modèle Mobile/Immobile** est alors généralement employé. Si la cinétique d'échange entre phase mobile et immobile est du 1er ordre, l'asymétrie du modèle MIM ne modifie pas la localisation du centre de masse, c'est à dire le temps de séjour moyen  $T_s$ .

La **variance** de la courbe dépend par contre cette fois simultanément des trois paramètres du modèle  $D_m$ ,  $f=\theta m/\theta$  et  $\alpha$ . Une étude complémentaire de sensibilité de la réponse par rapport aux trois paramètres est souhaitable.

### I.4.2 Méthode des moments

La méthode des moments est une aide à l'analyse du signal de sortie. L'analyse des moments peut être effectuée soit sur les courbes de percée mesurées en sortie du système (la profondeur  $z$  étant un paramètre fixé) soit sur les profils de concentration totale mesurés le long des colonnes de sol (le temps  $t$  étant cette fois fixé).

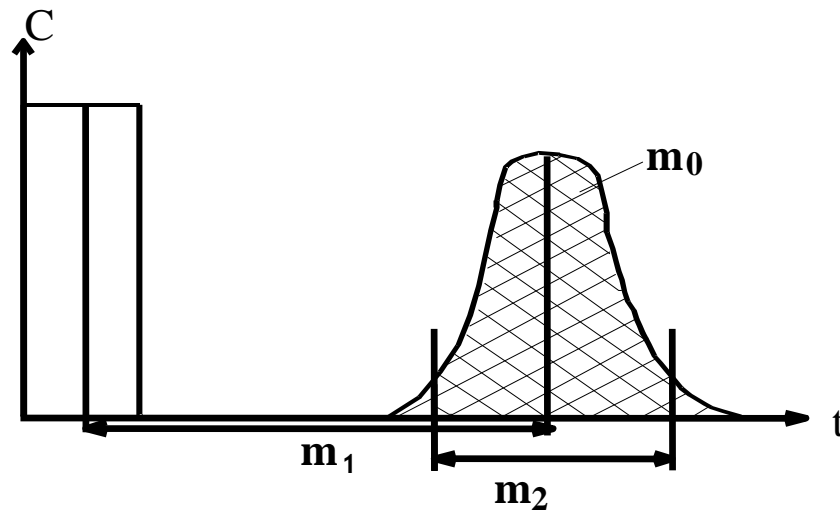


Figure I-12 : Représentation des moments temporels d'ordre 0, 1 et 2 d'une courbe de percée  $C(t)$  correspondant à la réponse du système.

L'équation permettant de calculer les moments d'ordre  $N$  d'une courbe de percée est la suivante :

$$M_N(t) = \int_0^{\infty} t^N \cdot C(t) \quad \text{Équation I-55}$$

Le moment d'ordre 0,  $M_0$ , correspond à l'intégrale de la courbe de percée. Il permet de vérifier le **bilan de masse BM** du soluté en comparant la surface de la courbe de sortie avec celle du créneau d'entrée. Si  $BM = 1$  alors le transport est dit conservatif (i.e. sorption entièrement réversible et absence de dégradation).

Le moment d'ordre 1,  $M_1$ , correspond à la position du centre de gravité de la courbe de percée qui dépend du **temps de séjour moyen**  $T_s$  du soluté dans le système durant son transport. Si le signal d'entrée est une fonction de Dirac, le moment d'ordre 1 correspond au temps de séjour, ce qui permet de déterminer directement la vitesse d'écoulement ou de transfert.

Enfin, le moment d'ordre 2,  $M_2$ , correspond à la variance **Var** de la courbe de percée reliée au moins au phénomène de **dispersion** auquel le soluté est généralement soumis durant son transport. Il caractérise l'étalement dans le temps du signal de réponse du système.

Les expressions des moments d'ordre 1 et 2 liés respectivement au temps de séjour  $T_s$  et à la variance du soluté durant son transfert à travers un système sol/solution sont résumés dans le Tableau I-1 pour différents types de transport respectant les hypothèses et équations rappelées ci-dessous :

Hypothèses : milieu poreux homogène, écoulement permanent, conservation de la masse (pas de dégradation), modèle de sorption instantanée, réversible et linéaire et signal d'entrée assimilable à une fonction de Dirac.

Equations :

$$1) \text{ Conservation de la masse } \Rightarrow \theta \frac{\partial C_{aq}}{\partial t} + \rho_d \frac{\partial C_s}{\partial t} = -q \frac{\partial C_{aq}}{\partial z} + D\theta \frac{\partial^2 C_{aq}}{\partial z^2}$$

$$2) \text{ Equation de sorption } \Rightarrow C_s = K_d \cdot C_{aq}$$

3) Equation de transport (couplage de 1 et 2)

$$R \frac{\partial C_{aq}}{\partial t} = -v \frac{\partial C_{aq}}{\partial z} + D \frac{\partial^2 C_{aq}}{\partial z^2}$$

avec  $R = 1 + \frac{\rho_d K_d}{\theta}$ , facteur de retard.

Modèle	Terme particulier des Equations	$T_s$	Var
Piston (P)	$R=1, D=0$ et $K_d=0$	$Z \cdot \theta / q$	0
Convection, dispersion (CDE non réactif)	$R=1$ et $K_d=0$ ( $D \neq 0$ )	$Z \cdot \theta / q$	$2 \cdot D \cdot Z / (q / \theta)^3$
CDE + adsorption linéaire (CDE/ $K_d$ )	$R \neq 1$ et $K_d \neq 0$	$R \cdot Z \cdot \theta / q$	$2 \cdot R^2 \cdot Z \cdot D / (q/\theta)^3$
MIM	$R=1$ et $K_d=0$	$Z \cdot \theta / q$	$2 \cdot \theta m \cdot D m \cdot Z / \theta \cdot (q/\theta)^3 + 2 \cdot \theta \text{im}^2 \cdot Z / [\alpha \cdot \theta \cdot (q/\theta)]$

Tableau I-1 : Valeurs des temps de séjour moyen  $T_s$  et des variances **Var** suite à l'injection d'une fonction de Dirac en entrée du système pour quelques modèles caractéristiques.

La méthode des moments est fréquemment utilisée pour la caractérisation des propriétés hydrodynamiques et géochimiques des systèmes sol/solution (Valocchi, 1990 ; Schoen et al., 1999 ; Pang et al., 2003).

## **I.5 Codes utilisés**

---

---

Dans ce paragraphe nous présentons les différents programmes de calculs (codes de transport, logiciels d'optimisation de paramètres) utilisés pour la partie numérique de notre étude.

### **I.5.1 HYDRUS-1D : Modélisation du transport avec une seule espèce**

Pour ce qui concerne la modélisation du transport par une approche à une seule espèce chimique, nous nous sommes servis du logiciel de modélisation Hydrus-1D spécialisé dans l'analyse des flux d'eau et le transport de soluté dans les milieux poreux (Simunek J., Sejna M. & Van Genuchten M. Th., 1998). Ce code permet de simuler, selon une direction, le mouvement de l'eau, de la chaleur et de solutés dans les milieux poreux saturés, partiellement saturés en eau, en régime hydraulique permanent ou transitoire.

Les équations régissant l'écoulement de l'eau (équation de Richards pour l'écoulement de l'eau en condition insaturée) et le transport de solutés (équations du type convection/dispersion CDE ou mobile-immobile MIM) sont résolues numériquement par la méthode des éléments finis (type Galerkin linéaire) pour l'aspect géométrique et par la méthode de Crank-Nicholson pour l'aspect temporel.

Pour la partie hydraulique, les propriétés hydrodynamiques du sol sont décrites par l'intermédiaire des courbes caractéristiques de rétention d'eau  $h(\theta)$  et de conductivité hydraulique  $K(\theta)$  définies par les fonctionnelles soit de Van-Genuchten/Mualem (1980), soit de Brooks et Corey (1964) soit enfin d'une fonction analytique dérivée du modèle de Van-Genuchten permettant de mieux représenter les propriétés hydrauliques des sols proches de la saturation. L'effet d'hystérésis peut

également être incorporé par l'intermédiaire du modèle empirique introduit par Scott et al. (1983) et Kool et Parker (1987).

Les conditions aux limites de la partie hydrodynamique sont fixées par l'intermédiaire, soit de la pression de l'eau  $h$ , (condition de type Dirichlet), soit du flux d'eau (vitesse de Darcy  $q$ , condition de type Neuman), soit par des conditions atmosphériques. La valeur des paramètres pouvant être définie soit de façon constante, cas du régime permanent, soit variable, cas du régime transitoire.

Pour la partie transport, les équations sont basées sur la mobilité de l'élément liée aux phénomènes de convection, de dispersion et de diffusion dans les phases liquide et gazeuse. Les phénomènes de rétention du soluté par la matrice solide sont pris en compte par l'intermédiaire d'un coefficient de distribution constant  $K_d$ .

Les conditions aux limites pour la partie transport du modèle peuvent être définies, soit en terme de concentration de soluté, soit en terme de flux. Elles peuvent aussi être définies soit par des constantes, soit par des variables fonction du temps.

Enfin, le coefficient de dispersivité  $\alpha$  du milieu modélisé, est gardé constant quelle que soit la teneur en eau, et la dispersion/diffusion inclut des termes permettant de prendre en compte l'effet de la diffusion moléculaire et de la tortuosité.

### **1.5.2 HYTEC : Modélisation du transport multi-espèces (géochimie/transport)**

Concernant l'approche de modélisation multi-espèces, nous avons utilisé le code couplé géochimie/transport Hytec développé par l'école des mines de Paris (van der Lee et al., 2003).

Hytec est un modèle de transport réactif utilisé dans les études de pollutions d'eaux souterraines, de sûreté de stockage de déchets nucléaires et l'interprétation des expérimentations faites sur colonnes de laboratoire.

Le code est basé sur une série de modules spécialisés (Figure I-13). Le module géochimique CHESS (van der Lee et De Windt, 1999) permet de prendre en compte les différentes interactions géochimiques auxquelles le soluté est confronté dans le système étudié. Différents codes de transport hydrodynamique (RT1D, METIS et R2D2) reliés à la plate-forme Hytec via une interface

spécifique appelée MPI (Message Passing Interface) permettent quant à eux de prendre en compte l'aspect dynamique.

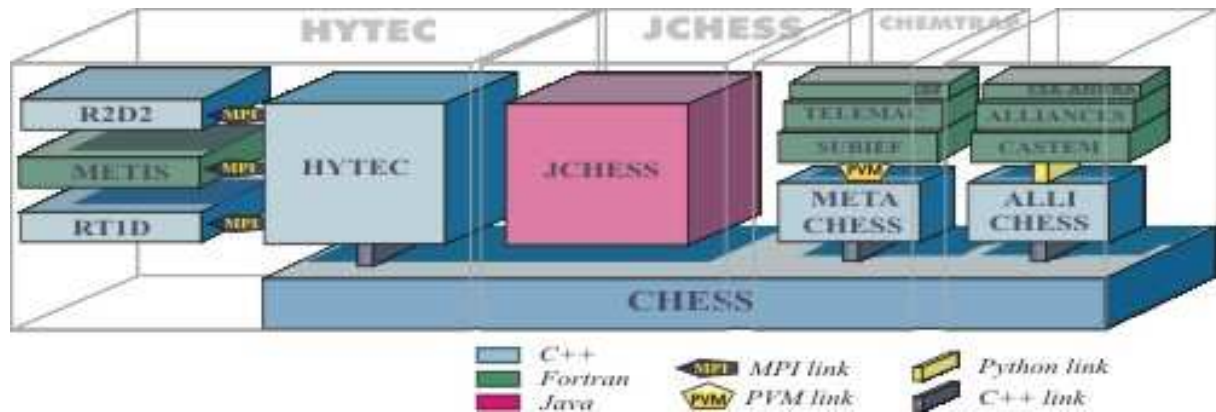


Figure I-13 : Représentation schématique de la structure du code couplé géochimie/transport HYTEC et de ses différents modules hydrodynamiques (RT1D, METIS et R2D2) et géochimique (CHESS) (<http://hytec.ensmp.fr>).

Le principe de résolution itérative du code est présenté Figure I-14. Hytec résout tout d'abord les équations concernant l'hydrodynamique (par la méthode des éléments finis pour METIS ou celle des volumes finis avec R2D2) et le transport des espèces chimiques au sein du système. A chaque pas de temps, toutes les concentrations des différentes espèces chimiques prises en compte sont ensuite recalculées à l'équilibre géochimique en se référant aux constantes d'équilibre contenues dans les bases de données thermodynamiques accessibles au code.

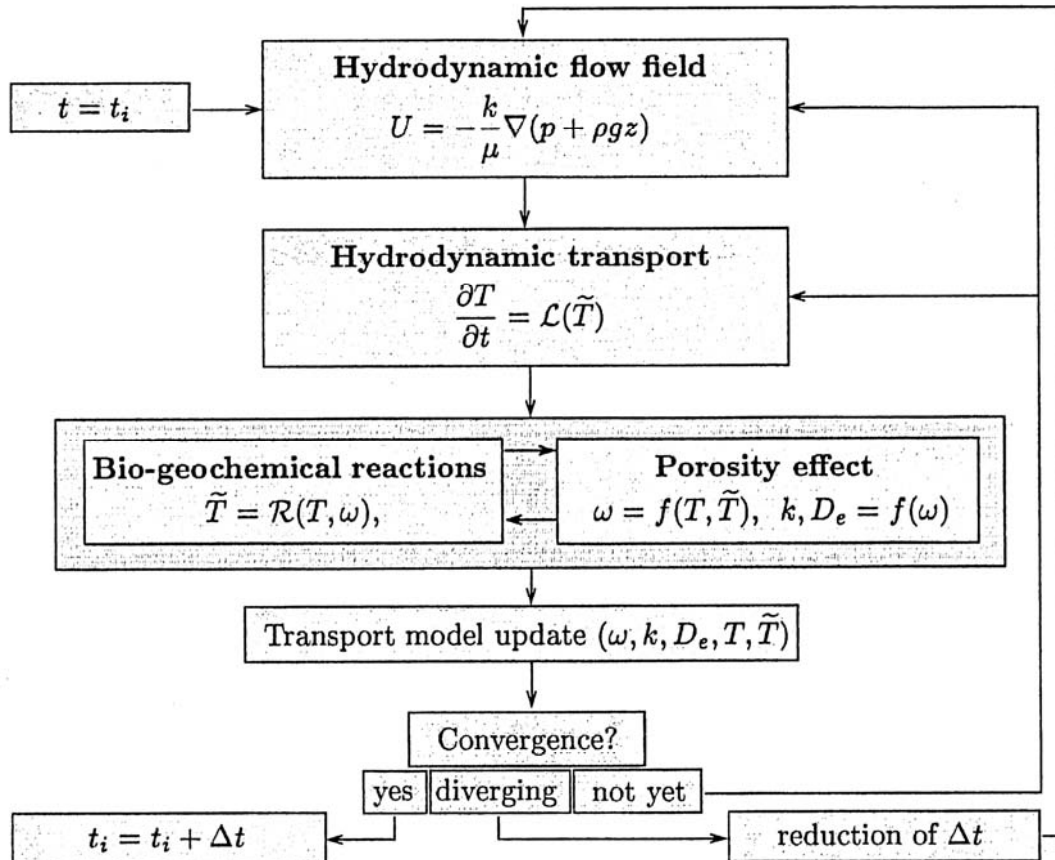


Figure I-14 : Diagramme des actions successives opérées à chaque pas de temps par le code couplé HYTEC. T correspond à la concentration totale du soluté,  $-T$  à la concentration en phase mobile,  $\mathcal{L}$  est l'opérateur de transport (hydrodynamique) et  $\mathcal{R}$  l'opérateur réactionnel (géochimie) - (van der Lee et al., 2002).

Pour ce qui concerne nos modélisations, nous avons utilisé R2D2 (Lagneau V., 2003), module hydrodynamique le plus récent, qui permet notamment la résolution numérique de l'équation de Richards en condition hydrodynamique non saturée transitoire.

### I.5.3 Autres codes pour l'optimisation de paramètres

Plusieurs logiciels de calculs ont également été utilisés dans cette étude afin d'évaluer et optimiser le cas échéant les valeurs des paramètres de certaines fonctions numériques.

Les fonctionnelles de Van Genuchten et Brooks & Corey par exemple, décrivant l'hydrodynamique en condition non saturé (cf. I.1.3), ont été ajustées sur les données obtenues expérimentalement



(cf. Chapitre III) grâce au logiciel **Sigmaplot** (Manuel de l'utilisateur, <http://www.systat.com>). L'ajustement consiste alors à déterminer la valeur numérique des paramètres des fonctions introduites dans le logiciel, en utilisant la méthode des moindres carrés pour minimiser l'écart entre valeurs calculées et valeurs mesurées des variables d'intérêt.

Pour ce qui concerne les traçages tritium effectués sur les colonnes de sable (caractérisation des propriétés de transport), nous avons ajusté automatiquement les solutions analytiques des modèles de transport CDE ou MIM en non-réactif pour l'injection d'un Dirac par l'intermédiaire soit du logiciel spécialisé **CXTFIT** (Torride et Al., 1999 ; Parker and Van Genuchten, 1984b) soit du logiciel de mathématique **Igor** (Manuel de l'utilisateur, <http://www.wavemetrics.com>). L'ajustement étant là encore effectué par la méthode des moindres carrés.

Enfin pour le calcul des moments des profils d'activité totale de  $^{85}\text{Sr}$ , mesuré avec le banc gammamétrique en condition hydraulique non saturée, nous avons utilisé le logiciel **Peakfit** (Manuel de l'utilisateur, [www.seasolve.com](http://www.seasolve.com)) spécialement dédié à l'ajustement automatique de fonction numérique sur les signaux expérimentaux sous forme de pic obtenus avec les techniques de mesure de spectroscopie ou de chromatographie.

## I.6 Synthèse

---

---

Dans ce premier chapitre, nous avons rappelé les éléments théoriques, méthodologiques et opérationnels permettant d'étudier la migration d'un soluté interactif dans la zone non saturée en eau des sols.

Pour cela, nous avons décrits les principes physiques régissant l'écoulement de l'eau et écrit les équations correspondantes de conservation de masse et de loi d'écoulement. L'une des principales caractéristiques de la zone non saturée est que les variables et les paramètres descriptifs de l'eau dans le sol (vitesse de Darcy  $q$  ou vitesse de pore  $v$ , pression  $h$ , conductivité  $K$ ) dépendent du degré de saturation, appréhendé généralement par la teneur en eau volumique  $\theta$ .

La caractérisation des propriétés hydrodynamiques d'un sol non saturé impose alors de déterminer deux courbes appelées courbes de rétention  $h(\theta)$  et de conductivité hydraulique  $K(\theta)$ . Ces dernières sont le plus souvent estimées par l'intermédiaire de fonctionnelles telles que celles de Van Genuchten (1980) ou Brooks & Corey (1964). Ces courbes permettent alors de décrire l'écoulement de l'eau dans la zone non saturée en complétant les équations de l'écoulement par les conditions initiales et aux limites.

Etant donné les cycles d'infiltration et de redistribution d'eau que nous allons étudier sur nos colonnes de sable, une détermination assez précise des courbes caractéristiques  $h(\theta)$  et  $K(\theta)$  de notre milieu poreux sera indispensable dans la suite de notre étude.

Pour ce qui concerne l'interaction d'un soluté avec la matrice solide du milieu poreux, nous avons choisi de décrire deux types de modèles à l'équilibre. Le premier, dit opérationnel, ne prend en compte qu'une seule espèce chimique (celle que l'on étudie) et se base sur l'utilisation d'isotherme de sorption  $C_s=f(C_aq)$  et de coefficient de distribution  $K_d$  (isotherme linéaire, réversible et sorption instantanée). Le second, plus mécaniste, se base sur des modèles géochimiques permettant de prendre en compte plusieurs espèces chimiques en interactions plus complexes (dans les phases et entre les phases solide et liquide). Cette seconde modélisation, nécessaire pour définir les domaines

de validité de l'approche opérationnelle, est beaucoup plus lourde à mettre en place, notamment par le nombre de coefficients qu'elle demande.

Etant donné l'importance des conditions opératoires dans lesquelles les expériences sont réalisées, notamment dans le contrôle des concentrations en Sr stable et en Ca (Szenknect, 2003), et bien que plusieurs caractérisations est déjà été réalisées par Szenknect (2003) sur l'interaction du strontium avec le sable éolien de Tchernobyl, des essais de sorption en condition statique (batch) et dynamique (colonne) seront également effectué dans le cadre de notre travail.

Nous avons abordé ensuite le transport couplé entre écoulement de l'eau et interactions géochimiques. Nous avons pour cela pris en compte les différents facteurs (convection, dispersion) à l'origine des flux de soluté dans le liquide au sein du milieu poreux. Avec la conservation de la masse de soluté, on aboutit à l'équation générale de transport d'un soluté, non réactif ou réactif, en milieu poreux non saturé, en prenant en compte (modèle mobile-immobile MIM) ou non (modèle convection-dispersion CDE) la présence d'eaux stagnantes.

Nous avons constaté d'après les études précédemment réalisées sur le sujet, que l'importance des écoulements transitoires sur la mobilité d'un soluté en milieu poreux non saturé peut dépendre fortement de la nature des interactions du soluté avec la matrice solide et notamment de la présence ou non d'une cinétique physique et/ou chimique de sorption susceptible d'être exprimée selon les temps d'infiltration et de redistribution de l'eau. Cette analyse nous conduira à définir les conditions opératoires que nous explorerons lors de cette étude et plus précisément la nature et la fréquence des infiltrations.

Ce premier chapitre expose également l'approche méthodologique fondée sur la dynamique des systèmes et la méthode des moments temporels qui en résulte, sur lesquelles nous nous appuierons largement pour analyser et interpréter les courbes de percée et les profils de soluté mesurés expérimentalement.

Pour finir, ce chapitre présente les différents codes de calculs que nous avons choisi d'utiliser dans le cadre de ce travail, que ce soit pour le traitement des données ou bien la partie modélisation des résultats obtenus.

# Chapitre II

## Matériels & Méthodes



## SOMMAIRE CHAPITRE II

<b>CHAPITRE II. MATERIELS ET METHODES</b>		<b>89</b>
<b>II.1 MILIEU POREUX</b>		<b>89</b>
<b>II.2 CONDITIONS CLIMATIQUES DANS LA REGION DE TCHERNOBYL</b>		<b>92</b>
<b>II.3 EAU SYNTHETIQUE DE TCHERNOBYL</b>		<b>93</b>
<b>II.4 ELEMENTS CHIMIQUES ETUDIES</b>		<b>95</b>
II.4.1 Le tritium <sup>3</sup> H		95
II.4.1.1 Généralités		95
II.4.1.2 Mobilité du tritium dans les sols		96
II.4.2 Le strontium 85		97
II.4.2.1 Généralités concernant le strontium		97
II.4.2.2 Problématique environnementale du strontium		98
II.4.2.3 Comportement géochimique du strontium dans les sols		99
<b>II.5 PREPARATION DES COLONNES</b>		<b>103</b>
II.5.1 Choix des colonnes		103
II.5.2 Technique de remplissage des colonnes		104
II.5.3 Mise en eau des colonnes		106
II.5.4 Conditionnement chimique des colonnes		106
<b>II.6 FONCTIONNEMENT DES COLONNES</b>		<b>108</b>
II.6.1 Ecoulement permanent		108
II.6.1.1 Principe des expériences		108
II.6.1.2 Analyse des courbes de percée		109
II.6.1.3 Etude et dispositif expérimental pour les petites colonnes saturées		110
II.6.1.4 Etude et dispositif expérimental pour les grandes colonnes non-saturées		112
II.6.2 Ecoulement transitoire		113
II.6.2.1 Principe des expériences		113
II.6.2.2 Etude et dispositif expérimental		115
<b>II.7 DISPOSITIF EXPERIMENTAL DE MESURE DES PROFILS</b>		<b>116</b>
II.7.1 Caractéristiques du banc gammamétrique		117
II.7.2 Application à la mesure du profil de teneur en eau $\theta(z)$ au sein des colonnes		118
II.7.3 Application à la mesure du profil d'activité totale $A(z)$ du radioélément au sein des colonnes		120
II.7.4 Vérification de l'homogénéité de remplissage de la colonne		121
<b>II.8 SYNTHESE</b>		<b>125</b>

**Liste des Figures du chapitre II**

Figure II-1 : (a) Localisation géographique du Site Pilote IRSN, du site de prélèvement de Pripjat Zaton (clearing 2) et de la centrale nucléaire de Tchernobyl (ChNPP) - (b) Analyses géologiques des carottes prélevées entre le Site Pilote et Pripjat Zaton (d'après Bugai et al., 2001)..... 90

Figure II-2 : Distribution de taille des particules en volume du sable de Pripjat Zaton..... 90

Figure II-3 : Observations au MEB du sable de Pripjat Zaton, grossissement (a) x 35 et (b) x 400 (Ardois et al., 2002). ..... 92

Figure II-4 : Colonne et pied de colonne en plexiglas fabriqués pour les expériences de transport en condition hydraulique non saturée..... 104

Figure II-5 : (a) Profils de concentration en phase liquide à T0, T1= 150 h et T2= 300 h et (b) Courbes de Percée obtenues aux profondeurs N1= 30 cm et N2= 60 cm lors du dimensionnement du conditionnement chimique en strontium stable à la concentration arbitraire de 10 mol/L en phase liquide d'une colonne de sable de Tchernobyl de longueur L= 60 cm à saturation naturelle – Résultats obtenus avec le code de transport Hydrus-1D : Vitesse de pore  $v= 40$  cm/h et  $Kd= 20$  L/Kg..... 107

Figure II-6 : Dispositif expérimental utilisé pour les expériences de transfert sur les petites colonnes saturées – Etude des propriétés de sorption du strontium 85 sur le sable éolien de Tchernobyl (extrait de Szenknect, 2003) . ..... 110

Figure II-7 : Dispositif expérimental utilisé pour les expériences de transfert sur les grandes colonnes non-saturées (extrait de Szenknect, 2003)..... 112

Figure II-8 : Première infiltration d'un pulse de  $^{85}\text{Sr}$ . ① Injection d'un créneau d'eau marqué au  $^{85}\text{Sr}$ . ② Suivi de la courbe de percée de l'eau en pied de colonne. ③ Mesure du profil d'activité du  $^{85}\text{Sr}$  à l'équilibre hydrostatique après 24 heures. .... 114

Figure II-9 : Cycles d'infiltrations – redistributions par injection de créneaux d'eau d'alimentation non marquée. ① Injection des créneaux. ② Suivi des courbes de percée de l'eau en pied de colonne. ③ Mesure des profils d'activité du  $^{85}\text{Sr}$  à l'équilibre hydrostatique par cycle de 24 heures..... 114

Figure II-10 : Représentation des conditions opératoires appliquées sur les colonnes de sable de Tchernobyl dans le cadre des expériences de transport de strontium 85 en régime hydraulique non-saturé transitoire..... 115

Figure II-11 : Prise de vue du banc d'auscultation gammamétrique IRSN (bâti, colonne, bloc émetteur et bloc détecteur) permettant l'acquisition de données sur le transfert de radionucléide au sein de colonne de sol, saturée ou non-saturée en eau, avec une résolution spatiale et temporelle fine. .... 117

Figure II-12 : Evolution du nombre de coups par seconde d'américium241 mesuré en fonction du temps de comptage d'acquisition (a) à travers une colonne de sable saturée en eau et (b) sans colonne..... 119

Figure II-13 : Cône d'ouverture de la sonde gamma (extrait de Barthès et al., 2003)..... 120

Figure II-14 : Profil d'activité mesuré avec la sonde gamma (temps de comptage= 600 secondes) en présence d'une source étalon ponctuelle de  $^{85}\text{Sr}$  ( $A_0= 12,95$  kBq) placée au sein d'une colonne de sable. .... 121

*Figure II-15 : Profils de masse volumique  $\rho_d(z)$  obtenus initialement sur 3 colonnes de sable sec (colonne 4  $\rho_{d(z)}_{moyen} = 1,83 \text{ g.cm}^{-3}$ , colonne 5  $\rho_{d(z)}_{moyen} = 1,81 \text{ g.cm}^{-3}$  et colonne 6  $\rho_{d(z)}_{moyen} = 1,81 \text{ g.cm}^{-3}$ ). ..... 122*





## **Chapitre II. Matériels et Méthodes**

L'objet de ce chapitre est tout d'abord de présenter les principales caractéristiques du milieu poreux, un sable éolien prélevé dans la région de Tchernobyl, de l'eau synthétique d'alimentation utilisée dans nos expériences de transport, et des éléments chimiques utilisés.

Dans un second temps, nous présentons la méthodologie choisie pour notre étude. Si toutes les expériences sont effectuées sur des colonnes de laboratoire, les dispositifs expérimentaux à mettre en œuvre sont sensiblement différents en fonction des paramètres de transport auxquels on souhaite accéder. Nous avons ainsi distingué les expériences réalisées :

- En écoulement permanent, soit en conditions saturées en eau, soit en conditions non saturées pour étudier le transport réactif du strontium 85.
- En écoulement transitoire, pour l'étude du transport du  $^{85}\text{Sr}$  dans ces conditions particulières.

Enfin, nous présentons le fonctionnement et l'utilisation du banc gammamétrique. Ce dispositif expérimental d'acquisition des profils de teneur en eau et de traceur radioactif émetteur gamma le long de colonnes a été utilisé pour la première fois en conditions hydrauliques transitoires.

### **II.1 Milieu poreux**

---

---

Le milieu poreux utilisé pour la fabrication des colonnes provient d'un prélèvement de sol effectué en Ukraine en juillet 2001 sur le site de Pripyat Zaton, situé à proximité du Site Pilote IRSN à Tchernobyl (Figure II-1a). Ce site a été choisi suite à l'examen local des profils géologiques (Figure II-1b), confirmé ensuite par analyses granulométriques, minéralogiques et chimiques opérées durant la thèse de S. Szenknect (2003), montrant que le sable éolien affleurant à cet endroit possède la même origine que celui présent sous la tranchée de déchets du Site Pilote.

Une fois prélevé, le sable a été séché à l'étuve à 60°C pendant 48h, puis tamisé à 1mm. La fraction supérieure à 1 mm représentait environ 1% de la masse totale et se composait essentiellement de débris végétaux, de grains de quartz et de blocs bruns (Ardois et al., 2002).

L'analyse granulométrique du sable éolien tamisé (Figure II-2), effectuée au laboratoire avec le granulomètre laser de type Beckman Coulter LS230, révèle une distribution cumulée de taille de particules centrée autour de la valeur  $d_{50} = 230 \mu\text{m}$ ; 1 % des particules (en volume) ayant une taille inférieure à 2  $\mu\text{m}$  (limite supérieure de la classe des argiles au sens granulométrique).

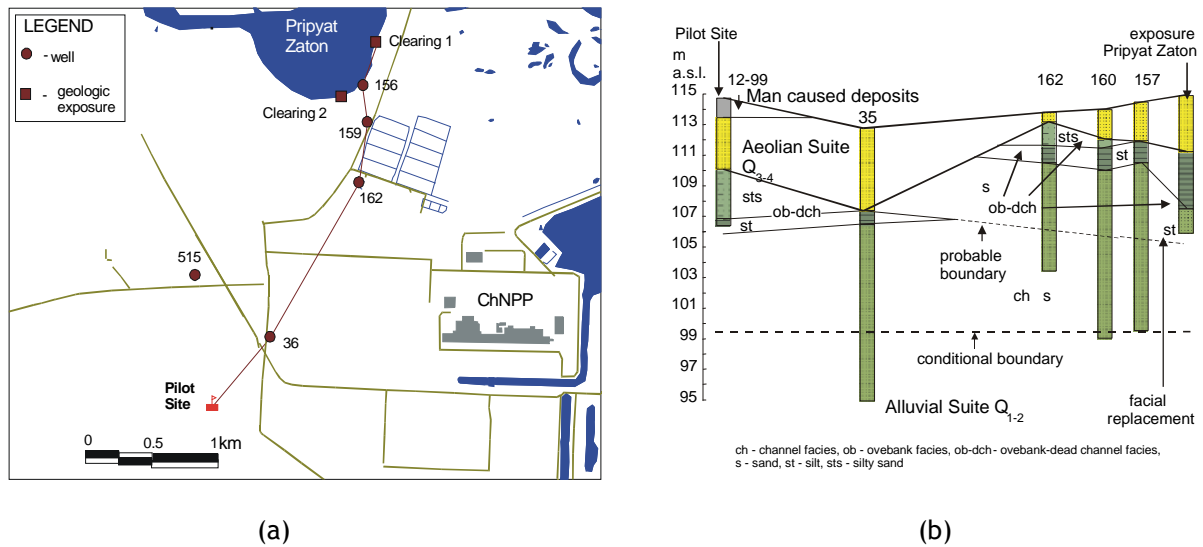


Figure II-1 : (a) Localisation géographique du Site Pilote IRSN, du site de prélèvement de Pripyat Zaton (clearing 2) et de la centrale nucléaire de Tchernobyl (ChNPP) - (b) Analyses géologiques des carottes prélevées entre le Site Pilote et Pripyat Zaton (d'après Bugaï et al., 2001).

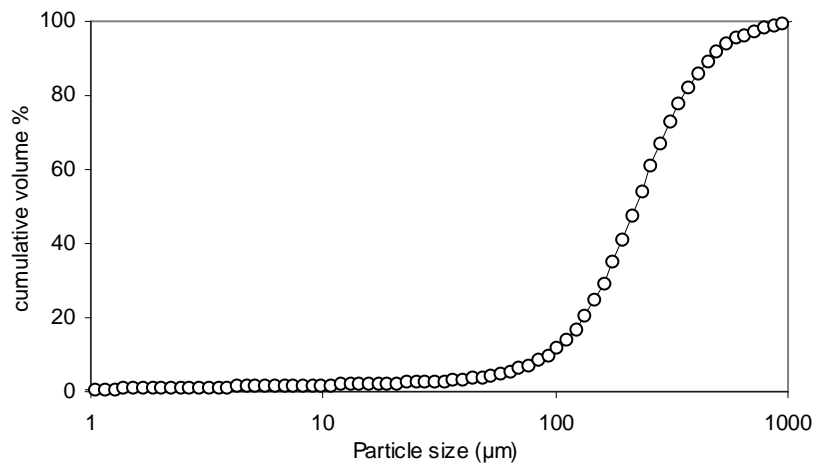


Figure II-2 : Distribution de taille des particules en volume du sable de Pripyat Zaton.

L'analyse minéralogique faite par DRX (diffraction de rayons X) permet par ailleurs d'obtenir une information qualitative sur la composition minéralogique du sable. Le diffractogramme de poudre réalisé sur la fraction globale du sable montre que le quartz (masse volumique  $\rho_s = 2,65 \text{ g/cm}^3$ ) est

le minéral le plus représenté. Les autres phases minérales identifiables étant les feldspaths, les micas et les chlorites. L'analyse de la fraction fine (protocole de fractionnement décrit dans Devol-Brown et al., 2002) permet de détecter la présence d'illite et de kaolinite, ainsi que des traces de carbonates. Cette technique ne permet cependant pas d'identifier les phases mal cristallisées et les phases adsorbées. Or dans les sols et les sédiments, les métaux sont souvent associés à ces phases très réactives (oxyhydroxydes par exemple).

Les analyses chimiques du sable, réalisées par le Service d'Analyse des Roches et des Minéraux (SARM) du Centre de Recherche Pétrographiques et Géochimiques (CRPG-CNRS) de Nancy ont permis d'avoir une information quantitative sur la composition chimique du sable. La silice  $\text{SiO}_2$  est la phase majoritaire ( $98 \pm 0,2$  % en masse), les phases secondaires détectées étant l'alumine,  $\text{Al}_2\text{O}_3$  ( $0,88 \pm 0,05$  % en masse), les oxydes de potassium,  $\text{K}_2\text{O}$  ( $0,26 \pm 0,02$  % en masse), les oxydes de fer,  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  ( $0,24 \pm 0,02$  % en masse) et la matière organique mesurée par perte au feu ( $0,31 \pm 0,04$  % en masse).

Les particules du sable éolien de Pripyat Zaton ont été finalement observées au MEB (microscope électronique à balayage). Les images obtenues des grains de sable sont présentées Figure II-3. Les grains apparaissent polis et recouverts d'un dépôt lamellaire. Il s'agit probablement de phases argileuses minoritaires détectées en DRX. Les oxydes d'aluminium et de potassium, identifiés par l'analyse chimique, entrent dans la composition de ces phases.

Les analyses radiologiques (mesure  $\gamma$  et  $\beta$ ) effectuées sur le sol prélevé à Pripyat Zaton confirment par ailleurs que ce dernier ne contient pas de particules de combustible et n'est pas contaminé par les radioéléments les plus mobiles.

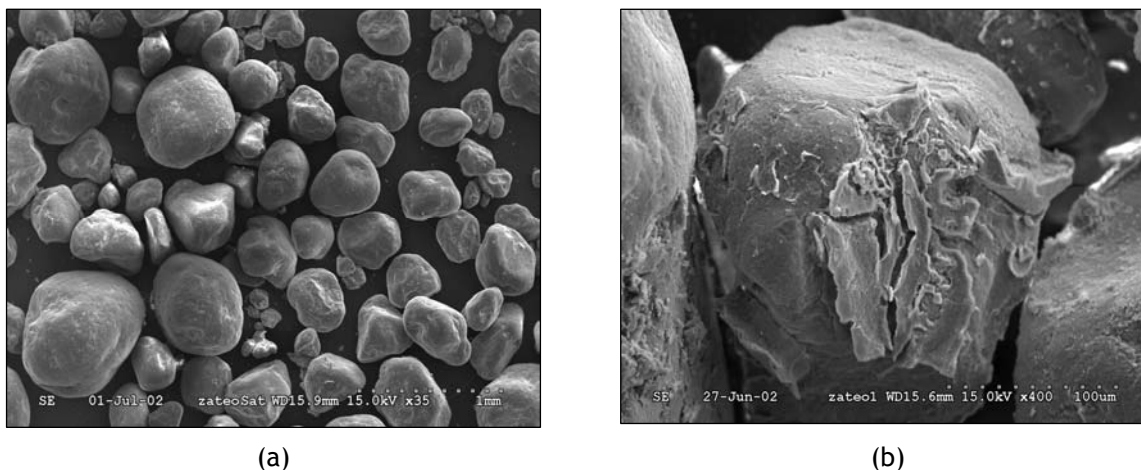


Figure II-3 : Observations au MEB du sable de Pripyat Zaton, grossissement (a) x 35 et (b) x 400 (Ardois et al., 2002).

## II.2 Conditions climatiques dans la région de Tchernobyl

---

---

La région de Tchernobyl est située au centre-nord de l'Ukraine (Europe de l'Est) près de la frontière avec la Biélorussie. La majeure partie du centre du pays correspond à une plaine fertile ne dépassant pas les 50 m d'altitude, parsemée de zones marécageuses sur les rives de la rivière Prypiat, affluent du Dniepr.

Le climat de la majeure partie de l'Ukraine est continental tempéré avec des hivers froids et des étés doux (méditerranéen sur la côte sud de la Crimée). Les températures moyennes en Ukraine orientale sont d'environ  $-6,6^{\circ}\text{C}$  en janvier et  $20^{\circ}\text{C}$  en juillet. Les précipitations vont d'environ 750 mm par an dans le nord à environ 250 mm dans le sud.

Un suivi régulier et précis de la pluviométrie est effectué sur le site expérimental de Tchernobyl depuis 1999 à l'aide de la station météorologique. La moyenne annuelle observée durant ces années est estimée à 600 mm. Ces précipitations se répartissent généralement sous forme d'orages en début d'été et d'épisodes pluvieux « normaux » à l'automne.

Le site est par ailleurs recouvert de neige durant la majeure partie de l'hiver. Le calcul de la quantité totale d'eau effectivement infiltrée sur le terrain au cours de l'année, doit donc également tenir compte de l'apport conséquent engendré par la fonte de ce couvert neigeux au printemps.

L'ensemble des données météorologiques disponibles sur le site pilote IRSN de Tchernobyl permet finalement d'estimer le flux moyen annuel d'infiltration (c'est à dire la pluie efficace, ou encore la différence entre la totalité des pluies et l'évapotranspiration) à environ 200 à 260 mm/an et la teneur en eau moyenne annuelle du sol de l'ordre de  $\theta=0,2$  (Szenknect, 2003)

### II.3 Eau synthétique de Tchernobyl

---

---

Pour les expériences de transport sur colonnes de notre étude, nous avons utilisé une eau synthétique préparée au laboratoire. La composition de cette eau répond à plusieurs exigences :

- La composition de l'eau synthétique doit se rapprocher de la composition de l'eau en équilibre avec le sable afin de ne pas déstructurer les colonnes, et de réduire les phases de pré-conditionnement chimique,
- La composition de l'eau synthétique se rapproche de celle prélevée sur site en amont de la tranchée 22, considérée comme étant la moins perturbée par la présence de déchets enfouis,
- La composition de l'eau synthétique est facile à reproduire et à contrôler,
- Enfin elle est identique à celle utilisée dans les travaux précédents (Szenknect, 2003) ce qui permettra de comparer directement les résultats acquis dans notre étude avec ceux précédemment obtenus en régime d'écoulement permanent non saturé.

Dans le cadre des projets « Site Pilote de Tchernobyl » puis « EPIC » (Experimental Platform In Chernobyl), un grand nombre d'analyses chimiques et radiologiques des eaux de la nappe ont été réalisées sur des prélèvements provenant des piézomètres situés en aval de la tranchée (jusqu'à 30 m environ) et sur un piézomètre « de référence » situé en amont. Les échantillons d'eau de nappe prélevés et analysés (Guillou et al., 2000) entre octobre 1998 et juillet 2001 ont permis d'effectuer un premier bilan. Le Tableau II-1 présente une synthèse des résultats d'analyses des cations majeurs effectuées sur 120 échantillons par spectrophotométrie d'absorption atomique (SAA).

-+Pour le strontium, les analyses avaient été réalisées uniquement sur 19 échantillons présentant un niveau supérieur à la limite de quantification de la SAA. Dans le projet EPIC, une nouvelle technique de mesure (ICPM-MS ou Inductively Coupled Plasma-Mass Spectrometer) a permis de diminuer fortement cette limite de quantification. Pour une période de 2 ans (2005-2006) la moyenne en strontium stable mesurée sur 166 échantillons est de  $5.10^{-7}$  mol.L<sup>-1</sup> avec une valeur maximum de  $3,6.10^{-6}$  mol.L<sup>-1</sup> et une valeur minimum de  $9.10^{-8}$  mol.L<sup>-1</sup>.

Espèce	Eau synthétique	Eau de site			
	concentration théorique mol.L <sup>-1</sup>	moyenne mol.L <sup>-1</sup>	écart type mol.L <sup>-1</sup>	min mol.L <sup>-1</sup>	max mol.L <sup>-1</sup>
Ca <sup>2+</sup>	$7,7.10^{-5} \pm 1 10^{-5}$	$3,56.10^{-4}$	$4,4.10^{-4}$	$4,97.10^{-5}$	$1,98.10^{-3}$
K <sup>+</sup>	$5,9.10^{-5} \pm 1 10^{-5}$	$9,63.10^{-4}$	$7,5.10^{-5}$	$2,07.10^{-5}$	$2,74.10^{-4}$
Na <sup>+</sup>	$5,7.10^{-5} \pm 1 10^{-5}$	$5,21.10^{-5}$	$6,6.10^{-5}$	$1,41.10^{-5}$	$2,21.10^{-4}$
Mg <sup>2+</sup>	$2,1.10^{-5} \pm 0,5 10^{-5}$	$4,20.10^{-5}$	$6,0.10^{-5}$	$7,5.10^{-6}$	$1,87.10^{-4}$
Sr <sup>2+</sup>	0	$8,4 .10^{-6}$ #	$6,9.10^{-6}$ #	$4,9.10^{-6}$ #	$3,71.10^{-5}$ #
Cl <sup>-</sup>	$4,0.10^{-5} \pm 1 10^{-5}$	/	/	/	/
SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	$1,1.10^{-4} \pm 1 10^{-5}$	/	/	/	/
Force ionique	$5,72.10^{-4}$	/	/	/	/
pH	$6,4 \pm 0,2$	$5,3 \pm 0,4$	/	/	/

Tableau II-1 : Comparaison de la composition théorique de l'eau synthétique et des analyses en SAA de l'eau de nappe prélevée en aval de la tranchée pour la période 1998-2001. (#Analyses effectuées sur 19 échantillons uniquement).

Il existe une grande variabilité spatiale et temporelle des concentrations en cations majeurs mesurées dans l'eau du site. Les valeurs minima ont presque toujours été mesurées dans les échantillons provenant du piézomètre de référence, situé en amont hydraulique de la tranchée. Nous avons supposé que la composition de l'eau prélevée en amont de la tranchée était représentative de l'état initial du site, avant le dépôt du déchet. Le déchet contient une fraction

très importante de matière organique (essentiellement des troncs d'arbres) par rapport à l'encaissant (le sable éolien contient environ 0,03 % en masse de matière organique mesuré par perte au feu). Il semble que les processus de maturation de la matière organique contenue dans la tranchée perturbent localement la chimie de l'eau de nappe.

La composition de l'eau synthétique est donc basée sur les analyses de l'eau prélevée en amont de la tranchée. Le protocole de fabrication est décrit en Annexe 1. Des expériences de lixiviation d'une colonne de sable avec cette eau synthétique (Szenknect, 2003) ont permis de vérifier que l'équilibre chimique entre cette eau et le sable était bien respecté.

Dans les expériences étudiant l'influence de la concentration en strontium stable sur le déplacement de l'isotope radioactif  $^{85}\text{Sr}$ , le strontium stable a été ajouté sous forme de sel ( $\text{SrCl}_2(\text{H}_2\text{O})_6$ ).

## II.4 Eléments chimiques étudiés

---

---

Les informations recueillies dans ce paragraphe sur les éléments chimiques d'intérêt de notre étude proviennent essentiellement des travaux réalisés par S. Szenknect (2003) et G.Limousin (Limousin, 2007). Ces renseignements s'appuient d'autre part sur les fiches radionucléides publiés par l'IRSN.

### II.4.1 Le tritium $^3\text{H}$

#### II.4.1.1 Généralités

Le tritium est l'isotope radioactif de masse 3 de l'hydrogène. De symboles  $^3\text{H}$  ou T, c'est un émetteur  $\beta^-$  de faible énergie (14 Kev) dont la période radioactive est de 12,3 ans. Son activité massique est de  $3,6 \cdot 10^{14} \text{ Bq.g}^{-1}$  et ses propriétés chimiques sont identiques à celles de l'hydrogène.

Le tritium existe sous trois formes chimiques :

- Le tritium gazeux (HT),
- Le tritium organique (OBT),



- Et l'eau tritiée (HTO), forme la plus abondante du tritium dans le milieu naturel et les espèces vivantes.

Le tritium connaît en permanence une production d'origine naturelle provenant pour l'essentiel de l'action des rayonnements cosmiques sur l'azote, l'oxygène et l'argon de l'air. Environ 99 % du tritium ainsi produit, se transforme en eau tritiée et s'intègre au cycle normal de l'eau (pluie, cours d'eau, océan, évaporation...).

La majorité du tritium présent sur terre reste cependant d'origine artificielle. L'apport principal correspond aux explosions nucléaires atmosphériques effectuées, jusqu'en 1970, dans le cadre d'essais militaires. Le tritium est d'autre part un élément radioactif susceptible d'être émis dans l'environnement, à l'état de traces, lors :

- de la fabrication d'armes thermonucléaires,
- du fonctionnement des réacteurs nucléaires,
- et des rejets effectués par les usines de retraitement de combustibles irradiés.

#### *II.4.1.2 Mobilité du tritium dans les sols*

Etant donné que le tritium est essentiellement présent dans les sols sous forme d'eau tritiée, sa mobilité y est directement liée aux différents processus d'écoulements. Pour cela, l'eau tritiée est souvent utilisée sur les colonnes de sol, en laboratoire, comme traceur de l'écoulement de l'eau permettant de déterminer les caractéristiques hydrodynamiques du système étudié.

Dans notre étude, l'eau tritiée est donc utilisée comme outil d'étude pour caractériser l'écoulement de l'eau au sein de nos colonnes. A noter qu'il n'existe pas d'isotope émetteur gamma de l'hydrogène qui pourrait être choisi en substitution pour les études de laboratoire (plus facilement mesurable), et qu'aucun traceur de l'eau émetteur gamma, aisément utilisable, n'a par ailleurs été trouvé. Le  $^{36}\text{Cl}$  et l' $^{131}\text{I}$  posent des problèmes de radioprotection rédhibitoires.

## II.4.2 Le strontium 85

### II.4.2.1 Généralités concernant le strontium

Dans la classification périodique des éléments, le strontium, symbole Sr, fait partie de la famille des alcalino-terreux. De numéro atomique 38 et masse molaire  $87,62 \text{ g}\cdot\text{mol}^{-1}$ , ses propriétés physico-chimiques sont voisines de celles du calcium.

Le strontium possède quatre isotopes stables naturels :  $^{88}\text{Sr}$  (82,53 %),  $^{86}\text{Sr}$  (9,87 %),  $^{87}\text{Sr}$  (7,04 %) et  $^{84}\text{Sr}$  (0,56 %). A noter cependant, pour l'isotope 88, le plus abondant, l'existence d'une partie de Sr stable produite par la fission de  $^{235}\text{U}$  et venant en addition au  $^{88}\text{Sr}$  naturel.

L'abondance naturelle du  $^{87}\text{Sr}$  varie, elle, légèrement en raison de sa production *via* la décroissance du  $^{87}\text{Rb}$ , isotope radioactif naturel, présent dans toutes les roches et particulièrement dans celles de la croûte continentale. Les variations isotopiques engendrées par le couple isotope-père  $^{87}\text{Rb}$  et isotope-fils  $^{87}\text{Sr}$  sont à l'origine d'une des méthodes de datation des roches et des minéraux utilisées classiquement en Sciences de la Terre (chronostratigraphie). D'autre part les variations naturelles du rapport  $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$  dans les composants, minéraux ou organiques, à l'état solide ou liquide, sont utilisées pour tracer l'origine et l'évolution de ces composants (Faure G. et al., 1979 - Vidal Ph. and Clauer N., 1981 - Dickin A.P. et al., 1980 - Capo et al., 1998 - Allègre C.J. et al., 1995).

Le strontium stable se trouve à l'état naturel dans les roches mères, à raison d'une dizaine de ppm dans les grès et jusqu'à 450 ppm dans les roches carbonatées. Les principaux minerais du strontium sont la **strontianite** et la **célestite**. On le trouve aussi en faible concentration dans les minerais de calcium et de baryum et, à l'état de traces, dans l'eau de mer (Lide, 1999). Le strontium stable présent dans les eaux de surface provient très majoritairement de l'érosion des sols et des roches, le dépôt de poussières atmosphériques n'intervenant que très peu (ATSDR, 2004). Les concentrations associées sont généralement inférieures à  $1 \text{ mg}\cdot\text{l}^{-1}$ ; occasionnellement elles peuvent être plus élevées en fonction de la nature des bassins versants.

Le strontium présente également 16 isotopes radioactifs allant du  $^{80}\text{Sr}$  au  $^{95}\text{Sr}$ . Les plus importants étant le  $^{85}\text{Sr}$ , le  $^{89}\text{Sr}$  et le  $^{90}\text{Sr}$ . Les isotopes 89 et 90, d'origine naturelle, résultent de la désintégration du rubidium. Le  $^{90}\text{Sr}$  conduit par désintégration  $\beta^-$  à l'yttrium 90, lui-même émetteur  $\beta^-$  de période radioactive courte (2,67 jours), qui décroît vers le zirconium 90 stable.

Mais l'essentiel du  $^{90}\text{Sr}$  est en fait en quasi-totalité d'origine artificielle. Cet isotope du strontium provient en effet :

- soit des retombées des essais nucléaires militaires atmosphériques,
- soit des rejets d'effluents des centrales nucléaires, pour une faible part,
- soit, en proportion plus grande, des effluents liquides des usines de retraitement,
- soit encore d'accidents d'installations nucléaires.

Le  $^{85}\text{Sr}$  est, en raison de sa plus faible période de décroissance (gestion des déchets facilitée) et de sa nature émettrice gamma (plus aisément mesurable expérimentalement), l'isotope radioactif généralement utilisé en recherche.

	$^{85}\text{Sr}$	$^{89}\text{Sr}$	$^{90}\text{Sr}$
Période radioactive	64,8 jours	50,5 jours	29,14 ans
Activité massique (Bq.g-1)	$8,78 \cdot 10^{14}$	$1,08 \cdot 10^{15}$	$5,05 \cdot 10^{12}$
Emission(s) principale(s) par désintégration (rendement d'émission %)	$\beta^+$ à 550 Kev (99,0) $\gamma$ à 514 Kev (100)	$\beta^-$ à 1492 Kev (100)	$\beta^-$ à 546 Kev (100)

**Tableau II-2 : Caractéristiques des trois principaux isotopes radioactifs du strontium (Nuclides 2000, 1999).**

Nous rappelons ici que les isotopes d'un élément chimique peuvent connaître des mécanismes physiques différents lors justement de la mise en œuvre d'équilibres isotopiques mais que le comportement chimique de l'ensemble des isotopes est quant à lui considéré comme étant identique.

#### *II.4.2.2 Problématique environnementale du strontium*

Le strontium stable n'étant pas un élément toxique (Pais & Benton-Jones, 1997, p.137), le problème posé par le strontium est lié à la présence ou non de son isotope radioactif  $^{90}\text{Sr}$  dans

l'environnement et de sa possible migration à travers les différents compartiments sols, atmosphère, milieux aquatiques et biologiques.

Les explosions nucléaires atmosphériques, de 1945 à 1980, ont dans ce sens conduit à la dispersion de 622 PBq de  $^{90}\text{Sr}$  dans l'atmosphère. L'activité totale déposée étant estimée à 470 PBq pour l'hémisphère nord (soit une densité de dépôt surfacique de  $3\,440\text{ Bq}\cdot\text{m}^{-2}$ ) et à 142 PBq pour l'hémisphère sud (UNSCEAR, 2000).

Dans le nucléaire civil, où le  $^{90}\text{Sr}$  est créé par fission au sein des réacteurs, l'essentiel de ses rejets s'effectue par voie liquide, lors du retraitement des combustibles irradiés. En 1997, les rejets respectifs des usines de La Hague et de Sellafield se sont élevés à 3,7 TBq et 37 TBq (UNSCEAR, 2000).

Pour ce qui concerne les accidents d'installations nucléaires, l'accident de Windscale au Royaume-Uni en 1957 a libéré 74 GBq de strontium 90 (Galle, 1997). Les rejets de routine et surtout l'accident de l'usine Mayak près de Kychtym dans la région de Tcheliabinsk (Oural) ont dispersé 58 PBq de  $^{90}\text{Sr}$ , entraînant une contamination des sols du bassin de la rivière Techa allant de 3,7 à  $74 \times 10^3\text{ kBq}\cdot\text{m}^{-2}$  (UNSCEAR, 2000 ; Kryshev et al., 1998). Enfin, lors de l'accident de Tchernobyl en 1986, environ 8 000 TBq de  $^{90}\text{Sr}$  ont été rejetés dans l'atmosphère (IRSN, 2003) ; dans le voisinage du site, la densité de dépôt a été de l'ordre de  $1\text{ MBq}\cdot\text{m}^{-2}$  (Bossew P. et al., 2004) alors qu'en France les retombées ont été de l'ordre de 1 à  $600\text{ Bq}\cdot\text{m}^{-2}$ , le dépôt humide ayant représenté au moins les 2/3 du dépôt total (Renaud P. et al., 1999).

La migration vers les nappes phréatiques à partir des dépôts a eu lieu dans l'environnement proche de la centrale mais est également issue des tranchées de déchets radioactifs creusées à proximité suite à l'accident. Elle représente donc l'une des problématiques actuelles posées par le  $^{90}\text{Sr}$  sur le Site de Tchernobyl.

#### *II.4.2.3 Comportement géochimique du strontium dans les sols*

Dans l'environnement, le strontium est uniquement présent à l'état d'oxydation +II. De part son analogie chimique, le strontium peut se substituer au calcium dans la structure d'un grand nombre de minéraux.

Dans les milieux aqueux naturels, la spéciation du strontium dissout est largement dominée par sa forme cationique libre  $\text{Sr}^{2+}$ . Le strontium ne forme en effet d'une part que des complexes relativement faibles avec les ligands inorganiques ( $\text{SO}_4^{2-}$ ,  $\text{NO}_3^-$ ,  $\text{Cl}^-$  et  $\text{CO}_3^{2-}$ ) et ne peut d'autre part pas former de complexe avec les ligands organiques tels que les acides humiques ou fulviques, en raison de sa compétition permanente avec le calcium souvent présent à des concentrations nettement plus importantes (Stevenson & Fitch, 1986).

Le strontium peut par contre, dans certaines conditions particulières, former des espèces insolubles dont les deux principales sont la celestite ( $\text{SrSO}_4$ ) et la strontianite ( $\text{SrCO}_3$ ). En milieu acide, la celestite peut précipiter et contrôler la concentration de  $\text{Sr}^{2+}$  dissout si l'activité de  $\text{Sr}^{2+}$  est supérieure à  $10^{-4}$  mol/L. En milieu basique, la précipitation de la strontianite est susceptible de contrôler la concentration de  $\text{Sr}^{2+}$  en solution. Mais, les concentrations de Sr dissout dans les eaux naturelles étant généralement très faibles, la limite de solubilité de ces espèces n'est en réalité que rarement atteinte.

Les mécanismes de sorption du strontium sur les sols ont par ailleurs fait l'objet de nombreuses études dans le cadre des recherches sur sa mobilité dans l'environnement (notamment à cause de la problématique environnementale soulevée par la migration du  $^{90}\text{Sr}$ ). Nombreux auteurs ont ainsi constaté que l'interaction du strontium envers les sols, les sédiments et les roches lors de son transport se faisait principalement par échange cationique lorsque le pH est inférieur à 9 (Izrael et Rovinskii, 1970 ; Torstenfelt et al., 1982 ; Jackson et Inch, 1983 ; Lefèvre et al., 1993a). Jackson et Inch (1983) montrent par ailleurs que le  $^{90}\text{Sr}$  se fixe de façon totalement réversible sur des sols naturels. Certaines études indiquent cependant qu'une partie du  $^{90}\text{Sr}$  (environ 10%) ne peut pas être remobilisée (Ohnuki T., 1994b ; Brady et al., 1999), le strontium se substituant alors partiellement au calcium dans les minéraux tels que la calcite ou l'anhydrite.

Pour ce qui concerne la cinétique de sorption, la plupart des auteurs distinguent au moins 2 phases dans le processus :

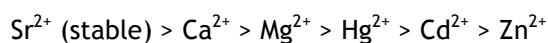
- une phase de courte durée (1 h à 1 jour) pendant laquelle la concentration de Sr sorbé augmente rapidement (Torstenfelt et al., 1982, Bunde et al., 1998, Moyes et al., 1998),
- une phase de longue durée (de plusieurs mois à plusieurs années) où on assiste à une augmentation très lente de la concentration sorbée (Torstenfelt et al., 1982).

Ces 2 phases correspondent à des mécanismes de sorption différents. La phase de sorption rapide est généralement attribuée à de l'échange d'ions sur des sites facilement accessibles à la surface des minéraux (Torstenfelt et al., 1982, Moyes et al., 1998). La seconde phase de longue durée traduit soit une étape de diffusion plus ou moins lente à l'intérieur de la matrice des minéraux vers des sites plus spécifiques (Torstenfelt et al., 1982), soit une étape de précipitation ou de co-précipitation.

Le temps de contact entre le sol et la solution (ou temps caractéristique de transfert en condition dynamique) est donc une des données essentielles lors de la caractérisation des propriétés de sorption du Strontium dans un sol. L'extrapolation de données obtenues en conditions statiques assez longues effectuées en batch (cf. chapitre IV) peut ainsi ne pas se révéler très pertinente, et plutôt sur-estimer la rétention du soluté par rapport aux conditions dynamiques de terrain, si les vitesses d'écoulement sont assez rapides.

Certaines zones d'eaux de faibles vitesses d'écoulement, peuvent cependant nécessiter la prise en compte des cinétiques lentes.

Il s'avère par ailleurs important de connaître la nature des cations pouvant entrer en compétition avec le strontium pour l'accès aux sites d'échange. D'après Kokotov et Popova (1962), Ames et Rai (1978) et Sposito (1989), le strontium domine la plupart des cations alcalino-terreux dans la compétition pour l'accès aux sites. Ainsi la classification des cations présents dans les eaux naturelles, en fonction de leur capacité à déplacer le strontium fixé au niveau d'un site d'échange apparaît comme étant la suivante :



Cependant, la compétition entre le  $\text{Sr}^{2+}$  et les autres cations majeurs dépend également bien entendu de leur concentration respective et du type de matériau sur lequel les cations peuvent être sorbés (Koss et Kim, 1990 ; Jeong et al., 1996). Les concentrations de calcium dans les eaux naturelles sont ainsi généralement deux ordres de grandeur au-dessus de la concentration en  $\text{Sr}^{2+}$  stable et 12 ordres de grandeur au-dessus de la concentration en  $^{90}\text{Sr}$  en solution.

Les facteurs ayant une forte influence sur la quantité de strontium fixé dans un système géochimique naturel sont :

- La CEC du solide,
- La proportion de fines (particules de diamètre inférieur à 2  $\mu\text{m}$ ),
- La nature des argiles au sein de la fraction fine,
- La concentration de  $\text{Ca}^{2+}$  en solution,
- La concentration de carbonates,
- La force ionique de la solution,
- La quantité de matière organique et sa nature,
- Le pH.

Le strontium fait partie des radionucléides moyennement mobiles dans les sols ; une compilation des valeurs de  $K_d$  dans les sols montre une distribution dans laquelle environ 2/3 des données sont inférieures à 40  $\text{L.kg}^{-1}$  pour un intervalle de valeurs variant de 0,03 à 1 150  $\text{L.kg}^{-1}$  et une moyenne géométrique de 17  $\text{L.kg}^{-1}$  (Roussel-Debet et Colle, 2005).

Le comportement géochimique naturel assez simple du strontium (degré d'oxydation unique, spéciation principalement sous forme cationique libre  $\text{Sr}^{2+}$  et sorption essentiellement par échange cationique instantanée et réversible) tend à justifier l'utilisation du modèle  $K_d$  pour décrire sa mobilité dans les sols lorsque les conditions chimiques du système sol/solution sont assez stables et bien connues. Néanmoins, la dépendance du coefficient  $K_d$  en fonction des conditions hydrodynamiques non saturées (surtout lors de variations de flux et de teneur en eau) n'est pas, actuellement, connue précisément (EPA 402-R-99-004 A et B, 1999 ; Guillou P., 2001). Hormis les études de Porro et al. (2006) et Szenknect (2003) ayant respectivement montré que, pour du basalte et le sable éolien de Tchernobyl, le coefficient de distribution n'était pas influencé, dans leurs conditions opératoires, par la valeur de la teneur en eau, en régime permanent, peu de travaux ont pour le moment abordé cette problématique.

## II.5 Préparation des colonnes

---

---

Notre étude est basée sur des expériences de transport sur colonnes de sable reconstituées dans différentes conditions hydrodynamiques. Nous présentons ici les étapes de mise en place des colonnes et des premières caractérisations communes à l'ensemble des expériences.

### II.5.1 Choix des colonnes

Deux classes de colonnes ont été fabriquées en fonction des paramètres étudiés :

- Des petites colonnes de hauteurs centimétriques, de diamètres de 2,5 ou 1,6 cm, pour l'étude spécifique des propriétés de sorption du strontium. Nous avons choisi des colonnes commerciales en verre PHARMACIA (XK26/20 et XK16/20).
- Des grandes colonnes fabriquées sur mesure de hauteurs métriques pour les études de transport en conditions non saturées. Ces colonnes en Plexiglas (Figure II-4) d'un diamètre interne de 5 cm possèdent une embase adaptée à la mise en place d'un filtre Micropore® (HVLP 09050, diamètre de pore 0,45  $\mu\text{m}$ ) surmonté d'une grille de protection en Nylon. Le haut de la colonne est adapté pour recevoir un embout PHARMACIA (AK50) de longueur ajustable pour réaliser les infiltrations de façon homogène sur toute la surface de la colonne.



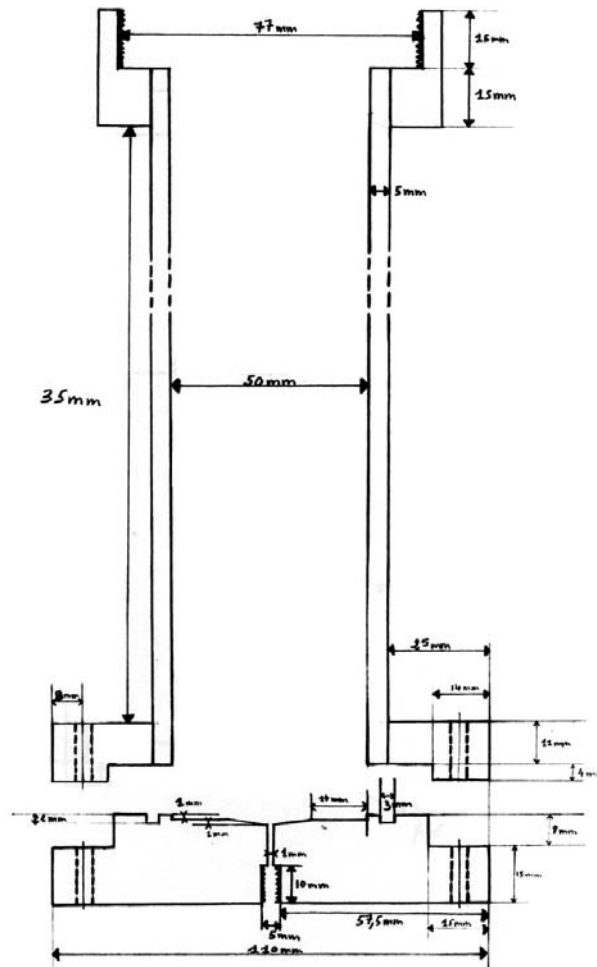


Figure II-4 : Colonne et pied de colonne en plexiglas fabriqués pour les expériences de transport en condition hydraulique non saturée.

### II.5.2 Technique de remplissage des colonnes

Nous avons utilisé une technique de remplissage à sec des colonnes, cette technique ayant été validée dans les travaux de Stéphanie Szenknect (2003) pour notre matériau sableux. Cette technique permet d'obtenir des colonnes homogènes et de masse volumique apparente proche de celles observées sur le terrain.

Le principe de remplissage est le suivant : La colonne est pesée à vide, puis le sable homogénéisé est introduit dans la colonne par ajouts successifs et réguliers. Après chaque ajout, la nouvelle « couche » est systématiquement tassé et homogénéisé à l'aide d'une tige rigide fine biseauté en donnant quelques dizaines de coups répartis uniformément sur toute la surface, pour briser

l'interface créée entre les deux tranches de sable superposées (Szenknect, 2003 ; Mazet, 2005). Une fois atteinte la hauteur de lit de sable désirée, L (cm), connaissant la masse totale de sable  $m_{\text{totale}}$  introduite et la surface S (cm<sup>2</sup>) de la section de colonne, la masse volumique moyenne  $\rho_d$  (g.cm<sup>-3</sup>) du milieu poreux est calculée en utilisant la relation suivante :

$$\rho_d = m_{\text{totale}} / V_{\text{total}} \quad \text{Équation II-II-1}$$

avec  $V_{\text{total}} = S.L$  en cm<sup>3</sup>

La porosité moyenne  $\varepsilon$  du milieu poreux est calculée en assimilant le sable à du quartz pur :

$$\varepsilon = 1 - \rho_d / \rho_s \quad \text{Équation II-II-2}$$

avec  $\rho_s = 2,65 \text{ g/cm}^3$  la masse volumique du quartz (Boltz et al., 1976, p.192).

Enfin, le volume des vides au sein de la colonne de sable, appelé également volume de pore  $V_p$  (cm<sup>3</sup>) est estimé par la formule suivante :

$$V_p = V_{\text{total}} \cdot \varepsilon \quad \text{Équation II-II-3}$$

Les caractéristiques physiques des colonnes de sable utilisées pour les expériences de transport en conditions non saturées sont présentées dans le Tableau II-3.

Colonne n°	Longueur colonne (cm)	Section de la colonne (cm <sup>2</sup> )	Masse volumique moyenne $\rho_d$ (g.cm <sup>-3</sup> )	Porosité $\varepsilon$	Volume de pore $V_p$ (cm <sup>3</sup> )
4	41,0	19,635	1,802	0,32	257,6
6	65,5	19,635	1,830	0,31	398,7
8	63,7	19,635	1,855	0,30	375,2

**Tableau II-3 : Caractéristiques physiques des colonnes de sable de Tchernobyl utilisées pour les expériences de transport en conditions insaturées.**

### **II.5.3 Mise en eau des colonnes**

La mise en eau d'une colonne de sable est effectuée par le pied de colonne, avec un écoulement ascendant, afin de chasser au maximum, par la montée du front de saturation (cf. Chapitre III), l'air initialement présent. Cette première saturation est opérée à très faible débit ( $0,1 \text{ ml.h}^{-1}$  pour les petites colonnes et  $5 \text{ ml.h}^{-1}$  pour les grandes colonnes) pour minimiser le piégeage de l'air, le haut de la colonne étant ouvert à la pression atmosphérique.

### **II.5.4 Conditionnement chimique des colonnes**

La mise en eau d'une colonne est directement suivie par une étape de « conditionnement chimique », qui permet de s'assurer de l'équilibre chimique entre la solution d'alimentation de composition chimique constante et le milieu poreux. En effet, si l'eau synthétique fabriquée au laboratoire est proche de cet équilibre, ce n'est plus le cas lorsque que l'on impose une nouvelle concentration en strontium stable. La mise en circulation à débit constant dans la colonne d'un nombre de volumes de pore suffisant permet alors de s'assurer à nouveau de cet équilibre. Les résultats expérimentaux précédents (Szenknect, 2003) ont montré que cette étape est cruciale et que pour nos conditions expérimentales, une centaine de volumes de pores étaient nécessaire pour atteindre l'équilibrage d'une colonne entière. Cet aspect sera abordé plus en détails dans la partie caractérisation des propriétés de rétention de notre étude.

En pratique, ce « conditionnement chimique » est effectué par le pied de colonne (écoulement ascendant) ou par le haut de colonne (écoulement descendant), respectivement pour les petites colonnes, et pour les grandes colonnes. Les débits d'alimentation des pompes PHARAMACIA P500 sont relativement faibles, de l'ordre de quelques  $\text{ml.h}^{-1}$  pour limiter les phénomènes de dispersion.

Le conditionnement chimique des colonnes de sable est l'une des étapes nécessaires de notre étude.

Le strontium correspond à l'élément possédant le plus d'affinité pour le sable parmi les cations présents dans l'eau synthétique. Il est donc l'élément contrôlant le conditionnement chimique. Le suivi des concentrations de strontium stable en sortie de colonne, jusqu'à l'obtention de la

stabilisation, permet de déterminer le temps au bout duquel le lit de sable est en équilibre chimique avec l'eau synthétique d'alimentation.

Cette étape de conditionnement géochimique a dans un premier temps été dimensionnée, pour nos conditions expérimentales, par une modélisation avec le coefficient  $K_d$  du strontium correspondant à la concentration choisie pour les expériences. Les coefficients  $K_d$  utilisés ici sont ceux des isothermes de sorption déterminés par Stéphanie Szenknect (2003). Le résultat de l'un de ces dimensionnements effectué à l'aide du code de transport Hydrus-1D est présenté Figure II-5.

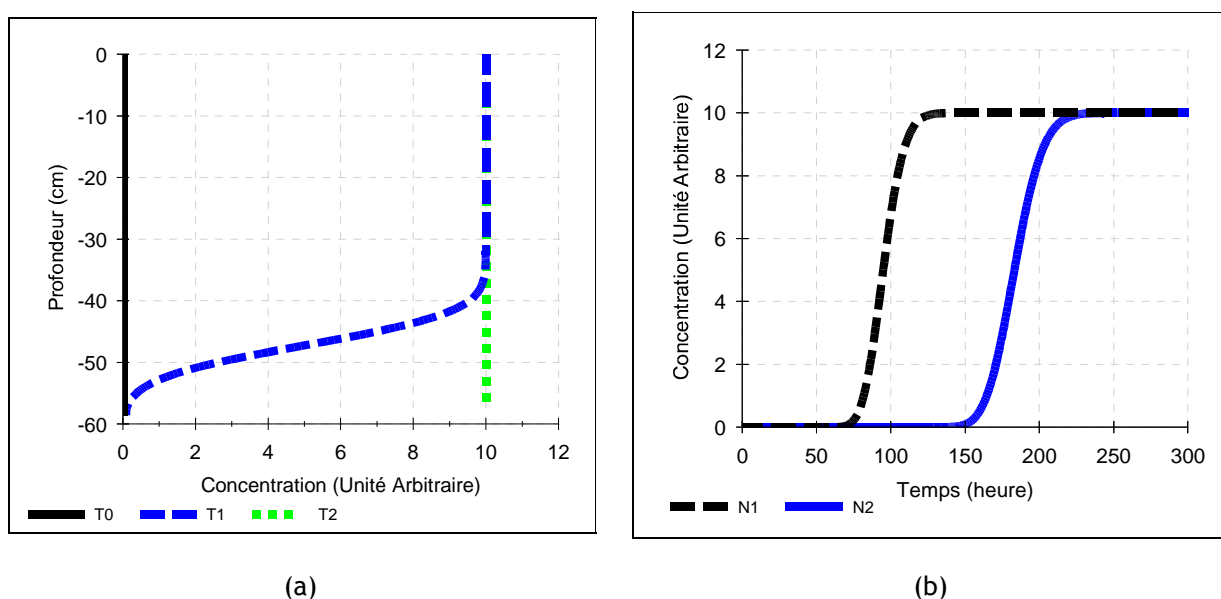


Figure II-5 : (a) Profils de concentration en phase liquide à T0, T1= 150 h et T2= 300 h et (b) Courbes de Percée obtenues aux profondeurs N1= 30 cm et N2= 60 cm lors du dimensionnement du conditionnement chimique en strontium stable à la concentration arbitraire de 10 en phase liquide d'une colonne de sable de Tchernobyl de longueur L= 60 cm à saturation naturelle - Résultats obtenus avec le code de transport Hydrus-1D : Vitesse de pore  $v= 40$  cm/h et  $K_d= 20$  L/Kg.

Les résultats obtenus lors de ce dimensionnement sont cohérents avec les données acquises expérimentalement (cf. Chapitres IV), puisqu'ils montrent qu'il faut 150 h pour conditionner 40 cm de colonne.

En pratique, l'opération de conditionnement chimique demande la fabrication d'une quantité assez importante d'eau d'alimentation pour pouvoir lessiver la colonne avec une centaine de volumes de pore selon la valeur du coefficient  $K_d$  de l'élément limitant. Cette étape est donc longue à mettre

en œuvre mais reste fondamentale pour découpler correctement les phénomènes propres à la sorption et à l'hydrodynamique.

## II.6 Fonctionnement des colonnes

---

---

Notre étude a nécessité la mise en œuvre de trois systèmes hydrauliques différents afin d'étudier d'une part les propriétés de rétention du strontium sur le sable sur des petites colonnes, et d'autre part le transport du strontium 85 en conditions hydrauliques non saturées en régime d'écoulement permanent ou transitoire sur des grandes colonnes.

### II.6.1 Écoulement permanent

#### II.6.1.1 Principe des expériences

Une colonne de laboratoire contient un milieu poreux reconstitué dans lequel circule en permanence et à débit constant une solution d'alimentation. En régime hydraulique permanent, l'étude expérimentale du transport d'un soluté à travers ce milieu poreux consiste à injecter un signal, ou fonction d'entrée, dans la colonne et à mesurer la réponse de la colonne, ou courbe de percée, à cette sollicitation. L'étude de la réponse de la colonne pouvant également être effectuée par l'analyse des profils de concentration.

La nature du signal d'entrée est différente en fonction des paramètres que l'on souhaite dériver :

- Le signal d'entrée peut être un échelon, la concentration du soluté d'intérêt injecté variant de la concentration initiale  $C_i$  à la concentration finale  $C_f$  constante au temps  $t_0$ .
- Le signal d'entrée peut être un Dirac, assimilable à une impulsion d'entrée d'un soluté à la concentration  $C_0$  pendant un temps très bref  $\delta t$ .
- Le signal d'entrée peut également être « intermédiaire » entre les deux précédents, en forme de créneau (ou pulse).

L'analyse de la courbe de percée du soluté en sortie de colonne  $C_L(t)$ , permet d'évaluer les propriétés de transport des solutés d'intérêt. Si on s'intéresse aux profils de migration, c'est la concentration résidente de soluté  $C_r(t)$  qui doit être suivie.

#### *II.6.1.2 Analyse des courbes de percée*

L'analyse des courbes de percée (ou des profils de concentration) a été effectuée selon trois méthodes.

La première consiste à déterminer les moments de la courbe, notamment ceux d'ordre 0, 1 et 2, afin d'estimer respectivement le bilan de masse BM, le temps de séjour  $T_s$  et la variance du soluté étudié durant son transfert (cf. Chapitre I). Le facteur de retard R peut alors être déterminé à partir du temps de séjour et permettre ainsi une estimation du coefficient de distribution  $K_d$  par l'intermédiaire de la relation  $R=1+\rho d.K_d/\theta$ . Dans le cadre de notre étude, nous avons utilisé le logiciel Peakfit (cf. Chapitre I) pour calculer les moments des courbes (courbe de percée ou bien profil d'activité totale mesuré le long d'une colonne).

Une autre méthode d'analyse, concernant le modèle opérationnel (à une seule espèce chimique) consiste à ajuster, la réponse du modèle de transport de soluté correspondant au scénario étudié (i.e. conditions initiales et aux limites). Le calage des valeurs du facteur de retard R et de la dispersivité  $\alpha$  est alors effectué (i) soit de façon directe « à l'œil » en utilisant un logiciel, tel que Sigmaplot ou Igor, dans lequel la forme analytique de la solution au modèle aura été préalablement explicitée (ii) soit par méthode inverse avec un logiciel spécialisé, tel que CXTFIT, intégrant plusieurs modèles.

La troisième méthode d'analyse des courbes de percée est l'approche couplée géochimie/transport. Dans ce cas, ce n'est plus seulement la courbe de percée de l'élément d'intérêt que l'on analyse mais toutes les courbes des espèces prises en compte. Cette analyse, beaucoup plus mécaniste, permet alors de connaître non seulement les facteurs de retard des différentes espèces mais de réajuster également un certain nombre de paramètres géochimiques (CEC, constante de sélectivité, etc...). L'estimation quantitative de ces paramètres est faite par ajustement « à l'œil » des courbes

calculées sur les courbes expérimentales. Le logiciel que nous avons utilisé pour ce type d'analyse est HYTEC (cf. Chapitre I et IV).

*II.6.1.3 Etude et dispositif expérimental pour les petites colonnes saturées*

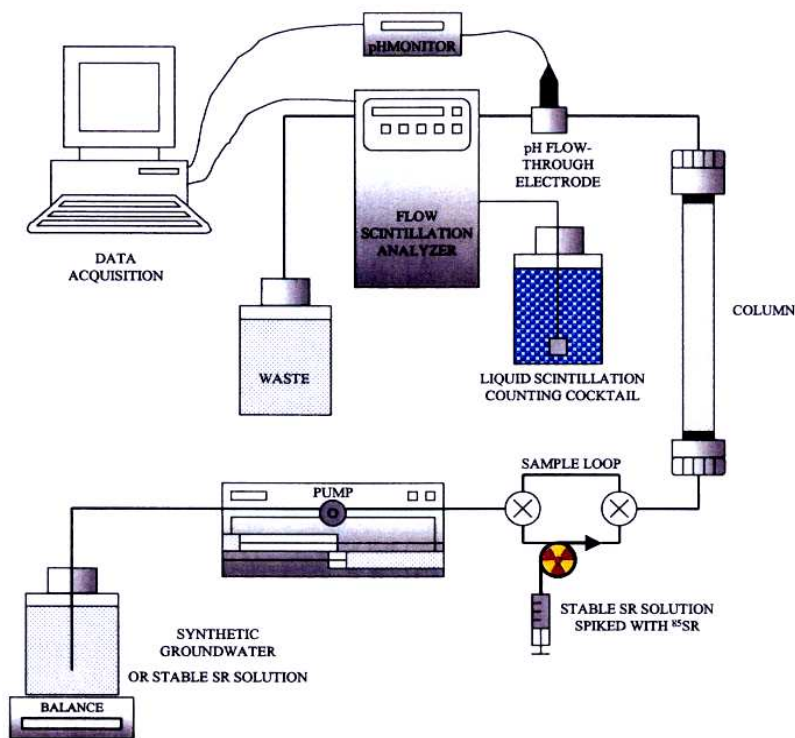


Figure II-6 : Dispositif expérimental utilisé pour les expériences de transfert sur les petites colonnes saturées - Etude des propriétés de sorption du strontium 85 sur le sable éolien de Tchernobyl (extrait de Szenknect, 2003) .

Le dispositif expérimental permet ici d'injecter une solution d'alimentation dans la colonne à débit constant grâce à la pompe à double pistons PHARMACIA P500 du système commercial AKTA FPLC. On peut donc injecter un échelon très simplement. On peut également injecter un Dirac de soluté non réactif (solution de tritium à 370 kBq.L<sup>-1</sup> comme traceur de l'écoulement de l'eau) ou bien réactif (<sup>85</sup>Sr comme marqueur radioactif du strontium stable) grâce à une boucle d'injection d'un volume de 100 µL placée entre la pompe et le pied de colonne.

Pour l'acquisition des courbes de percée, on peut utiliser trois systèmes :

- Un compteur à scintillation liquide en ligne Flow-One TR500 (PACKARD) pour l'analyse du tritium avec une cellule de mesure TRLC de 500  $\mu\text{L}$ , ou bien pour l'analyse du strontium 85 avec une cellule B/G de 500  $\mu\text{L}$ .
- Un passeur automatique d'échantillon, pour prélever des fractions de 5 mL d'éluat pour effectuer les analyses chimiques des divers cations et anions par chromatographie ionique (METROHM COMPACT 861) ou ICPMS (THERMO ELECTRON X7 series). Les courbes de percées sont alors reconstituées a posteriori.
- Un système de chromatographie ionique (METROHM COMPACT 861 cation) pour l'analyse des cations en continu et la visualisation en temps réel des courbes de percée.

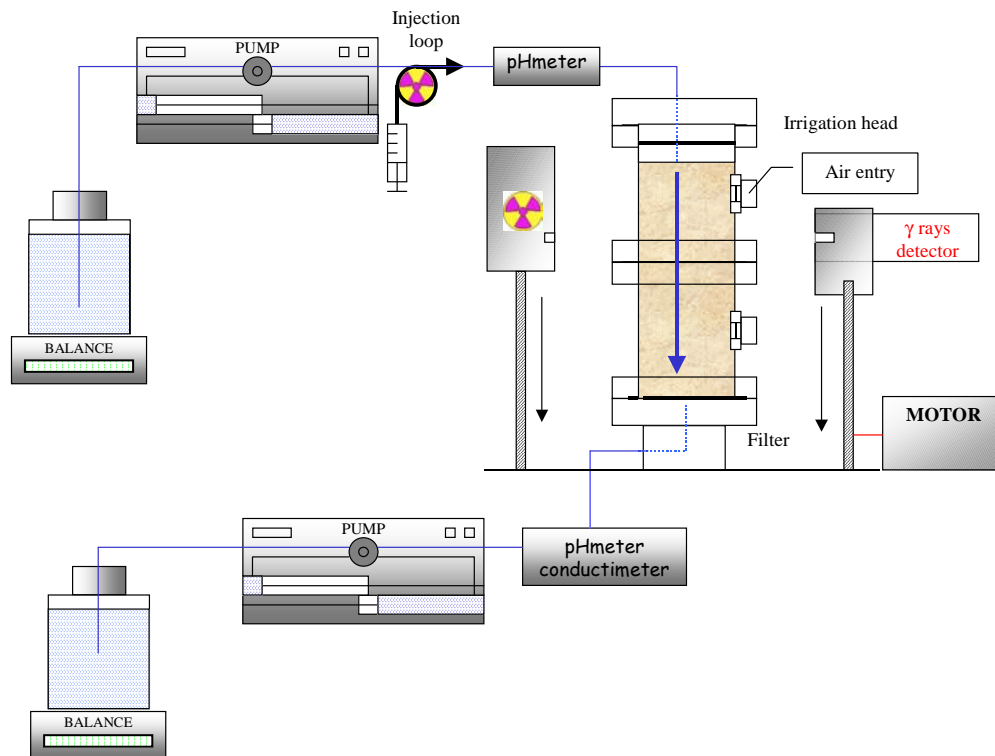
L'ensemble du système est relié à un ordinateur qui permet l'acquisition des données et le pilotage des divers instruments (pompe, boucle d'injection, passeur...) via le logiciel UNIVORN V 3.0. Dans le cas du couplage en ligne avec l'appareil de chromatographie ionique, un second ordinateur est nécessaire et piloté avec le logiciel ICNET METROHM.

Ce dispositif expérimental a été utilisé pour étudier les propriétés de sorption du strontium pour des concentrations variant de  $10^{-8}$  mol.L<sup>-1</sup> à  $10^{-4}$  mol.L<sup>-1</sup>. Les expériences réalisées à température ambiante ( $22^\circ\text{C} \pm 3^\circ\text{C}$ ) ont consisté à effectuer un premier traçage tritium pour estimer le temps de résidence ( $T_s$ ) de ce traceur de l'écoulement de l'eau. Ensuite, l'étape de conditionnement chimique, effectuée avec de l'eau synthétique dont la concentration en strontium stable est préalablement ajustée, est suivie dans le temps. L'analyse de la courbe de percée du strontium permet alors d'établir le temps de transport moyen ( $T_r$ ) du strontium. Le facteur de retard ( $R=T_r/T_s$ ) est alors calculé et permet de déduire le coefficient de distribution apparent du strontium stable ( $K_{da}$ ).

Un dernier traçage est alors effectué en injectant un Dirac d'une solution marquée au strontium 85 dont la courbe de percée est analysée de façon identique pour déterminer le coefficient apparent du traceur radioactif.



II.6.1.4 *Etude et dispositif expérimental pour les grandes colonnes non-saturées*



**Figure II-7 : Dispositif expérimental utilisé pour les expériences de transfert sur les grandes colonnes non-saturées (extrait de Szenknect, 2003).**

Le dispositif expérimental et la méthodologie employés sont identiques à ceux utilisés dans les travaux de Stéphanie Szenknect (2003). Nous rappelons ici simplement le fonctionnement hydrodynamique de ce système.

Par rapport au système présenté pour les petites colonnes, la différence principale est liée à l'ajout d'une seconde pompe double pistons PHARMACIA P500 en pied de colonne. En effet, pour pouvoir établir un régime d'écoulement non saturé avec une teneur en eau uniforme dans la colonne, l'une des solutions techniques adaptée est d'imposer des débits constants en entrée et en pied de colonne.

De façon simple, à partir d'une colonne initialement drainée à succion imposée pour atteindre le profil hydrostatique, on procède à l'alimentation de la colonne par le haut avec un débit constant  $Q$ . Le débit d'infiltration est choisi en fonction de la teneur en eau souhaitée et d'après la courbe caractéristique de conductivité hydraulique  $K(\theta)$ . Lorsque le profil de teneur en eau est uniforme le

long de la colonne et que le front d'infiltration atteint le pied de colonne, on démarre alors la pompe d'aspiration en pied de colonne avec le même débit pour établir un profil uniforme le long de la colonne. Les difficultés techniques associées à la mise en œuvre de ces expériences sont principalement liés au contrôle précis des débits des pompes pour maintenir un profil constant dans le temps. Le contrôle par pesée des quantités d'eau en entrée et en sortie de colonne permet de vérifier la stabilité du régime sur de longues périodes, et de corriger les débits des pompes en cas d'écart.

Une fois le régime hydraulique permanent non-saturé mis en place, on procède à l'injection du créneau de soluté réactif marqué avec le traceur radioactif ( $^{85}\text{Sr}$ ) en haut de colonne grâce à la boucle d'injection de 1 mL. La migration du traceur radioactif est alors suivie le long de la colonne en fonction du temps par un dispositif d'acquisition d'activité gammamétrique (cf. II.7).

## **II.6.2 Écoulement transitoire**

### *II.6.2.1 Principe des expériences*

Une colonne de laboratoire contient un milieu poreux reconstitué initialement à l'équilibre hydrostatique avec une pression d'eau (suction) imposée en pied de colonne. L'étude consiste à injecter en haut de la colonne un signal, ou fonction d'entrée, et à mesurer la réponse de la colonne à cette sollicitation. Ce signal est un créneau d'eau, infiltré à débit constant pendant une durée  $\Delta T$ , marqué avec un traceur radioactif émetteur gamma ( $^{85}\text{Sr}$ ) de concentration  $C_0$ . Après l'infiltration de l'eau et sa redistribution le long de la colonne, l'équilibre hydrostatique initial est de nouveau atteint (Figure II-8). On procède alors à des séries d'infiltrations (exemptes de marqueur) - redistributions de l'eau dans le but de suivre leur influence sur la migration du traceur radioactif le long de la colonne de laboratoire (Figure II-9). L'utilisation d'un traceur émetteur gamma permet de mesurer, de manière non destructive, les profils de concentration résidente  $C_t(z)$  du traceur.

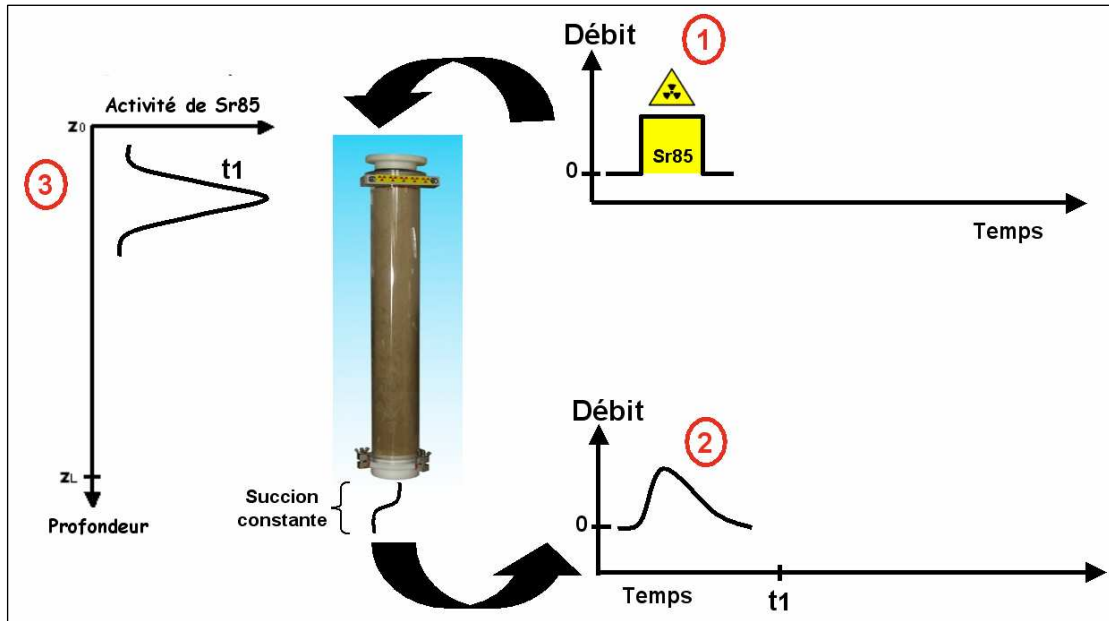


Figure II-8 : Première infiltration d'un pulse de  $^{85}\text{Sr}$ . ① Injection d'un créneau d'eau marqué au  $^{85}\text{Sr}$ . ② Suivi de la courbe de percée de l'eau en pied de colonne. ③ Mesure du profil d'activité du  $^{85}\text{Sr}$  à l'équilibre hydrostatique après 24 heures.

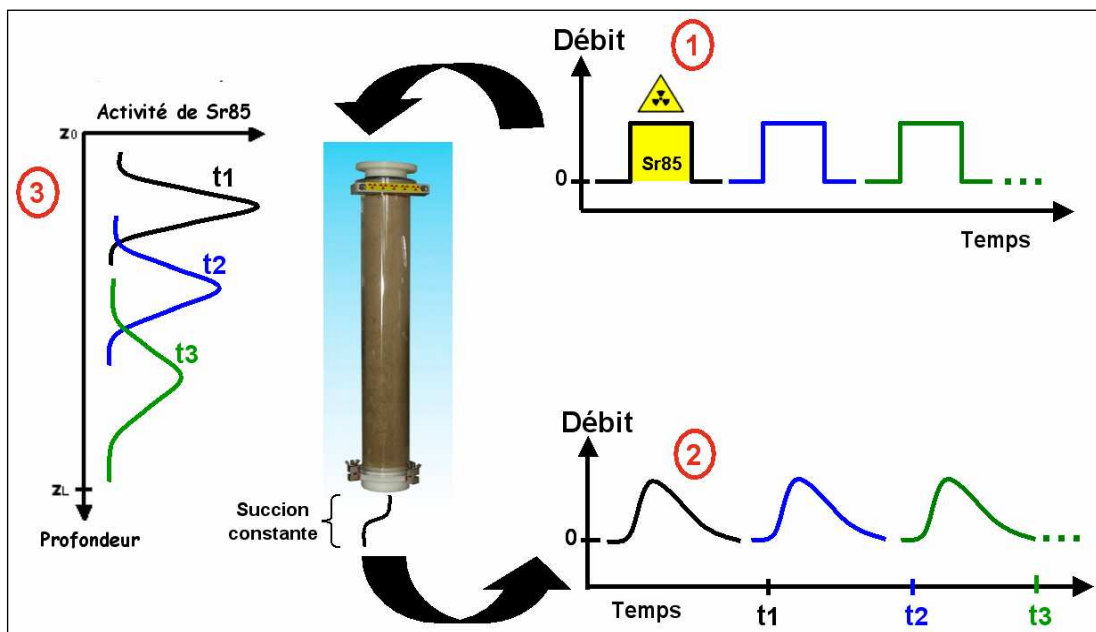


Figure II-9 : Cycles d'infiltrations - redistributions par injection de créneaux d'eau d'alimentation non marquée. ① Injection des créneaux. ② Suivi des courbes de percée de l'eau en pied de colonne. ③ Mesure des profils d'activité du  $^{85}\text{Sr}$  à l'équilibre hydrostatique par cycle de 24 heures.

II.6.2.2 *Etude et dispositif expérimental*

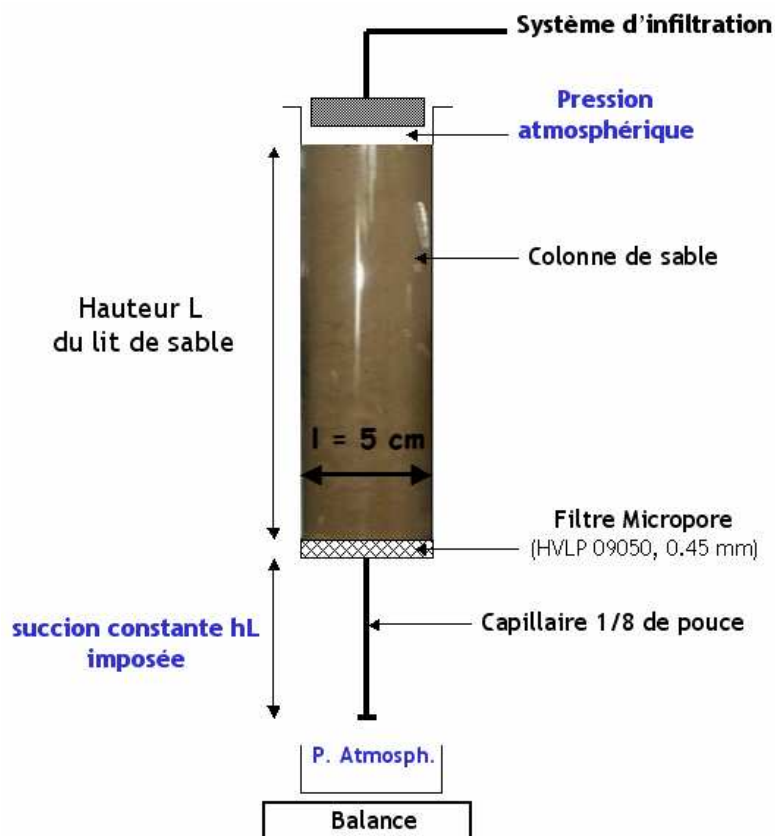


Figure II-10 : Représentation des conditions opératoires appliquées sur les colonnes de sable de Tchernobyl dans le cadre des expériences de transport de strontium 85 en régime hydraulique non-saturé transitoire.

Le dispositif expérimental est identique à celui utilisé pour les grandes colonnes non-saturées, la seule différence étant que la pompe d'aspiration en pied de colonne est remplacée par un tube capillaire (1/8 de pouce) de longueur ajustable. Ceci permet d'imposer une condition à la limite en pied de colonne avec une succion imposée connue et constante. La présence du filtre Micropore® (HVL P 09050, diamètre de pore 0,45  $\mu\text{m}$ ) en pied de colonne permet de maintenir les conditions hydrauliques non saturées au sein du milieu poreux. Ce filtre permet en effet, en restant saturé en eau durant les expériences, d'éviter une rupture de la continuité hydraulique du système. Les critères de choix du filtre sont liés à sa conductivité hydraulique (qui doit être de l'ordre de grandeur de celle du milieu poreux étudié pour ne pas limiter l'écoulement) et à sa pression d'entrée d'air (qui doit être supérieure aux suctions imposées au milieu poreux pour rester saturé,

mais qui doit être assez faible pour ne pas diminuer la conductivité hydraulique du filtre). Le filtre choisi pour nos colonnes permet ainsi d'imposer des suctions suffisamment importantes en pied de colonne (jusqu'à  $|h| = 85$  cm) pour atteindre des teneurs en eau faibles, de l'ordre de la teneur en eau de rétention  $\theta_r$ .

D'un point de vue pratique, la mise en place des conditions hydrauliques initiales commence par une saturation préalable de la colonne. Celle-ci est alors drainée en imposant une suction constante suffisamment importante en pied de colonne ( $|h| = 84$  cm) pour pouvoir atteindre la valeur de la teneur en eau résiduelle (entre 0,02 et 0,05) sur la plus grande profondeur possible. Le but de cette étape est double. D'une part cela permet d'obtenir un état hydrostatique initial uniforme proche des faibles teneurs en eau, d'autre part cela limite l'influence de la condition limite en pied de colonne en évitant le développement d'une frange capillaire et en se rapprochant du comportement d'une colonne semi-infinie.

Nous avons étudié différents types de créneaux d'eau dans nos expériences. Si la quantité infiltrée, pour chaque cycle, a été maintenue constante à 50 mL, nous avons étudié plusieurs temps d'infiltration (notamment 12, 15 et 30 minutes) correspondant respectivement à des vitesses de Darcy de 12,7 ; 10,2 et 5,1  $\text{cm}\cdot\text{min}^{-1}$ . Lorsqu'on compare ces vitesses d'infiltration et la durée des créneaux avec des données de terrain, ils correspondent à des pluies qui sont effectivement observées sur le terrain.

## II.7 Dispositif expérimental de mesure des profils

---

---

Notre étude met en œuvre un dispositif expérimental particulier, un banc gammamétrique qui avait été utilisé avec succès pour l'étude en conditions hydrodynamiques non saturées permanentes. L'originalité de notre étude, d'un point de vue technique, a été d'adapter et d'utiliser ce dispositif pour suivre des phénomènes transitoires d'écoulement de l'eau et de transport réactif, et d'en définir les limites d'applications.

### II.7.1 Caractéristiques du banc gammamétrique

Le dispositif d'auscultation gammamétrique (Figure II-11) permet de réaliser simultanément le long d'une colonne de sable, avec une précision de positionnement spatial de l'ordre du millièbre de millimètre, des profils de teneur en eau et d'activité de radioéléments émetteurs gamma.

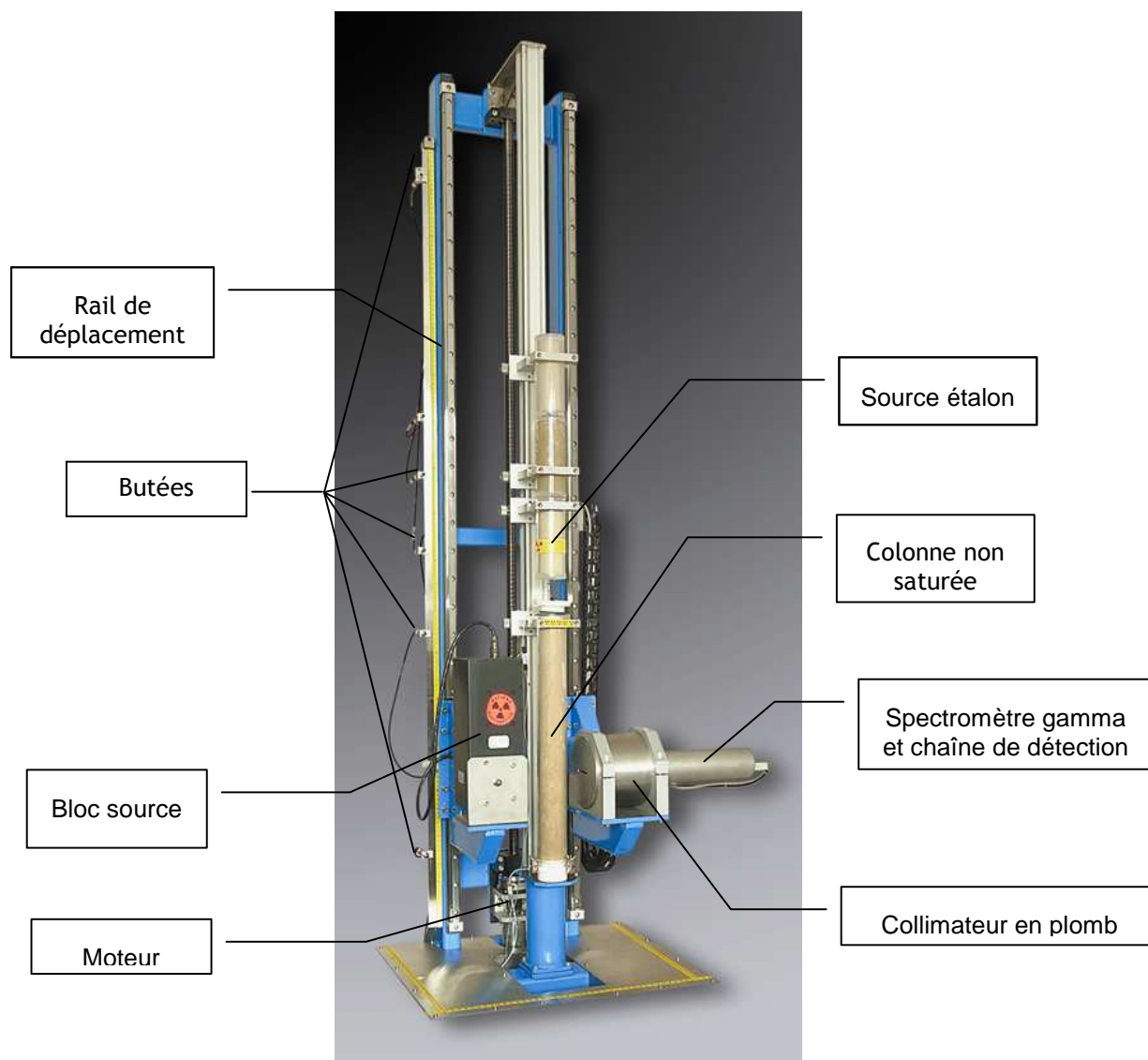


Figure II-11 : Prise de vue du banc d'auscultation gammamétrique IRSN (bâti, colonne, bloc émetteur et bloc détecteur) permettant l'acquisition de données sur le transfert de radionucléide au sein de colonne de sol, saturée ou non-saturée en eau, avec une résolution spatiale et temporelle fine.

Ce dispositif est constitué d'un bloc émetteur contenant une source d'américium 241 d'activité 1,67 GBq

au 02/02/2001,  $T_{1/2} = 423,7$  ans). Ce bloc source est muni d'une fenêtre permettant d'occulter le rayonnement émis entre deux mesures. Il est solidaire du bloc détecteur constitué de la sonde de détection gamma (NanoSPEC NaI Aries) et d'un collimateur en plomb. L'ensemble se déplace en translation le long de la colonne par le biais d'un moteur et d'un automate de positionnement (MIP50-E, Maxon motor ag). Des butées de référence sont disposées le long du banc de façon à repérer notamment le haut et le bas de la colonne. La précision sur le positionnement de l'automate par rapport à une cote de référence est de l'ordre du  $\mu\text{m}$ . La cote de référence choisie par l'utilisateur correspond en général à la limite supérieure du lit de sable. Cette cote est repérée manuellement à plus ou moins 1 mm.

L'américium 241 émet un rayonnement gamma à 59,5 keV, détecté à travers la colonne par la sonde collimatée lorsque la fenêtre du bloc source est ouverte. L'atténuation de ce rayonnement à travers la colonne est une fonction de la teneur en eau dans la section de colonne vue par le détecteur. Lorsque la fenêtre du bloc source est en position fermée, la sonde de mesure gamma peut être utilisée pour mesurer l'activité d'un traceur radioactif gamma, comme le strontium 85, dans la même section de colonne.

### **II.7.2 Application à la mesure du profil de teneur en eau $\theta(z)$ au sein des colonnes**

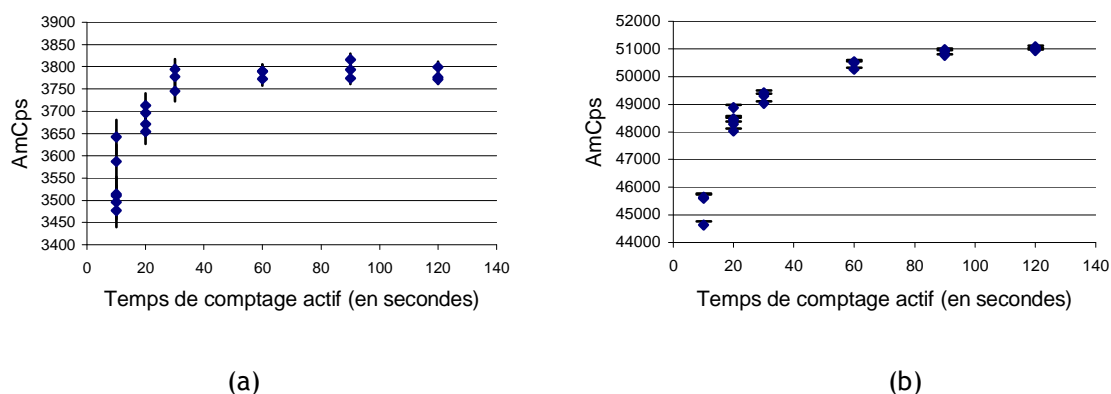
La mesure de teneur en eau par gammamétrie consiste à comparer, pour une cote  $z$  donnée, l'activité du rayonnement  $\gamma$  émis lors de l'ouverture du bloc source d'Am241 traversant le sable humide par rapport à la mesure de référence faite préalablement sur sable sec à la même cote.

Le calcul de teneur en eau  $\theta(z)$  fait intervenir un coefficient d'atténuation massique du signal gamma lié à la quantité d'eau présente et dont la détermination permet de calibrer le détecteur (Annexe 2). L'équation utilisée pour le calcul de la teneur en eau (Ishakoglu et Baytas, 2002), dérivée de la loi de Beer-Lambert sur l'atténuation d'un signal, est présentée ci-dessous :

$$\theta(z) = \frac{1}{\mu_{\text{eau}} \cdot d \cdot \rho_{\text{eau}}} \cdot \ln \left[ \frac{N_{\text{sable sec}}(z)}{N_{\text{sable humide}}(z)} \right] \quad \text{Équation II-II-4}$$

où  $\mu_{\text{eau}}$  correspond au coefficient d'atténuation massique de l'eau,  $d$  le diamètre de la colonne,  $\rho_{\text{eau}}$  la masse volumique de l'eau,  $N_{\text{sable sec}}(z)$  le nombre de coup par seconde mesuré sur sable sec à la cote  $z$  et  $N_{\text{sable humide}}(z)$  le nombre de coup par seconde mesuré sur sable humide à la même profondeur de la colonne.

Les mesures d'atténuation de rayonnement  $\gamma$  d'américium241 sur sable humide servant au calcul de la teneur en eau ont généralement été effectuées avec un temps de comptage minimum de 30 secondes. Ce dernier correspond en effet au temps de comptage à partir duquel le nombre de coups par seconde d'américium mesuré à travers le sable sec reste identique quel que soit le temps d'acquisition (Figure II-12).



**Figure II-12 : Evolution du nombre de coups par seconde d'américium241 mesuré en fonction du temps de comptage d'acquisition (a) à travers une colonne de sable saturée en eau et (b) sans colonne.**

Un temps de comptage de 30 secondes permet d'obtenir d'autre part d'un point de vue statistique une faible incertitude sur la mesure. Enfin ce temps est un bon compromis car il autorise l'acquisition de profils le long de la colonne de façon suffisamment rapide pour être compatible avec la vitesse d'évolution des écoulements étudiés.

Les calculs de teneur en eau à partir des données brutes fournies par le logiciel de pilotage pour construire les profils de teneur en eau sont ensuite réalisés en utilisant le logiciel Excel dont les macro-commandes développées spécifiquement sont présentées Annexe 3.



### II.7.3 Application à la mesure du profil d'activité totale $A(z)$ du radioélément au sein des colonnes

Sur un lit de sable sec, une première mesure de référence de profil d'activité totale de strontium 85 est effectuée sur une source ponctuelle placée au milieu de la colonne. Cette source ponctuelle est constituée d'un filtre papier sur lequel a été déposé, sous forme liquide, une activité de 12,95 kBq en  $^{85}\text{Sr}$ . Une fois séchée par évaporation, cette source sert d'étalon et permet le calibrage du détecteur en accédant notamment :

- au rendement de mesure du dispositif pour les conditions opératoires de l'essai (temps de comptage, activité présente, etc....),
- et à la valeur de l'étalement du profil mesuré par la sonde gamma collimatée sur 5 mm en réponse à une source ponctuelle.

La sonde  $\gamma$  intègre à la cote  $z$  l'activité d'un volume de colonne correspondant à un cône d'ouverture (Figure II-13) qui est défini par la géométrie du collimateur et fournit un point du profil  $P(z)$ . La réponse,  $P(z)$ , exprimée en coups par seconde (cps) corrigés du bruit de fond est reliée à l'activité dans la colonne,  $A(z)$ , par un produit de convolution (Berne et al., 2001) :

$$P(z) = I \otimes A(z) = \int_{-h}^h A(z-k) \cdot I(k) dk \quad \text{où } I(k) \text{ est la réponse impulsionnelle de la sonde gamma.}$$

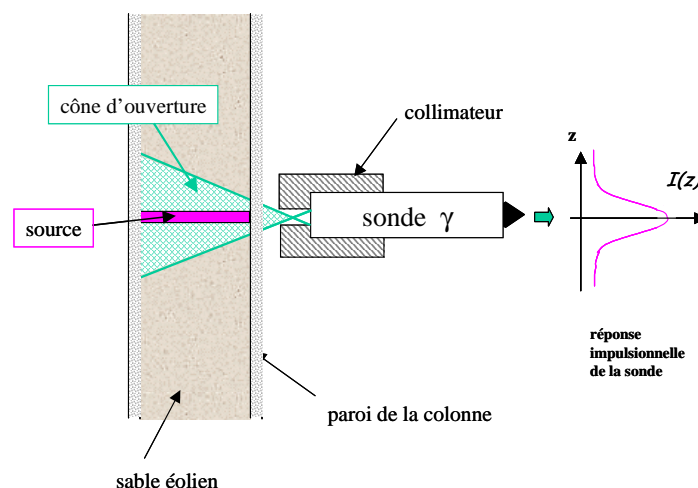


Figure II-13 : Cône d'ouverture de la sonde gamma (extrait de Barthès et al., 2003).

En toute rigueur, retrouver  $A(z)$  à partir de  $P(z)$  nécessite une déconvolution. L'intensité  $I(k)$  peut être évaluée expérimentalement à l'aide de la source étalon. Dans la pratique, on considère que la courbe  $I(k)$  (~15mm de largeur à mi-hauteur - Figure II-14) est suffisamment étroite pour être assimilable à une fonction de Dirac et on confond  $A(z)$  et  $P(z)$ .

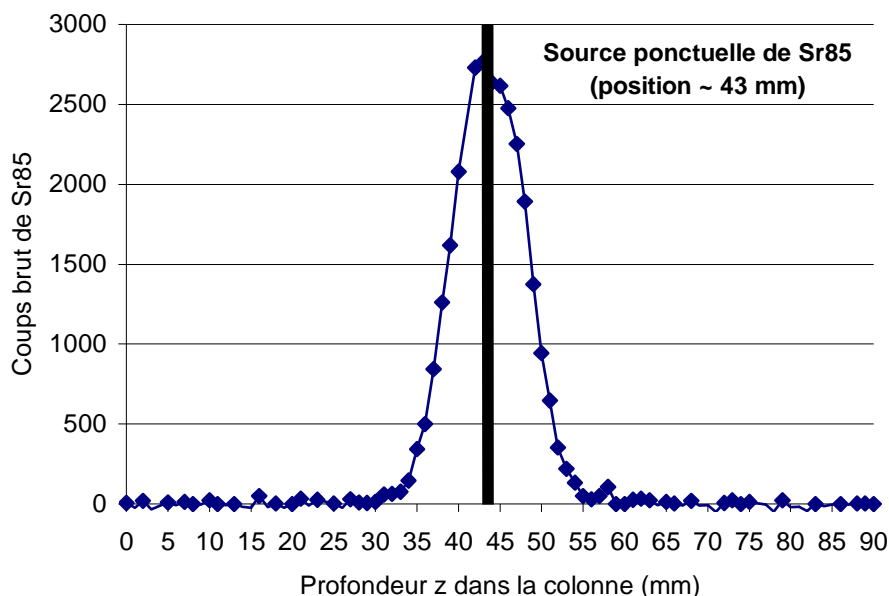


Figure II-14 : Profil d'activité mesuré avec la sonde gamma (temps de comptage= 600 secondes) en présence d'une source étalon ponctuelle de  $^{85}\text{Sr}$  ( $A_0= 12,95$  kBq) placée au sein d'une colonne de sable.

Lors de l'acquisition des profils de radioélément sur colonne de sable humide, l'énergie des traceurs est suffisamment importante (supérieure à 600 keV) pour pouvoir négliger l'atténuation éventuelle de leur activité en fonction de la quantité d'eau présente à l'endroit de la mesure.

#### II.7.4 Vérification de l'homogénéité de remplissage de la colonne

L'homogénéité du remplissage de la colonne est vérifiée en mesurant le profil de densité du sable sec. Cette mesure est effectuée grâce au banc gammamétrique par l'intermédiaire d'un profil d'activité d'américium 241 à travers le sable sec. Ce premier profil est réalisé avec un pas de mesure millimétrique le long de la colonne afin de servir par la suite de référence sur sable sec lors du calcul de teneur en eau pour une cote donnée. Un temps de comptage de 60 secondes pour chaque cote de mesure a été choisi afin de minimiser l'incertitude liée au comptage.

Le profil de masse volumique  $\rho_d(z)$  du lit de sable (Figure II-15) est ensuite calculé grâce à l'Équation II-II-5, similaire à celle utilisée pour le calcul de teneur en eau (Équation II-II-4) mais faisant intervenir cette fois le rapport entre activité d'Am241 mesurée sur la colonne vide et sur la colonne remplie de sable sec :

$$\rho_d(z) = \frac{1}{\mu_s \cdot d} \cdot \ln \left[ \frac{N \text{ colonne vide } (z)}{N \text{ sable sec } (z)} \right] \quad \text{Équation II-II-5}$$

où  $\mu_s$  correspond au coefficient d'atténuation massique du sable sur le rayonnement gamma émis par la source d'américium et  $d$  le diamètre de la colonne.

Les profils de masse volumique  $\rho_d(z)$  mesurés sur sable sec pour trois grandes colonnes de notre étude sont présentés Figure II-15.

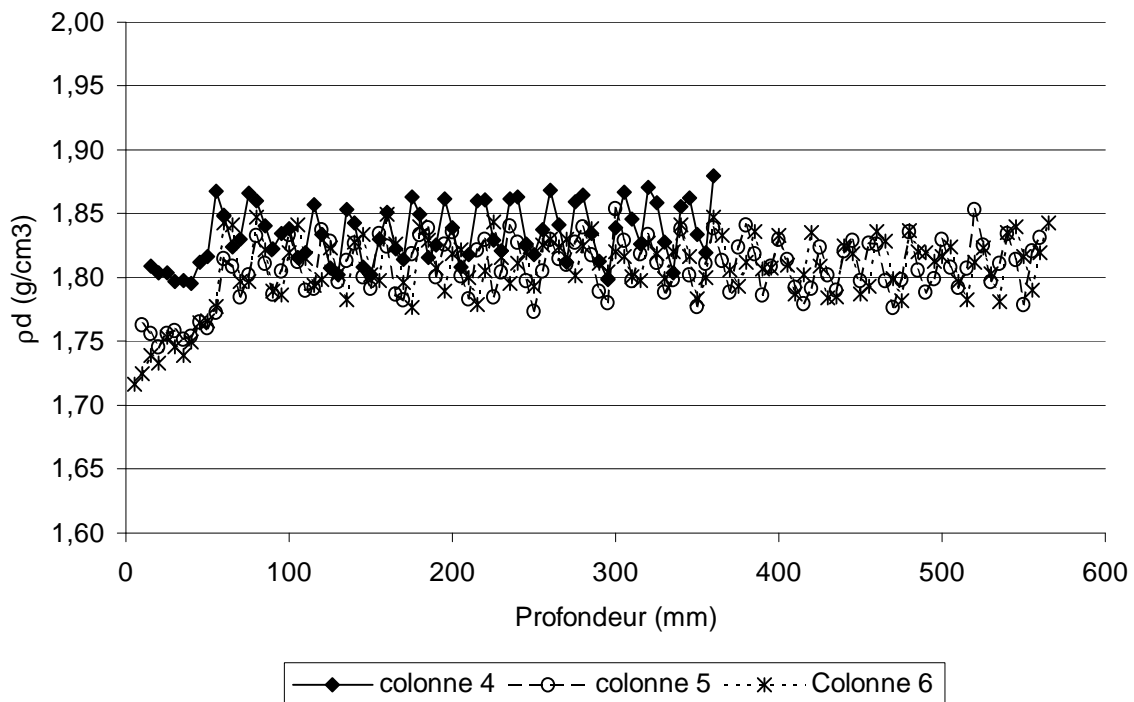


Figure II-15 : Profils de masse volumique  $\rho_d(z)$  obtenus initialement sur 3 colonnes de sable sec (colonne 4  $\rho_d(z)_{moyen} = 1,83 \text{ g.cm}^{-3}$ , colonne 5  $\rho_d(z)_{moyen} = 1,81 \text{ g.cm}^{-3}$  et colonne 6  $\rho_d(z)_{moyen} = 1,81 \text{ g.cm}^{-3}$ ).

Les profils de masse volumique obtenus par cette technique de fabrication sont généralement assez homogènes. Les colonnes sont considérées valables lorsque la valeur moyenne du profil de masse volumique calculée se situe autour de  $1,81 \text{ g/cm}^3$ . On peut noter un très bon accord entre les

valeurs de masse volumiques mesurées et celles calculées d'après les paramètres géométriques des colonnes en assimilant le sable à du quartz pur (Tableau II-3).



## II.8 Synthèse

---

---

L'objet de ce deuxième chapitre était de présenter à la fois le matériel (sol, solutés, solution) et la méthodologie choisis pour réaliser notre étude.

Pour ce qui concerne le milieu poreux, le sable éolien de Tchernobyl, nous avons énuméré tout d'abord ses principales caractéristiques granulométrique ( $d_{50}=230 \mu\text{m}$ ), minéralogique (composé essentiellement de quartz) et chimique (silice  $\text{SiO}_2$  à 98%) afin d'accentuer notamment sur sa composition assez homogène et son caractère de « sable modèle ».

Nous avons choisi d'utiliser par ailleurs comme eau d'alimentation, une eau synthétique préparée au laboratoire, basée sur des analyses d'échantillons d'eau prélevés *in situ* afin d'obtenir une solution la plus proche possible de celle présente sur le terrain à l'équilibre géochimique avec le sol. Cette solution d'alimentation est de type sulfaté-calcique avec des concentrations respectives de  $1,1 \times 10^{-4}$  et  $7,7 \times 10^{-5} \text{ mol.L}^{-1}$ . Son pH est de l'ordre de 6,4.

Nous présentons ensuite les principales caractéristiques ainsi que la problématique environnementale posée par notre élément d'intérêt : le strontium 90. Nous rappelons que nous substituons dans notre étude cet élément par son isotope radioactif, le strontium 85, à la fois pour des raisons de gestion des déchets (décroissance radioactive plus rapide) et expérimentale ( $^{90}\text{Sr}$  = émetteur  $\beta$  et  $^{85}\text{Sr}$  = émetteur  $\gamma$ ).

Pour réaliser les expériences de migration sur lesquelles se base notre étude, nous avons choisi de travailler à l'échelle de la colonne afin de maîtriser au maximum les conditions opératoires.

Les expériences en condition hydraulique non saturée sont réalisées sur des colonnes de l'ordre de 70 cm de hauteur et 5 cm de diamètre. Ces colonnes sont installées sur un dispositif original d'auscultation gammamétrique (le banc gammamétrique) permettant de mesurer simultanément l'évolution spatio-temporelle de la teneur en eau volumique  $\theta$  et l'activité totale de radioéléments émetteurs  $\gamma$  présents dans le lit de sable durant les expériences.

Des expériences en condition hydraulique saturée sont également effectuées afin d'étudier plus spécifiquement les propriétés de sorption du strontium sur notre milieu poreux. Ces dernières sont

réalisées sur des petites colonnes de l'ordre de quelques centimètres de hauteur et d'environ 2 cm de diamètre. Le dispositif expérimental se base cette fois sur un système de type HPLC auquel est adapté en sortie de colonne soit un collecteur de fraction (échantillonnage) soit un système de détection à scintillation liquide (Flow-One) permettant de mesurer en continu l'activité des radionucléides contenus dans les effluents.

Des essais complémentaires sont effectués, en utilisant un traceur de l'eau (tritium) afin de mieux caractériser l'écoulement de l'eau.

Toutes les expériences de transport sont par ailleurs précédées d'un conditionnement géochimique des lits de sable, en imposant différentes concentrations connues de strontium stable dans une solution aqueuse contenant des concentrations toujours identiques pour les autres éléments.

# Chapitre III

Écoulement de l'eau en condition non saturée et transfert non réactif





## SOMMAIRE CHAPITRE III

<b>CHAPITRE III. ECOULEMENT DE L'EAU EN CONDITION NON-SATUREE ET TRANSFERT NON-REACTIF (TRACEUR DE L'EAU)</b>	<b>133</b>
---	------------

<b>III.1 PROPRIETES HYDRODYNAMIQUES DU SABLE EOLIEN DE TCHERNOBYL – <math>h(\theta)</math> &amp; <math>K(\theta)</math></b>	<b>133</b>
III.1.1 Conductivité hydraulique à saturation $K_{sat}$ – Perméamètre	134
III.1.2 Courbe de rétention d'eau $h(\theta)$ – Profils hydrostatiques	136
III.1.3 Courbe de conductivité hydraulique $K(\theta)$ - Infiltrations à débit constant	139
III.1.4 Ajustement de fonctionnelles hydrodynamiques non-saturées : Brooks & Corey (1964) et Van Genuchten/Mualem (1980)	141
<b>III.2 TRANSITOIRES HYDRAULIQUES</b>	<b>145</b>
III.2.1 Mise en œuvre et suivi d'écoulements transitoires non-saturés	145
III.2.2 Modélisation des écoulements transitoires	148
<b>III.3 TRANSFERT NON REACTIF (TRAÇAGES TRITIUM)</b>	<b>149</b>
<b>III.4 SYNTHESE</b>	<b>157</b>

**Liste des Figures du chapitre III**

Figure III-1 : Photo du perméamètre à charge constante installé au laboratoire pour déterminer la conductivité à saturation  $K_{sat}$  du sable de Tchernobyl. .... 134

Figure III-2 : Profils de teneur en eau mesurés lors de la première mise en eau d'une colonne (saturation totale) et lors des saturations suivantes (saturation naturelle). .... 135

Figure III-3 : Evolution du débit  $Q$  en sortie du perméamètre en fonction de la différence de charge  $\Delta H$  imposée, (correction faite des pertes de charge liées au système d'alimentation)..... 136

Figure III-4 : Profils hydrostatiques obtenus pour différentes suctions  $hL$  imposées en pied de colonne (a) sur une colonne de 45,5 cm de hauteur initialement à saturation naturelle (b) sur une colonne de 65,5 cm de hauteur initialement à saturation totale (1<sup>er</sup> drainage). .... 138

Figure III-5 : Evolution (a) du profil de teneur en eau le long de la colonne et (b) de la teneur en eau à 3 profondeurs différentes, lors d'une infiltration à débit constant  $Q=40\text{ml/h}$  ( $q=2\text{cm/h}$ ) effectuée sur une colonne de sable de Tchernobyl, initialement drainée avec une suction  $hL$  de 84 cm. La teneur en eau moyenne obtenue est de  $\theta = 0,17$ ..... 140

Figure III-6 : Ajustement des fonctionnelles (a) de Brooks et Corey (1964) et (b) de Van Genuchten/Mualem (1981) sur les données expérimentales établies lors des tests de drainages et d'infiltrations sur les colonnes de sable éolien de Tchernobyl..... 144

Figure III-7 : Evolution des profils de teneur en eau  $\theta(z)$ , dans une colonne de sable éolien de Tchernobyl initialement drainée en imposant une suction  $hL = -84$  cm, suite à l'application d'un créneau d'eau d'une durée de 15 minutes avec une vitesse de Darcy  $q=10,2$  cm/h – Phase 1 : Infiltration, Phase 2 : Redistribution..... 146

Figure III-8 : Evolution de la teneur en eau à 8,6 cm de profondeur lors de l'application d'une série de trois infiltrations/redistributions ( $q=10,2$  cm/h pendant  $\Delta t=15$  minutes) sur une colonne de sable éolien de Tchernobyl de 64 cm de hauteur initialement drainée en imposant une suction constante de 84 cm en pied de colonne. ... 147

Figure III-9 Estimation de la qualité des valeurs des paramètres de Van Genuchten/Mualem calées indépendamment sur nos données expérimentales  $\theta(h)$  et  $K(\theta)$  – Comparaison entre approche numérique (code Hydrus-1D) et données expérimentales de teneur en eau pour les mêmes conditions que celles de la Figure III-8. .... 148

Figure III-10 : Courbe de percée obtenue lors du traçage du circuit hydraulique (absence de sable) pour le dispositif expérimental utilisé pour la colonne n°6 à l'aide d'eau tritiée (activité=5600 Bq, débit  $Q=100$  ml/h) ..... 150

Figure III-11 : Profils de teneur en eau mesurés avec le banc gammamétrique durant le traçage avec du tritium de la colonne 6. La teneur en eau moyenne le long de la colonne est de  $\theta = 0,25$  (saturation naturelle)..... 151

Figure III-12 : Courbe de percée du traçage tritium effectué à saturation naturelle sur la colonne de sable n°6 et ajustements des modèles de transport Convection/Dispersion CDE et Mobile-Immobile MIM. .... 152

*Figure III-13 : Courbe de percée obtenue lors du traçage du circuit hydraulique (absence de sable) pour le dispositif expérimental utilisé pour la colonne n°8 à l'aide d'eau tritiée (activité= 970 Bq, débit  $Q= 206$  ml/h).  
..... 153*

*Figure III-14 Profils de teneur en eau mesurés avec le banc gammamétrique durant le traçage avec du tritium de la colonne 8. La teneur en eau moyenne le long de la colonne est de  $\theta= 0,28$  (saturation naturelle). ..... 154*

*Figure III-15 : Courbe de percée du traçage avec du tritium à saturation naturelle de la colonne de sable n°8 et ajustements des modèles de transport Convection/Dispersion CDE et Mobile-Immobile MIM. .... 155*



**Chapitre III. Écoulement de l'eau en condition non-saturée et transfert non-réactif (traceur de l'eau)**

Dans ce chapitre, nous traitons d'abord les écoulements d'eau transitoires et le transport d'un soluté non réactif (traceur de l'eau) dans les colonnes non saturées de laboratoire.

Pour modéliser les transitoires hydrauliques appliqués aux colonnes, il est nécessaire de connaître les courbes de rétention d'eau  $h(\theta)$  et de conductivité hydraulique  $K(\theta)$  du sable éolien de Tchernobyl. Nous présentons donc dans un premier temps les mesures des propriétés hydrodynamiques du sable éolien de Tchernobyl (courbes caractéristiques expérimentales  $h(\theta)$  et  $K(\theta)$ ) et l'ajustement de fonctionnelles couramment utilisées : Van Genuchten/Mualem (1980) et Brooks & Corey (1964).

Nous analysons ensuite les résultats obtenus lors de tests d'écoulements transitoires hydrauliques appliqués sur les lits de sable. Ces essais ont permis, d'une part de visualiser le comportement hydrodynamique réel des colonnes de sable, et d'autre part de calibrer le suivi de l'évolution de la teneur en eau avec le banc gammamétrique pour choisir la technique de suivi la mieux adaptée à nos expériences.

Nous interprétons enfin les résultats de traçages non-réactifs réalisés sur les colonnes de sable afin de tester leur fonctionnement hydrodynamique et de mesurer leurs propriétés de transport (présence de zones d'eau immobile, coefficient de dispersivité...).

### **III.1 Propriétés hydrodynamiques du sable éolien de Tchernobyl - $h(\theta)$ & $K(\theta)$**

---

---

Durant l'application de conditions hydrauliques transitoires non-saturées dans un milieu poreux, toute la gamme de teneur en eau possible peut être balayée (de la teneur en eau résiduelle  $\theta_r$  à la teneur en eau à saturation  $\theta_{sat}$ ). La caractérisation des propriétés hydrodynamiques du milieu poreux doit donc être conçue pour couvrir l'ensemble des degrés de saturation.

Les propriétés hydrodynamiques de notre milieu poreux ont été déterminées au laboratoire, pour nos conditions opératoires, au moyen d'expériences d'écoulement réalisées sur colonnes :

- la conductivité hydraulique à saturation  $K_{sat}$  a été mesurée à partir d'un perméamètre à charge constante,
- la courbe caractéristique de rétention d'eau  $h(\theta)$  a été estimée à partir de profils hydrostatiques de teneur en eau obtenus pour différentes succions imposées en pied de colonne ;
- enfin la courbe de conductivité hydraulique  $K(\theta)$  a été obtenue en réalisant plusieurs infiltrations, non saturantes, à débit constant.

### III.1.1 Conductivité hydraulique à saturation $K_{sat}$ - Perméamètre

Le premier paramètre hydrodynamique mesuré est la conductivité hydraulique à saturation ( $K_{sat}$ ). Pour cette mesure, on a construit, au laboratoire, un perméamètre à charge constante (Figure III-1).

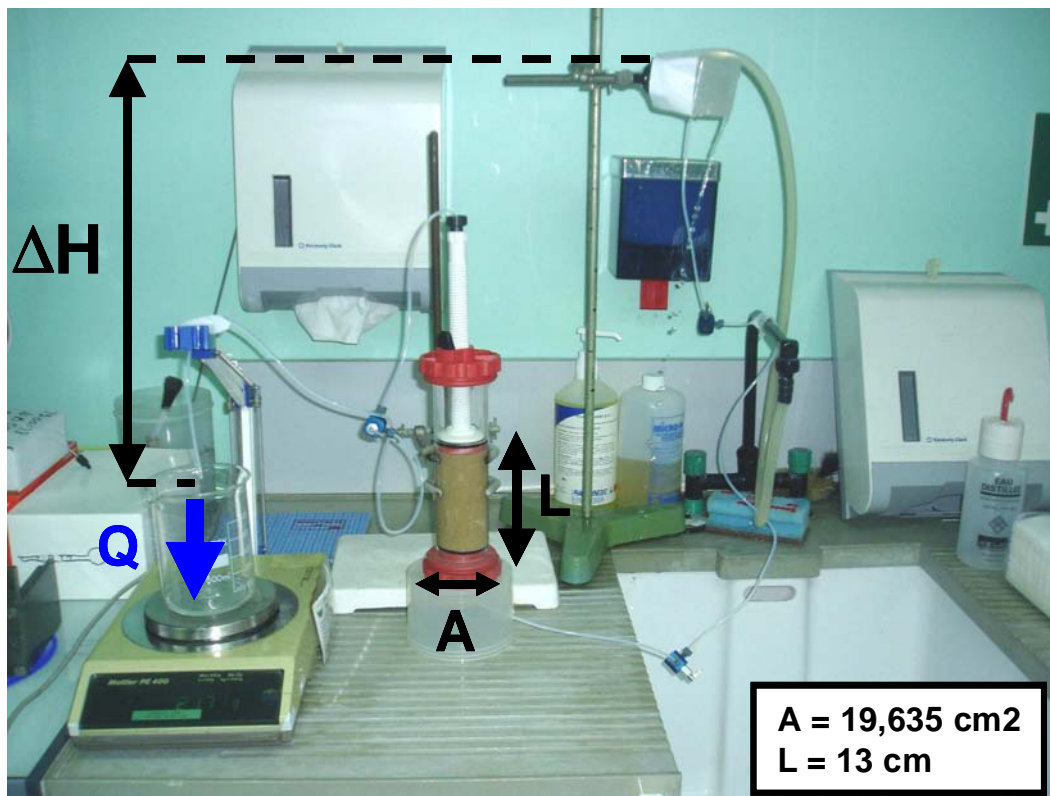


Figure III-1 : Photo du perméamètre à charge constante installé au laboratoire pour déterminer la conductivité à saturation  $K_{sat}$  du sable de Tchernobyl.

Basée sur la loi phénoménologique de Darcy (1856), la relation linéaire entre le gradient de charge hydraulique imposé au système et le débit  $Q$  (ml/h) résultant sur notre dispositif s'écrit :

$$Q = K_{sat} \cdot A \cdot \Delta H/L$$

avec  $A$  la surface de la section de la colonne  $A = 19,635 \text{ cm}^2$ ,  
 $L$  la hauteur de la colonne de sable  $L = 13 \text{ cm}$ ,  
 et  $\Delta H$  la différence de charge imposée au système.

A noter qu'après un premier drainage gravitaire d'une colonne, la saturation obtenue lors des saturations suivantes, exercées dans les mêmes conditions, varie entre 0,80 et 0,95 fois la porosité totale (soit une teneur en eau à saturation entre 0,24 et 0,28 pour une porosité totale de 0,3). Cette nouvelle teneur en eau maximale atteinte (Figure III-2), correspond alors à la saturation naturelle du milieu poreux (situation proche des conditions de terrain), qui témoigne alors de la présence d'une phase gazeuse piégée.

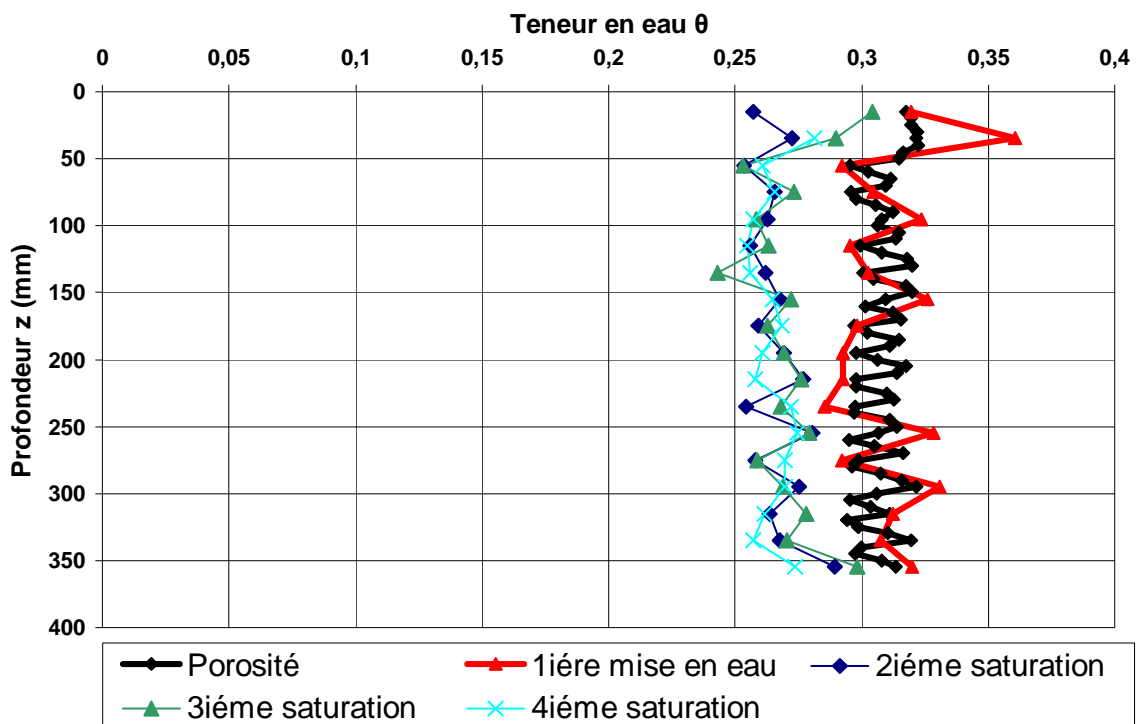


Figure III-2 : Profils de teneur en eau mesurés lors de la première mise en eau d'une colonne (saturation totale) et lors des saturations suivantes (saturation naturelle).

Les résultats obtenus lors de l'expérience du perméamètre sont présentés Figure III-3.



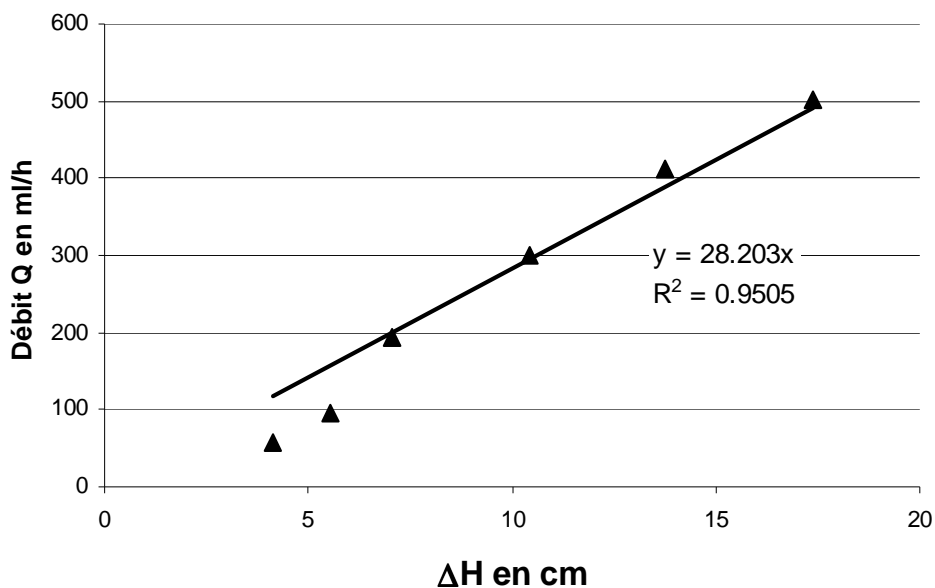


Figure III-3 : Evolution du débit Q en sortie du perméamètre en fonction de la différence de charge  $\Delta H$  imposée, (correction faite des pertes de charge liées au système d'alimentation).

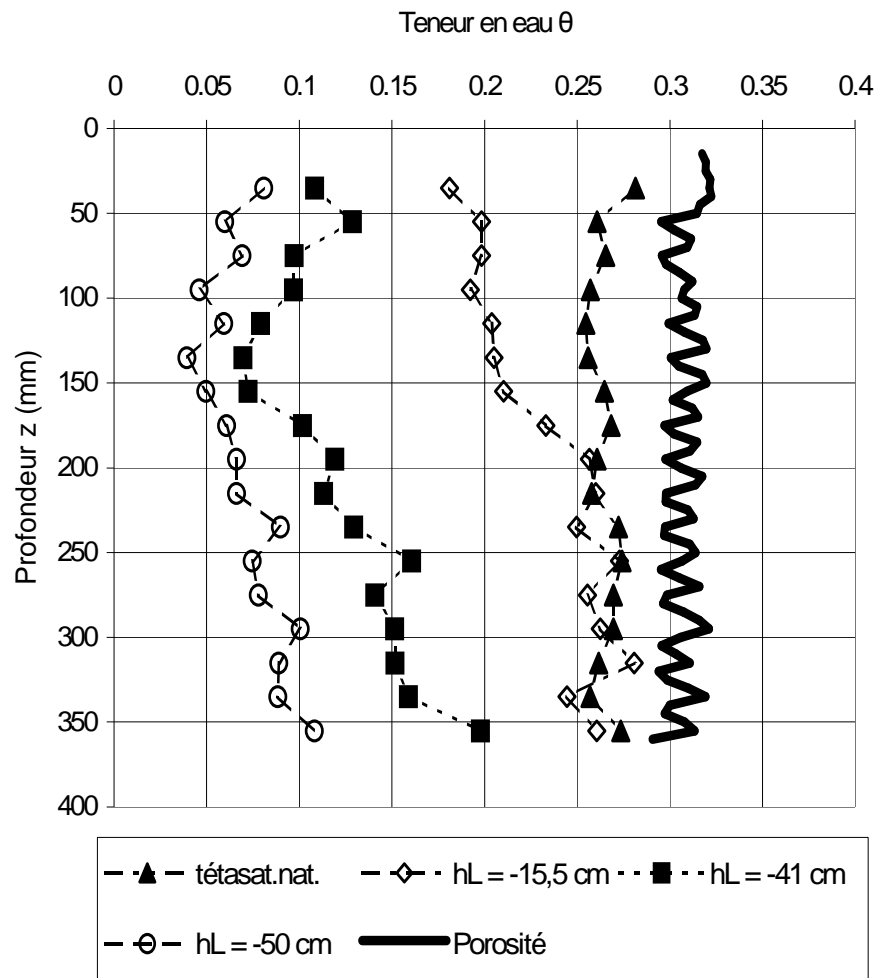
La courbe représentant le débit Q en fonction de la différence de charge hydraulique  $\Delta H$  doit, d'après la loi de Darcy, passer par l'origine et être linéaire. Dans notre dispositif expérimental, des pertes de charge « parasites » ont été mises en évidence. Celles-ci ont été mesurées expérimentalement et ont permis, après correction, de calculer une conductivité à saturation totale de  $K_{\text{sat}} = 19 \pm 1$  cm/h et à saturation naturelle de  $K_{\text{sat.nat.}} = 12 \pm 1$  cm/h.

### III.1.2 Courbe de rétention d'eau $h(\theta)$ - Profils hydrostatiques

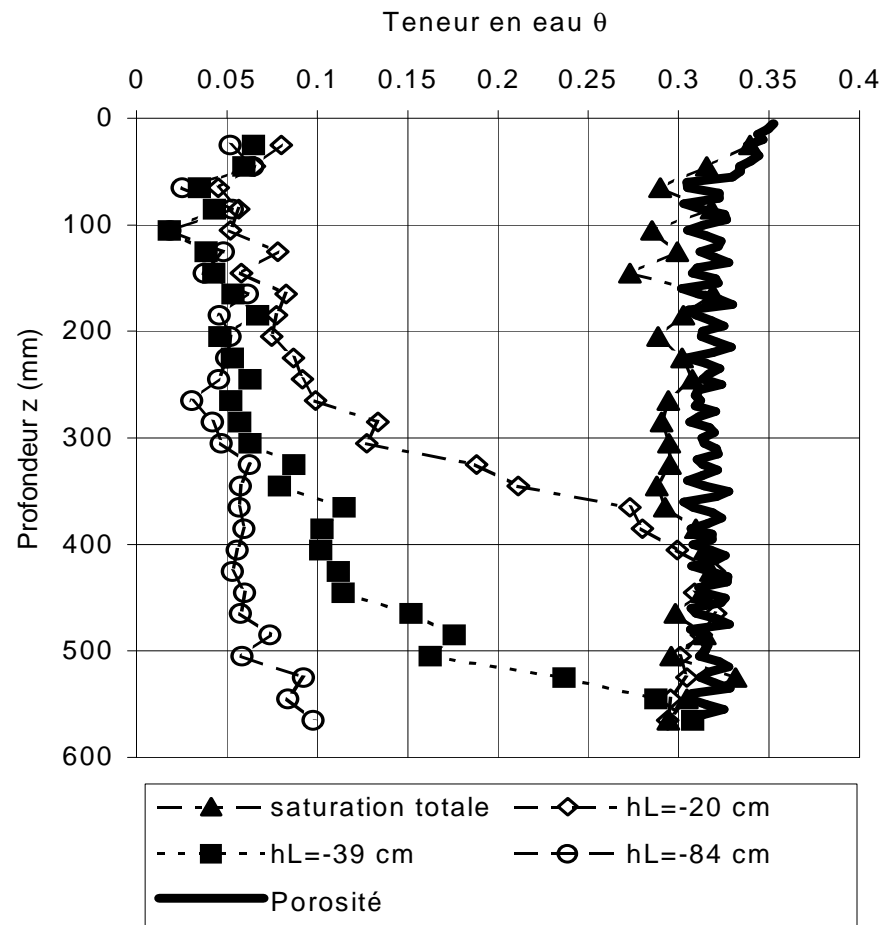
Pour déterminer la courbe de rétention d'eau  $h(\theta)$  du sable éolien de Tchernobyl, nous avons utilisé les profils hydrostatiques obtenus lors de différents drainages effectués sur les colonnes. Les drainages sont réalisés en imposant une succion constante  $h_L$  en pied de colonne. Cette condition à la limite est mise en place en maintenant le capillaire connecté à la sortie de colonne à une hauteur précise par rapport au pied de colonne. Le haut de colonne reste ouvert à la pression atmosphérique. Cette condition à la limite est rendue possible expérimentalement, (sans rompre la continuité du circuit hydraulique en pied de colonne), grâce à la présence, sous le lit de sable, d'un filtre jouant le rôle de barrière semi-perméable (laisse passer l'eau, mais pas l'air).

Les profils hydrostatiques ainsi obtenus sur deux colonnes pour différentes succions  $h_L$  sont présentés Figure III-4.

Une fois l'équilibre hydrostatique atteint ( $Q=0$ , arrêt de l'écoulement) le profil de teneur en eau  $\theta(z)$  est mesuré le long de la colonne avec le banc gammamétrique. A chaque cote  $z$  est associée la valeur correspondante de  $h$ , connaissant la succion imposée en pied de colonne. Les couples de données  $h(\theta)$  expérimentaux permettent de construire la courbe de rétention. L'exploitation des données obtenues lors de ces expériences de drainage est présentée Paragraphe III.1.4.



(a)



(b)

Figure III-4 : Profils hydrostatiques obtenus pour différentes succions  $h_L$  imposées en pied de colonne (a) sur une colonne de 45,5 cm de hauteur initialement à saturation naturelle (b) sur une colonne de 65,5 cm de hauteur initialement à saturation totale (1<sup>er</sup> drainage).

### III.1.3 Courbe de conductivité hydraulique $K(\theta)$ - Infiltrations à débit constant

Pour obtenir quelques points expérimentaux de la courbe de conductivité  $K(\theta)$  du sable éolien de Tchernobyl, plusieurs infiltrations à débit constant, non saturant, ont été réalisées sur une colonne de 65,5 cm de hauteur, initialement drainée avec une succion  $h_L$  de 84 cm.

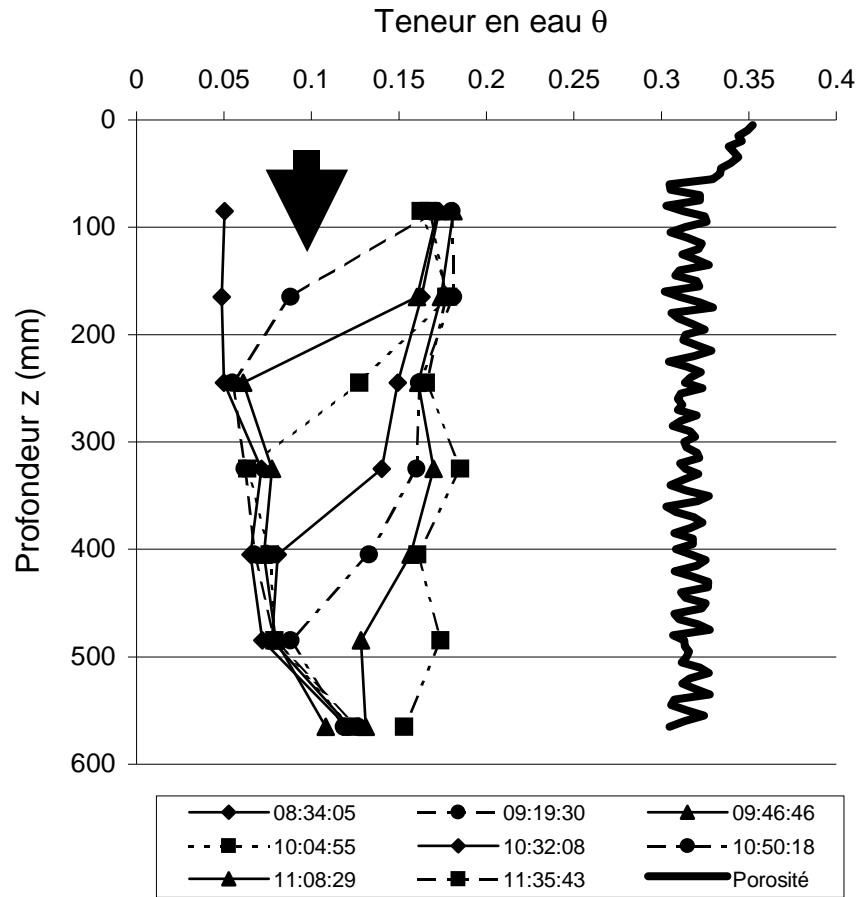
Lors de l'application suffisamment longue d'un débit constant, le profil de teneur en eau devient uniforme (voir figure III-4) et le gradient de charge hydraulique le long de la colonne ( $\Delta H/\Delta z$ ) devient unitaire et  $q = K(\theta)$ . La teneur en eau moyenne atteinte le long de la colonne correspond alors à la teneur en eau relative à la vitesse de Darcy imposée et donc à  $K$  puisque le gradient de charge est égal à 1.

Les mesures de teneur en eau réalisées lors du test d'infiltration réalisé avec un débit  $Q$  de 40 ml/h (vitesse de Darcy  $q = 2$  cm/h) sont présentés Figure III-5. L'ensemble des résultats obtenus pour les différents débits d'infiltrations testés sont résumés Tableau III-1.

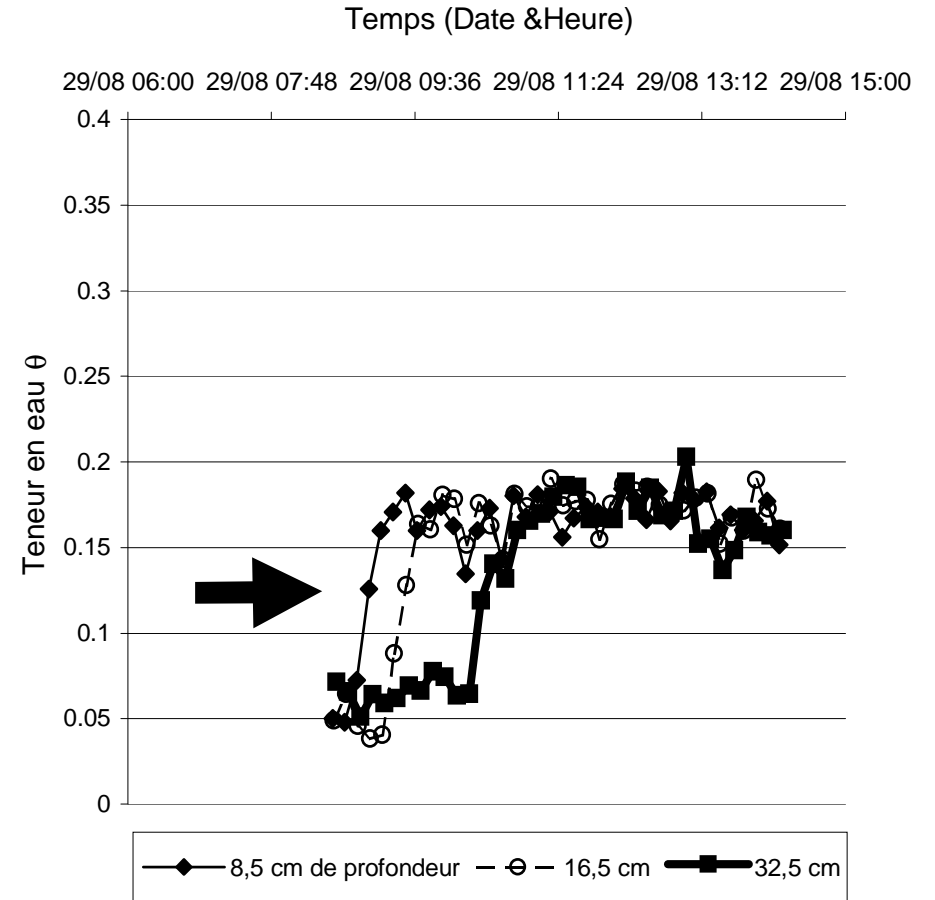
Vitesse de Darcy $q$ (cm/h) imposée en haut de colonne	Teneur en eau $\theta$ moyenne
1	0,13
2	0,17
4	0,20
8	0,23
12	0,25
19	0,31

**Tableau III-1 : Teneurs en eau moyennes obtenues lors des tests d'infiltrations à débit constant effectués sur une colonne de sable éolien de Tchernobyl, de 65,5 cm de hauteur, initialement drainée avec une succion  $h_L$  de 84 cm, pour établir la courbe de conductivité hydraulique  $K(\theta)$ .**

L'exploitation des résultats des différents tests d'infiltration pour la détermination de la courbe caractéristique de conductivité hydraulique  $K(\theta)$  est présentée Paragraphe III.1.4



(a)



(b)

Figure III-5 : Evolution (a) du profil de teneur en eau le long de la colonne et (b) de la teneur en eau à 3 profondeurs différentes, lors d'une infiltration à débit constant  $Q=40\text{ml/h}$  ( $q=2\text{cm/h}$ ) effectuée sur une colonne de sable de Tchernobyl, initialement drainée avec une succion  $h_L$  de 84 cm. La teneur en eau moyenne obtenue est de  $\theta = 0,17$

### III.1.4 Ajustement de fonctionnelles hydrodynamiques non-saturées : Brooks & Corey (1964) et Van Genuchten/Mualem (1980)

Deux « familles » de fonctionnelles phénoménologiques utilisées en condition hydraulique non saturée - Brooks & Corey (1964) et Van Genuchten/Mualem (1980) - ont été ajustées sur les données de succion, de conductivité hydraulique et de teneur en eau acquises expérimentalement.

Les expressions des courbes caractéristiques de rétention d'eau  $h(\theta)$  et de conductivité hydraulique  $K(\theta)$  sont rappelées Tableau III-2.

Fonction	Brooks et Corey (1964)	Van Genuchten/Mualem (1980)
Courbe de rétention $\theta(h)$	$\begin{cases} \Theta = \frac{\theta - \theta_r}{\theta_{sat} - \theta_r} = \left(\frac{h_{bc}}{h}\right)^\lambda & \text{pour } h \leq h_{bc} < 0 \\ \theta = \theta_{sat} & \text{pour } h_{bc} \leq h \leq 0 \end{cases}$	$\Theta = \frac{\theta - \theta_r}{\theta_{sat} - \theta_r} = \left[1 + \left(\frac{h}{h_g}\right)^n\right]^{-m}$
Courbe de conductivité hydraulique $K(\theta)$	$\frac{K}{K_{sat}} = \Theta^{a+2+\frac{2}{\lambda}}$	$\frac{K}{K_{sat}} = \Theta^a \left[1 - \left(1 - \Theta^{\frac{1}{m}}\right)^m\right]^2$

avec  $\theta_{sat}$  la teneur en eau à saturation ;  $\theta_r$  la teneur en eau résiduelle ;  $K_{sat}$  la conductivité à saturation (cm/h) ;  $h$  la hauteur manométrique de l'eau du sol (cm) ;  $h_g$  et  $h_{bc}$  des paramètres de normalisation en pression liés à la pression d'entrée d'air (cm) ;  $m$ ,  $n$  et  $\lambda$  des paramètres de forme des courbes liés à la texture et la structure du milieu poreux et à un paramètre lié à la tortuosité du milieu.

Tableau III-2 : Equations des courbes caractéristiques de rétention d'eau  $\theta(h)$  et de conductivité hydraulique  $K(\theta)$  reliant la hauteur manométrique de l'eau  $h$  et la conductivité hydraulique  $K$ , à la teneur en eau  $\theta$  du sol (i.e. le degré de saturation) pour les fonctionnelles de Brooks & Corey (1964) et Van Genuchten/Mualem (1980).

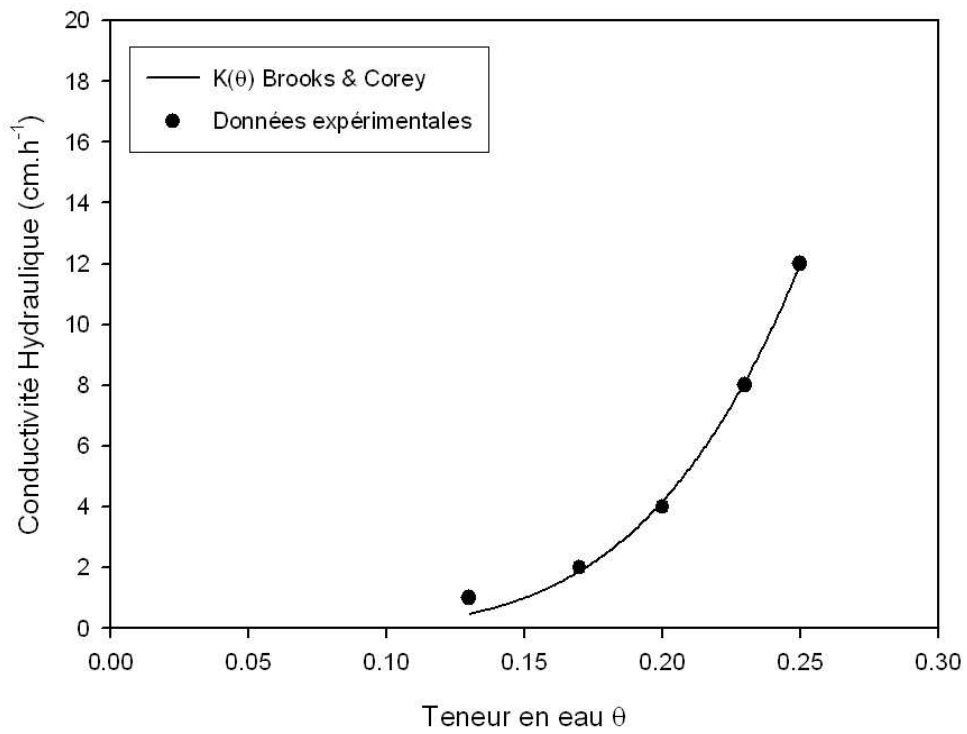
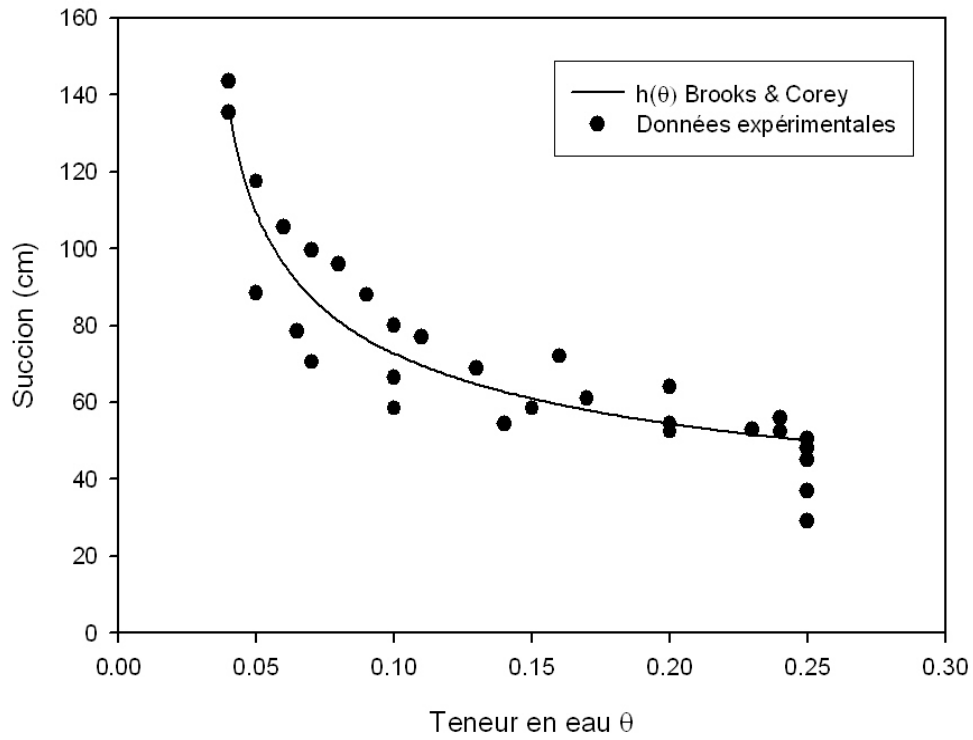
Ces fonctionnelles reposent donc sur la détermination de 6 paramètres :  $\theta_r$ ,  $\theta_{sat}$ ,  $h_{bc}$ ,  $\lambda$ ,  $K_{sat}$  et  $a$  pour Brooks & Corey ;  $\theta_r$ ,  $\theta_{sat}$ ,  $h_g$ ,  $n$ ,  $K_{sat}$  et  $a$  pour Van Genuchten/Mualem.

Grâce aux expériences d'écoulements présentées dans les paragraphes précédents, nous connaissons les valeurs numériques de  $\theta_r$ ,  $\theta_{sat}$ ,  $h_{bc}$ ,  $K_{sat}$  et  $h_g$ . La détermination des paramètres de forme  $\lambda$ ,  $a$  et  $n$  a ensuite été effectuée en utilisant la méthode des moindres carrés. Le résultat de

l'ajustement, effectué avec le logiciel Sigmaplot (cf. chapitre I), est récapitulé Tableau III-3 et présenté Figure III-6.

<b>Paramètres</b> <b>Fonction</b>	$\theta_r$	$\theta_{sat}$	$h_{bc}$ (cm)	$h_g$ (cm)	$\lambda$	n	$K_{sat.nat}$ (cm/h)	a
Brooks & Corey	0,03	0,25	50		3		12	1,4
Van Genuchten/Mualem	0,02	0,25		60		4,5	12	0,5

Tableau III-3 : Valeurs des paramètres des fonctionnelles de Brooks & Corey et Van Genuchten/Mualem ajustées sur nos données expérimentales.



(a)



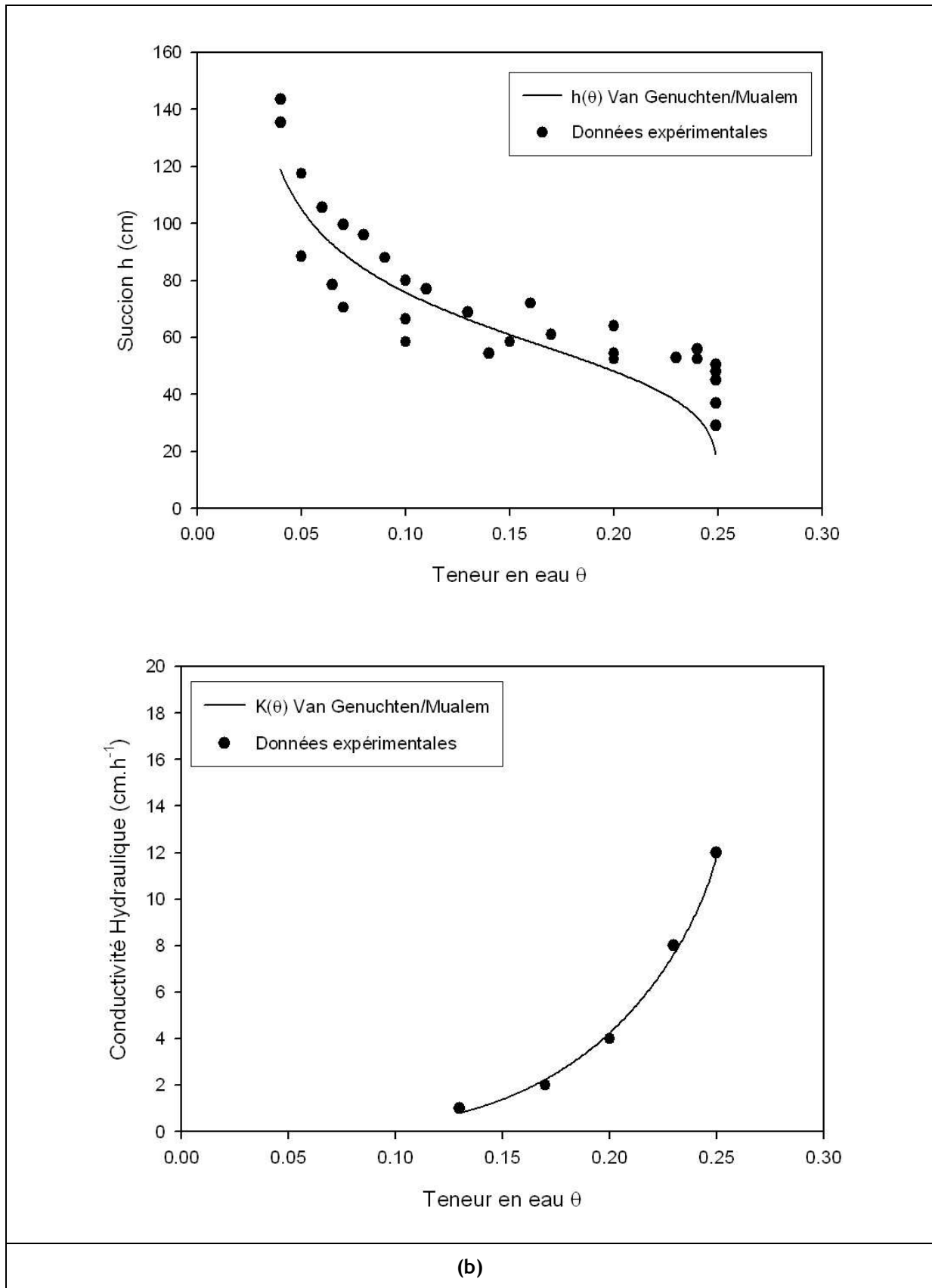


Figure III-6 : Ajustement des fonctionnelles (a) de Brooks et Corey (1964) et (b) de Van Genuchten/Mualem (1980) sur les données expérimentales établies lors des tests de drainages et d'infiltrations sur les colonnes de sable éolien de Tchernobyl.

## III.2 Transitoires hydrauliques

---

---

Ce paragraphe présente tout d'abord les profils de teneur en eau  $\theta(z)$  mesurés avec le banc gammamétrique durant l'application d'écoulements transitoires hydrauliques dans les colonnes de sable. Nous expliquons également la réorganisation des données de teneur en eau sous forme d'évolution temporelle à cote fixe  $\theta(t)$  que nous avons utilisée pour mieux visualiser et interpréter les résultats obtenus.

La validité des valeurs des paramètres des courbes caractéristiques non-saturées  $h(\theta)$  et  $K(\theta)$ , déterminées pour nos conditions opératoires, est ensuite testée en comparant les résultats obtenus lors de la modélisation des transitoires hydrauliques non-saturés avec le code Hydrus-1D et les données expérimentales.

Nous présentons enfin les résultats obtenus à partir des différents traçages à l'eau tritiée effectués sur les colonnes et la modélisation correspondante de l'évolution des concentrations en traceur.

### III.2.1 Mise en œuvre et suivi d'écoulements transitoires non-saturés

Différents types d'écoulements transitoires et de suivi de la teneur en eau avec le banc gammamétrique ont été expérimentés sur les colonnes.

Les résultats présentés Figure III-7 correspondent à un essai effectué sur une colonne de 64 cm de hauteur initialement à l'équilibre hydrostatique avec une succion imposée de 84 cm en pied de colonne. Un créneau d'eau d'une durée de 15 minutes est appliqué en haut de colonne à l'aide d'une pompe, avec un débit  $Q$  de 200 ml/h ( $q = 10,2$  cm/h), correspondant donc à l'infiltration d'une lame d'eau de 25,5 mm.

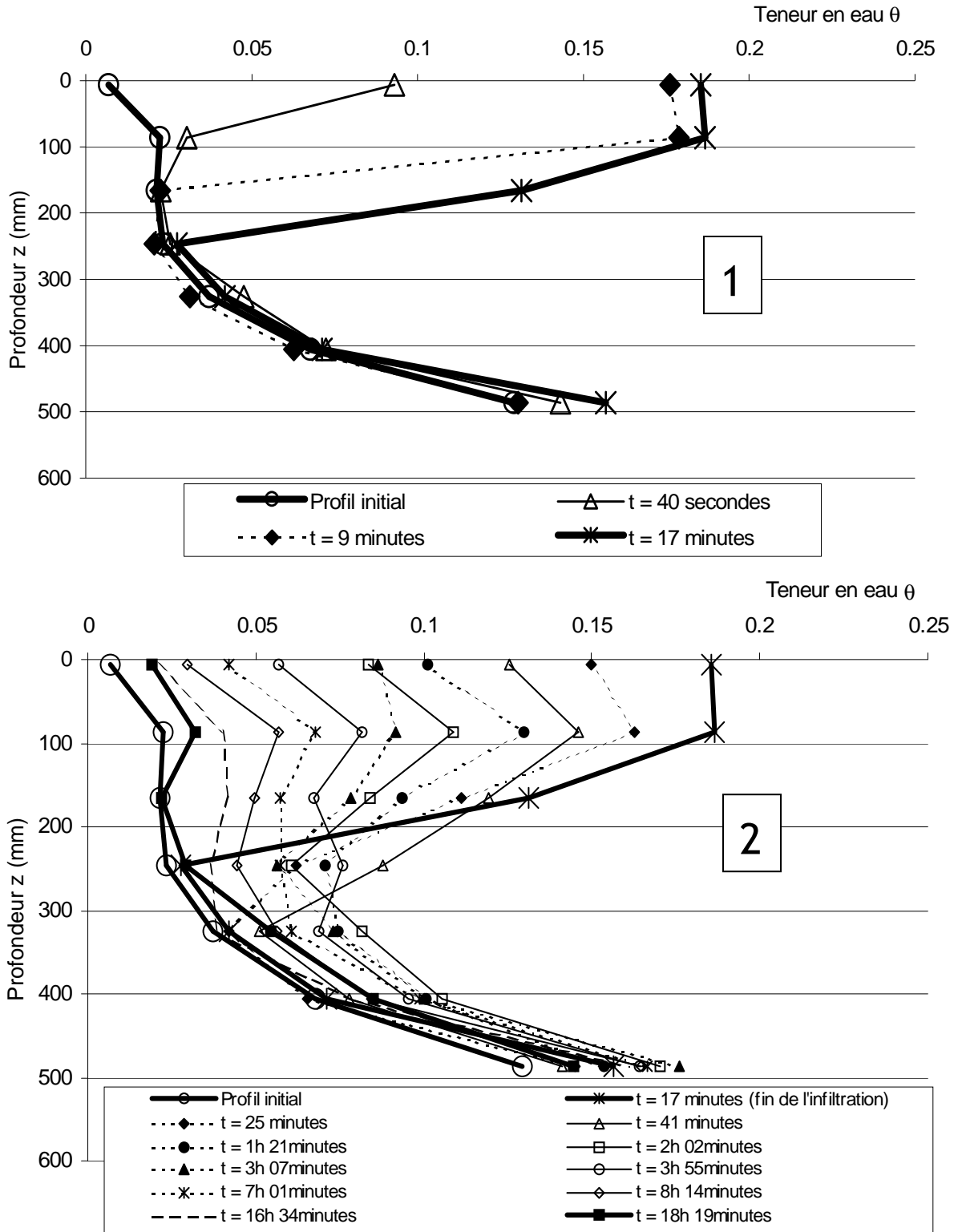


Figure III-7 : Evolution des profils de teneur en eau  $\theta(z)$ , dans une colonne de sable éolien de Tchernobyl initialement drainée en imposant une succion  $h_L = -84$  cm, suite à l'application d'un créneau d'eau d'une durée de 15 minutes avec une vitesse de Darcy  $q = 10,2$  cm/h - Phase 1 : Infiltration, Phase 2 : Redistribution.

Le temps nécessaire pour les mesures gammamétriques (8 mn pour un profil) ne permet pas d'acquérir un profil « instantané » par rapport au phénomène physique de l'infiltration (15mn).

L'analyse de l'évolution de la teneur en eau à différentes profondeurs dans la colonne permet de mieux appréhender cet aspect temporel. L'augmentation rapide de teneur en eau lors de l'infiltration et la diminution plus progressive constatée lors de la redistribution, durant environ 24 heures, sont présentées Figure III-8 et correspondent à l'évolution de la teneur en eau à 8,6 cm de profondeur dans la même colonne que celle présentée Figure III-7. L'injection d'un second puis d'un troisième créneau nous ont permis de nous assurer de la bonne reproductibilité des résultats.

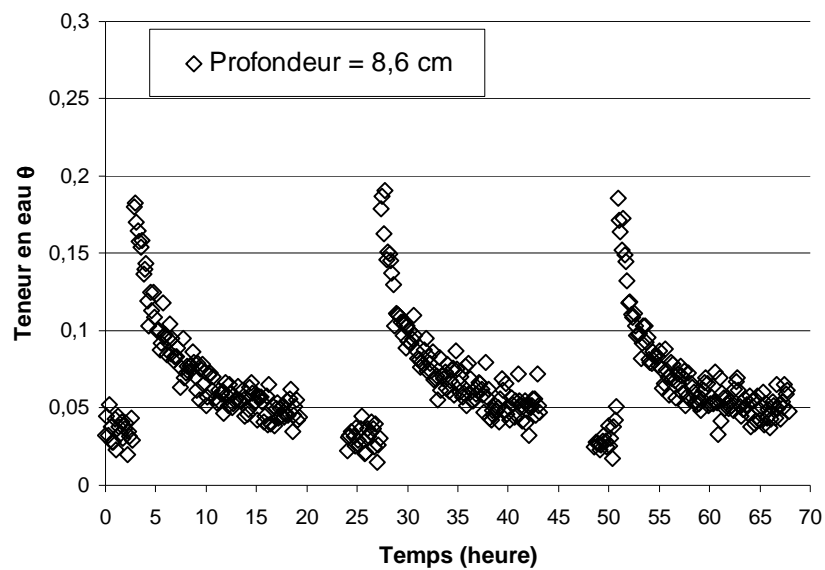


Figure III-8 : Evolution de la teneur en eau à 8,6 cm de profondeur lors de l'application d'une série de trois infiltrations/redistributions ( $q=10,2$  cm/h pendant  $\Delta t=15$  minutes) sur une colonne de sable éolien de Tchernobyl de 64 cm de hauteur initialement drainée en imposant une succion constante de 84 cm en pied de colonne.

Le suivi à cote fixe a été privilégié par la suite comme méthode permettant de lisser les évolutions temporelles à toutes les profondeurs suivies. Il est ainsi possible d'obtenir, sur ces évolutions lissées, des valeurs de teneurs en eau, au temps choisi pour le tracé des profils verticaux, en s'affranchissant des problèmes de durée des mesures. Les calculs d'évolution de la teneur en eau simulant les essais d'infiltration et de drainage seront comparés aux évolutions temporelles à cote fixe.

### III.2.2 Modélisation des écoulements transitoires

L'estimation de la qualité des mesures ainsi que celle des valeurs des paramètres des fonctionnelles calées sur les données expérimentales a été faite en comparant les résultats obtenus numériquement avec ceux observés expérimentalement sur une série d'infiltrations et drainages. La simulation est effectuée avec le code Hydrus-1D en utilisant les fonctionnelles de Van Genuchten/Mualem.

Les résultats obtenus avec l'approche numérique, présentés Figure III-9, sont globalement satisfaisants (Mazet, 2006). L'augmentation rapide (quasi-instantanée) de la teneur en eau lors de l'application d'un flux à la surface supérieure y est notamment bien respectée. L'allure de la courbe et la durée de la phase de redistribution sont également satisfaisantes. La valeur de teneur en eau mesurée 24h après l'infiltration semble parfois légèrement surestimée.

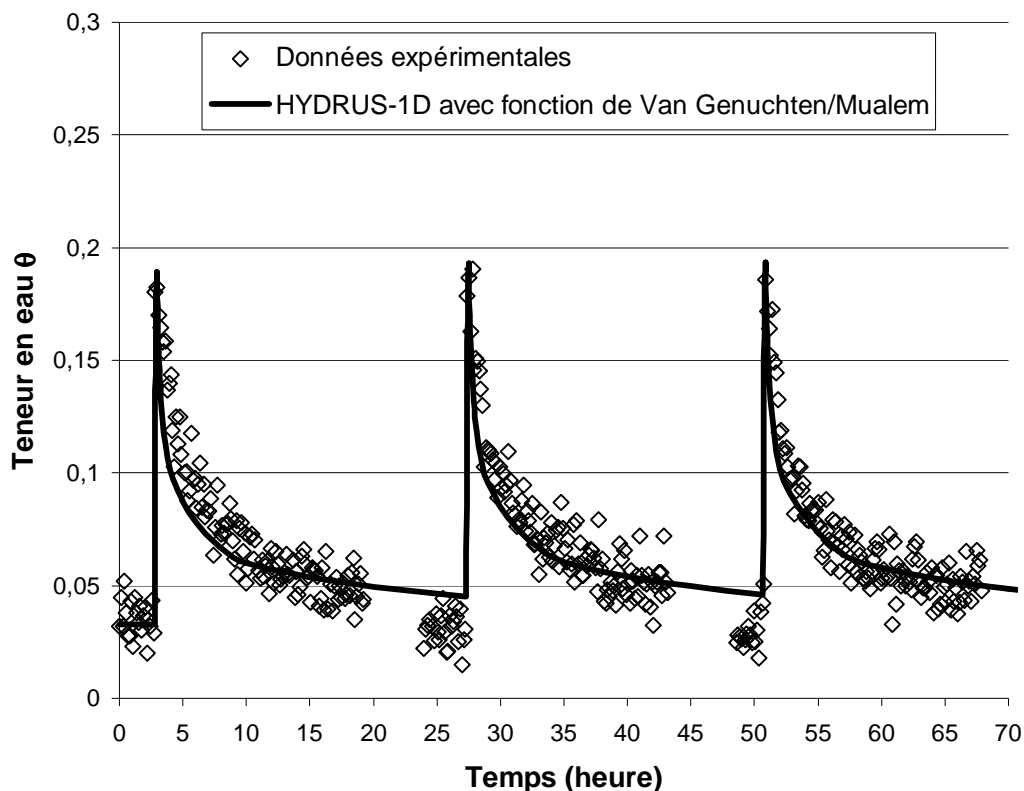


Figure III-9 Estimation de la qualité des valeurs des paramètres de Van Genuchten/Mualem calées indépendamment sur nos données expérimentales  $\theta(h)$  et  $K(\theta)$  - Comparaison entre approche numérique (code Hydrus-1D) et données expérimentales de teneur en eau pour les mêmes conditions que celles de la Figure III-8.

### III.3 Transfert non réactif (traçages tritium)

Préalablement à l'injection de traceur réactif ( $^{85}\text{Sr}$ ) dans les lits de sable non-saturés, nous avons réalisé sur chaque colonne des traçages à l'eau tritiée afin de :

- mesurer le volume mort du dispositif expérimental (en l'absence du sable),
- vérifier le comportement hydrodynamique du sable (absence de chemin préférentiel...),
- et déterminer les paramètres de transport (notamment le coefficient de dispersivité  $\alpha$ ) pour les conditions expérimentales explorées.

Ces traçages sont effectués en envoyant, à l'aide d'une boucle d'injection, un créneau d'un ml d'eau tritiée dans un flux d'eau permanent. La sollicitation du système est assimilée à un signal d'entrée sous forme de Dirac. L'évolution du signal de tritium en sortie de colonne (courbe de percée) est suivi en continu par scintillation liquide à l'aide d'un compteur de rayonnement  $\beta$  (Flow-one cf. Chapitre II). L'interprétation des courbes de percée est effectuée grâce au logiciel CXTFIT (Parker and Van Genuchten, 1984b), largement utilisé pour les analyses de transport de soluté en milieu poreux. L'exploitation des données est réalisée par modélisation inverse en utilisant un calage des modèles de transport CDE ou MIM.

Le traçage des colonnes utilisées pour les expériences de transport en écoulements non saturés est effectué à saturation naturelle. Les conditions expérimentales des différents traçages des colonnes sont résumés Tableau III-4, suivis des résultats obtenus pour les colonnes non-saturées 6 et 8.

	Hauteur de la colonne (cm)	Porosité	Teneur en eau $\theta$	Débit Q (ml/h)	Vitesse de Darcy q (cm/h)	Vitesse de pore v (cm/h)	Activité (Bq/L)
Colonne n° 6	65,5	0,31	0,25	100	5,1	20,4	5600
Colonne n° 8	63,7	0,30	0,28	195	10	35,5	5400

Tableau III-4 : Conditions expérimentales des traçages au tritium (traceur non-réactif) effectués sur les colonnes en écoulements non-saturés, préalablement à l'injection de  $^{85}\text{Sr}$  (traceur réactif).

Traçage avec du tritium de la Colonne de sable n°6

Avant de réaliser le traçage au tritium du lit de sable, nous avons également effectué, pour calculer le volume mort du dispositif expérimental, un traçage du circuit hydraulique en reliant directement les capillaires d'arrivée et de sortie de colonne. Le résultat de ce traçage est présenté Figure III-10. La Courbe de Percée obtenue lors de ce traçage est symétrique. Le calcul du moment d'ordre 1, effectué avec le logiciel Peackfit, nous permet d'estimer le temps de séjour moyen du tritium à  $T_s = 13,5/60 = 0,225$  heures. Ce temps est déduit par la suite dans l'interprétation du temps de sortie du tritium lors du traçage du lit de sable. Le volume mort de notre dispositif est ici  $V_{mort} = Q \cdot T_s = 22,5$  ml.

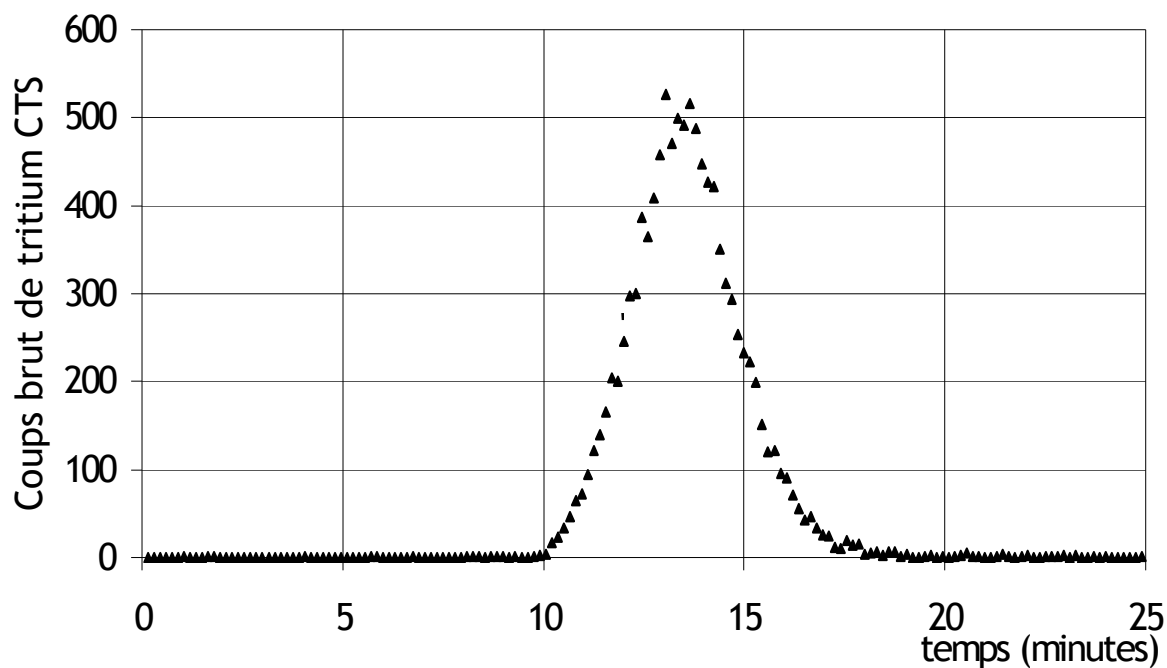


Figure III-10 : Courbe de percée obtenue lors du traçage du circuit hydraulique (absence de sable) pour le dispositif expérimental utilisé pour la colonne n°6 à l'aide d'eau tritiée (activité=5600 Bq, débit  $Q=100$  ml/h)

Durant le traçage de la colonne de sable, la teneur en eau moyenne est de  $\theta = 0,25$  (Figure III-11), ce qui correspond à la saturation naturelle. La vitesse de Darcy est imposée à  $q = 5,1$  cm/h. L'eau

tritiée est préparée en diluant par 5 une solution mère à 28270 Bq/g (1 ml de la solution mère ajouté dans 4 ml de solution d'eau synthétique de Tchernobyl).

Le compteur (Flow-one), placé en sortie de colonne, est équipé d'une boucle de comptage de 500 $\mu$ l. Le débit de circulation dans le lit de sable est fixé à Q=100ml/h (pompe d'alimentation en amont de la colonne). Le débit passant par la boucle de comptage dans le compteur est de Q=200ml/h (pompe d'alimentation + débit de la pompe de solution de scintillant fixé à Q=100ml/h). La boucle se renouvelle donc toutes les 9 secondes. Ce temps a donc été choisi comme temps de comptage.

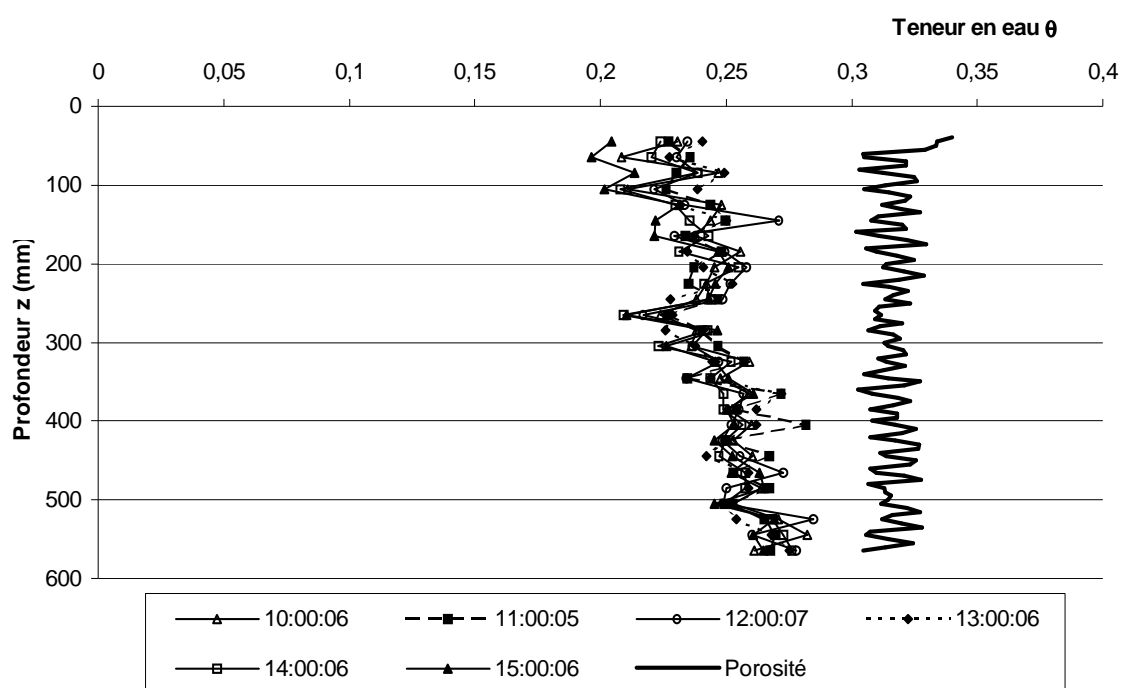


Figure III-11 : Profils de teneur en eau mesurés avec le banc gammamétrique durant le traçage avec du tritium de la colonne 6. La teneur en eau moyenne le long de la colonne est de  $\theta = 0,25$  (saturation naturelle).

L'analyse du comportement du tritium durant le traçage permet de déterminer certaines propriétés de transport de soluté de la colonne. Le temps de séjour du traceur a été déterminé à partir du calcul des moments temporels (chapitre I) et a permis de calculer le volume de pore  $V_p$ , ainsi que le facteur de retard. Les coefficients de dispersion hydrodynamique ( $D$  et  $D_m$ ), la fraction d'eau mobile ( $\beta = \theta_{\text{mobile}} / \theta_{\text{totale}}$ ) et le coefficient d'échange  $K$  ont été identifiés par méthode inverse, en



calant les courbes calculées sur les points expérimentaux en utilisant le logiciel CXTFIT (Parker and Van Genuchten, 1984b). La courbe de percée obtenue lors de ce traçage ainsi que les ajustements des modèles de transport classiques sur les données expérimentales sont présentés Figure III-12.

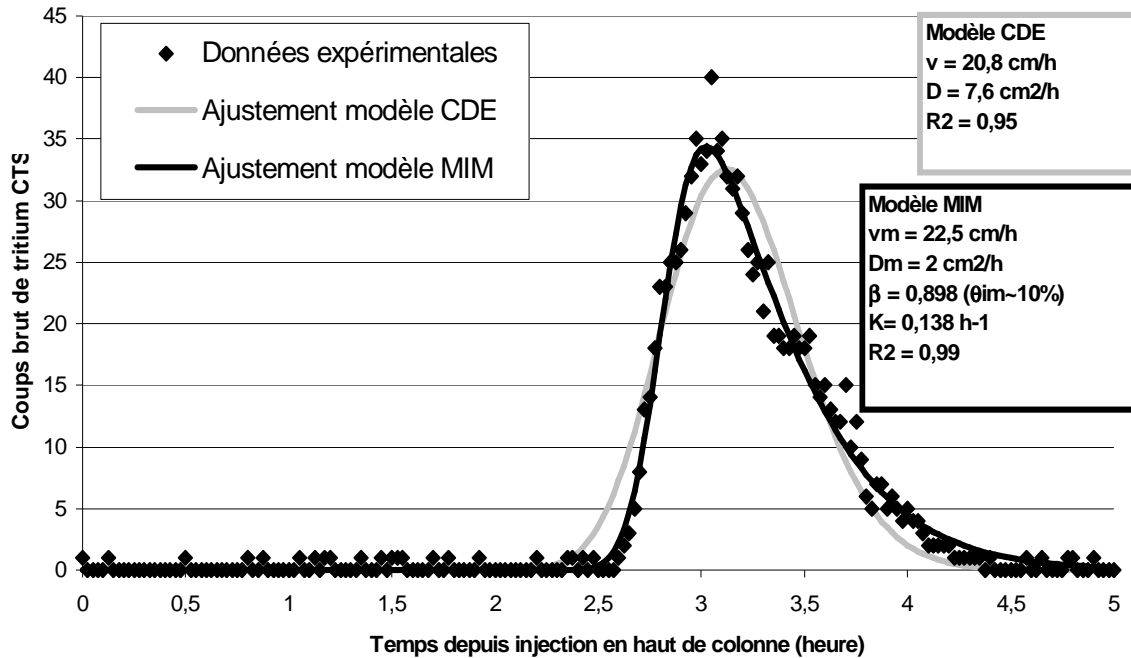


Figure III-12 : Courbe de percée du traçage tritium effectué à saturation naturelle sur la colonne de sable n°6 et ajustements des modèles de transport Convection/Dispersion CDE et Mobile-Immobilier MIM.

Les modèles Convection-Dispersion (CDE) et Mobile-Immobilier (MIM) sont présentés dans le premier chapitre. On note, figure III-12, qu'en première approximation, le modèle CDE permet de représenter le temps d'arrivée moyen du traceur de l'écoulement (3h). Le modèle MIM reproduit cependant mieux les données expérimentales. Cela signifie que pour ce milieu poreux et dans nos conditions expérimentales, il existe une fraction d'eau immobile (10%). L'ajustement du modèle MIM donne par ailleurs un coefficient de transfert K entre zone d'eau mobile et immobile d'une valeur de  $K=0,138 \text{ h}^{-1}$ . Le coefficient de dispersivité  $\alpha$  du sable éolien de Tchernobyl pour ce traçage, calculé en utilisant respectivement les expressions  $D=\alpha_{CDE} \cdot v$  et  $Dm=\alpha_{MIM} \cdot vm$ , est de 0,36 cm si l'on se réfère au modèle CDE et de 0,09 (même ordre de grandeur que dans la thèse de Szenknect, 2003) si l'on prend en compte les paramètres du modèle MIM.

Le calcul du moment d'ordre 1, effectué sur les données corrigées du volume mort du dispositif avec le logiciel Peakfit, donne un temps de séjour moyen du tritium  $T_{xp} = 3,21$  h. Le temps de séjour moyen de l'eau est calculé lui à partir de la relation  $T_{eau} = L/v = 65,5/20,4 = 3,21$  h.

Ces résultats nous permettent d'une part d'estimer le volume de pore  $V_p$  de la colonne 6, occupé par la phase liquide lors de ce traçage, à environ 321 ml ( $V_p = Q \cdot T$ ). D'autre part, le facteur de Retard  $R$ , calculé à partir de la relation  $R = T_{xp}/T_{eau}$  est égal à 1, comme attendu théoriquement pour un traceur de l'écoulement.

### Traçage avec du tritium de la colonne de sable n°8

Nous avons également réalisé un traçage pour mesurer le volume mort. La courbe de percée de ce traçage, obtenue en injectant une activité de 970 Bq à un débit  $Q = 200$  ml/h, est présentée Figure III-13.

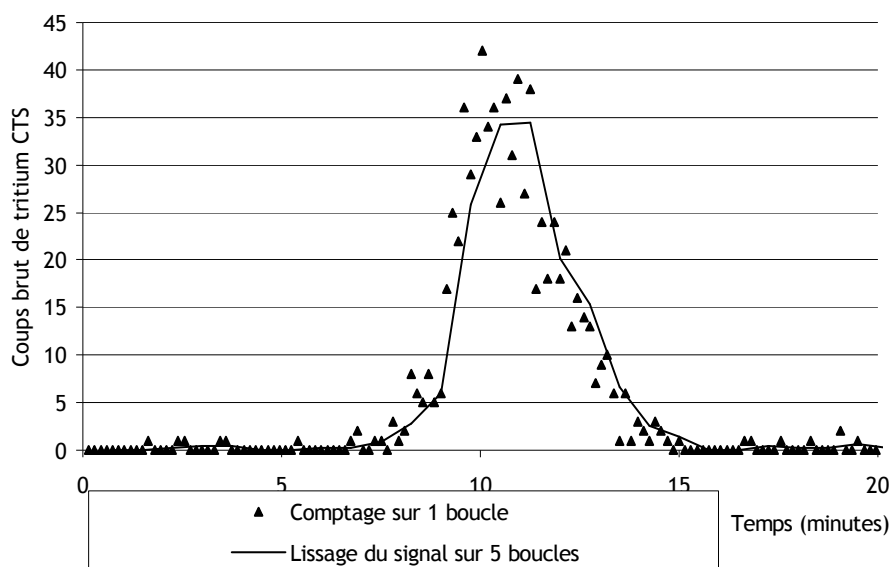


Figure III-13 : Courbe de percée obtenue lors du traçage du circuit hydraulique (absence de sable) pour le dispositif expérimental utilisé pour la colonne n°8 à l'aide d'eau tritiée (activité= 970 Bq, débit  $Q = 206$  ml/h).

La courbe de percée est plus bruitée que celle obtenue lors du traçage du circuit hydraulique de la colonne 6. L'utilisation d'une activité totale six fois moins importante en est la cause. Le calcul du

temps de séjour moyen est ici  $T_s = 10,5$  minutes. Dans la configuration de la colonne n°8, le volume mort du dispositif expérimental est  $V_{mort} \sim 36,05$  ml.

Pour ce qui concerne la colonne 8, la teneur en eau moyenne à saturation naturelle durant le traçage de la colonne de sable est de  $\theta = 0,28$  (cf. Figure III-14). La vitesse de Darcy est de  $q = 10$  cm/h. L'activité injectée est de 5400 Bq. La courbe de percée mesurée dans ces conditions est présentée Figure III-15.

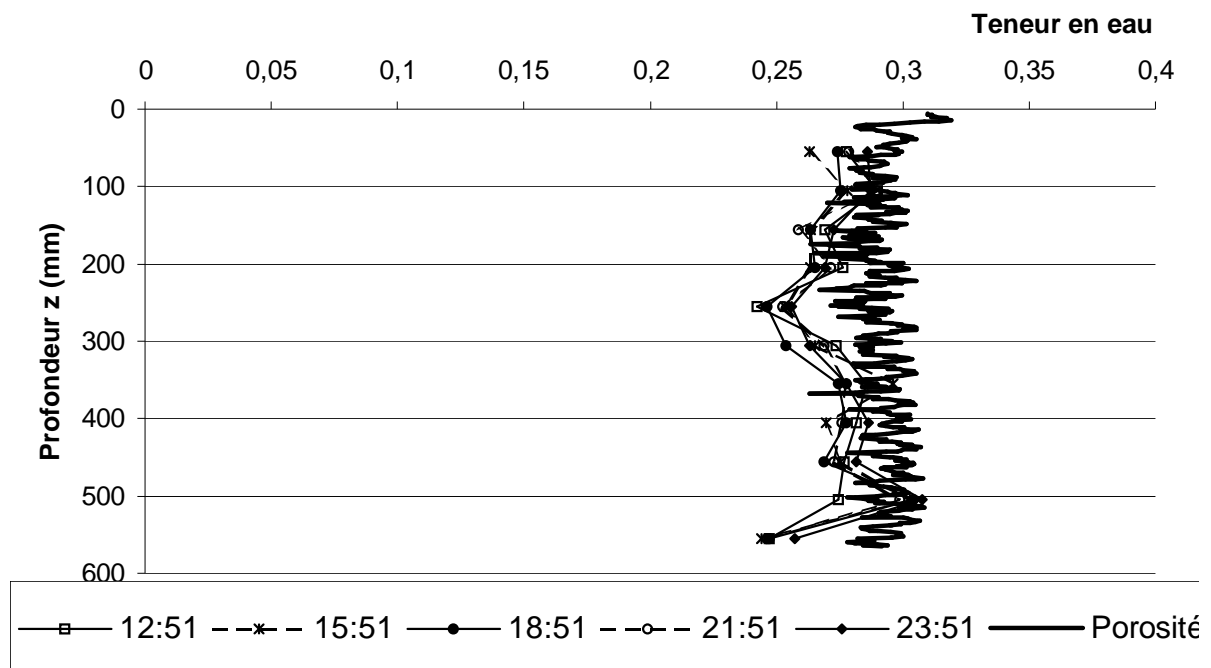


Figure III-14 Profils de teneur en eau mesurés avec le banc gammamétrique durant le traçage avec du tritium de la colonne 8. La teneur en eau moyenne le long de la colonne est de  $\theta = 0,28$  (saturation naturelle).

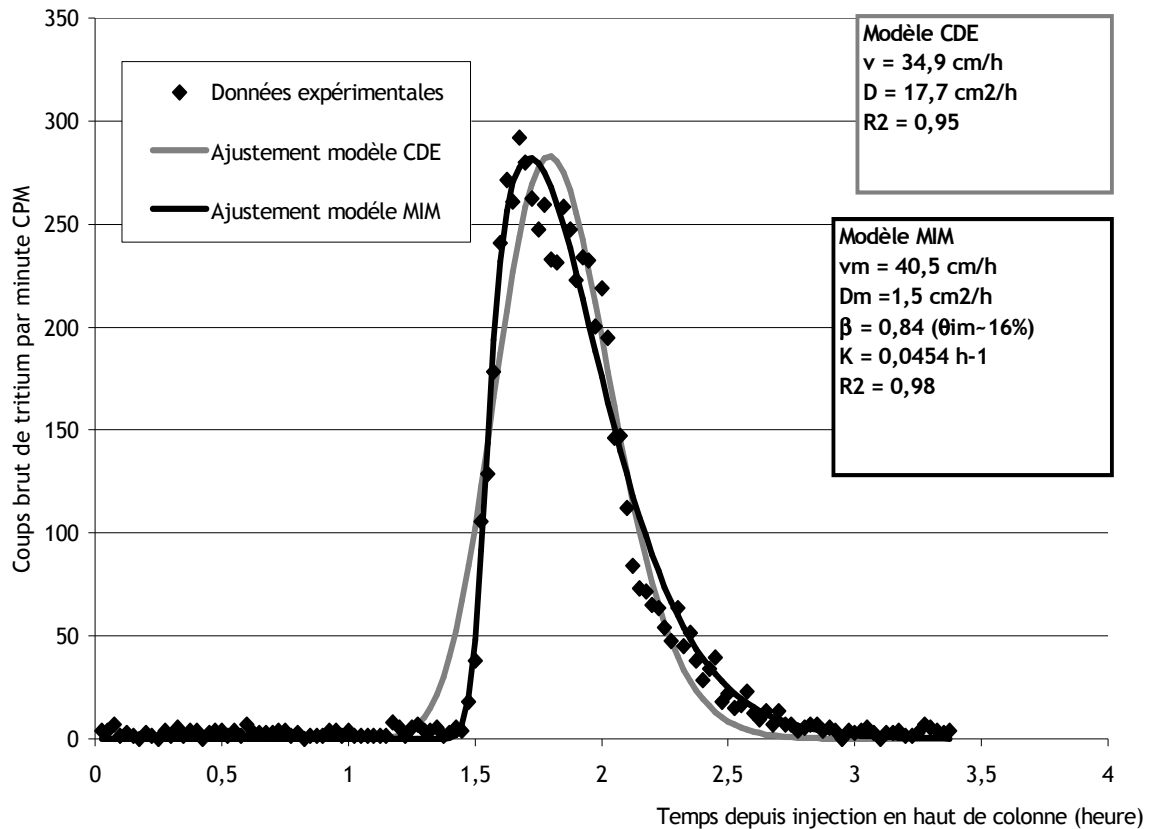


Figure III-15 : Courbe de percée du traçage avec du tritium à saturation naturelle de la colonne de sable n°8 et ajustements des modèles de transport Convection/Dispersion CDE et Mobile-Immobile MIM.

A l'image de la colonne 6, le modèle CDE apparaît insuffisant pour décrire correctement le résultat obtenu lors du transfert du soluté non-réactif. Une quantité non-négligeable d'eau immobile ( $\theta_{im} = 16\%$ ) est en effet mise en évidence par le modèle MIM. La valeur numérique prise par le coefficient de transfert  $K$  entre eau immobile et mobile est de  $K = 0,0454 \text{ h}^{-1}$ . Le calcul du coefficient de dispersivité  $\alpha$  du lit de sable de la colonne 8 donne respectivement 0,5 et 0,037 cm à partir des paramètres des modèles CDE et MIM.

Le calcul du moment d'ordre 1 révèle un temps de séjour moyen du tritium  $T_{xp} = 1,86 \text{ h}$ . Pour ce qui concerne l'eau, le temps de séjour moyen est de  $T_{eau} = L/v = 63,7/35,5 = 1,80 \text{ h}$ .

Le volume de pore  $V_p$ , occupé par la phase liquide durant ce traçage de la colonne 8, est donc estimé, par ces résultats, à environ 351 ml. Le facteur de Retard  $R$ , calculé à partir de la relation

$R = T_{xp} / T_{eau}$ , apparaît quant à lui égal à 1,03 soit très proche de 1 comme attendu encore une fois pour un traceur de l'écoulement.

### III.4 Synthèse

---

---

En conclusion de ce chapitre, l'étude expérimentale de l'écoulement de l'eau dans nos colonnes nous a permis à la fois :

- de déterminer les caractéristiques hydrodynamiques saturées et non saturées de notre milieu poreux pour nos conditions opératoires ( $K_{sat}$ , courbes  $h(\theta)$  et  $K(\theta)$ ),
- d'ajuster les fonctionnelles de Brooks & Corey (1964) et Van Genuchten/Mualem (1980) sur nos données expérimentales dans la perspective d'une approche numérique du comportement hydrodynamique des colonnes,
- de procéder à la mise en place d'écoulements non saturés transitoires au sein des colonnes,
- et de mettre au point le suivi de la mesure de variation de teneur en eau au sein des colonnes grâce au banc gammamétrique.

Les valeurs des paramètres hydrodynamiques du sable éolien de Tchernobyl, ainsi obtenues pour nos conditions opératoires, ont été testées par une comparaison, entre approche numérique (Hydrus-1D) et données expérimentales acquises en condition hydraulique non saturée transitoire, dont les résultats sont apparus satisfaisants.

Des traçages tritium des colonnes ont quant à eux permis de vérifier :

- d'une part le comportement homogène des lits de sable, notamment l'absence de chemin préférentiel,
- et d'estimer par ailleurs la valeur de paramètre de transport tel que la dispersivité  $\alpha$ , nécessaire par la suite pour pouvoir modéliser le transfert d'un soluté.

Enfin, les traçages tritium nous ont également permis de constater l'importance dans nos conditions opératoires, en régime hydraulique permanent, de la présence de zones d'eau immobile et de leur prises en compte par l'intermédiaire du modèle MIM, pour ce qui concerne le transport d'un soluté non-réactif.

D'un point de vue méthodologique, nous avons optimisé l'utilisation du banc gammamétrique pour mesurer simultanément l'écoulement de l'eau dans nos colonnes quelles que soient les conditions hydrodynamiques appliquées et le transport d'un traceur à travers le milieu poreux.

Nous pouvons désormais passer à l'étape suivante qui consiste à étudier le couplage entre hydrodynamique transitoire et interactions géochimiques en analysant, dans les chapitres IV et V, le transport d'un élément réactif (strontium) à travers notre milieu poreux pour différentes conditions hydrauliques.

Les propriétés d'écoulements d'eau et de transport de soluté non réactif au sein des lits de sable étant connues pour nos conditions opératoires, nous pouvons aborder le problème de l'interaction du strontium avec le sable éolien de Tchernobyl et l'influence des écoulements transitoires sur sa migration.

# Chapitre IV

Interactions sol/soluté

&

Transport réactif de  
strontium85





## SOMMAIRE CHAPITRE IV

<b>CHAPITRE IV. INTERACTIONS SOL/SOLUTE &amp; TRANSPORT REACTIF DE STRONTIUM 85 165</b>
---

<b>IV.1 CARACTERISATIONS DES INTERACTIONS SOL/SOLUTE</b>	<b>165</b>
IV.1.1 Expériences sur colonnes - Condition dynamique	166
IV.1.1.1 <i>Traçage au tritium</i>	167
IV.1.1.2 <i>Conditionnement géochimique des colonnes</i>	170
IV.1.1.3 <i>Traçages de <sup>85</sup>Sr</i>	174
IV.1.2 Expériences en réacteur fermé « batch » - Condition statique	177
<b>IV.2 TRANSPORT REACTIF DE STRONTIUM 85 EN CONDITION HYDRAULIQUE NON-SATUREE</b>	<b>178</b>
IV.2.1 Conditionnement chimique des colonnes	178
IV.2.2 Transport en condition hydraulique non-saturée permanente	180
IV.2.3 Transport en condition hydraulique non saturée transitoire	184
IV.2.3.1 <i>Drainage des colonnes à succion constante imposée</i>	184
IV.2.3.2 <i>Injection d'un premier créneau d'eau marqué au <sup>85</sup>Sr</i>	185
IV.2.3.3 <i>Nature des épisodes hydrauliques transitoires étudiés</i>	188
IV.2.3.4 <i>Migration du profil de <sup>85</sup>Sr dans la colonne 6 : [Sr]=10<sup>-8</sup> mol.L<sup>-1</sup></i>	189
IV.2.3.5 <i>Migration du profil de <sup>85</sup>Sr dans la colonne 8 : [Sr]=10<sup>-5</sup> mol.L<sup>-1</sup></i>	192
IV.2.3.6 <i>Migration du <sup>85</sup>Sr à cote fixe</i>	196
<b>IV.3 SYNTHESE</b>	<b>199</b>

**Liste des Figures du chapitre IV**

<i>Figure IV-1 : Données expérimentales (symboles) et ajustements de la solution analytique correspondant à nos conditions opératoires (Équation IV-1, traits pleins) pour les courbes de percée de tritium mesurées sur les colonnes P4, P5 et P7. ....</i>	<i>169</i>
<i>Figure IV-2 : Evolution des concentrations en cations mesurée en sortie de la colonne P7 en fonction du volume écoulé lors du conditionnement géochimique. ....</i>	<i>171</i>
<i>Figure IV-3 : Courbes de percée expérimentales du strontium stable et ajustements analytiques de l'Équation IV-2 (en faisant varier le facteur de retard R et la dispersivité <math>\alpha</math>) pour les colonnes P4 à P7 (a) et P1 à P3 (b) en fonction du nombre de volumes de pore.....</i>	<i>174</i>
<i>Figure IV-4 : Courbes de percée expérimentale et simulée du <math>^{85}\text{Sr}</math> sur la colonne P4.....</i>	<i>175</i>
<i>Figure IV-5 : Courbes de percée expérimentale et simulée du <math>^{85}\text{Sr}</math> sur la colonne P7.....</i>	<i>176</i>
<i>Figure IV-6 : Représentation des profils d'équilibre sol/solution calculés pour la concentration de strontium stable en solution vis-à-vis du sable éolien de Tchernobyl, en fonction de la profondeur dans la colonne et suites aux conditionnements géochimiques des colonnes 6 et 8.....</i>	<i>179</i>
<i>Figure IV-7 : Evolution du profil de teneur en eau <math>\theta(z)</math>, mesuré avec le banc gammamétrique, au sein de la colonne de sable n°6, lors de la mise en place du régime hydrodynamique permanent à la teneur en eau moyenne <math>\theta_{moyen} = 0,2</math> (vitesse de Darcy <math>q = 4,1 \text{ cm/h}</math>).....</i>	<i>182</i>
<i>Figure IV-8 : Evolution du profil d'activité totale de <math>^{85}\text{Sr}(z)</math>, mesuré avec le banc gammétrique, durant l'expérience de transport en régime hydraulique permanent non saturé dans la colonne 6. ....</i>	<i>182</i>
<i>Figure IV-9 : Evolution de la profondeur <math>Z_r(t)</math> du centre de masse du profil de <math>^{85}\text{Sr}</math> (moment spatial d'ordre 1) en fonction du temps lors de l'expérience de transport sur colonne de sable de Tchernobyl en régime hydraulique insaturé permanent (<math>\theta=0,2</math> et <math>q=4,1 \text{ cm.h}^{-1}</math>).....</i>	<i>183</i>
<i>Figure IV-10 : Profil de teneur en eau <math>\theta(z)</math> obtenu à l'équilibre hydrostatique en imposant une succion constante de 84 cm en pied de la colonne 6. ....</i>	<i>184</i>
<i>Figure IV-11 : Premier profil d'activité totale de <math>^{85}\text{Sr}(z)</math> mesuré avec le banc gammamétrique suite à l'injection en haut de la colonne n°6 du premier créneau (<math>q=5,1 \text{ cm.h}^{-1}</math> pendant 30 minutes) d'eau synthétique marquée avec une activité de radioélément <math>A(^{85}\text{Sr}) = 85 \text{ KBq}</math> - Résultats de la mesure des deux profils suivants après injection de deux créneaux supplémentaires d'eau synthétique identique au premier mais non marqué en radioélément. ....</i>	<i>186</i>
<i>Figure IV-12 : Premier profil d'activité totale de <math>^{85}\text{Sr}(z)</math> mesuré avec le banc gammamétrique suite à l'injection en haut de la colonne n°8 du premier créneau d'eau synthétique marquée avec une activité de radioélément <math>A(^{85}\text{Sr}) = 165,5 \text{ KBq}</math> - Résultats de la mesure des trois profils suivants après injection de trois créneaux supplémentaires d'eau synthétique identique au premier (<math>q=10,2 \text{ cm.h}^{-1}</math> pendant 15 minutes) mais non marqué en radioélément.....</i>	<i>187</i>
<i>Figure IV-13 : Allure des transitoires hydrauliques étudiés.....</i>	<i>189</i>

Figure IV-14 : Profils d'activité totale de  $^{85}\text{Sr}(z)$  mesurés dans le lit de sable de la colonne n°6 avec le banc gammamétrique, suite à l'injection de 4 puis 8 transitoires d'eau synthétique de type PM ( $q= 5,1 \text{ cm/h}$  pendant  $\Delta t=30$  minutes)..... 190

Figure IV-15 : Evolution du profil d'activité totale de  $^{85}\text{Sr}(z)$  mesuré dans le lit de sable de la colonne n°6, suite à l'injection de 11, 22, 30 puis 41 créneaux d'eau synthétique de type P11 ( $q= 10,2 \text{ cm.h}^{-1}$  pendant  $\Delta t=15$  minutes)..... 191

Figure IV-16 : Profils de masse volumique  $\rho d(z)$  de la colonne 6 – Visualisation de la décompaction du haut du lit de sable survenue durant l'expérience de transport de  $^{85}\text{Sr}$  en condition hydraulique non-saturée transitoire. .... 192

Figure IV-17 : Profils d'activité totale de  $^{85}\text{Sr}(z)$  mesurés dans le lit de sable de la colonne n°8 avec le banc gammamétrique, suite à l'injection de 4, 8 puis 10 créneaux d'eau synthétique de type P11 ( $q= 10,2 \text{ cm.h}^{-1}$  pendant  $\Delta t=15$  minutes)..... 193

Figure IV-18 : Evolution du profil d'activité totale de  $^{85}\text{Sr}(z)$  mesuré dans le lit de sable de la colonne n°8, suite à l'injection d'un créneau d'eau synthétique de type PF ( $q= 1,53 \text{ cm.h}^{-1}$  pendant  $\Delta t=207$  minutes)..... 194

Figure IV-19 : Evolution du profil d'activité totale de  $^{85}\text{Sr}(z)$  mesuré dans le lit de sable de la colonne n°8, suite à l'injection d'une série de 13 créneaux d'eau synthétique de type P12 ( $q= 12,7 \text{ cm.h}^{-1}$  pendant  $\Delta t=12$  minutes). .... 195

Figure IV-20 : Mesure, en continu, à deux cotes fixes, de l'évolution de la teneur en eau  $\theta(t)$  et de l'activité totale de  $^{85}\text{Sr}(t)$  lors de l'application en haut de colonne de deux créneaux d'eau synthétique de type P11 ( $q= 10,2 \text{ cm.h}^{-1}$  pendant  $\Delta t=15$  minutes) sur la colonne 8. .... 196

Figure IV-21 : Mesure en continu de l'évolution de la teneur en eau  $\theta(t)$  et de l'activité totale de  $^{85}\text{Sr}(t)$  à la profondeur de 25,5 mm (partie descendante du profil) lors de l'application d'un transitoire plus long de type PF ( $q= 1,53 \text{ cm.h}^{-1}$  pendant  $\Delta t=207$  minutes) sur la colonne 8..... 197



## **Chapitre IV. Interactions sol/soluté & Transport Réactif de strontium 85**

Ce chapitre décrit les expériences de transport réactif que nous avons réalisées dans cette étude. La première partie est consacrée à la détermination des paramètres de sorption du strontium sur le sable de Tchernobyl par différentes techniques, en conditions dynamiques sur des colonnes de sables saturées en eau et en conditions statiques avec des expériences en tube à essai ou « batch ». Les résultats de ces expériences permettent notamment d'estimer le coefficient de partage  $K_d$  du strontium 85 pour les différentes conditions opératoires en fonction de la concentration en strontium stable.

Dans la seconde partie de ce chapitre nous abordons le transport en condition non saturées en eau. Une première expérience en régime d'écoulement permanent non saturé a été effectuée pour vérifier le comportement de notre système par rapport aux résultats précédemment établis dans la thèse de Szenknect (2003). Ensuite, nous décrivons deux expériences effectuées en condition d'écoulement transitoires non saturés pour deux concentrations en strontium stable  $10^{-8}$  mol.L<sup>-1</sup> et  $10^{-5}$  mol.L<sup>-1</sup>. Les résultats obtenus sont alors discutés en fonction de la nature des transitoires hydrauliques et en utilisant des modèles plus ou moins complexes pour décrire les phénomènes observés.

### **IV.1 Caractérisations des interactions sol/soluté**

---

---

Les interactions géochimiques sol/solution qui nous intéressent ici concernent la sorption du strontium stable et d'un de ses isotopes radioactifs le <sup>85</sup>Sr sur le sable éolien de Tchernobyl. Les concentrations des autres ions présents dans l'eau synthétique utilisée dans notre étude sont maintenues constantes dans la solution d'alimentation.

Les premières études de sorption des cations sur le sable éolien de Tchernobyl réalisées par Szenknect (2003) montrent que le strontium 85 se sorbe sur ce sol principalement par échange cationique. Les études cinétiques complémentaires effectuées en réacteur ouvert révèlent par ailleurs des temps caractéristiques de sorption et de désorption inférieurs à 10 minutes. D'après ces

résultats, l'équilibre local « instantané » d'interaction du  $^{85}\text{Sr}$  avec ce sable semble pouvoir être considéré.

Cependant pour déterminer plus précisément les propriétés d'interaction du  $^{85}\text{Sr}$ , pour nos conditions expérimentales, et analyser notamment l'importance de la concentration de strontium stable présente dans le système étudié, nous avons réalisé des compléments à l'étude précédente de la sorption du strontium et du strontium 85 sur ce milieu poreux.

#### IV.1.1 Expériences sur colonnes - Condition dynamique

Les expériences réalisées sur sept petites colonnes décimétriques saturées en eau nous permettent d'estimer le coefficient  $K_d$  pour différentes concentrations en strontium stable variant de  $4,5 \cdot 10^{-8} \text{ mol.L}^{-1}$  à  $9,5 \cdot 10^{-5} \text{ mol.L}^{-1}$ . Les principales caractéristiques des colonnes ainsi que les conditions opératoires de ces expériences sont décrites dans le Tableau IV-1.

Nom de colonne	Colonne P1	Colonne P2	Colonne P3	Colonne P4	Colonne P5	Colonne P6	Colonne P7
[Sr stable] ( $\text{mol.L}^{-1}$ )	$4,5 \cdot 10^{-8}$	$4,5 \cdot 10^{-8}$	$2,3 \cdot 10^{-6}$	$8,5 \cdot 10^{-6}$	$5,7 \cdot 10^{-5}$	$8,75 \cdot 10^{-5}$	$9,54 \cdot 10^{-5}$
[Sr stable] ( $\mu\text{g.L}^{-1}$ )	3,96	3,96	200	746	5000	7700	8400
Hauteur du lit de sable L (cm)	8,8	5,2	5,9	1,91	6,3	5,2	6,4
Diamètre de la colonne (cm)	1,59	1,59	2,60	2,50	2,60	1,59	2,60
$\rho_d$ ( $\text{g.cm}^{-3}$ )	1,35	1,75	1,75	1,79	1,77	1,75	1,75
Porosité $\varepsilon$	0,49	0,34	0,34	0,33	0,33	0,34	0,34
Volume de pore (mL)	8,57	3,53	10,6	3,06	11,2	3,53	11,6
Vitesse de pore ( $\text{cm.h}^{-1}$ )	12,4	53,2	6,69	75	6,78	53,2	6,62
Débit d'alimentation Q ( $\text{mL.h}^{-1}$ )	12	36	12	120	12	36	12

Tableau IV-1 : Propriétés physiques des petites colonnes saturées et conditions opératoires utilisées pour le conditionnement géochimique des lits de sable.

Nous avons tout d'abord effectué des traçages avec une solution d'eau marquée avec du tritium, considéré comme un traceur de l'écoulement de l'eau, afin de valider le comportement hydrodynamique de nos colonnes.

Nous avons ensuite fait percoler, de façon ascendante, une eau synthétique contenant la concentration en strontium stable choisie puis analysé les courbes de percée des cations en solution. Cette étape a pour but de suivre et de quantifier la mise en équilibre de la solution de percolation avec le sable. Cette étape, appelé « conditionnement chimique », est de première importance pour s'assurer de l'équilibre géochimique sol/solution initial.

Enfin, une fois les colonnes mises en « équilibre géochimique », nous avons procédé à l'injection d'un créneau d'eau synthétique marquée avec du strontium 85, et mesuré les courbes de percée de ce radioélément et enfin, estimé le coefficient  $K_d$ .

#### *IV.1.1.1 Traçage au tritium*

Nous avons effectué des traçages avec une solution de tritium d'activité volumique  $900 \text{ kBq.L}^{-1}$ , sur 3 des 7 colonnes saturées. Le but de ces expériences est de s'assurer du bon fonctionnement hydrodynamique des petites colonnes, et de comparer les volumes de pores déduits des traçages à ceux déterminés à partir des caractéristiques géométriques des colonnes.

Pour cela, nous avons injecté un signal, assimilable à un Dirac, d'eau marquée avec du tritium en pied de colonne à l'aide d'une boucle d'injection de  $100 \mu\text{L}$ , avec un débit d'eau d'alimentation constant (Tableau IV-2). Nous avons ensuite traité les courbes de percée (corrigées du volume mort du système hydraulique) à l'aide d'une solution analytique (Selker J.S. et al., 1999). Pour l'injection d'un Dirac, la solution analytique générale retenue (Equation IV-1) définit la concentration de soluté en solution  $C(x,t)$  pour une colonne semi-infinie et pour l'injection instantanée d'une masse ( $M$ ) donnée avec un écoulement permanent continu et les conditions initiales et aux limites suivantes :

$C(x,0) = 0$  indiquant que la colonne ne contient pas de soluté initialement,

$\frac{\partial C(0,t)}{\partial x} = 0$  indiquant qu'il n'y a pas de flux de soluté à la surface, sauf à  $t=0$ ,



$M(0,0)=M$  : la masse M est injectée instantanément.

$C(x, t) = \frac{M}{2\theta AR\sqrt{\pi Dt/R}} \left[ \exp\left(-\frac{(x - vt/R)^2}{4Dt/R}\right) + \exp\left(-\frac{(x + vt/R)^2}{4Dt/R}\right) \right]$	<b>Équation IV-1</b>
--	----------------------

Avec  $D=\alpha v$  la dispersion considérée constante ( $\text{cm}^2.\text{h}^{-1}$ ),

A la surface de la section de colonne ( $\text{cm}^2$ ),

$\theta$  la teneur en eau volumique,

$v$  : la vitesse de pore ( $\text{cm}.\text{h}^{-1}$ ),

$R$  : le facteur de retard.

Dans le cas du tritium, considéré comme un traceur parfait de l'écoulement, le facteur de retard  $R$  est égal à 1. En utilisant alors la méthode des moindres carrés, avec le logiciel Igor, nous avons fait varier la dispersion  $D$  pour ajuster la courbe calculée sur les données expérimentales (Figure IV-1), les autres paramètres du modèle étant fixés. Le temps de transfert moyen  $T_{sm}$  de la solution analytique a alors été estimé par l'analyse du moment d'ordre 1 (Cf. Chapitre II) et comparé à celui calculé à partir de la porosité géométrique ( $T_s = \epsilon.L.A/ Q$ ) de la colonne. Un très bon accord peut être noté entre ces valeurs (Tableau IV-2), et nous avons donc, par la suite, utilisé les paramètres géométriques des colonnes pour estimer le temps de transfert de l'eau  $T_s$ .

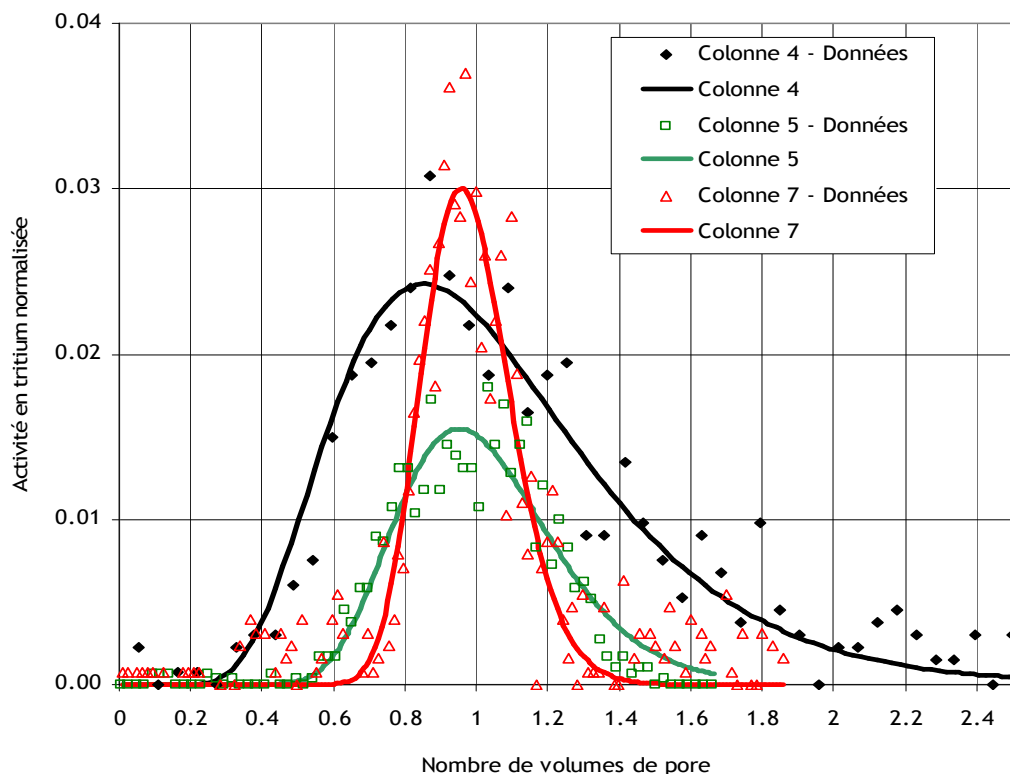


Figure IV-1 : Données expérimentales (symboles) et ajustements de la solution analytique correspondant à nos conditions opératoires (Equation IV-1, traits pleins) pour les courbes de percée de tritium mesurées sur les colonnes P4, P5 et P7.

Nom de colonne	Colonne P4	Colonne P5	Colonne P7
Débit d'alimentation Q (mL.min <sup>-1</sup> )	0,5	1,0	0,2
Hauteur du lit de sable L (cm)	1,91	6,30	6,40
Diamètre de la colonne (cm)	2,50	2,60	2,60
Porosité $\epsilon$	0,33	0,33	0,34
Dispersion D ajustée (cm <sup>2</sup> .h <sup>-1</sup> )	2,76	5,52	0,36
Tsm (min)	5,84	10,86	56,09
Ts (min)	6,13	11,18	58,15
R = Tsm/Ts	0,95	0,97	0,97

Tableau IV-2 : Comparaison des temps de transfert du tritium mesurés, en calculant le moment d'ordre 1 de la solution analytique ajustée avec D (Tsm), et calculés à partir des paramètres géométriques ( $T_s = \epsilon.L.A/ Q$ ) pour les colonnes P4, P5 et P6.

D'après les résultats des ajustements numériques obtenus pour la dispersion  $D$  et en considérant son expression sous la forme réduite  $D=\alpha.v$ , le coefficient de dispersivité  $\alpha$  pour nos conditions expérimentales est ici de l'ordre de 0,05 à 0,15 cm, soit du même ordre de grandeur que celui déterminé par Szenknect (2003) pour ce même milieu poreux en condition hydraulique saturée.

Les traçages au tritium permettent de vérifier le bon fonctionnement hydrodynamique des colonnes en constatant notamment l'absence de chemin préférentiel dans l'écoulement (signal de sortie continu, sans pics multiples, valeurs cohérentes des temps de transfert).

Par rapport au chapitre précédent, on note que le transport du tritium dans les petites colonnes saturées en eau peut être décrit très correctement par une modélisation CDE (inutile de considérer une fraction immobile). Ce résultat, important, permet de simplifier la modélisation (un paramètre au lieu de trois) et laisse penser que le transport saturé dans les petites colonnes ne fait pas intervenir de cinétique physique de diffusion de soluté entre l'eau mobile et les sites sur le solide à travers de l'eau immobile.

#### *IV.1.1.2 Conditionnement géochimique des colonnes*

Le conditionnement des lits de sable à l'équilibre géochimique avec l'eau d'alimentation est effectué en faisant percoler, à saturation, plusieurs volumes de pores. Les conditions opératoires utilisées pour le conditionnement géochimique des différentes colonnes sont rappelées Tableau IV-1.

Le suivi du conditionnement géochimique des lits de sable est réalisé en mesurant directement en sortie de colonne les concentrations des éléments majeurs en phase aqueuse. Le strontium étant, pour notre système sol/soluté, l'élément limitant du conditionnement géochimique (car celui possédant la plus grande affinité pour le sable) l'obtention d'un plateau dans l'évolution de sa concentration en fonction du temps en sortie de colonne atteste de la fin du conditionnement global du système. L'évolution des concentrations en cations mesurée en sortie de la colonne P7 durant son conditionnement géochimique est présentée Figure IV-2.

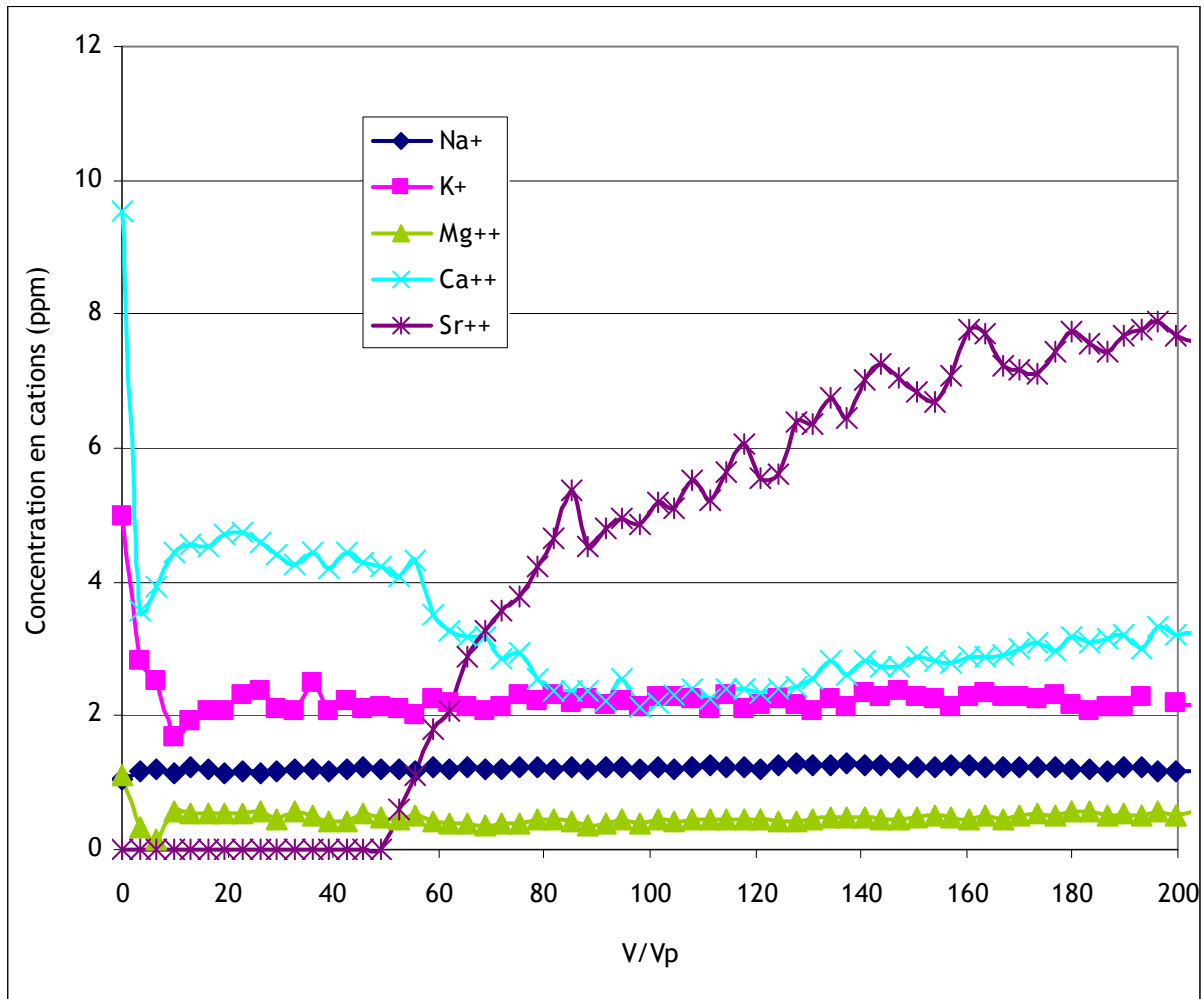


Figure IV-2 : Evolution des concentrations en cations mesurée en sortie de la colonne P7 en fonction du volume écoulé lors du conditionnement géochimique.

Nous avons utilisé une solution analytique pour ajuster les résultats expérimentaux (Selker J.S. et al., 1999). Cette solution analytique (Équation IV-2) décrit la variation de la concentration en solution d'un soluté  $C(x,t)$  pour une cote donnée ( $x$ ) en fonction du temps ( $t$ ). Les conditions initiales sont celles d'une colonne semi-infinie, ne contenant pas de soluté initialement, ce dernier étant injecté en continu en tête de colonne à la concentration  $C_0$  à partir du temps  $t=0$ . La forme analytique est la suivante :

$C(x,t) = \frac{C_0}{2} \exp\left(\frac{x}{2\alpha}\right) \left[ \exp\left(\frac{-x}{2\alpha}\right) \operatorname{erfc}\left(\frac{x-vt/R}{2\sqrt{\alpha vt/R}}\right) - \exp\left(\frac{x}{2\alpha}\right) \operatorname{erfc}\left(\frac{x+vt/R}{2\sqrt{\alpha vt/R}}\right) \right]$	Équation IV-2
---	---------------

avec

$C_0$  : la concentration injectée de strontium en solution ( $\text{mol.L}^{-1}$ ),

$\alpha$  : la dispersivité (cm),

$v$  : la vitesse de pore ( $\text{cm.h}^{-1}$ ),

$R$  : le facteur de retard.

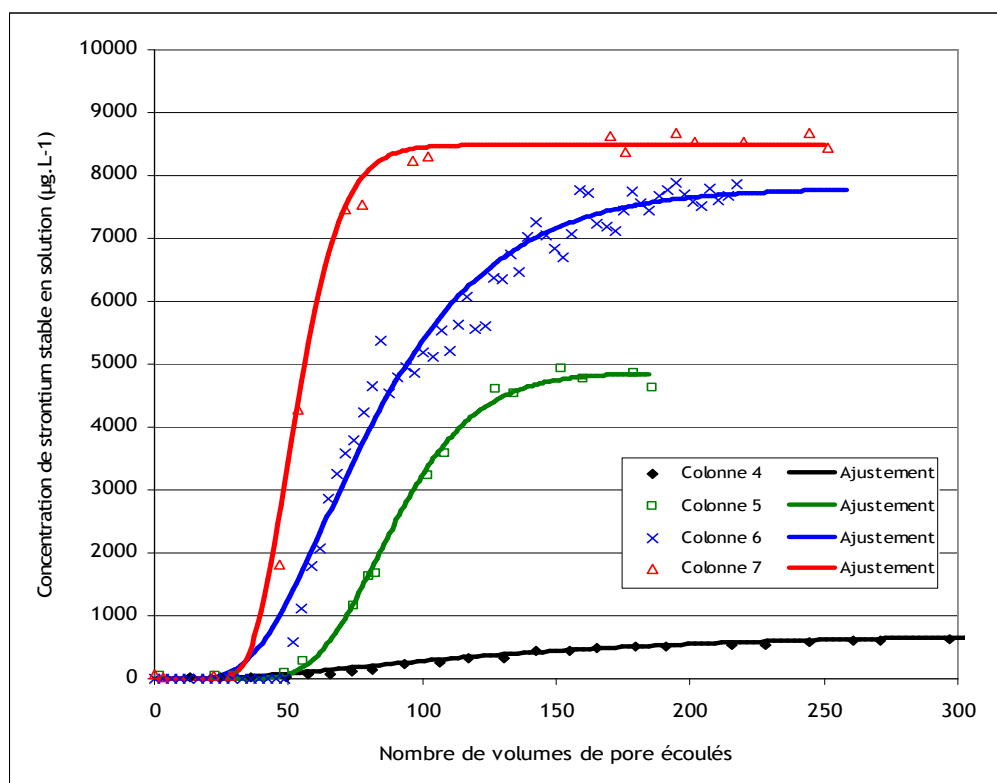
Dans le cas particulier où la concentration initiale en soluté ( $C_i$ ) dans la colonne est supérieure à celle injectée ( $C_0$ ), la solution analytique décrivant la variation de la concentration en solution d'un soluté  $C(x,t)$  pour une cote donnée ( $x$ ) en fonction du temps ( $t$ ) est de type  $C_i-C(x,t)$ .

Une représentation classique des courbes de percée consiste à les tracer en fonction du nombre de volume de pores écoulés dans les colonnes. Cette représentation permet de s'affranchir des caractéristiques propres des colonnes, dont les volumes de pore varient expérimentalement, mais aussi lorsqu'on fait varier les débits d'alimentation lors des conditionnements. Cette représentation permet alors de comparer directement les courbes de percée entre elles.

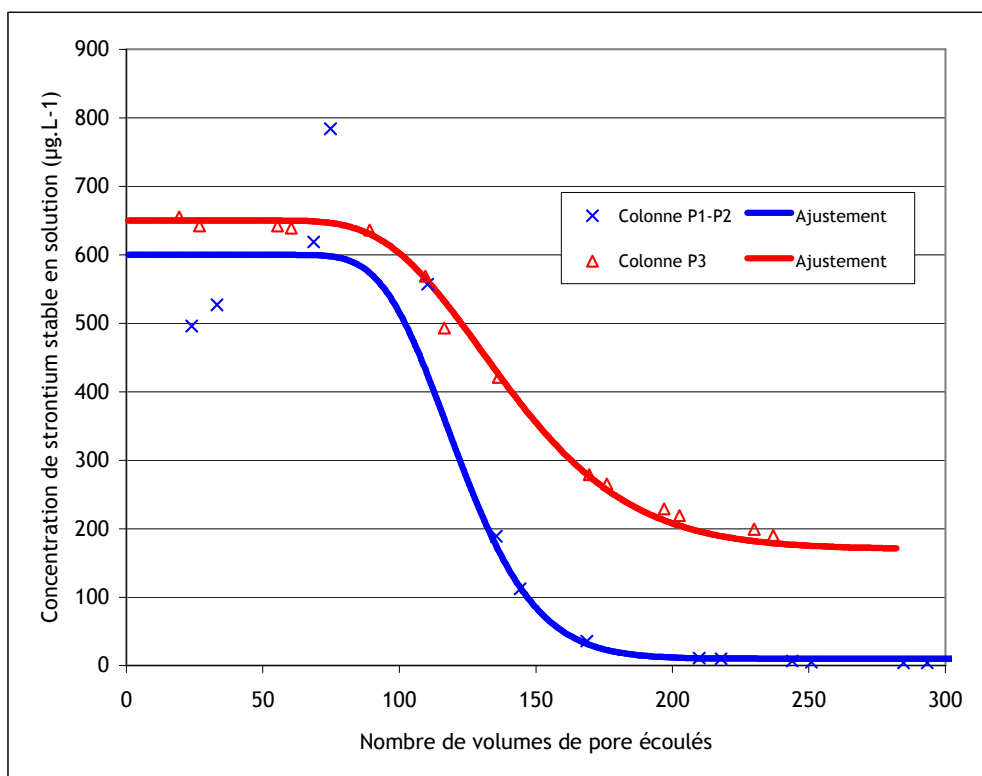
Nous avons effectué, avec le logiciel Igor, l'ajustement de la solution analytique sur les données expérimentales, au sens des moindres carrés, pour l'ensemble des courbes de percées des colonnes P1 à P7. La Figure IV-3 illustre les résultats obtenus pour les colonnes numérotées de P1 à P7. Les paramètres du modèle ajustés sont le facteur de retard  $R$  et la dispersivité  $\alpha$ , les autres paramètres étant fixés selon les propriétés géométriques des colonnes et les débits d'alimentation. On peut remarquer que lorsque la concentration de strontium stable de la solution d'alimentation augmente, le temps de sortie du strontium est plus faible, ce qui se traduit par un facteur de retard plus faible. Ce phénomène était attendu et montre la non-linéarité de l'isotherme de sorption du strontium pour les fortes concentrations. En effet, la concentration de sites de sorption disponibles sur le sable reste constante, alors que la concentration imposée en solution augmente. Ceci se traduit par une fixation proportionnellement plus faible sur le sable, et donc un coefficient  $K_d$  du strontium plus petit. Ce phénomène est parfaitement représenté par les résultats numériques des facteurs de retard et des coefficients  $K_d$  estimés à partir de ces expériences et présentés dans le Tableau IV-3. Les valeurs des coefficients  $K_d$  obtenus sont en très bon accord avec celles déterminées sur le même sable dans les travaux de Szenknect (en cours de publication 2008).

Nom de colonne	Colonne P1	Colonne P2	Colonne P3	Colonne P4	Colonne P5	Colonne P6	Colonne P7
[Sr stable] (mol.L <sup>-1</sup> )	$4,5 \cdot 10^{-8}$	$4,5 \cdot 10^{-8}$	$2,2 \cdot 10^{-6}$	$8,2 \cdot 10^{-6}$	$5,5 \cdot 10^{-5}$	$8,9 \cdot 10^{-5}$	$9,6 \cdot 10^{-5}$
[Sr stable] (µg.L <sup>-1</sup> )	3,96	3,96	190	720	4860	7800	8480
Dispersivité α (cm)	0,06	0,06	0,21	0,45	0,22	0,58	0,19
Facteur de retard calculé (R)	128	128	131	110	88	74	54
Kd du strontium calculé (L.kg <sup>-1</sup> )	46,0	46	25,0	19,5	16,3	14,2	10,2

Tableau IV-3 : Facteur de retard R, dispersivité α et Kd du strontium déduits de l'ajustement numériques des courbes de percées (Equation IV-2) du strontium lors du conditionnement géochimique des petites colonnes saturées en eau.



(a)



(b)

Figure IV-3 : Courbes de percée expérimentales du strontium stable et ajustements analytiques de l'Équation IV-2 (en faisant varier le facteur de retard  $R$  et la dispersivité  $\alpha$ ) pour les colonnes P4 à P7 (a) et P1 à P3 (b) en fonction du nombre de volumes de pore.

#### IV.1.1.3 Traçages de <sup>85</sup>Sr

Nous avons également effectué des traçages avec du strontium 85, sur plusieurs colonnes saturées, en injectant un signal de type Dirac pour comparer les temps de transfert de cet isotope à ceux du strontium stable. L'objectif était de confirmer et de quantifier les propriétés de sorption des isotopes du strontium dans nos conditions expérimentales.

Les expériences de migration du <sup>85</sup>Sr sur colonnes saturées en eau ont été effectuées par injection d'une solution marquée en strontium85 d'activité volumique de l'ordre de 100 MBq.L<sup>-1</sup> à l'aide d'une boucle d'injection de 100 µL sur les colonnes précédemment conditionnées du point de vue géochimique. Les conditions hydrauliques dans lesquelles nous avons effectué ces traçages sont rappelées Tableau IV-4.

Nom de colonne	Colonne P2	Colonne P3	Colonne P4	Colonne P5	Colonne P7
Débit d'alimentation (mL.h <sup>-1</sup> )	60	60	30	12	12
Vitesse de pore (cm.h <sup>-1</sup> )	33,5	33,5	18,8	6,62	6,62
Concentration de Sr stable (mol.L <sup>-1</sup> )	4,5.10 <sup>-8</sup>	2,2.10 <sup>-6</sup>	8,2.10 <sup>-6</sup>	5,5.10 <sup>-5</sup>	9,6.10 <sup>-5</sup>

Tableau IV-4 : Conditions des expériences de transfert de <sup>85</sup>Sr effectuées sur les petites colonnes portées préalablement à l'équilibre géochimique sol/solution et à saturation en eau.

Les courbes de percée du <sup>85</sup>Sr obtenues pour les colonnes P4 et P7 sont présentées Figures IV-4 et IV-5.

Le calcul du moment d'ordre 1 sur chaque courbe de percée permet de déterminer le temps de sortie du centre de masse Tr du radioélément pour ces conditions expérimentales. Connaissant par ailleurs les conditions hydrodynamiques dans lesquelles l'expérience est effectuée (temps de sortie moyen d'un traceur de l'eau Ts), nous pouvons déduire le facteur de Retard R du radioélément en utilisant la relation  $R=Tr/Ts$ , puis évaluer son Kd en utilisant cette fois la relation  $R=1+pd*Kd/\theta$ .

Les coefficients Kd du <sup>85</sup>Sr déduits des différents traçages sur colonne saturée en eau sont résumés Tableau IV-5, en rappelant la concentration de strontium stable à laquelle l'expérience est réalisée.

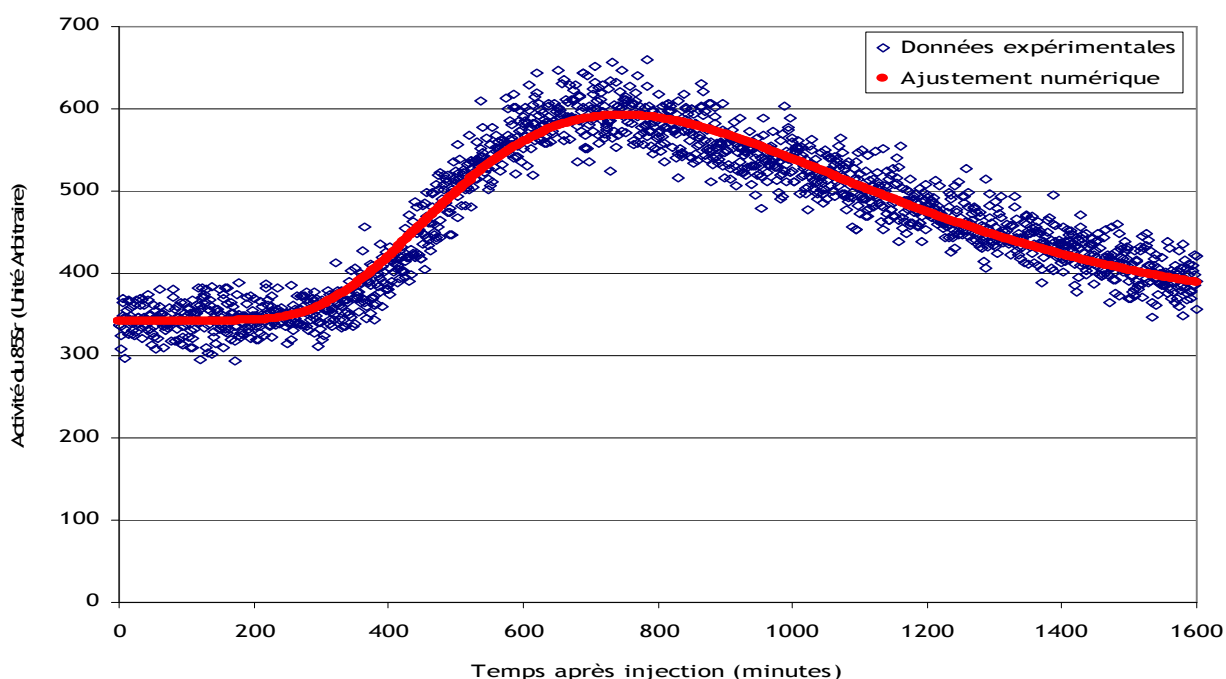


Figure IV-4 : Courbes de percée expérimentale et simulée du <sup>85</sup>Sr sur la colonne P4.



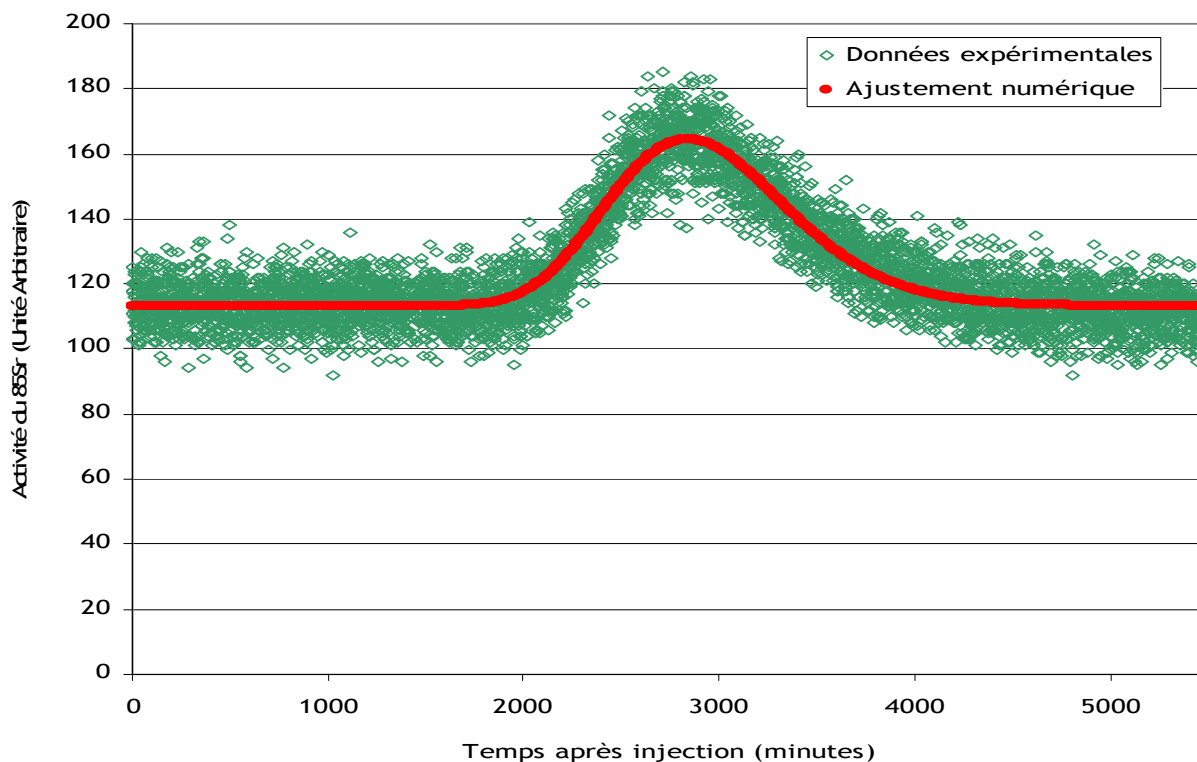


Figure IV-5 : Courbes de percée expérimentale et simulée du  $^{85}\text{Sr}$  sur la colonne P7.

Nom de colonne	Colonne P2	Colonne P3	Colonne P4	Colonne P5	Colonne P7
Concentration de Sr stable ( $\text{mol.L}^{-1}$ )	$4,5 \cdot 10^{-8}$	$2,2 \cdot 10^{-6}$	$8,2 \cdot 10^{-6}$	$5,5 \cdot 10^{-5}$	$9,6 \cdot 10^{-5}$
$K_d(^{85}\text{Sr})$ ( $\text{L.kg}^{-1}$ )	20	25,8	24,1	15,3	9,5
$K_d$ du strontium stable ( $\text{L.kg}^{-1}$ )	46	25,0	19,5	16,3	10,2

Tableau IV-5 : Concentrations de strontium stable testées et valeurs des  $K_d$  obtenues pour les expériences de transport de  $^{85}\text{Sr}$  sur colonnes de sable éolien de Tchernobyl saturées en eau (condition dynamique).

D'après ces résultats, on constate, comme attendu, que lorsque la concentration de strontium stable augmente dans le système, la valeur du  $K_d$  du  $^{85}\text{Sr}$  diminue progressivement. Les deux espèces étant en compétition pour l'accès aux sites de sorption, l'augmentation de la concentration de l'une entraîne une difficulté croissante de l'autre à se fixer. Dans la gamme de concentrations

explorées, on note également un bon accord entre les mesures du coefficient  $K_d$  du strontium stable et de son isotope radioactif.

#### IV.1.2 Expériences en réacteur fermé « batch » - Condition statique

Les expériences d'interaction du  $^{85}\text{Sr}$  avec le sable éolien de Tchernobyl en réacteur fermé « batch » ont été effectuées sur des échantillons de sable prélevés sur les colonnes ayant servies préalablement pour les expériences de traçages de  $^{85}\text{Sr}$  en condition dynamique et donc initialement conditionnés avec différentes concentrations de strontium stable. Ce protocole permet alors de réaliser des expériences sur un système sol/solution initialement connu pour sa géochimie.

Le Tableau IV-6 ci-dessous présente les résultats obtenus lors des expériences de « batch » effectuées en suivant la méthode rappelée chapitre II et selon la concentration de strontium stable présente en solution. Toutes les autres concentrations d'éléments étant par ailleurs conservées durant les essais. Les résultats de mesures du coefficient  $K_d$  à partir des mesures du  $^{85}\text{Sr}$  sont cohérentes entre elles, le coefficient  $K_d$  diminuant lorsque la concentration en strontium stable augmente. En revanche les valeurs des coefficients  $K_d$  obtenus par cette technique sont beaucoup plus faibles que ceux déterminés lors des expériences en conditions dynamiques. Plusieurs propositions sont faites chapitre V pour expliquer ces différences.

	Batch 1	Batch 2	Batch 3	Batch 4	Batch 5
Sable de la colonne	P1	P3	P4	P5	P7
Concentration en strontium stable ( $\text{mol.L}^{-1}$ )	$4,5 \cdot 10^{-8}$	$2,2 \cdot 10^{-6}$	$8,2 \cdot 10^{-6}$	$5,5 \cdot 10^{-5}$	$9,6 \cdot 10^{-5}$
Masse de sable (g)	15,0	15,0	15,0	15,0	15,0
Volume d'eau synthétique (ml)	29,8	29,9	29,9	29,9	29,9
Rapport m/V ( $\text{g.ml}^{-1}$ )	0,50	0,50	0,50	0,50	0,50
Temps de mise à l'équilibre (heure)	24	24	24	24	24
« $K_d$ » obtenus ( $\text{L.Kg}^{-1}$ )	9,8	11,8	9,3	9,2	0,2

Tableau IV-6 : Concentrations de strontium stable explorées et valeurs des coefficients  $K_d$  obtenues lors de l'analyse des propriétés de sorption du  $^{85}\text{Sr}$  sur le sable éolien de Tchernobyl effectuée en réacteur fermé « batch » (condition statique).

## IV.2 Transport réactif de strontium 85 en condition hydraulique non-saturée

Nous avons réalisés des expériences de transport de  $^{85}\text{Sr}$  en conditions hydrauliques non-saturées sur deux grandes colonnes de laboratoire, les colonnes 6 et 8, pour deux concentrations en strontium stable, respectivement  $10^{-8} \text{ mol.L}^{-1}$  et  $10^{-5} \text{ mol.L}^{-1}$ . Le choix de ces concentrations permet d'explorer le comportement du strontium dans la partie linéaire de l'isotherme de sorption du strontium pour la plus faible concentration en strontium, et dans la partie non linéaire de cette isotherme pour la plus forte concentration en strontium.

L'un des objectifs de cette étude est de s'assurer de travailler dans des conditions géochimiques constantes afin de bien découpler les phénomènes hydrodynamiques et réactifs. Pour cela, les colonnes de sable sont préalablement « conditionnées chimiquement » en faisant percoler à saturation, une eau synthétique de Tchernobyl, ajustée respectivement aux concentrations de strontium stable étudiées, jusqu'à l'obtention d'un équilibre chimique entre la solution de chimie imposée et la phase solide.

### IV.2.1 Conditionnement chimique des colonnes

Les caractéristiques physiques des colonnes sont rappelées Tableau IV-7.

Colonne	Hauteur du lit de sable (cm)	Diamètre de la colonne (cm)	$\rho_d$ ( $\text{g.cm}^{-3}$ )	Porosité $\varepsilon$	Volume de pore (ml)	Concentration de Sr stable ( $\text{mol.L}^{-1}$ )
6	65,5	5	1,8	0,32	412	$10^{-8}$
8	64	5	1,85	0,3	377	$10^{-5}$

Tableau IV-7 : Propriétés physiques des colonnes 6 et 8.

Pour la colonne 6 le conditionnement chimique est effectué en faisant percoler 20 litres d'eau d'alimentation en condition hydraulique saturée (soit environ 48 volumes de pore) avec un débit  $Q=100 \text{ ml.h}^{-1}$  (Vitesse de Darcy  $q=5,1 \text{ cm.h}^{-1}$ ).

Pour la colonne 8 le conditionnement chimique est effectué en faisant percoler 35 litres d'eau d'alimentation en condition hydraulique saturée (soit environ 93 volumes de pore) avec un débit  $Q=200 \text{ ml.h}^{-1}$  (Vitesse de Darcy  $q=10,2 \text{ cm.h}^{-1}$ ).

D'après les résultats précédemment établis sur les petites colonnes saturées pour l'étude du conditionnement chimique, il est possible d'estimer simplement la hauteur du lit de sable en équilibre avec la solution d'alimentation. Pour cela, nous avons utilisé la solution analytique (Equation IV-2) pour calculer la concentration en strontium le long des colonnes à la fin du conditionnement. Le coefficient de retard a simplement été recalculé en utilisant le coefficient  $K_d$  déterminé pour chaque condition expérimentale étudiée et en fonction des paramètres géométriques des colonnes 6 et 8. La dispersivité moyenne prise à 0,2 cm est déduite des expériences effectuées sur les petites colonnes saturées.

Colonne	$\rho_d$ (g.cm <sup>-3</sup> )	Porosité $\varepsilon$	$K_d$ (L.kg <sup>-1</sup> )	R	Vitesse de pore (cm.h <sup>-1</sup> )	Dispersivité $\alpha$ (cm)	Concentration de Sr stable (mol.L <sup>-1</sup> )
6	1,8	0,32	46	260	16,3	0,5	$10^{-8}$
8	1,85	0,30	19,5	121	34,0	0,5	$10^{-5}$

Tableau IV-8 : Paramètres pris en compte pour la simulation du conditionnement chimique des colonnes 6 et 8.

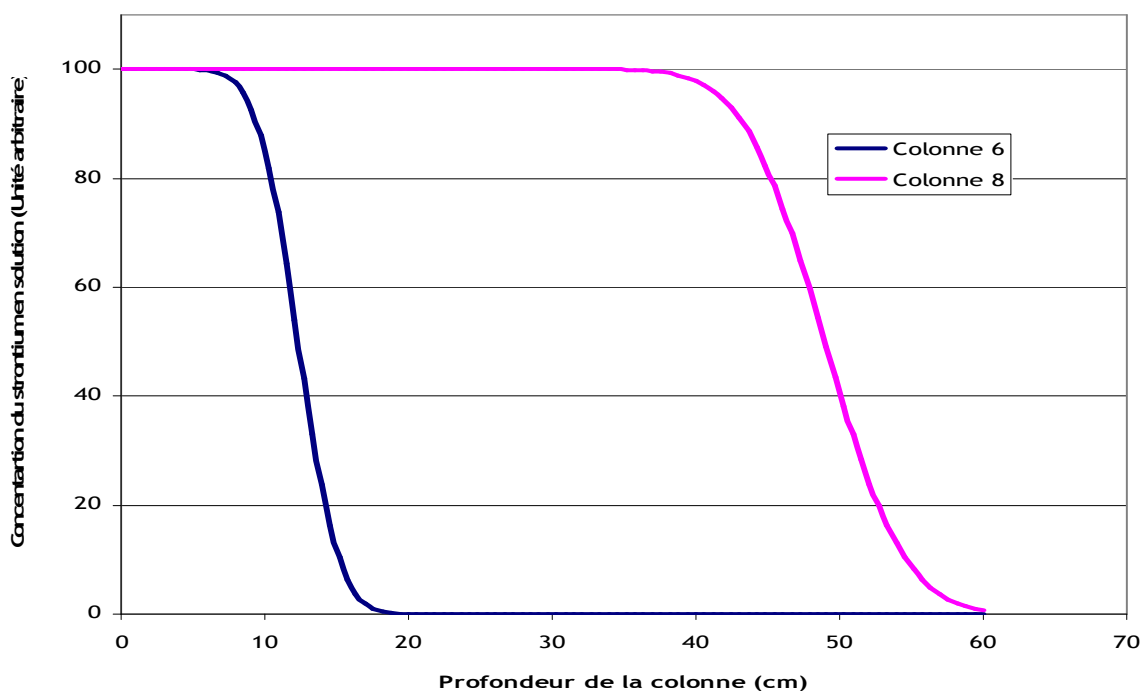


Figure IV-6 : Représentation des profils d'équilibre sol/solution calculés pour la concentration de strontium stable en solution vis-à-vis du sable éolien de Tchernobyl, en fonction de la profondeur dans la colonne et suites aux conditionnements géochimiques des colonnes 6 et 8.

Les résultats des simulations de l'étape de conditionnement (Figure IV-6) révèlent des lits de sable en équilibre avec l'eau d'alimentation jusqu'à des profondeurs respectives d'environ 13 et 50 cm, pour les colonnes 6 et 8. Comme nous le verrons plus tard dans cette étude, cette étape de conditionnement chimique nous permet de confirmer que les expériences de transport de strontium <sup>85</sup> sont effectuées dans une région du système que l'on peut considérer à l'équilibre géochimique (près de la surface d'injection,  $z=0$ ).

### **IV.2.2 Transport en condition hydraulique non-saturée permanente**

Nous avons souhaité réaliser une expérience de transport de <sup>85</sup>Sr en régime d'écoulement non saturé permanent dans des conditions opératoires similaires à celles employées dans les travaux de Szenknect (2003). Les objectifs de cette expérience étaient de vérifier que le fonctionnement hydrodynamique et de transport de nos colonnes étaient comparables.

L'expérience est réalisée à partir d'une distribution de soluté initialement présente dans le lit de sable qui fait suite aux essais de migration en condition hydraulique non saturé transitoire sur la colonne n°6 et qui seront présentés dans la suite de ce chapitre. Cette étude a pour objectif :

3. d'estimer d'une part la valeur du coefficient de distribution du strontium ( $K_d$ ) pour les conditions géochimiques appliquées au sein de cette colonne,
4. de vérifier d'autre part si nous retrouvons, pour ces conditions expérimentales, la relation reliant le facteur de retard au coefficient  $K_d$  en régime d'écoulement insaturé permanent.

Les propriétés physiques de la colonne sont celles présentées Tableau IV-7. Les conditions opératoires utilisées pour l'expérience sont résumées Tableau IV-9.

Débit d'alimentation Q (ml.h <sup>-1</sup> )	Teneur en eau $\theta$	Vitesse de Darcy q (cm.h <sup>-1</sup> )	Concentration de Sr stable (mol.L <sup>-1</sup> )
80	0,2	4,1	10 <sup>-8</sup>

**Tableau IV-9 : Conditions expérimentales utilisées pour l'expérience de transport de <sup>85</sup>Sr en régime permanent insaturé dans la colonne 6.**

La Figure IV-7 présente la mise en place et le suivi du profil de teneur en eau  $\theta(z)$ , une fois atteinte la teneur en eau voulue pour nos conditions opératoires. Les résultats obtenus révèlent un profil uniforme et constant durant l'expérience autour de la valeur  $\theta=0,2$ .

Durant l'expérience en régime permanent insaturé, la migration du  $^{85}\text{Sr}$  au sein du lit de sable est suivie en mesurant régulièrement le profil d'activité totale du radioélément le long de la colonne avec le banc gammamétrique. Les profils de  $^{85}\text{Sr}$  mesurés après plusieurs heures de migration sont présentés Figure IV-8.

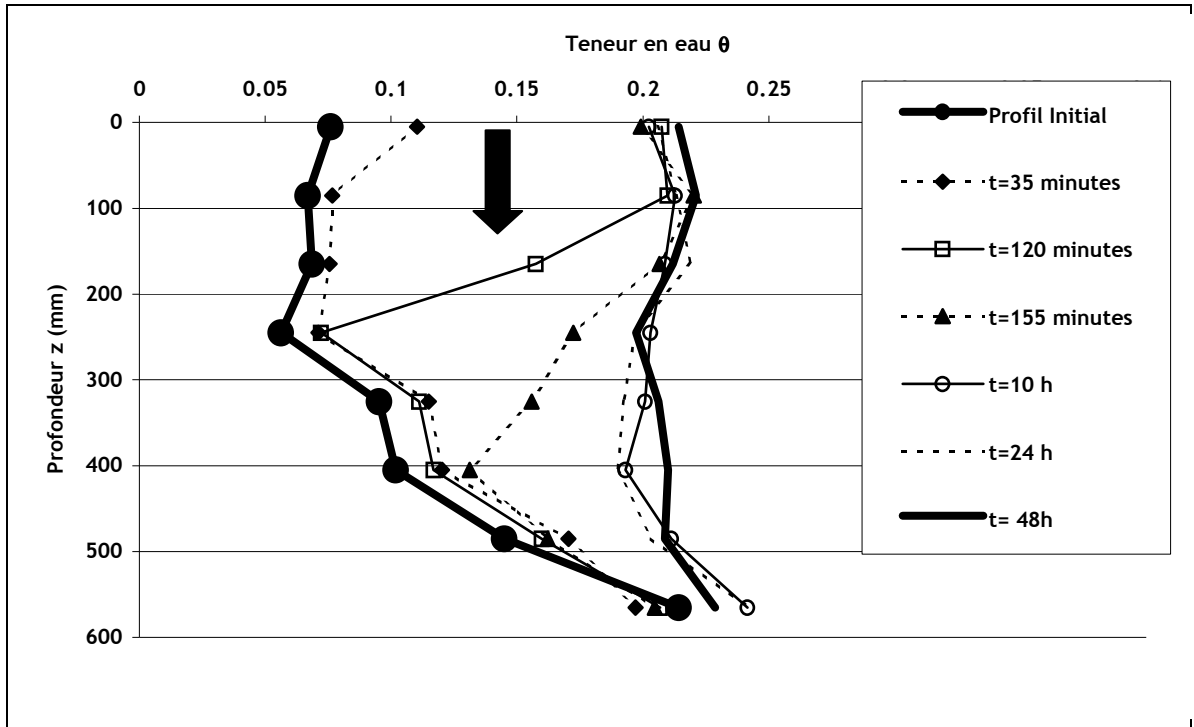


Figure IV-7 : Evolution du profil de teneur en eau  $\theta(z)$ , mesuré avec le banc gammamétrique, au sein de la colonne de sable n°6, lors de la mise en place du régime hydrodynamique permanent à la teneur en eau moyenne  $\theta_{\text{moyen}} = 0,2$  (vitesse de Darcy  $q = 4,1$  cm/h).

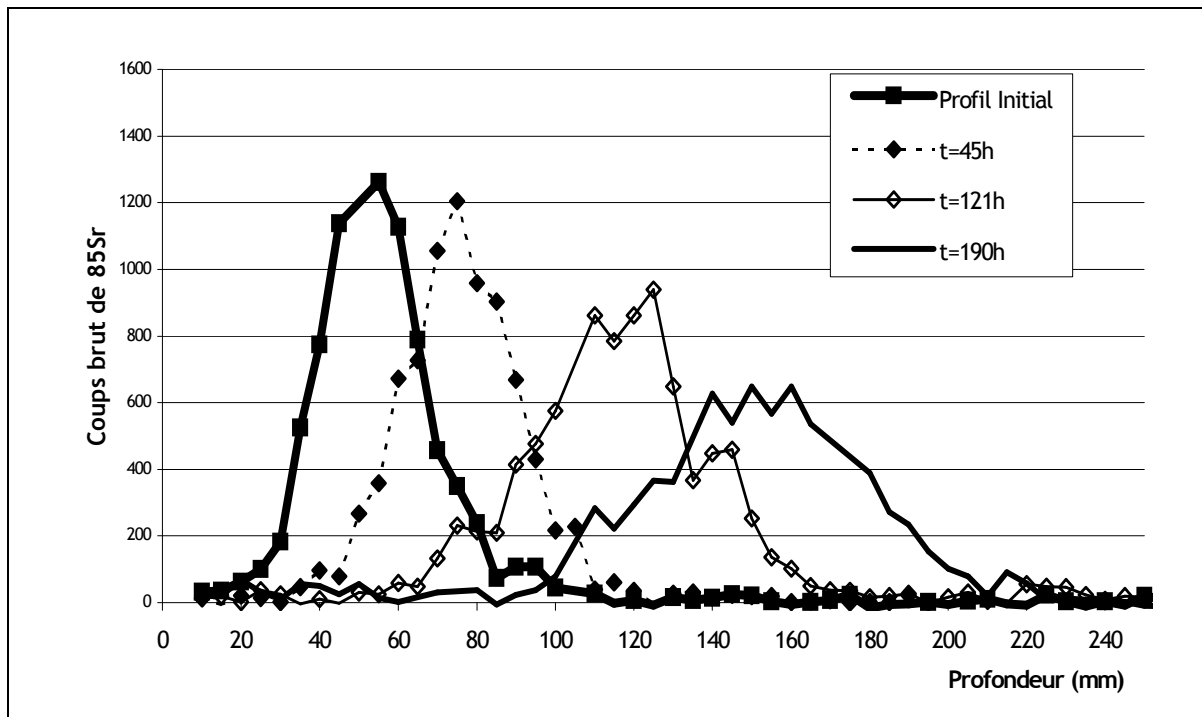


Figure IV-8 : Evolution du profil d'activité totale de  $^{85}\text{Sr}(z)$ , mesuré avec le banc gammétrique, durant l'expérience de transport en régime hydraulique permanent non saturé dans la colonne

6.

L'allure des profils mesurés avec le banc gammamétrique reste globalement symétrique. L'analyse des moments d'ordre 1 en fonction du temps (Figure IV-9) permet de calculer une vitesse moyenne de déplacement du pic de  $^{85}\text{Sr}$  d'environ 0,505 mm/h.

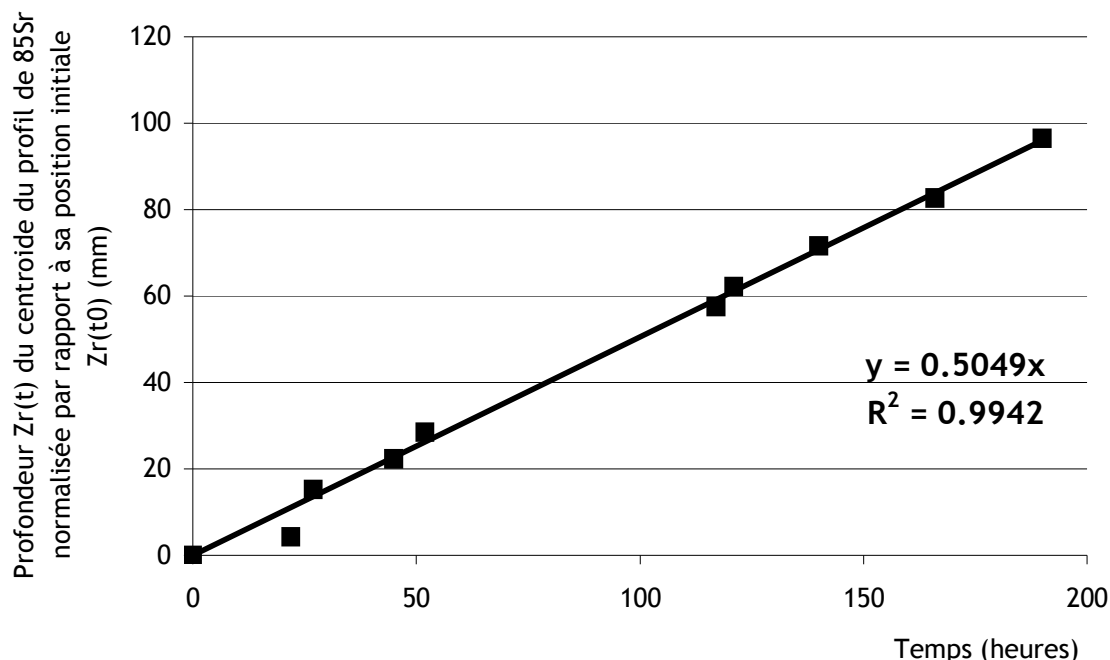


Figure IV-9 : Evolution de la profondeur  $Z_r(t)$  du centre de masse du profil de  $^{85}\text{Sr}$  (moment spatial d'ordre 1) en fonction du temps lors de l'expérience de transport sur colonne de sable de Tchernobyl en régime hydraulique insaturé permanent ( $\theta=0,2$  et  $q=4,1\text{ cm}\cdot\text{h}^{-1}$ ).

La vitesse d'écoulement de l'eau au sein de la colonne durant l'expérience est  $v=q/\theta= 20,5\text{ cm}\cdot\text{h}^{-1}$ . Le facteur de retard du strontium 85  $R(^{85}\text{Sr})$  durant cette expérience peut alors être déterminé en utilisant la relation  $R=v_{\text{eau}}/v_{^{85}\text{Sr}}$ . Dans ces conditions opératoires,  $R(^{85}\text{Sr})$  est égal à 406.

Cette valeur permet ensuite de déterminer le coefficient  $K_d$  du  $^{85}\text{Sr}$  lors de cette expérience, en utilisant cette fois la relation utilisée pour le calcul du facteur de retard en régime permanent insaturé  $R=1+(\rho_d \cdot K_d)/\theta$ , et démontré expérimentalement lors de l'étude de Szenknect (2003).

Pour une teneur en eau  $\theta$  de 0,2 et une masse volumique apparente  $\rho_d$  de  $1,8\text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ , la valeur du coefficient  $K_d$  obtenue par cette méthode est de  $45\text{ L}\cdot\text{Kg}^{-1}$ . Cette valeur est en bon accord d'une part avec les résultats obtenus par Szenknect (Réf. article 2) et d'autre part avec nos expériences en condition dynamique (colonne saturée) réalisées dans des conditions géochimiques similaires



mais en conditions hydrodynamiques différentes, laissant penser que ces dernières n'influent que peu sur la valeur du coefficient  $K_d$  dans ces conditions opératoires.

### IV.2.3 Transport en condition hydraulique non saturée transitoire

Un échelon d'eau synthétique marquée avec du strontium 85 est injecté en haut d'une colonne initialement drainée avec une succion constante imposée en pied de colonne. La migration du radioélément le long de la colonne est alors suivie à l'aide du banc gammamétrique en fonction des diverses sollicitations hydrauliques.

#### IV.2.3.1 Drainage des colonnes à succion constante imposée

L'étape suivant le conditionnement chimique est la mise en place d'un équilibre hydrostatique avec une succion constante imposée de 84 cm en pied de colonne. La variation des profils de teneur en eau est suivie à l'aide du banc gammamétrique et permet d'estimer la teneur en eau finale le long des colonnes une fois cet équilibre atteint comme illustré pour la colonne 6, Figure IV-10. Nous constatons alors que le profil de teneur en eau peut être considéré comme uniforme notamment dans la partie supérieure de la colonne.

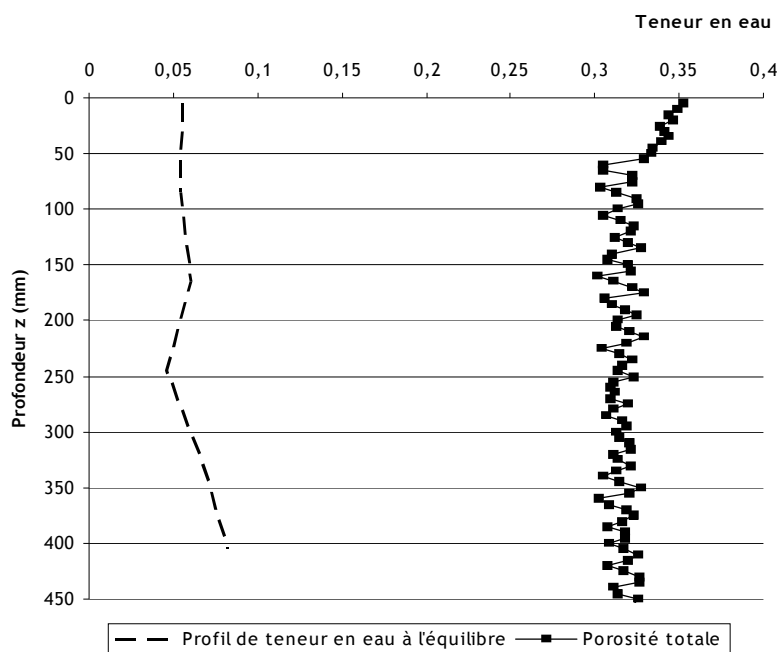


Figure IV-10 : Profil de teneur en eau  $\theta(z)$  obtenu à l'équilibre hydrostatique en imposant une succion constante de 84 cm en pied de la colonne 6.

#### *IV.2.3.2 Injection d'un premier créneau d'eau marqué au <sup>85</sup>Sr*

L'injection du strontium 85 dans les colonnes drainées est réalisée en marquant la solution d'alimentation d'un premier créneau d'eau avec une vitesse de Darcy  $q=5,1 \text{ cm.h}^{-1}$  pendant 30 minutes pour la colonne 6, et  $q=10,2 \text{ cm.h}^{-1}$  pendant 15 minutes pour la colonne 8. Ceci représente dans les deux cas une lame d'eau infiltrée de 2,55 cm appliquée en haut de colonne.

Les activités totales injectées sont respectivement de 85 kBq et de 165 kBq pour les colonnes 6 et 8. Les temps de comptage choisis pour mesurer les profils du radioélément sont de 420 secondes pour la colonne 6 et de 240 secondes pour la colonne 8 dans laquelle la vitesse d'écoulement de l'eau est plus rapide et l'activité injectée plus importante. L'activité mesurée est ensuite corrigée de la décroissance radioactive par rapport à la date d'injection dans la colonne afin de pouvoir suivre l'évolution de la masse du radioélément durant le transport.

Lorsque la quantité totale d'eau injectée avec le créneau (50 ml) est ressortie en pied de colonne (i.e. fin de la redistribution), une première mesure du profil d'activité totale de <sup>85</sup>Sr est réalisée le long de la colonne afin de déterminer la distribution spatiale du radioélément. Les résultats de cette première mesure du profil de <sup>85</sup>Sr, ainsi que les deux (ou trois) suivantes réalisées respectivement après injection de deux (ou trois) créneaux supplémentaires d'eau synthétique de même nature, mais non marquée avec l'isotope radioactif, sont présentées Figures IV-11 et IV-12.

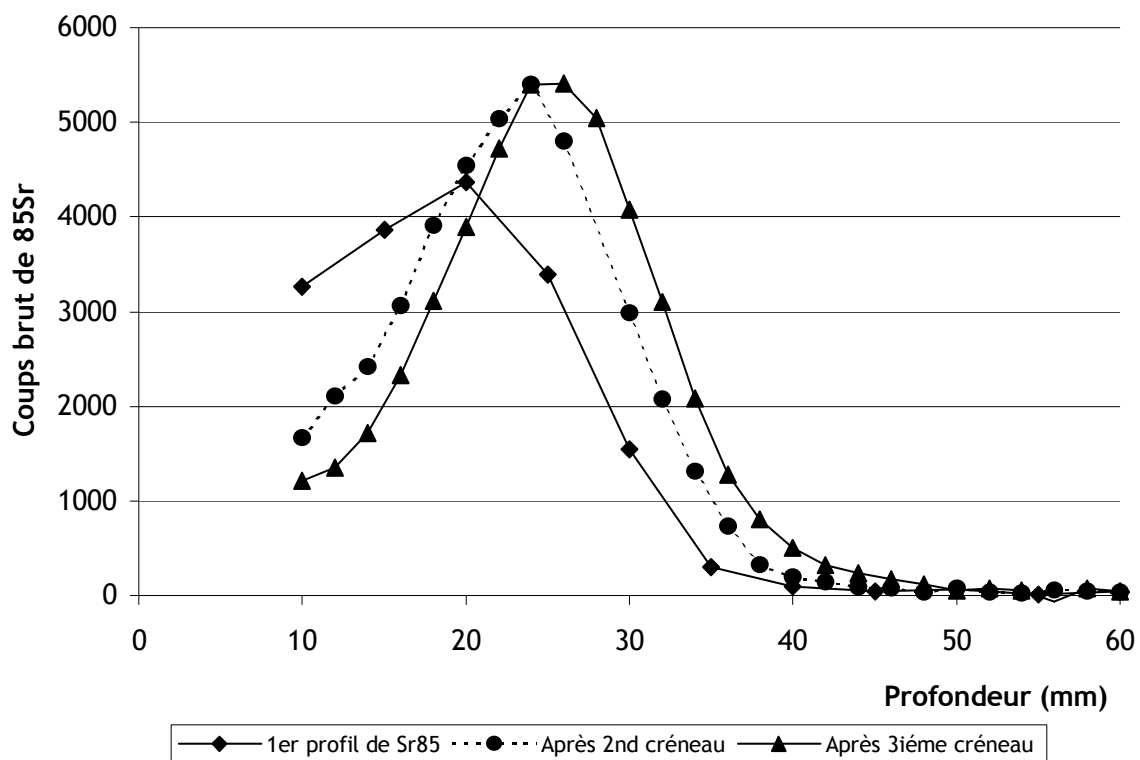


Figure IV-11 : Premier profil d'activité totale de  $^{85}\text{Sr}(z)$  mesuré avec le banc gammamétrique suite à l'injection en haut de la colonne n°6 du premier créneau ( $q=5,1 \text{ cm}\cdot\text{h}^{-1}$  pendant 30 minutes) d'eau synthétique marquée avec une activité de radioélément  $A(^{85}\text{Sr})= 85 \text{ KBq}$  - Résultats de la mesure des deux profils suivants après injection de deux créneaux supplémentaires d'eau synthétique identique au premier mais non marqué en radioélément.

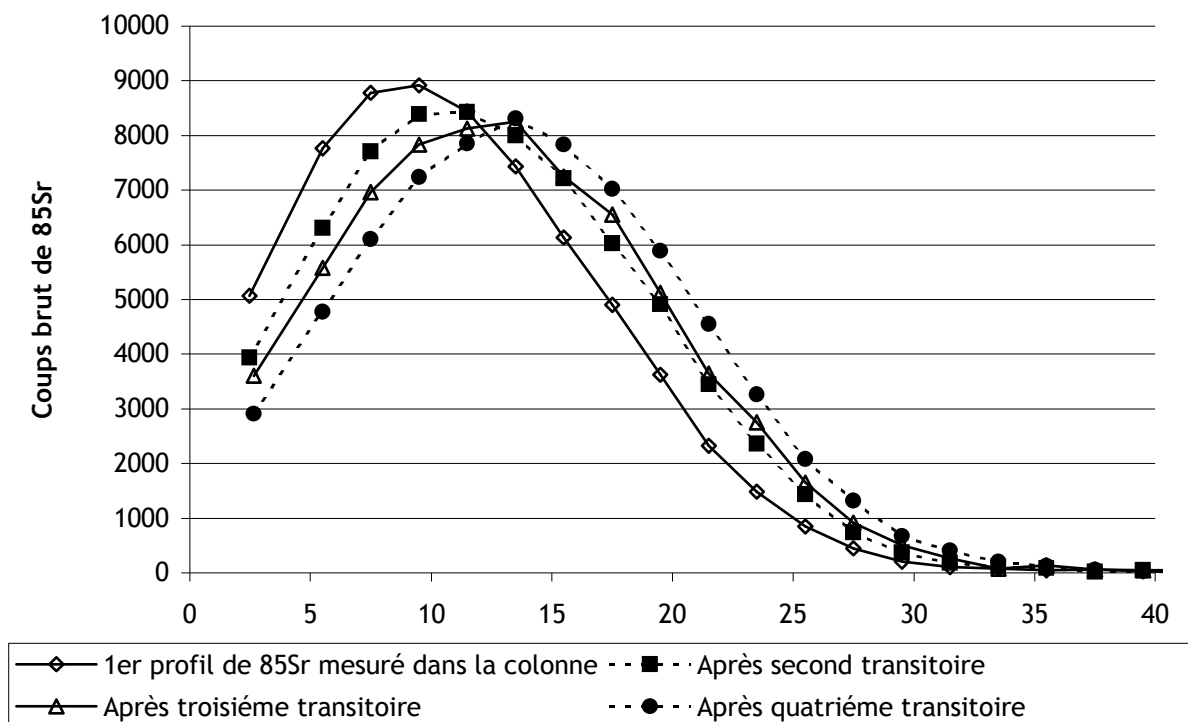


Figure IV-12 : Premier profil d'activité totale de  $^{85}\text{Sr}(z)$  mesuré avec le banc gammamétrique suite à l'injection en haut de la colonne n°8 du premier créneau d'eau synthétique marquée avec une activité de radioélément  $A(^{85}\text{Sr}) = 165,5 \text{ KBq}$  - Résultats de la mesure des trois profils suivants après injection de trois créneaux supplémentaires d'eau synthétique identique au premier ( $q = 10,2 \text{ cm.h}^{-1}$  pendant 15 minutes) mais non marqué en radioélément.

Le premier profil de  $^{85}\text{Sr}$  mesuré sur les deux colonnes confirme la fixation totale du traceur radioactif dans les premiers centimètres du lit de sable. Ce profil a l'allure d'un pic symétrique en première approximation que l'on peut caractériser par le calcul de son centre de masse, ou moment d'ordre 1. Les cotes des centres de masse sont respectivement de 18 et 10 mm, pour les colonnes 6 et 8. Les mesures des deux profils suivants montrent que le déplacement du pic de  $^{85}\text{Sr}$  est plus faible après l'infiltration de deux lames d'eau, de l'ordre de 5 mm pour les deux colonnes.

Ce phénomène de déplacement rapide du pic lors de l'injection du radioélément avait déjà été observé dans les travaux de Szenknect (2003). Plusieurs explications avaient alors été avancées pour expliquer cet effet, parmi lesquelles des écoulements non uniformes sur le haut de la colonne, ou bien une modification locale de l'équilibre entre la solution et le sable. Ces modifications chimiques

étaient attribuées à la diminution forte du pH inhérente à l'ajout du marqueur radioactif, conditionné dans une solution acide (pH=1). Une autre explication peut également être avancée : l'introduction d'un isotope du strontium dans la solution nécessite un ré-équilibre isotopique du système solution/sable. Cette phase est rapide, mais son temps caractéristique est du même ordre de grandeur que la durée de l'injection. Le strontium85 initialement uniquement présent en solution peut alors être transporté lors de l'infiltration sur une distance plus grande. L'équilibre isotopique du système est finalement atteint lorsque le système est de retour à l'équilibre hydrostatique.

Afin de palier à cet effet « d'initialisation », nous avons choisi de prendre en compte par la suite, pour l'analyse du transport, l'état initial du soluté réactif correspondant à la distribution d'activité mesurée lors du troisième profil pour la colonne 6 et du quatrième profil pour la colonne 8.

#### IV.2.3.3 Nature des épisodes hydrauliques transitoires étudiés

Les épisodes hydrauliques transitoires réalisés dans cette étude consistent en l'injection de créneau d'eau dont le volume total de 50 ml est maintenu constant. Cependant, en jouant sur la durée et la vitesse d'infiltration, on peut alors obtenir des créneaux d'eau de nature variée et représentant des pluies plus ou moins intenses observables dans les conditions naturelles. Dans un souci de clarté, nous avons défini 4 types de créneaux différents, nommés :

- PF correspondant à une pluie faible,
- PM correspondant à une pluie modérée,
- PI1 et PI2 correspondant à deux pluies fortes.

Les caractéristiques des écoulements de ces créneaux sont présentées dans le Tableau IV-10 et l'allure des créneaux sur la Figure IV-13.

Nom du créneau	PF	PM	PI1	PI2
Volume d'eau injecté (mL)	50	50	50	50
Durée d'injection (minutes)	207	30	15	12
Vitesse de Darcy ( $\text{cm.h}^{-1}$ )	1,53	5,10	10,2	12,7

Tableau IV-10 : Caractéristiques des écoulements des quatre transitoires hydrauliques étudiés

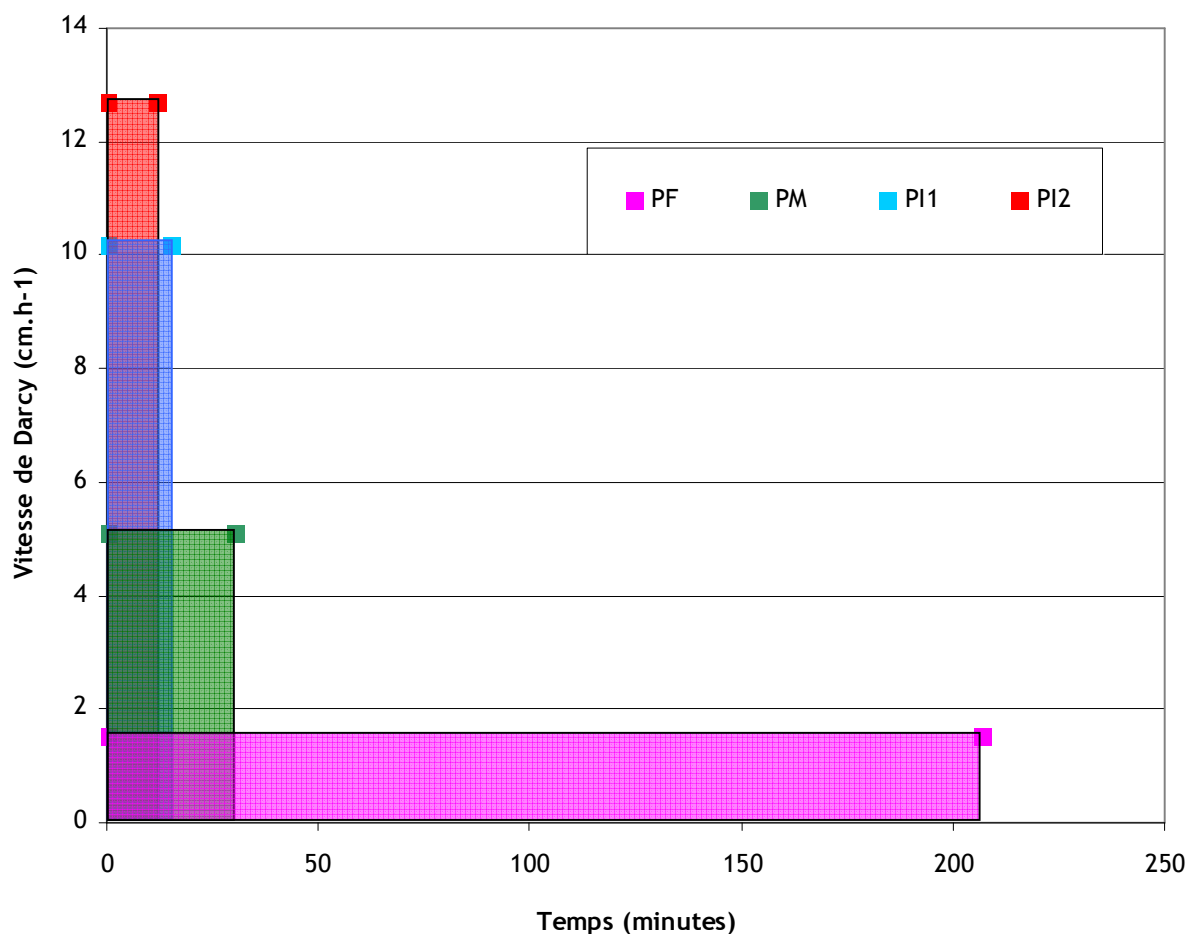


Figure IV-13 : Allure des transitoires hydrauliques étudiés

#### IV.2.3.4 Migration du profil de $^{85}\text{Sr}$ dans la colonne 6 : $[\text{Sr}] = 10^{-8} \text{ mol.L}^{-1}$

Les créneaux d'eau synthétique appliqués par la suite sur le lit de sable pour réaliser les transitoires hydrauliques ne contiennent pas de  $^{85}\text{Sr}$ . La concentration de strontium stable, elle, est gardée constante à  $10^{-8} \text{ mol.L}^{-1}$  pour la colonne 6. La succion en pied de colonne  $|h_L| = 84 \text{ cm}$  est également gardée constante durant l'expérience.

L'évolution du profil de  $^{85}\text{Sr}$  dans la colonne est mesurée après chaque fin de redistribution d'un créneau. Pour une application d'une série de 8 créneaux de type PM, séparés chacun de 24 heures, les résultats obtenus sont présentés (Figure IV-14).

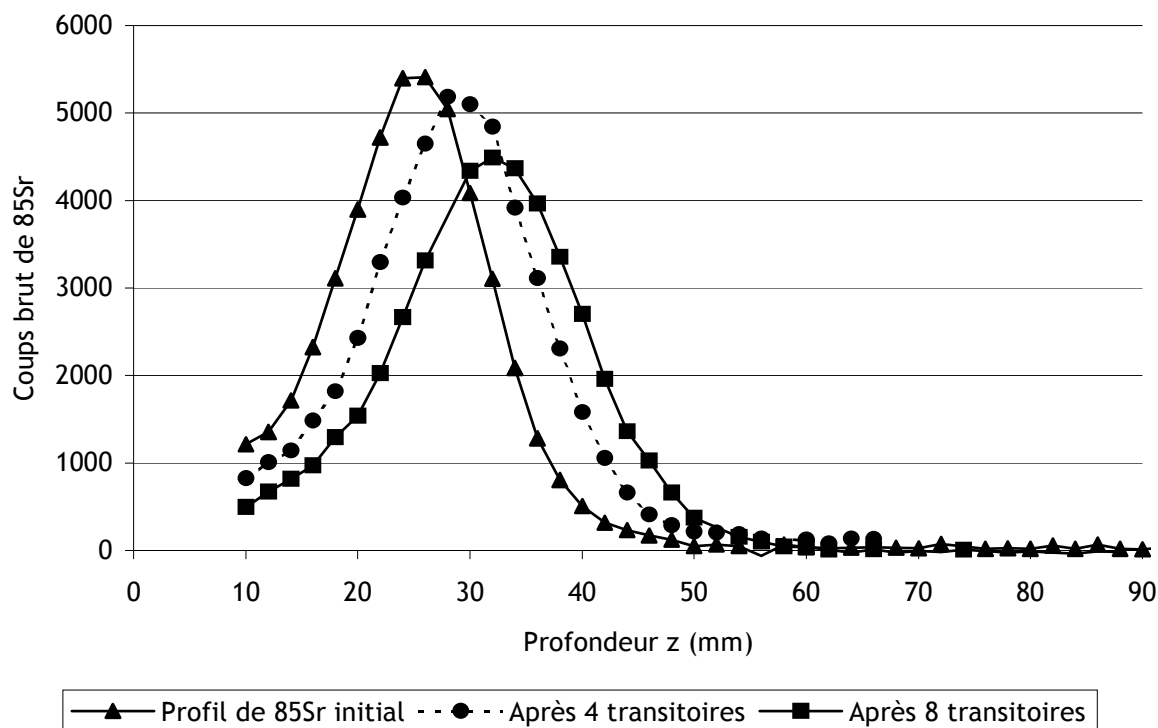


Figure IV-14 : Profils d'activité totale de  $^{85}\text{Sr}(z)$  mesurés dans le lit de sable de la colonne n°6 avec le banc gammamétrique, suite à l'injection de 4 puis 8 transitoires d'eau synthétique de type PM ( $q = 5,1 \text{ cm/h}$  pendant  $\Delta t = 30$  minutes).

L'analyse des moments d'ordre 1 des profils (profondeur du centre de masse) révèle, Figure IV-14, une avancée moyenne de  $0,83 \text{ mm}$  par épisode hydraulique transitoire.

Nous avons ensuite enchaîné avec l'application d'une série de 41 créneaux de type P11 ( $q = 10,2 \text{ cm.h}^{-1}$  pendant 15 minutes) et nous avons observé l'évolution du profil de  $^{85}\text{Sr}$  dans la colonne (Figure IV-15).

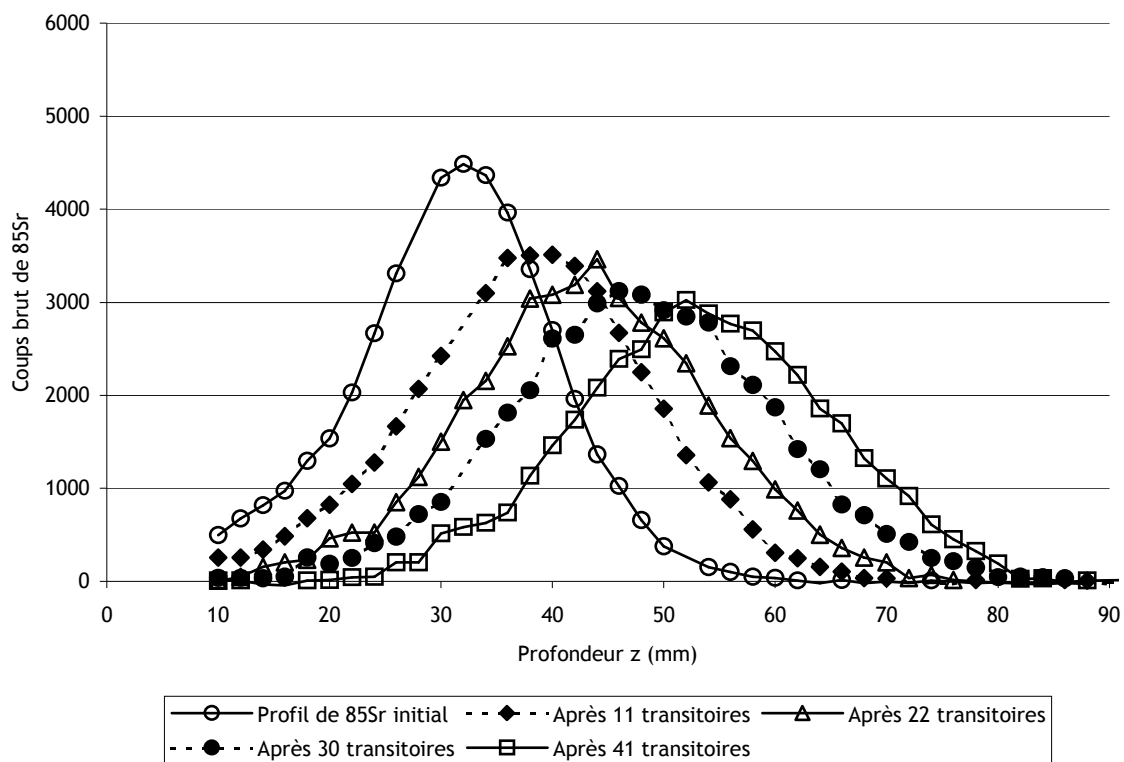


Figure IV-15 : Evolution du profil d'activité totale de  $^{85}\text{Sr}(z)$  mesuré dans le lit de sable de la colonne n°6, suite à l'injection de 11, 22, 30 puis 41 créneaux d'eau synthétique de type P11 ( $q= 10,2 \text{ cm}\cdot\text{h}^{-1}$  pendant  $\Delta t=15$  minutes).

L'analyse des moments d'ordre 1 des profils (profondeur du centre de masse) montre cette fois une avancée moyenne de 0,54 mm par créneau d'eau de type P11.

La différence de distance moyenne parcourue par le centre de gravité du profil ne peut cependant pas être ici immédiatement mise en relation avec le changement de type de créneau appliqué en haut de colonne. En effet, une nouvelle mesure du profil de masse volumique  $\rho_d(z)$  de la colonne 6 durant l'expérience montre une décompaction non-négligeable du haut du lit de sable (Figure IV-16), perturbant l'analyse comparative directe.



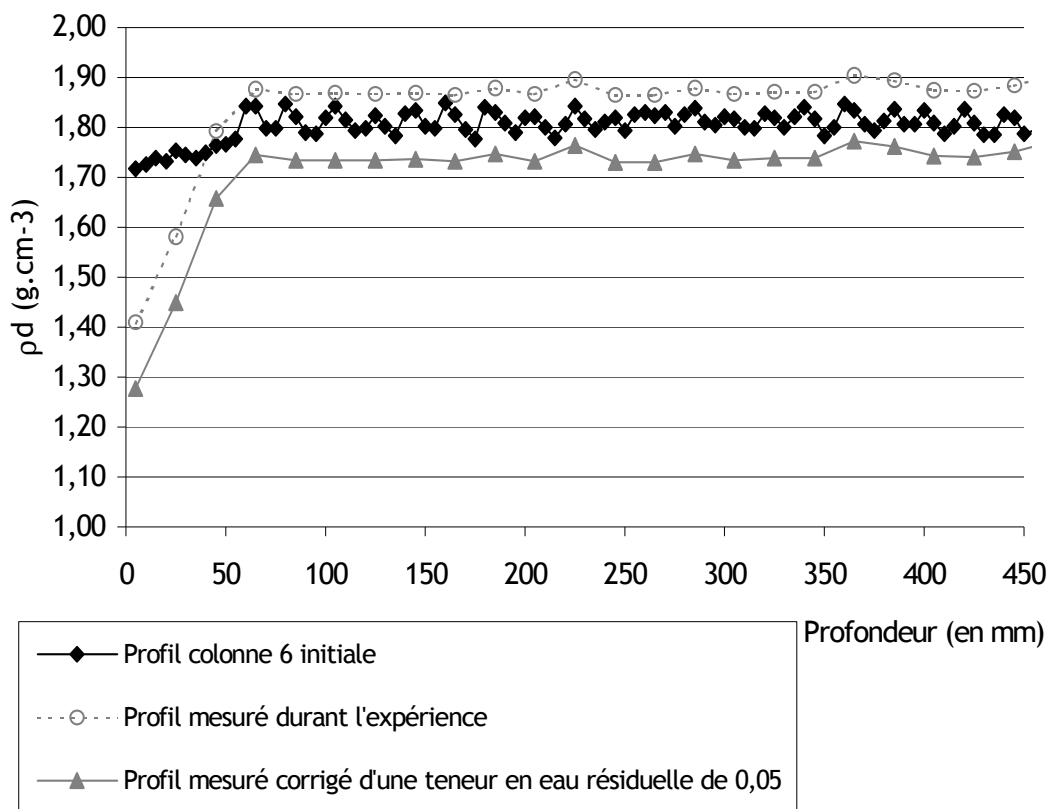


Figure IV-16 : Profils de masse volumique  $\rho_d(z)$  de la colonne 6 - Visualisation de la décompaction du haut du lit de sable survenue durant l'expérience de transport de  $^{85}\text{Sr}$  en condition hydraulique non-saturée transitoire.

#### IV.2.3.5 Migration du profil de $^{85}\text{Sr}$ dans la colonne 8 : $[\text{Sr}] = 10^{-5} \text{ mol.L}^{-1}$

Les conditions opératoires initiales de l'expérience sur la colonne 8 sont identiques à celles de la colonne 6 à l'exception de la concentration de strontium stable qui est cette fois plus élevée et égale à  $10^{-5} \text{ mol.L}^{-1}$ .

Nous avons suivi dans un premier temps l'avancée du radioélément dans la colonne en mesurant comme pour la colonne 6 le profil de  $^{85}\text{Sr}$  le long du lit de sable systématiquement après chaque fin de redistribution de créneau. L'évolution du profil de  $^{85}\text{Sr}$  dans la colonne suite à l'application d'une série de 10 créneaux de type PI1 est présentée Figure IV-17.

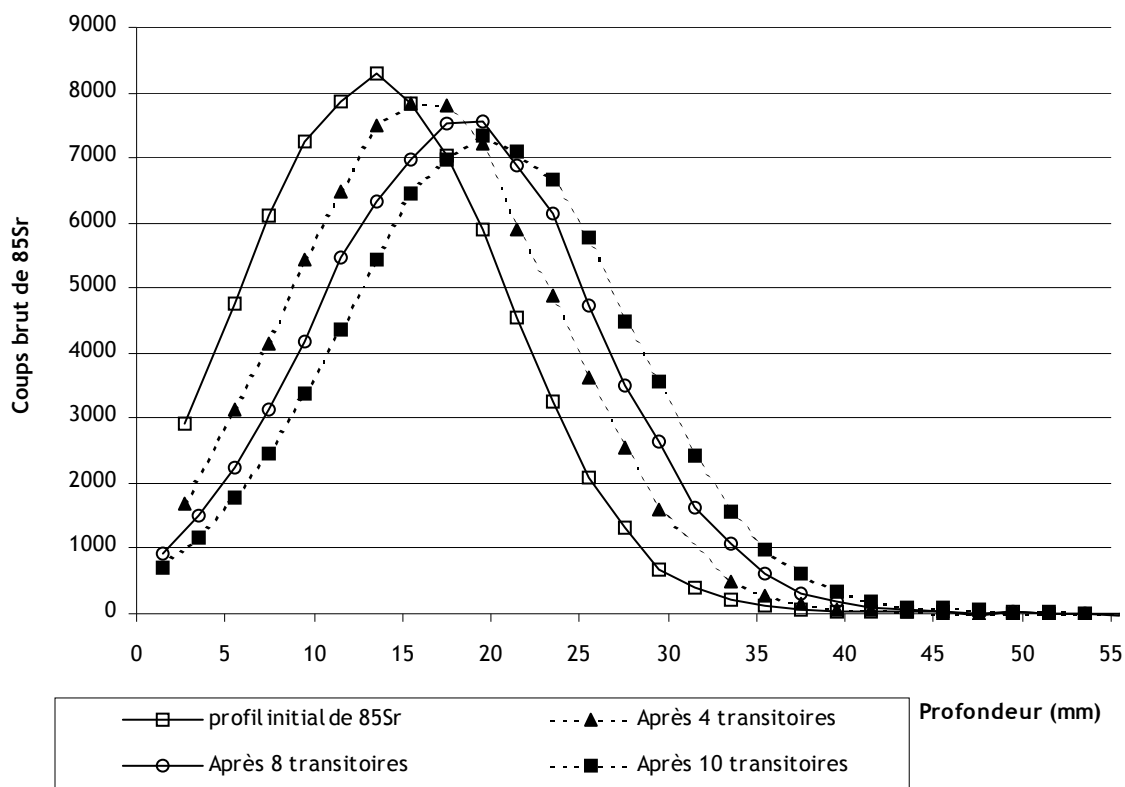


Figure IV-17 : Profils d'activité totale de  $^{85}\text{Sr}(z)$  mesurés dans le lit de sable de la colonne n°8 avec le banc gammamétrique, suite à l'injection de 4, 8 puis 10 créneaux d'eau synthétique de type PI1 ( $q=10,2 \text{ cm}\cdot\text{h}^{-1}$  pendant  $\Delta t=15$  minutes).

L'analyse des moments d'ordre 1 des profils montre ici une avancée moyenne de 0,53 mm par créneau d'eau de type PI1.

Nous avons ensuite changé la nature du transitoire. Nous avons testé dans un premier temps un transitoire plus long de type PF en appliquant en haut de colonne un débit  $Q=30 \text{ ml}\cdot\text{h}^{-1}$  ( $q=1,53 \text{ cm}\cdot\text{h}^{-1}$ ) pendant 207 minutes (soit une lame d'eau de 5,3 cm équivalente à environ 2 transitoires précédents). L'évolution du profil de  $^{85}\text{Sr}$  dans la colonne suite à l'application de ce transitoire est présenté Figure IV-18.

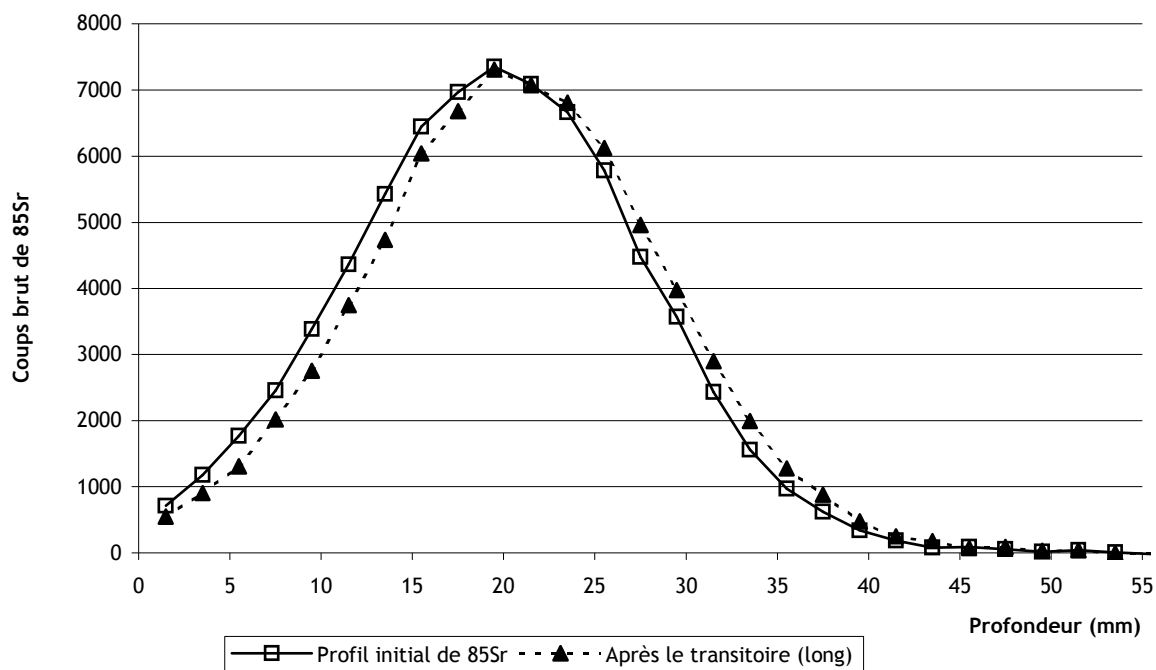


Figure IV-18 : Evolution du profil d'activité totale de  $^{85}\text{Sr}(z)$  mesuré dans le lit de sable de la colonne n°8, suite à l'injection d'un créneau d'eau synthétique de type PF ( $q= 1,53 \text{ cm}\cdot\text{h}^{-1}$  pendant  $\Delta t=207$  minutes).

Suite à l'application de cet épisode hydraulique transitoire de type PF, l'analyse des moments d'ordre 1 des profils révèle une avancée de 1 mm, soit 2 fois les 0,5 mm observé sur les transitoires précédents de type PI1.

Nous avons enfin changé de nouveau la nature du transitoire en gardant cependant toujours comme référence la quantité d'eau de 50 ml, par créneau, appliquée lors de la première série. L'évolution du profil de  $^{85}\text{Sr}$  dans la colonne suite à l'application d'une série de 13 créneaux d'eau synthétique de type PI2 avec un débit  $Q=250 \text{ ml}\cdot\text{h}^{-1}$  ( $q=12,7 \text{ cm}\cdot\text{h}^{-1}$ ) pendant une durée de 12 minutes est présentée Figure IV-19.

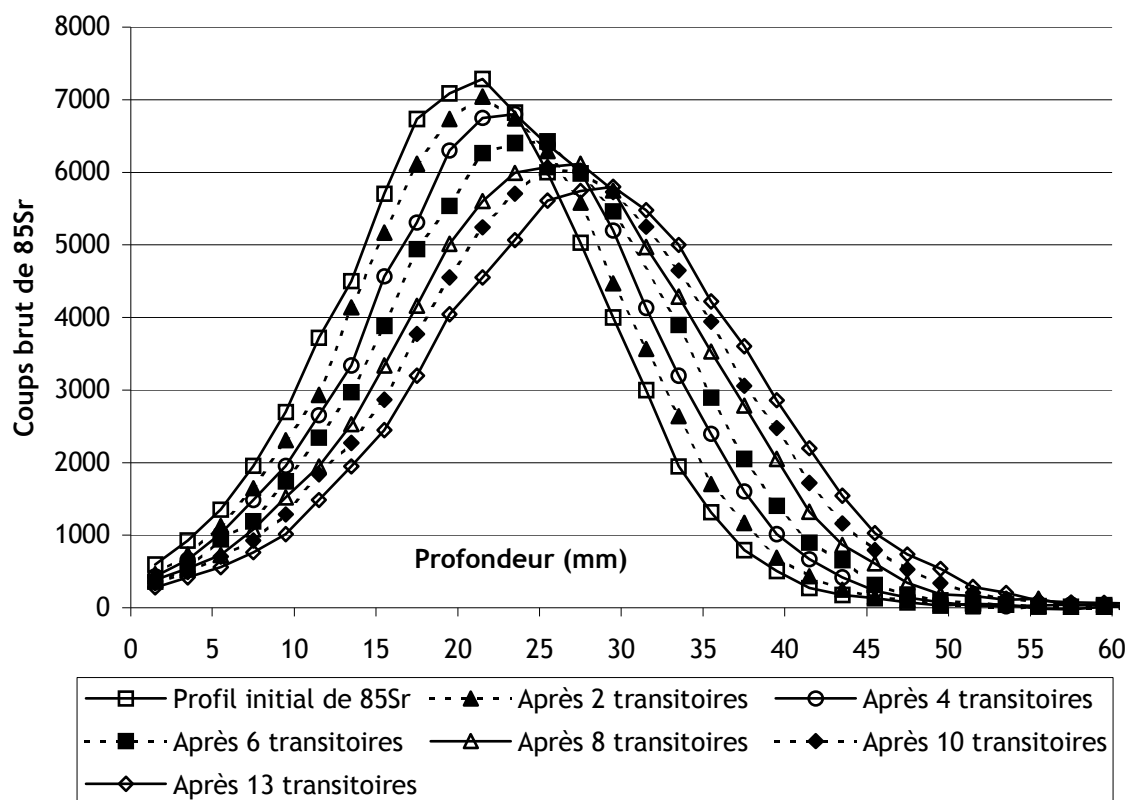


Figure IV-19 : Evolution du profil d'activité totale de  $^{85}\text{Sr}(z)$  mesuré dans le lit de sable de la colonne n°8, suite à l'injection d'une série de 13 créneaux d'eau synthétique de type PI2 ( $q= 12,7 \text{ cm}\cdot\text{h}^{-1}$  pendant  $\Delta t=12$  minutes).

L'analyse des moments d'ordre 1 des profils révèle dans ce cas une avancée de 0,45 mm par épisode hydraulique transitoire.

Pour ce qui concerne la colonne 8 (homogène quant à elle du point de vue du profil de masse volumique  $\rho_d(z)$ ), quelle que soit la nature du transitoire appliqué en haut de colonne (débit et durée), l'avancée du centre de masse du profil de  $^{85}\text{Sr}$  entre chaque transitoire apparaît de l'ordre de 0,5 mm pour chaque volume d'eau de 50ml. La teneur en eau et la vitesse d'écoulement ne semblent pas influencer, dans ces conditions, la distance de pénétration du profil de  $^{85}\text{Sr}$  pour chaque volume égal d'eau imposé.

La variance du profil peut, quant à elle, rester sensible, comme prévue par l'expression  $D=\alpha\cdot v+D^*$ , à la nature du transitoire. Une analyse particulière lui est consacrée dans le chapitre V suivant.

#### IV.2.3.6 Migration du $^{85}\text{Sr}$ à cote fixe

Nous avons également suivi à cote fixe l'évolution simultanée de la teneur en eau et de l'activité totale de radioélément pendant l'injection de quelques créneaux d'eau synthétique sur la colonne 8. Le temps de comptage choisi pour la mesure de la teneur en eau était de 30 secondes et de 450 secondes pour la mesure d'activité de  $^{85}\text{Sr}$  afin d'optimiser l'incertitude due au comptage.

Les résultats obtenus, à deux cotes différentes, l'une à 7,5 mm de profondeur (partie ascendante du profil) et l'autre à 25,5 mm (partie descendante du profil), lors de l'application de deux créneaux de type PI1 sont présentés Figure IV-20.

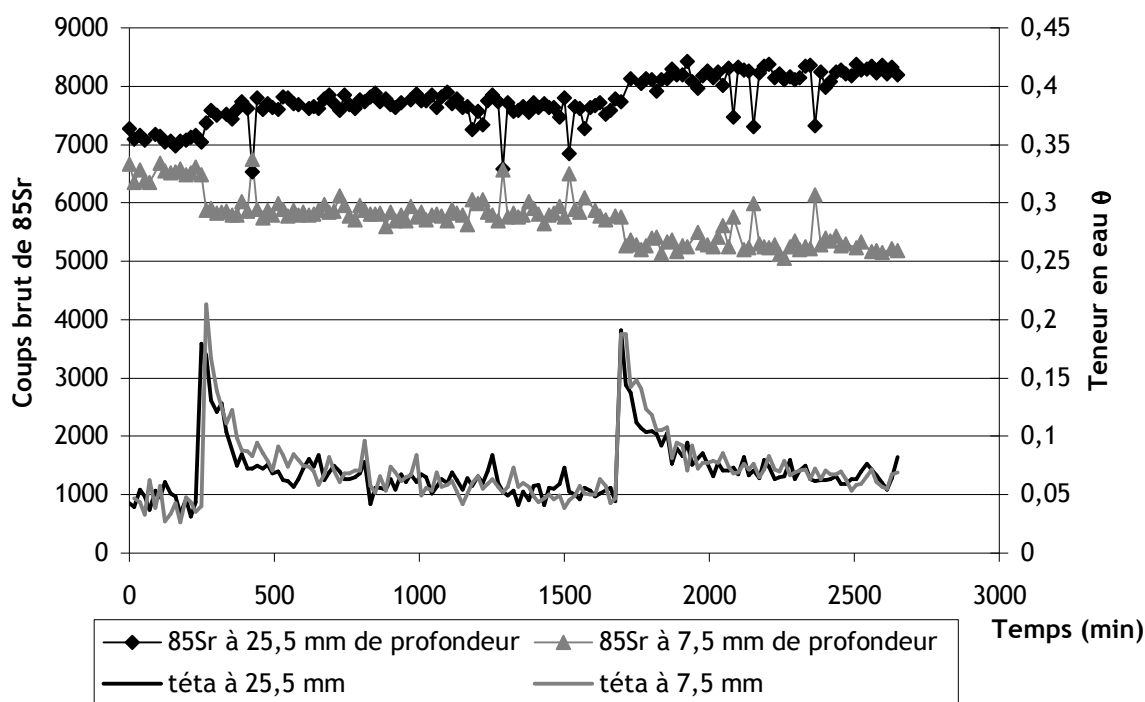


Figure IV-20 : Mesure, en continu, à deux cotes fixes, de l'évolution de la teneur en eau  $\theta(t)$  et de l'activité totale de  $^{85}\text{Sr}(t)$  lors de l'application en haut de colonne de deux créneaux d'eau synthétique de type PI1 ( $q = 10,2 \text{ cm.h}^{-1}$  pendant  $\Delta t = 15$  minutes) sur la colonne 8.

Les résultats de mesure en continu de teneur en eau  $\theta(t)$  et d'activité de  $^{85}\text{Sr}(t)$  obtenus, à la cote de 25,5 mm de profondeur (sur la partie descendante du profil) lors de l'application du créneau d'eau plus long de type PF ( $q = 1,53 \text{ cm.h}^{-1}$  pendant  $\Delta t = 207$  minutes) sont présentés Figure IV-21.

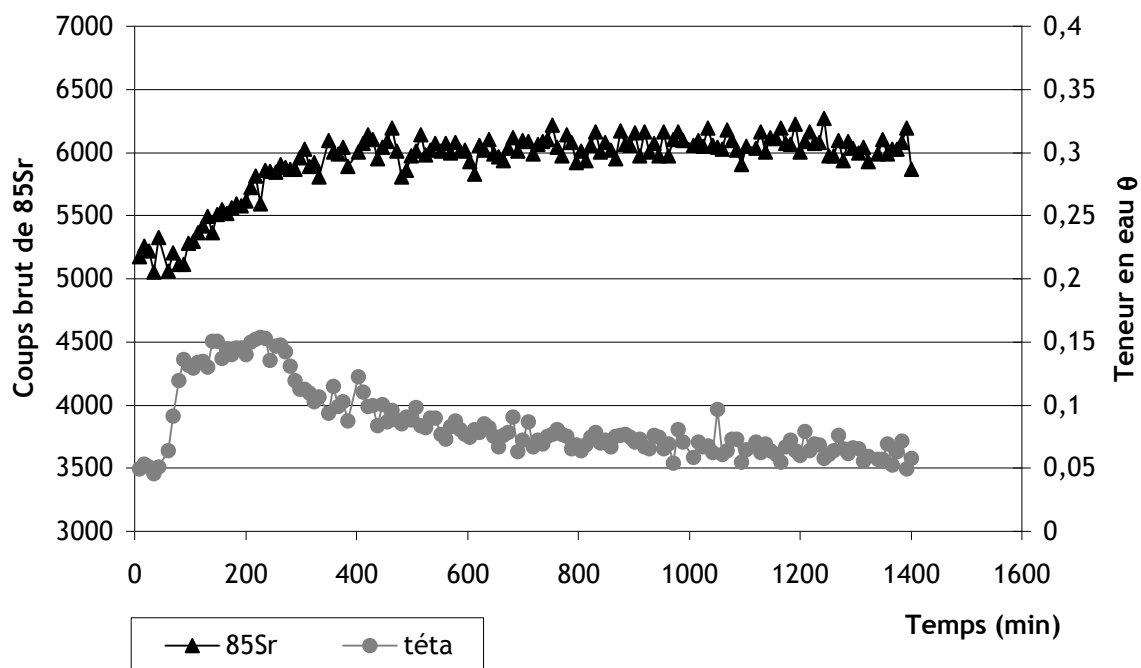


Figure IV-21 : Mesure en continu de l'évolution de la teneur en eau  $\theta(t)$  et de l'activité totale de  $^{85}\text{Sr}(t)$  à la profondeur de 25,5 mm (partie descendante du profil) lors de l'application d'un transitoire plus long de type PF ( $q = 1,53 \text{ cm}\cdot\text{h}^{-1}$  pendant  $\Delta t = 207$  minutes) sur la colonne 8.

Ce type de mesure permet de constater que l'évolution temporelle de la concentration totale en radioélément est plus rapide lors du passage de la lame d'eau. L'évolution du signal de  $^{85}\text{Sr}$  semble en effet beaucoup plus lente durant la période de redistribution des créneaux. Pour ce qui concerne nos conditions opératoires d'écoulement non-saturés transitoires, le phénomène de convection semble prépondérant devant le processus de diffusion. L'avancée du radioélément apparaissant en effet principalement liée à la quantité d'eau arrivant lors de la phase d'infiltration plutôt qu'au temps de redistribution une fois le transitoire passé.



### IV.3 Synthèse

---

---

Dans la première partie de ce chapitre, nous présentons les expériences effectuées, en condition dynamique (petites colonnes) et statique (batch), afin de caractériser les interactions sol/solution (sable éolien de Tchernobyl/strontium) spécifiques à nos conditions opératoires.

Les résultats obtenus confirment notamment l'importance de la concentration initiale de strontium stable dont les effets sur la sorption de son isotope radioactif, le <sup>85</sup>Sr, sont comparables à la présence d'un ion compétiteur. Les calculs effectués à partir des résultats obtenus montrent que la valeur du coefficient Kd du <sup>85</sup>Sr diminue progressivement lorsque la concentration en strontium stable augmente dans le système. Les valeurs des coefficients Kd calculées à partir des deux méthodes apparaissent cependant différentes (plus faibles en batch que sur colonne). Plusieurs hypothèses pour expliquer cette différence seront présentées dans le chapitre suivant. Un bon accord est finalement observé, dans la gamme des concentrations explorées, entre les valeurs du coefficient Kd du strontium stable et de son isotope radioactif.

Dans la seconde partie du chapitre, nous présentons les résultats obtenus lors des différentes expériences de transport réactif de <sup>85</sup>Sr en condition hydraulique non saturée.

Nous rappelons tout d'abord et vérifions numériquement que les colonnes sur lesquelles nous travaillons sont initialement conditionnées à l'équilibre géochimique entre le lit de sable et l'eau d'alimentation en faisant percoler au préalable, à saturation, plusieurs litres de solution à géochimie contrôlée (eau synthétique).

Une première expérience de transport de <sup>85</sup>Sr, réalisée en régime permanent non saturée, nous permet dans un premier temps de valider notre approche et notre dispositif expérimental en se plaçant dans des conditions comparables à celles de Szenknect (2003) et pour laquelle nous obtenons des résultats similaires ( $\theta=0,2$  ;  $[Sr]=10^{-8}$  mol.L<sup>-1</sup> ;  $\rho_d=1,8$  g.cm<sup>-3</sup> et  $K_d=45$  L.Kg<sup>-1</sup>).

Deux expériences de transport de <sup>85</sup>Sr, réalisées respectivement à des concentrations de strontium stable de  $10^{-8}$  et  $10^{-5}$  mol.L<sup>-1</sup>, en condition hydraulique non saturée transitoire sont ensuite présentées.



Dans le premier cas, le centre de gravité du profil d'activité totale de <sup>85</sup>Sr mesuré avec le banc gammamétrique semble pénétrer plus ou moins profondément ( $Z_r$ ) dans la colonne en fonction du type de créneau appliqué en haut de colonne. Mais une vérification ultérieure du profil de densité du lit de sable révélera finalement une décompaction du haut de la colonne, dans la zone de migration, ayant probablement joué un rôle non négligeable durant l'expérience.

Dans l'autre cas, au contraire, la distance de pénétration  $Z_r$  ne semble pas être modifiée par la nature du créneau. En effet, quelle que soit la façon dont l'eau est appliquée (i.e.  $q$  et  $\Delta t$ ) le profil de <sup>85</sup>Sr semble avancer d'une même distance pour une même quantité d'eau infiltrée.

Un autre type de mesure expérimentale, en suivant cette fois l'évolution temporelle en continu à une cote  $z$  donnée ( $\theta_z(t)$  et  $A_z(^{85}\text{Sr})(t)$ ), nous a permis de constater que la migration du radioélément se faisait essentiellement lors du passage du front d'infiltration et non durant la période de redistribution de l'eau dans la colonne. Cette observation laisse alors penser à une nette prédominance du phénomène de convection sur celui de diffusion parmi les facteurs susceptibles de transporter le radioélément dans nos conditions opératoires.

Une analyse plus détaillée des résultats obtenus dans ce chapitre est proposée chapitre V afin de mieux comprendre, identifier et hiérarchiser les principaux phénomènes impliqués dans la migration du soluté pour nos conditions opératoires et mieux appréhender ainsi leur modélisation.

# Chapitre V

## Modélisations et Discussions



## SOMMAIRE CHAPITRE V

<b>CHAPITRE V. - MODELISATIONS ET DISCUSSIONS</b>
---

<b>207</b>
------------

<b>V.1 MODELISATIONS</b>	<b>207</b>
V.1.1 Modélisation « opérationnelle »	207
V.1.1.1 <i>Régime hydraulique permanent insaturé</i>	207
V.1.1.2 <i>Régime hydraulique transitoire insaturé</i>	209
V.1.1.3 <i>Régime hydraulique permanent non saturé équivalent</i>	212
V.1.1.4 <i>Rappel des hypothèses et des conditions d'application de l'approche opérationnelle</i>	215
V.1.2 Modélisation couplée géochimie/transport	216
V.1.2.1 <i>Le code couplé HYTEC</i>	216
V.1.2.2 <i>Courbes de percée en écoulements saturés</i>	220
V.1.2.3 <i>Application aux écoulements non saturés – cas de la colonne 6</i>	224
<b>V.2 DISCUSSION SUR LE CHOIX D'UNE MODELISATION</b>	<b>227</b>
V.2.1 Interprétations des coefficients Kd mesurés	227
V.2.2 Différence entre méthode « batch » et colonne	228
V.2.2.1 <i>Condition statique et/ou dynamique</i>	228
V.2.2.2 <i>Milieu dispersé ou compact</i>	230
V.2.3 Coefficient Kd d'un isotope radioactif et d'un élément stable :	230
<b>V.3 RETOUR SUR LE TRANSPORT DE <sup>85</sup>Sr</b>	<b>231</b>
V.3.1 Influence des conditions hydrauliques	231
V.3.2 Influence de la concentration de strontium stable et du fond géochimique	236
V.3.3 Discussion autour de la dispersion	237
V.3.4 Evolution à cote fixe	239
<b>V.4 RESUME ET CONCLUSIONS SUR L'APPROCHE OPERATIONNELLE</b>	<b>240</b>

**Liste des Figures du chapitre V**

<i>Figure V-1 : Evolution du profil de <math>^{85}\text{Sr}</math> dans la colonne n°6 durant l'application du régime hydraulique permanent non saturé décrit Tableau IV.9 – Comparaison des résultats obtenus expérimentalement XP et par modélisation avec Hydrus-1D (Modèle CDE défini Tableau V-1).....</i>	208
<i>Figure V-2 : Comparaison entre données expérimentales et simulations effectuées avec Hydrus-1D pour la migration du profil de <math>^{85}\text{Sr}</math> en condition hydraulique non-saturée transitoire dans les colonnes de sable éolien de Tchernobyl 6 et 8 – Les valeurs des paramètres utilisés sont ceux du Tableau V-2 pour l'aspect transport et rétention et ceux des fonctionnelles de Van Genuchten/Mualem du Tableau III-3 pour les courbes <math>h(\theta)</math> et <math>K(\theta)</math>. .....</i>	211
<i>Figure V-3 : Simulation, avec Hydrus-1D, du transport de strontium 85 en condition d'écoulement non-saturé transitoire dans la colonne 8 par un régime non-saturé permanent équivalent en lame d'eau cumulée ayant percolée dans la colonne.....</i>	213
<i>Figure V-4 : illustration de la distance moyenne Zr parcourue par un traceur de l'eau (<math>k_d=0 \text{ L.Kg}^{-1}</math>) en régime permanent, selon la teneur en eau <math>\theta</math> à laquelle a lieu l'écoulement. ....</i>	214
<i>Figure V-5 : Courbes de percée expérimentales et simulées des cations en solution pour la colonne saturée P1 (<math>[\text{Sr}^{2+}]=4,5.10^{-8} \text{ mol.L}^{-1}</math>). ....</i>	220
<i>Figure V-6 : Courbes de percée expérimentales et simulées des cations en solution pour la colonne saturée P3 (<math>[\text{Sr}^{2+}]=2,2.10^{-6} \text{ mol.L}^{-1}</math>). ....</i>	221
<i>Figure V-7 : Courbes de percée expérimentales et simulées des cations en solution pour la colonne saturée P4 (<math>[\text{Sr}^{2+}]=8,2.10^{-6} \text{ mol.L}^{-1}</math>). ....</i>	221
<i>Figure V-8 : Courbes de percée expérimentales et simulées des cations en solution pour la colonne saturée P5 (<math>[\text{Sr}^{2+}]=5,5.10^{-5} \text{ mol.L}^{-1}</math>). ....</i>	222
<i>Figure V-9 : Courbes de percée expérimentales et simulées des cations en solution pour la colonne saturée P6 (<math>[\text{Sr}^{2+}]=8,8.10^{-5} \text{ mol.L}^{-1}</math>). ....</i>	222
<i>Figure V-10 : Courbes de percée expérimentales et simulées des cations en solution pour la colonne saturée P7 (<math>[\text{Sr}^{2+}]=9,6.10^{-5} \text{ mol.L}^{-1}</math>). ....</i>	223
<i>Figure V-11 : Evolution simulée du profil de <math>^{85}\text{Sr}</math> suite à l'injection de 10 créneaux d'eau de type PII, en haut de la colonne 6, avec une succion constante imposée en pied de colonne de 84 cm. <math>[\text{Sr}]=5.10^{-8} \text{ mol.L}^{-1}</math> et <math>[\text{Ca}]=77,3.10^{-6} \text{ mol.L}^{-1}</math>.....</i>	225
<i>Figure V-12 : Scénario identique à la figure précédente, hormis la concentration en calcium. <math>[\text{Sr}]=5.10^{-8} \text{ mol.L}^{-1}</math> et <math>[\text{Ca}]=540.10^{-6} \text{ mol.L}^{-1}</math>.....</i>	226
<i>Figure V-13 : Interprétation graphique de la mesure du coefficient <math>K_d</math> d'un isotope radio-actif par méthode statique «batch» (<math>K_d=\text{Cs}/\text{Caq}</math>) et dynamique par traçage sur colonne (<math>K_d=d\text{Cs}/d\text{Caq}</math>). ....</i>	229
<i>Figure V-14 : Evolution de la profondeur du centre de masse du profil de <math>^{85}\text{Sr}</math> en fonction de la lame d'eau cumulée infiltrée dans la colonne non-saturée 8.....</i>	232

Figure V-15 : Evolution du facteur de retard  $R=1+(\rho d*Kd/\theta)$  en fonction du coefficient  $Kd$  pour les deux valeurs extrêmes de teneur eau  $\theta_r$  et  $\theta_{sat}$  prises respectivement égales à 0,02 et 0,4. La masse volumique  $\rho d$  est fixée à  $1,9 \text{ g.cm}^{-3}$ . ..... 235

Figure V-16 : Evolution de la largeur à mi-hauteur FWHM des profils de  $^{85}\text{Sr}$  dans la colonne en fonction de la lame d'eau cumulée – Présence de rupture de pente au niveau des changements de type de transitoire appliqué (différentes vitesses de pore). ..... 238



<b>Chapitre V. - Modélisations et discussions</b>
---

## V.1 Modélisations

Une fois les données expérimentales acquises et analysées, l'étape suivante consiste à vérifier si l'on est capable de reproduire ces résultats par le calcul puis à estimer la potentialité de prédiction des modélisations, avec, si possible, la définition de leurs domaines de validité. Dans le cadre de la modélisation des résultats de transport de strontium 85 obtenus pour nos expériences, nous avons choisi d'utiliser à la fois une approche « opérationnelle » à une seule concentration (avec le coefficient Kd) et une approche plus mécaniste couplée géochimie/transport.

La comparaison des résultats calculés par les deux méthodes avec les expériences sert de base à l'analyse de leur capacité à rendre compte des mécanismes prépondérants.

Les codes de calcul utilisés sont **Hydrus-1D** (cf. chapitre I) pour l'approche opérationnelle et **Hytect** pour l'approche géochimie/transport.

### V.1.1 Modélisation « opérationnelle »

#### V.1.1.1 Régime hydraulique permanent insaturé

Notre premier exercice de modélisation consiste à reproduire les résultats de transport de <sup>85</sup>Sr obtenus lors de l'expérience en régime hydraulique non saturé permanent, présenté chapitre IV.2.2.

Les valeurs des paramètres utilisés pour modéliser, avec Hydrus-1D, la migration du <sup>85</sup>Sr mesurée dans la colonne de sable éolien de Tchernobyl n°6, pour les conditions expérimentales décrites Tableau IV.9, sont présentées Tableau V-1. Les valeurs du coefficient Kd et de la dispersivité ont été optimisées par modélisation inverse en utilisant également le logiciel Hydrus-1D.

pd (g.cm <sup>-3</sup> )	Vitesse de Darcy q (cm/h)	Teneur en eau $\theta$	Kd (L.Kg <sup>-1</sup> )	Dispersivité $\alpha$ (cm)
1,8	4,1	0,2	43,42	0,237

Tableau V-1 : Valeurs des paramètres utilisés dans Hydrus-1D pour simuler la migration du <sup>85</sup>Sr dans la colonne n°6 en régime permanent insaturé.



Les résultats numériques obtenus ainsi que leur comparaison avec les profils expérimentaux correspondant sont présentés Figure V-1.

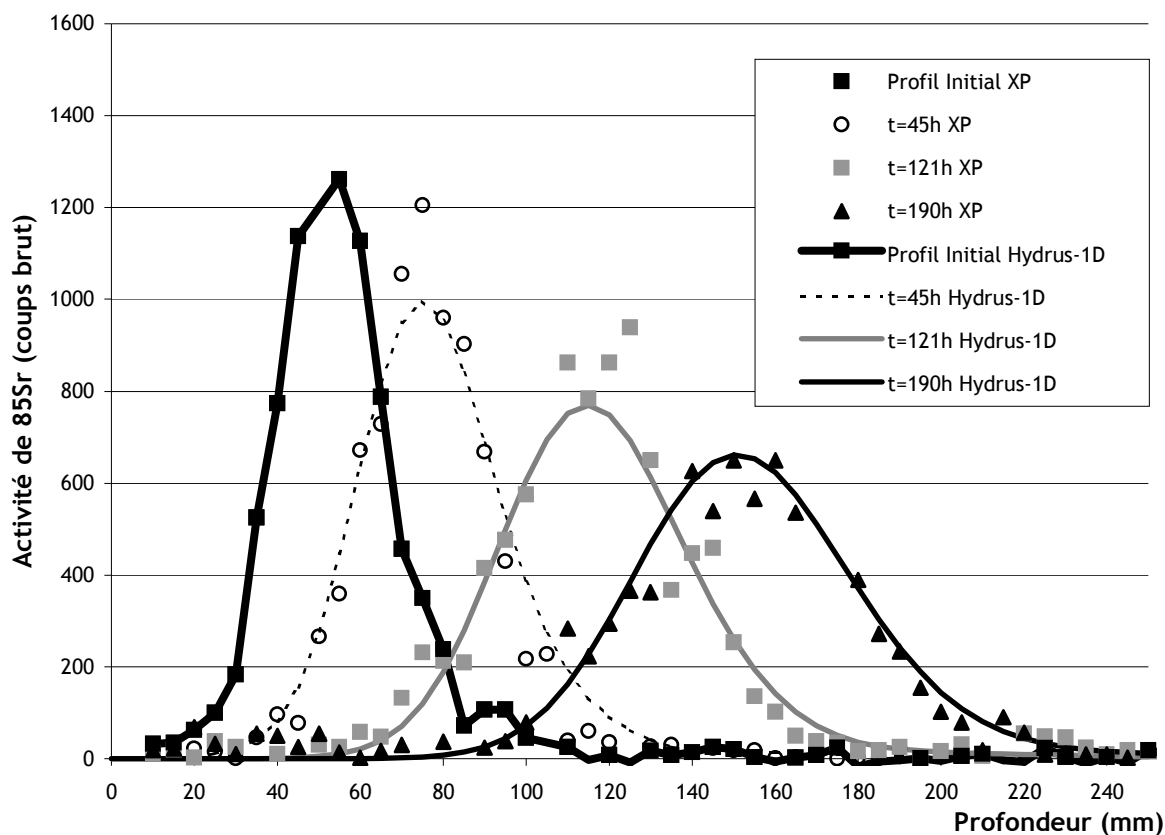


Figure V-1 : Evolution du profil de  $^{85}\text{Sr}$  dans la colonne n°6 durant l'application du régime hydraulique permanent non saturé décrit Tableau IV.9 - Comparaison des résultats obtenus expérimentalement XP et par modélisation avec Hydrus-1D (Modèle CDE défini Tableau V-1).

Les résultats obtenus avec Hydrus-1D, en utilisant le modèle CDE et un coefficient  $K_d$  constant, apparaissent satisfaisants. Quel que soit en effet le temps exploré durant l'expérience, la profondeur  $Z_r$  à laquelle se trouve le profil de  $^{85}\text{Sr}$  simulé dans la colonne ainsi que son allure générale (variance) sont en bon accord avec les données expérimentales mesurées avec le banc gammamétrique.

La valeur du coefficient de distribution du  $^{85}\text{Sr}$  ( $K_d = 43,42 \text{ L.Kg}^{-1}$ ), avec une concentration de strontium stable de  $10^{-8} \text{ mol.l}^{-1}$ , est par ailleurs en bon accord avec les résultats d'étude de sorption réalisé à saturation, dans les mêmes conditions géochimiques, sur les petites colonnes (cf. chap. IV).

Ces résultats confirment donc, comme attendu, les résultats obtenus précédemment par Szenknect (2003), en ce qui concerne l'utilisation du coefficient  $K_d$  et de sa cohérence entre saturé et non saturé, dans les conditions géochimiques imposées.

On pourra noter que le modèle MIM ne semble pas indispensable ici, contrairement aux résultats obtenus par Szenknect (2003), pour simuler correctement l'évolution des profils de  $^{85}\text{Sr}$  dans le sable éolien de Tchernobyl en régime hydraulique permanent non-saturé. La raison principale pour expliquer cette différence provient de la différence des temps caractéristiques intervenant dans les expériences de Szenknect et les nôtres. Les temps de séjours de l'eau sont plus grands dans le travail présenté ici, alors que le temps caractéristique du mécanisme de diffusion dans l'eau immobile reste du même ordre de grandeur. Ce mécanisme cinétique physique de diffusion devient donc du second ordre dans nos expériences.

#### V.1.1.2 Régime hydraulique transitoire insaturé

Nous avons montré chapitre III que nous étions capables expérimentalement :

- d'instaurer des conditions hydrauliques non saturées transitoires au sein de colonnes de sable en appliquant en haut de colonne des créneaux d'eau sur un lit de sable initialement porté à l'équilibre hydrostatique en imposant une succion constante en pied de colonne,
- de mesurer les écoulements transitoires au sein de ces colonnes de sable en utilisant le dispositif d'auscultation gammamétrique dont dispose le laboratoire.

Nous avons montré également chapitre III que nous étions capable de modéliser de façon satisfaisante ces écoulements d'eau transitoires en utilisant le logiciel Hydrus-1D, après avoir déterminé, pour nos conditions expérimentales, les courbes caractéristiques  $h(\theta)$  et  $K(\theta)$ .

Nous abordons maintenant la modélisation du couplage entre hydraulique transitoire et transport de soluté réactif. Nous avons pour cela appliqué des créneaux d'eau en haut d'une colonne, de façon similaire aux expériences d'hydrodynamique décrites chapitre III, en ajoutant initialement une distribution de soluté réactif dans la colonne, afin de reproduire les données obtenues lors des expériences décrites chapitre IV.

Etant donné l'aspect symétrique des profils de  $^{85}\text{Sr}$  mesurés lors de ces expériences (à l'image de ceux décrits précédemment en régime permanent non saturé), et les considérations sur les temps

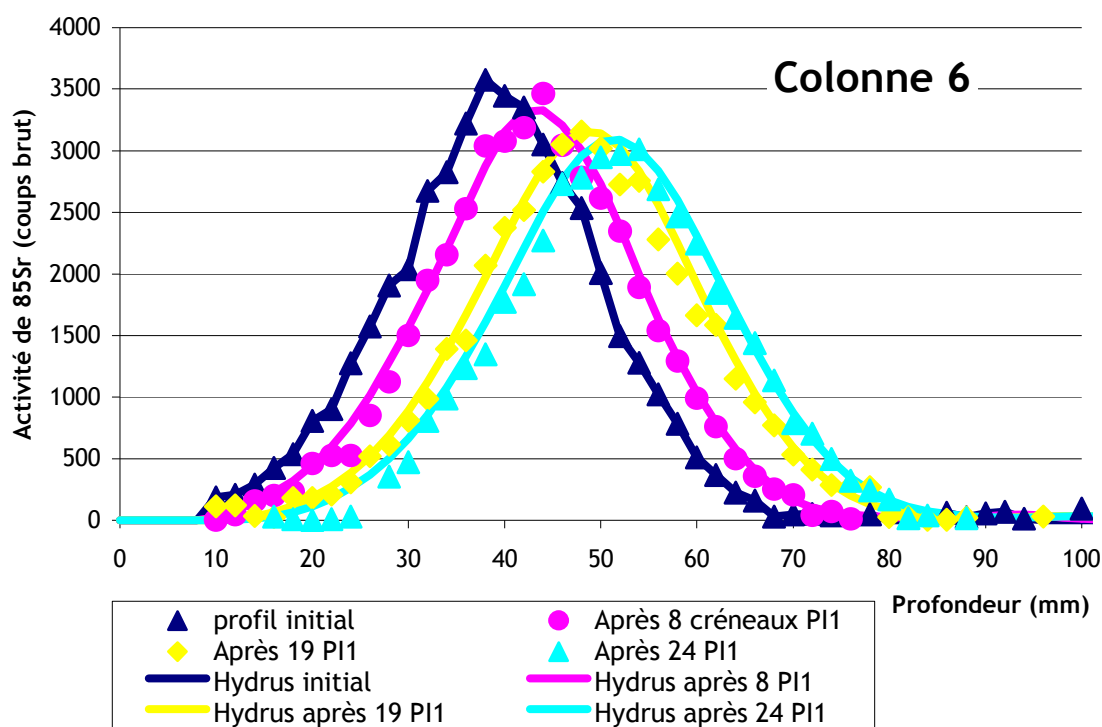
caractéristiques des mécanismes, notre choix s'est porté sur le modèle de transport CDE (convection/dispersion), en supposant donc l'absence de rôle prépondérant joué par l'éventuelle présence d'une phase liquide immobile.

Pour chacune des deux colonnes, nous avons simulé exactement le nombre de créneaux d'eau ayant été appliqués expérimentalement en laissant à chaque fois 24h de temps de redistribution. Les valeurs des paramètres utilisées dans le modèle sont données Tableau V-2.

	pd (g.cm <sup>-3</sup> )	Kd (L.Kg <sup>-1</sup> )	Dispersivité α (cm)
Colonne 6 [Sr stable]=10 <sup>-8</sup> mol.L <sup>-1</sup>	1,6	35	0,1
Colonne 8 [Sr stable]=10 <sup>-5</sup> mol.L <sup>-1</sup>	1,85	24	0,2

Tableau V-2 : Valeurs des paramètres utilisés avec Hydrus-1D pour simuler la migration du <sup>85</sup>Sr en condition hydraulique non-saturé transitoire dans les colonnes de sable éolien de Tchernobyl 6 et 8.

Les résultats obtenus avec Hydrus-1D pour modéliser les deux expériences présentées chapitre IV pour les colonnes 6 et 8 conditionnées chimiquement avec des concentrations de strontium stable respectives de 10<sup>-8</sup> et 10<sup>-5</sup> mol.L<sup>-1</sup> sont présentés Figure V-2.



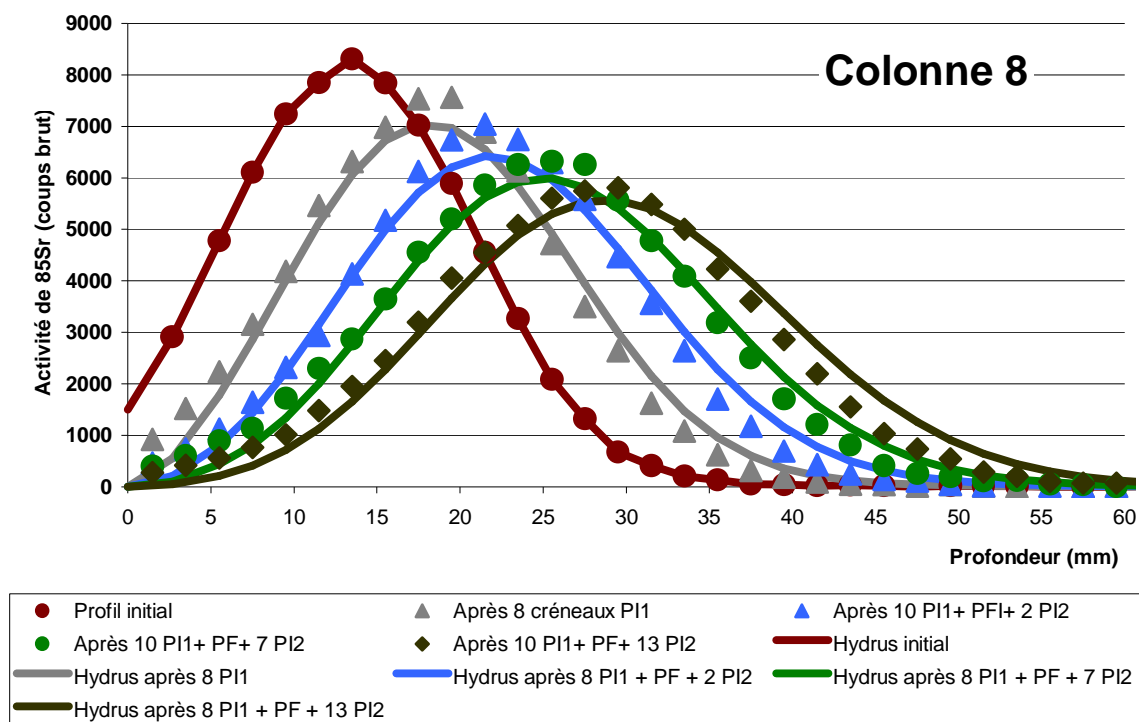


Figure V-2 : Comparaison entre données expérimentales et simulations effectuées avec Hydrus-1D pour la migration du profil de  $^{85}\text{Sr}$  en condition hydraulique non-saturée transitoire dans les colonnes de sable éolien de Tchernobyl 6 et 8 - Les valeurs des paramètres utilisés sont ceux du Tableau V-2 pour l'aspect transport et rétention et ceux des fonctionnelles de Van Genuchten/Mualem du Tableau III-3 pour les courbes  $h(\theta)$  et  $K(\theta)$ .

Les résultats obtenus en utilisant le modèle de transport CDE sont satisfaisants.

Pour une géochimie fixée, le coefficient de distribution est constant et indépendant de la teneur en eau. Sa valeur numérique est cohérente avec la valeur déterminée en condition saturée (cf. chapitre IV).

La dispersivité, dont l'ajustement a été effectué manuellement, est également constante et indépendante de la teneur en eau et les valeurs obtenues sont en très bon accord avec celles mesurées par Szenknect (2003) en condition non saturée sur le même milieu poreux. Ce résultat tend à montrer que bien que les différents types de transitoires appliqués durant l'expérience génèrent, comme nous le montrerons en fin de chapitre, des variances sensiblement différentes sur l'évolution du profil du radioélément, l'évolution globale de l'étalement du profil de concentration

en  $^{85}\text{Sr}$  semble pouvoir être prédite avec une dispersivité constante et indépendante de la teneur en eau. L'ordre de grandeur de la dispersivité est représentative de la valeur mesurée avec un traceur non réactif en écoulement non saturé permanent.

#### V.1.1.3 Régime hydraulique permanent non saturé équivalent

Dans la perspective d'une approche opérationnelle encore plus simplifiée (étant donnée que la géochimie est, pour nos conditions opératoires, réduite à l'utilisation d'un coefficient  $K_d$  constant), nous avons cherché à utiliser un régime hydraulique permanent non-saturé équivalent en terme de lame d'eau.

Pour cela, nous avons tout d'abord repris la distribution de radionucléide initialement présente dans la colonne 8 Figure V-2. Nous avons ensuite choisi une teneur en eau  $\theta$  « moyenne » de 0,1, une dispersivité  $\alpha$  de 0,2 cm et conservé le coefficient  $K_d$  égal à 24  $\text{Kg.L}^{-1}$ . Nous avons ensuite simulé la percolation au sein de la colonne, de la somme des transitoires hydrauliques, sous forme de lame d'eau cumulée en régime permanent non saturé (25 créneaux de 50 ml soit 1250 ml ou encore 63,63 cm de hauteur d'eau pour notre section de colonne). La vitesse de pore de l'écoulement dans notre milieu poreux étant de  $v=0,311 \text{ cm.h}^{-1}$  à cette teneur en eau (compatible avec le relation  $K(\theta)$ ), nous avons simulé l'infiltration sur une période de  $t= 204,6 \text{ h}$ . Les résultats obtenus sont présentés Figure V-3, à la fois sous forme d'évolution de migration du profil et de courbes d'évolution temporelle à différentes profondeurs dans la colonne.

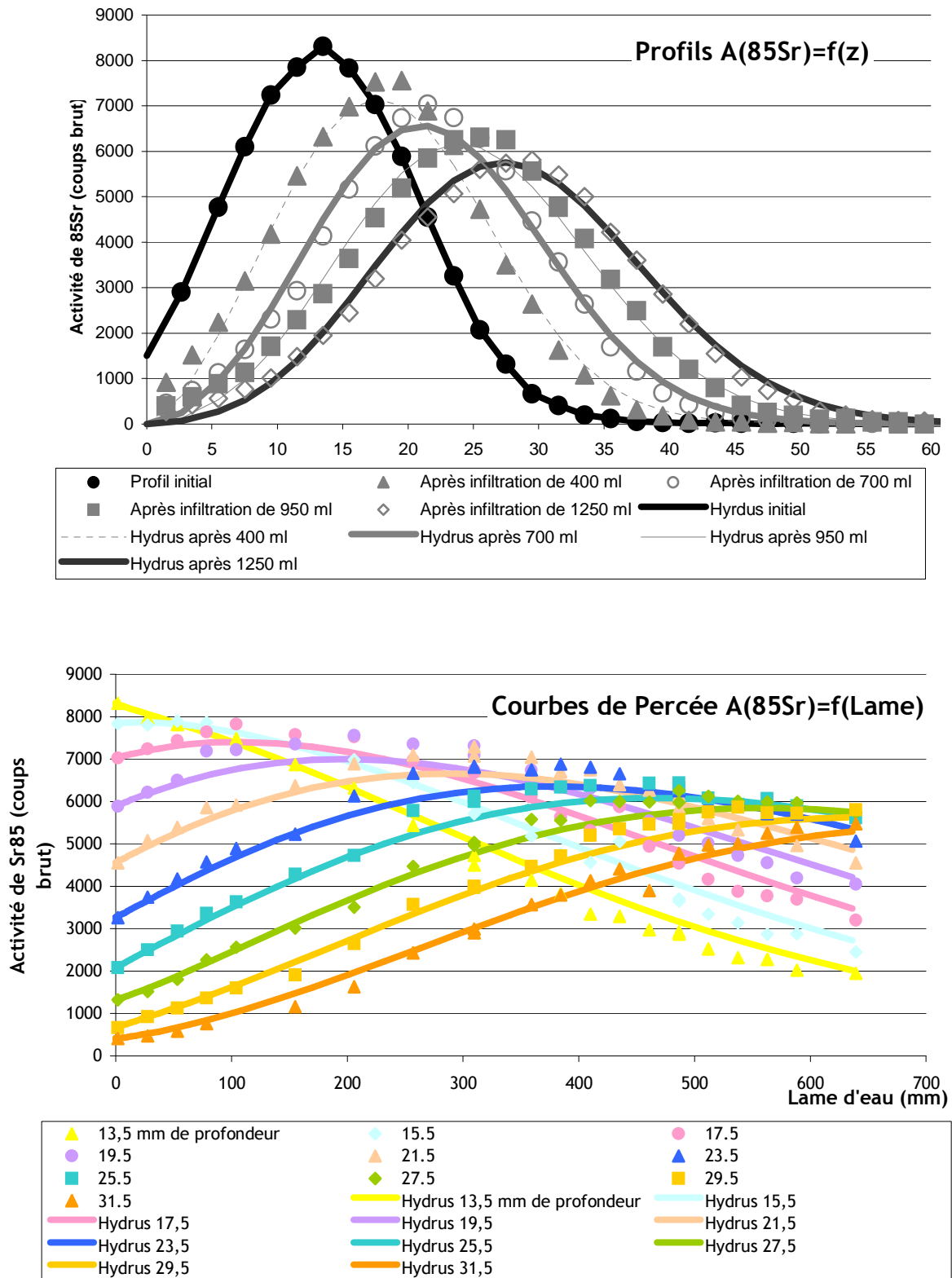


Figure V-3 : Simulation, avec Hydrus-1D, du transport de strontium 85 en condition d'écoulement non-saturé transitoire dans la colonne 8 par un régime non-saturé permanent équivalent en lame d'eau cumulée ayant percolée dans la colonne.

Les résultats de la simulation obtenus avec le régime hydraulique non saturé permanent équivalent en lame d'eau infiltrée sont très satisfaisants, au moins aussi satisfaisants que la simulation précédente transitoire.

La profondeur atteinte par le centre de masse  $Z_r$  des profils est très correctement représentée par la seule prise en compte de la lame d'eau cumulée, indépendamment de son mode d'application.

Pour tester l'influence du choix de la teneur en eau moyenne et de la vitesse de pore correspondante sur ce résultat, nous avons simulé la percolation de cette même lame d'eau à une teneur en eau de  $\theta=0,2$  ( $v=4,514 \text{ cm.h}^{-1}$  sur une durée de  $t=14,1 \text{ h}$ ). La distance moyenne  $Z_r$  parcourue par le profil de  $^{85}\text{Sr}$  reste identiquement déterminée par la lame d'eau cumulée.

Ce résultat n'est pas généralisable à toutes les valeurs du facteur de retard (ou du coefficient  $K_d$ ), notamment lorsque le facteur de retard est proche de 1, où le soluté a un comportement proche de celui d'un traceur de l'eau..

Pour illustrer cela, nous avons simulé l'écoulement d'une même lame d'eau entraînant une distribution de traceur de l'écoulement ( $R=1$  ou  $K_d=0$ ) initialement présente dans une colonne à deux teneurs en eau différentes  $\theta_1=0,1$  et  $\theta_2=0,2$  (Figure V-4).

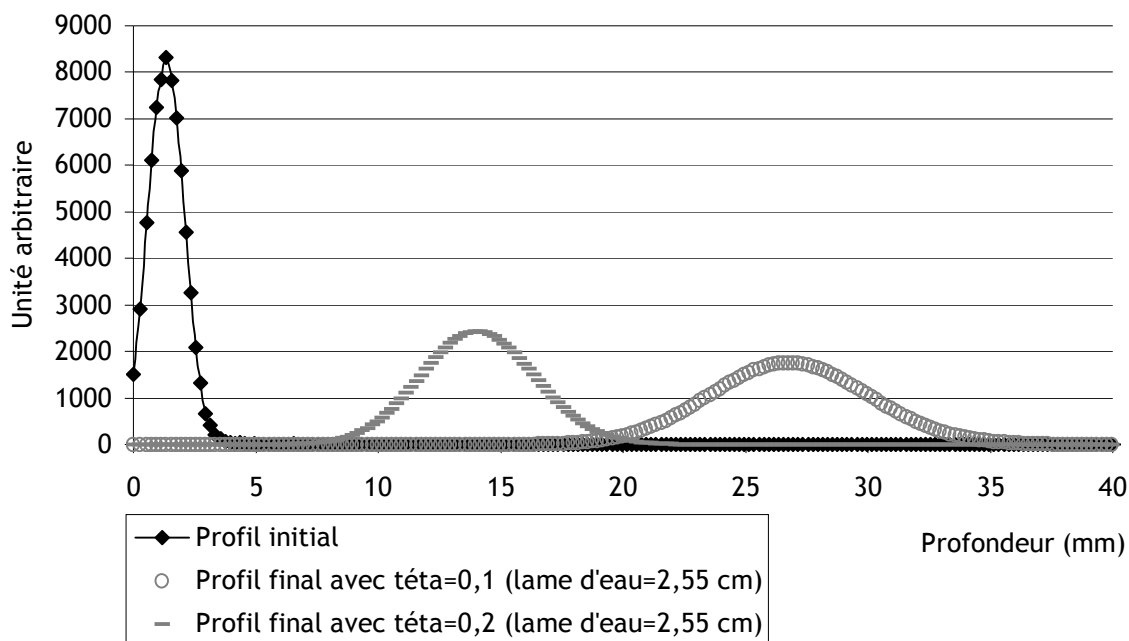


Figure V-4 : illustration de la distance moyenne  $Z_r$  parcourue par un traceur de l'eau ( $k_d=0 \text{ L.Kg}^{-1}$ ) en régime permanent, selon la teneur en eau  $\theta$  à laquelle a lieu l'écoulement.

En calculant les moments d'ordre 1 sur les résultats obtenus, on constate en effet cette fois que la distance parcourue par le traceur, pour une même lame d'eau infiltrée (2,55 cm), dans le cas d'un écoulement à une teneur en eau de  $\theta_1=0,1$  ( $Z_{r1}=27$  cm) est deux fois plus importante que celle parcourue à  $\theta_2=0,2$  ( $Z_{r2}=13,5$  cm).

Pour ce qui concerne la profondeur moyenne  $Z_r$  atteinte par le profil du radionucléide, ce résultat sera également repris dans la discussion de ce chapitre, où on montrera que :

$$Z_r = \frac{1}{\theta + \rho_d \cdot K_d} \cdot \text{Lame}$$

avec Lame = hauteur d'eau appliquée à la surface du sol.

Dans cette relation, si  $K_d=0$  alors  $Z_r = \frac{1}{\theta} \cdot \text{Lame}$  et si  $\theta_2 = 2 \cdot \theta_1$  alors  $Z_{r1} = 2 \cdot Z_{r2}$ .

Pour une même lame d'eau infiltrée, le soluté ayant un  $K_d \ll 1$  ira d'autant plus profondément dans le sol que son degré de saturation sera faible, ce qui n'est pas le cas si  $K_d$  est grand.

#### V.1.1.4 Rappel des hypothèses et des conditions d'application de l'approche opérationnelle

La migration d'un soluté réactif dans les sols saturés et partiellement saturés en eau est sous le contrôle du couplage de multiples processus géochimiques et hydrodynamiques.

Pour ce qui concerne les **processus géochimiques**, l'approche « opérationnelle », que nous avons décrite, consiste à prendre en compte, l'ensemble des différents types d'interactions, par l'intermédiaire d'un paramètre unique « moyen » appelé coefficient de distribution ou  $K_d$  (approche phénoménologique). Bien que séduisante par son apparente simplicité d'utilisation (toute la chimie étant réduite à un seul paramètre, constant, dans les équations de transport) et d'acquisition (détermination expérimentale simple, rapide et peu coûteuse de l'isotherme par batch), cette approche est limitée à un domaine de validité très restreint. Les hypothèses postulent que l'interaction doit en effet être à la fois :

1. réversible (conservation de la masse lors d'un cycle de sorption/désorption),
2. instantanée (équilibre thermodynamique local),



3. représentée par une isotherme linéaire.

Cela impose, entre autres conditions que la géochimie de la solution doit être « constante », pour que le modèle du Kd puisse être applicable.

En respectant les conditions opératoires expérimentales et les conditions d'extrapolation, qui garantissent la validité des hypothèses, il demeure que les coefficients Kd obtenus ne sont pas intrinsèques au couple sol - l'élément chimique étudié.

### **V.1.2 Modélisation couplée géochimie/transport**

Les limitations des modèles opérationnels précédemment exposées peuvent être levées, en grande partie, en utilisant une approche couplée chimie-transport et des codes de calcul correspondants. Ces codes permettent de résoudre les équations de transport, mais également de mieux décrire les réactions chimiques du système solide/solution avec une approche plus mécaniste. C'est le cas notamment du code HYTEC que nous avons utilisé ici.

Pour évaluer la capacité de cette approche à prendre en charge le transport réactif du  $^{85}\text{Sr}$ , nous avons choisi de simuler l'expérience effectuée sur la colonne 6 avec l'injection des 10 premiers épisodes d'infiltration de type PI1. Les réactions chimiques homogènes et hétérogènes retenues sont largement inspirées du travail précédent de Szenknect (2003).

Dans un second temps, nous avons étudié la sensibilité du modèle à une variation (plausible) de la géochimie de l'eau. Pour ce faire, nous avons augmenté la concentration en calcium dans la solution d'alimentation à une valeur de 20 ppm, les autres concentrations en cations, et notamment celle du strontium, étant maintenues constantes. Cette concentration a été déterminée à partir des valeurs maximales observées sur le site expérimental de Tchernobyl dans le panache de pollution observé.

#### **V.1.2.1 Le code couplé HYTEC**

Le code HYTEC résout l'équation de l'écoulement d'eau, donc nécessite la connaissance des courbes caractéristiques hydrodynamiques du sable. Nous avons pris celles déterminées dans le chapitre III avec le modèle de Van Genuchten/Mualem (Tableau III-3).

En ce qui concerne la description de la chimie du système, nous avons besoin de décrire les interactions pertinentes en solution et à l'interface sable/solution. Les constantes thermodynamiques relatives aux réactions en solution sont bien connues et répertoriées dans la base de données du code HYTEC, base validée avec le programme CTDP (Common Thermodynamic Database Program).

En revanche, pour ce qui est de la description des interactions solide/solution, les constantes de sélectivité permettant de caractériser les échanges solide/solution des divers cations sont plus difficiles à estimer précisément, celles-ci dépendant étroitement du sol étudié et du modèle de rétention choisi. Dans notre étude, nous avons choisi un modèle d'échange d'ion simple avec un seul site d'échange sur la base des travaux précédents de Szenknect (2003).

Les réactions des principaux équilibres mis en jeu en solution sont présentées dans le Tableau V-4 et les équilibres d'échange sable-solution dans le Tableau V-5. Nous n'avons pas présentés ici les réactions de précipitation, comme celle de la strontianite, car aucune précipitation n'a lieu pour les systèmes étudiés.

Equilibre de constante K			Log K à 25 °C
$\text{Ca}^{2+} + \text{SO}_4^{2-}$	$\rightleftharpoons$	$\text{CaSO}_4(\text{aq})$	2,1111
$\text{Ca}^{2+} + \text{HCO}_3^-$	$\rightleftharpoons$	$\text{CaHCO}_3^+$	1,0467
$\text{Ca}^{2+} + \text{HCO}_3^-$	$\rightleftharpoons$	$\text{CaCO}_3(\text{aq}) + \text{H}^+$	-7,0017
$\text{Mg}^{2+} + \text{SO}_4^{2-}$	$\rightleftharpoons$	$\text{MgSO}_4(\text{aq})$	2,4117
$\text{HCO}_3^- + \text{Mg}^{2+}$	$\rightleftharpoons$	$\text{MgHCO}_3^+$	1,0357
$\text{HCO}_3^- + \text{Mg}^{2+}$	$\rightleftharpoons$	$\text{MgCO}_3(\text{aq}) + \text{H}^+$	7,3499
$\text{K}^+ + \text{SO}_4^{2-}$	$\rightleftharpoons$	$\text{KSO}_4^-$	0,8796
$\text{Na}^+ + \text{SO}_4^{2-}$	$\rightleftharpoons$	$\text{NaSO}_4^-$	0,82
$\text{HCO}_3^- + \text{Na}^+$	$\rightleftharpoons$	$\text{NaHCO}_3(\text{aq})$	0,1541
$\text{SO}_4^{2-} + \text{Sr}^{2+}$	$\rightleftharpoons$	$\text{SrSO}_4(\text{aq})$	2,3
$\text{HCO}_3^- + \text{Sr}^{2+}$	$\rightleftharpoons$	$\text{SrCO}_3(\text{aq}) + \text{H}^+$	7,4635

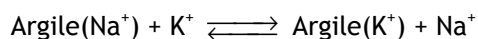
Tableau V-3 : Principaux équilibres chimiques en solution

Equilibre d'échange solide - solution sur la phase argileuse			Log Kf à 25 °C
Argile(Na) + K <sup>+</sup>	$\rightleftharpoons$	Argile(K) + Na <sup>+</sup>	0.7
2 Argile(Na) + Ca <sup>2+</sup>	$\rightleftharpoons$	Argile(Ca) + 2 Na <sup>+</sup>	1.31
2 Argile(Na) + Mg <sup>2+</sup>	$\rightleftharpoons$	Argile(Mg) + 2 Na <sup>+</sup>	1.76
2 Argile(Na) + Sr <sup>2+</sup>	$\rightleftharpoons$	Argile(Sr) + 2 Na <sup>+</sup>	1.41
2 Argile(Na) + 85Sr <sup>2+</sup>	$\rightleftharpoons$	Argile(85Sr) + 2 Na <sup>+</sup>	1.41

Tableau V-4 : Equilibres d'échange sable - solution considérés pour le site d'échange Argile

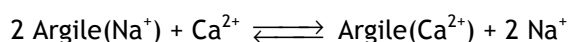
La concentration des sites d'échange [Argile-X] a été déduite de la mesure de la CEC (0,62 meq/100 g) par la méthode à la Cobaltihexamine (détermination de la capacité d'échange cationique (CEC) et des cations extractibles - Décembre 1999 - Norme AFNOR : NF X31-130).

CHESS, le module géochimique de HYTEC, accepte toutes les conventions, à condition qu'elles soient correctement introduites dans la base de données thermodynamiques. Par souci de rester homogène avec toute réaction autre que l'échange ionique, CHESS considère une constante de formation K pour modéliser l'échange ionique. Les constantes de sélectivité de Gaines-Thomas ( $K_{GT}$ ) et la constante utilisée dans CHESS sont strictement identiques dans le cas d'un échange homovalent, i.e. :



Par contre, une conversion est nécessaire dès lors qu'il s'agit d'une réaction hétérovalente.

A titre d'exemple, prenons la réaction :



Le passage du coefficient de sélectivité  $K_{GT}$  à la constante de formation  $K_{\text{Ca}/\text{Na}}$  se calcule comme suit :

$$K_{GT} = \frac{f_{Ca}[Na^+]^2}{f_{Na}^2[Ca^{2+}]} = \frac{(f_{Ca} \cdot CEC / 2)[Na^+]^2 \cdot (CEC)^2}{(f_{Na} \cdot CEC)^2 [Ca^{2+}]} \cdot (CEC / 2)$$

$$= \frac{(Argile(Ca^{2+}))[Na^+]^2 \cdot (CEC)^2}{(Argile(Na^+))^2 [Ca^{2+}]} \cdot (CEC / 2) = K_{Ca/Na} (2 \cdot CEC)$$

$$\text{d'où } K_{Ca/Na} = \frac{K_{GT}}{(2 \cdot CEC)}$$

où la CEC est exprimée en moles par kg d'eau (l'unité de référence de CHESS).

L'unité traditionnelle de la CEC, le méq/100g, n'est pas commode pour la modélisation et notamment pour les bases de données. En effet, exprimée ainsi, la réactivité réelle dépendra de la porosité du sol ainsi que de la densité volumique du solide. Pour cette raison, et par analogie avec la complexation de surface, CHESS privilégie une capacité d'échange exprimée en mol/m<sup>2</sup> de surface de la phase solide.

Lorsque la CEC est donnée en méq/100g de sol, il est donc nécessaire de convertir la valeur en format CHESS. Ceci est relativement simple en utilisant la surface spécifique  $A_s$  du sol :

$$CEC_{\text{méql/m}^2} = (0,01 \text{ CEC}_{\text{méql/100g}}) / A_s$$

La CEC effective, c'est-à-dire par rapport à la solution, se calcule ensuite à partir de la concentration molale du solide  $S$  :

$$CEC_{\text{méql/kg d'eau}} = S \cdot (0,01 \text{ CEC}_{\text{méql/m}^2})$$

Les constantes de formation  $K_{X/Na}$  pour les quatre cations d'intérêt (K, Mg, Ca, Sr) ont été ajustées sur nos résultats expérimentaux obtenus lors du conditionnement chimique des petites colonnes saturées (PC). L'ajustement a été réalisé à l'œil par essai-erreur et en minimisant les écarts. Les valeurs initiales des constantes sont celles déterminées sur l'illite, identifiée qualitativement à partir d'analyse de diffraction X comme étant la principale phase argileuse de notre milieu poreux.

V.1.2.2 Courbes de percée en écoulements saturés

Nous avons ajusté les constantes de sélectivité des différents cations à partir des courbes de conditionnement des colonnes P1, P3 à P7, c'est-à-dire pour des concentrations en strontium stable variant de  $4,5 \cdot 10^{-8} \text{ mol.L}^{-1}$  à  $9,6 \cdot 10^{-5} \text{ mol.L}^{-1}$ .

Les résultats obtenus sont présentés sur les figures V-7 à V-13. On peut observer un bon accord pour l'ensemble des courbes simulées et expérimentales en première analyse, notamment pour les courbes de percée du strontium qui nous intéressent. Les constantes de sélectivité estimées dans ces simulations varient peu pour les 6 colonnes utilisées (Tableau V-5).

Pour les plus fortes concentrations en strontium (colonnes P6 et P7), on note un moins bon accord pour le calcium et le magnésium. Le modèle simple d'échange d'ions avec un seul site d'échange n'est peut-être pas totalement adapté dans ces derniers cas. Des expériences complémentaires pour les concentrations plus élevées en strontium pourraient être intéressantes dans le futur, bien qu'elles dépassent fortement les concentrations habituelles que l'on peut observer dans la nature, et en particulier sur le site de Tchernobyl.

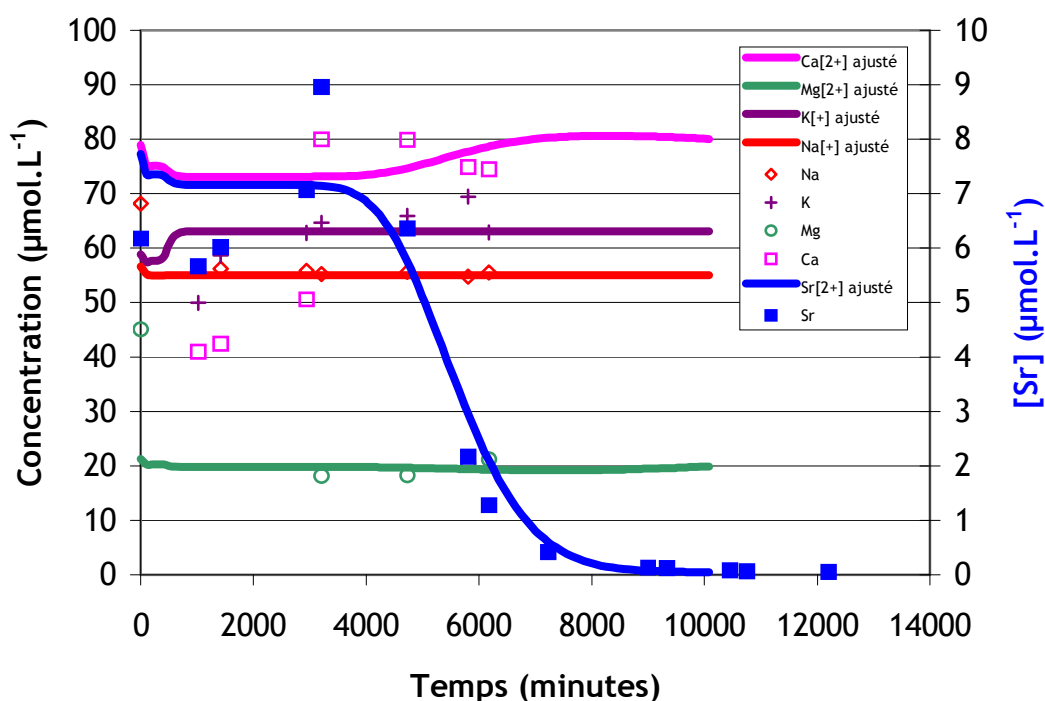


Figure V-5 : Courbes de percée expérimentales et simulées des cations en solution pour la colonne saturée P1 ( $[\text{Sr}^{2+}] = 4,5 \cdot 10^{-8} \text{ mol.L}^{-1}$ ).

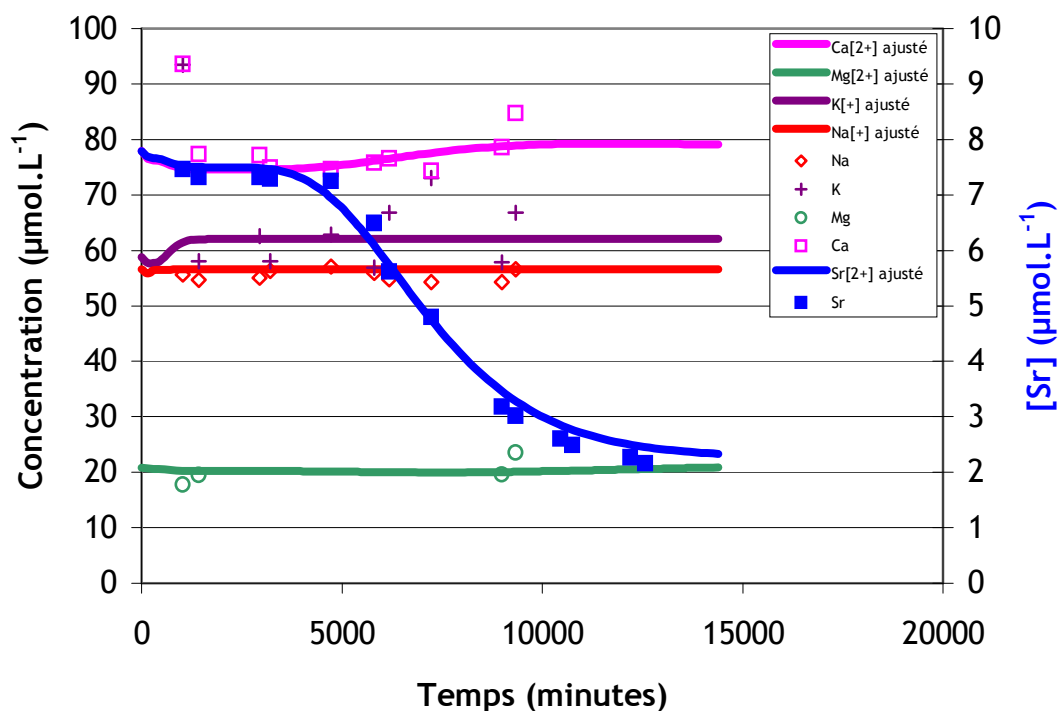


Figure V-6 : Courbes de percée expérimentales et simulées des cations en solution pour la colonne saturée P3 ( $[Sr^{2+}] = 2,2 \cdot 10^{-6} \text{ mol.L}^{-1}$ ).

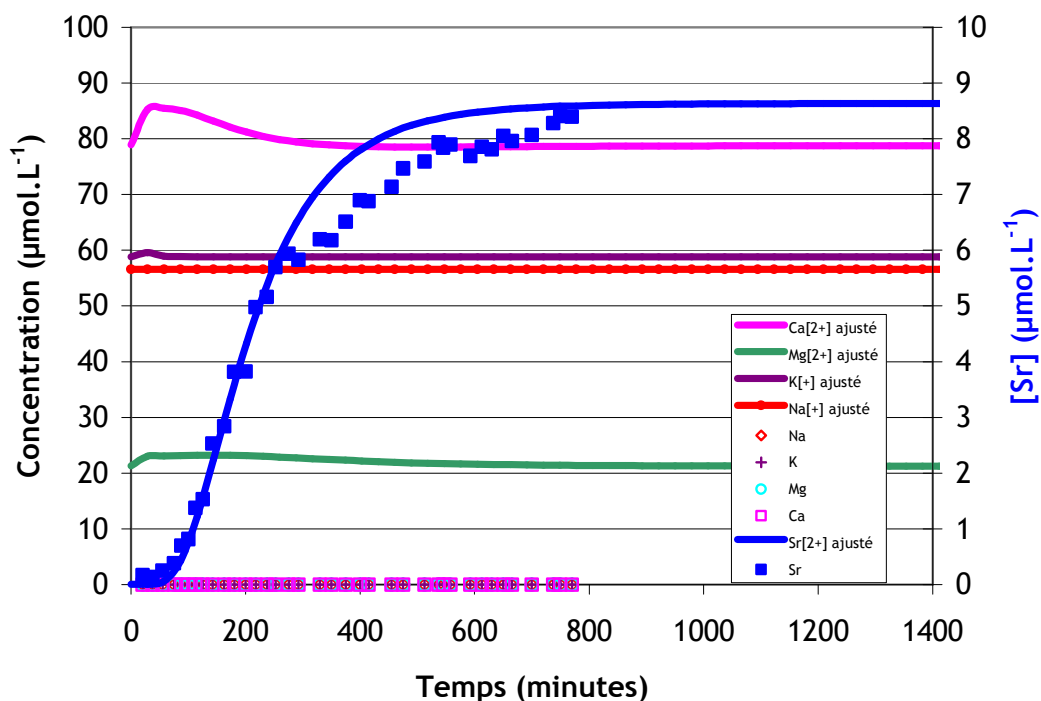


Figure V-7 : Courbes de percée expérimentales et simulées des cations en solution pour la colonne saturée P4 ( $[Sr^{2+}] = 8,2 \cdot 10^{-6} \text{ mol.L}^{-1}$ ).

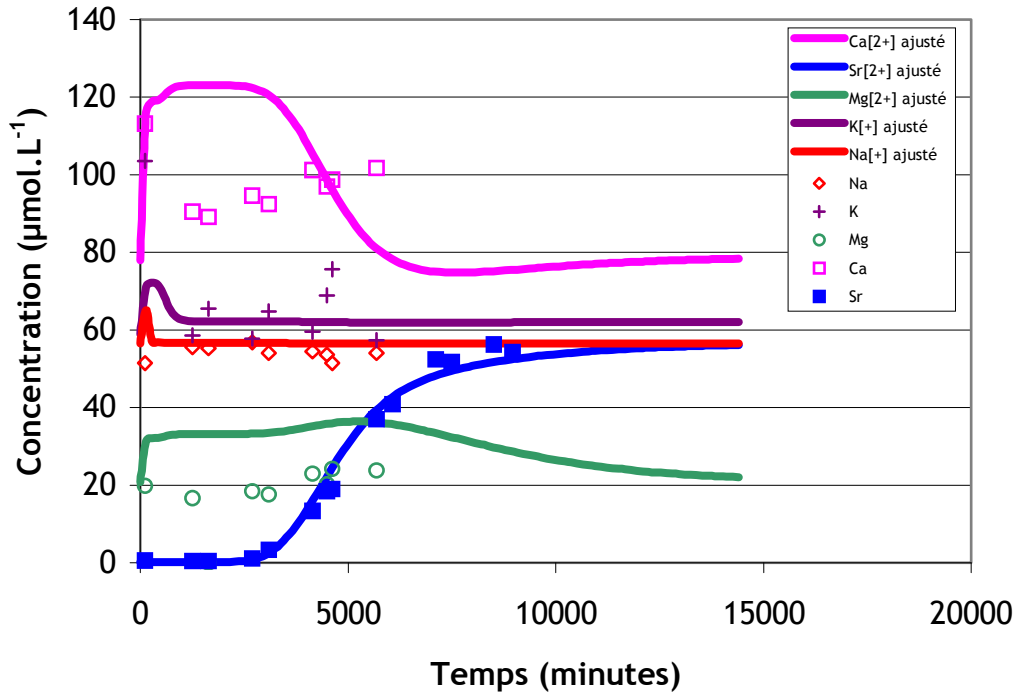


Figure V-8 : Courbes de percée expérimentales et simulées des cations en solution pour la colonne saturée P5 ( $[Sr^{2+}] = 5,5 \cdot 10^{-5} \text{ mol.L}^{-1}$ ).

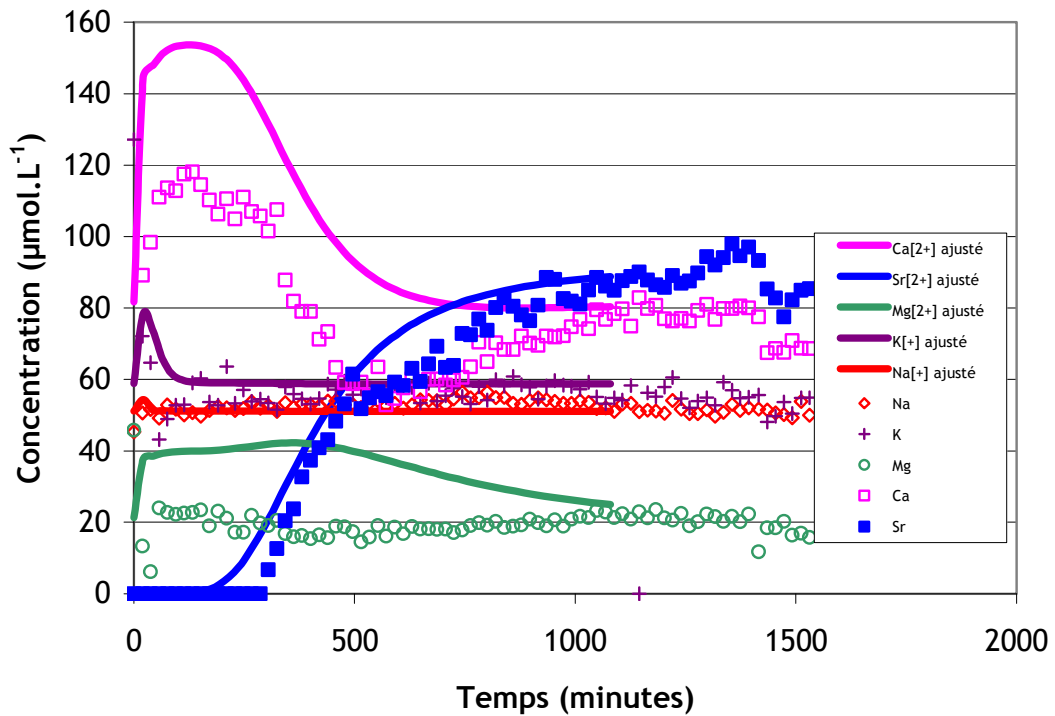


Figure V-9 : Courbes de percée expérimentales et simulées des cations en solution pour la colonne saturée P6 ( $[Sr^{2+}] = 8,8 \cdot 10^{-5} \text{ mol.L}^{-1}$ ).

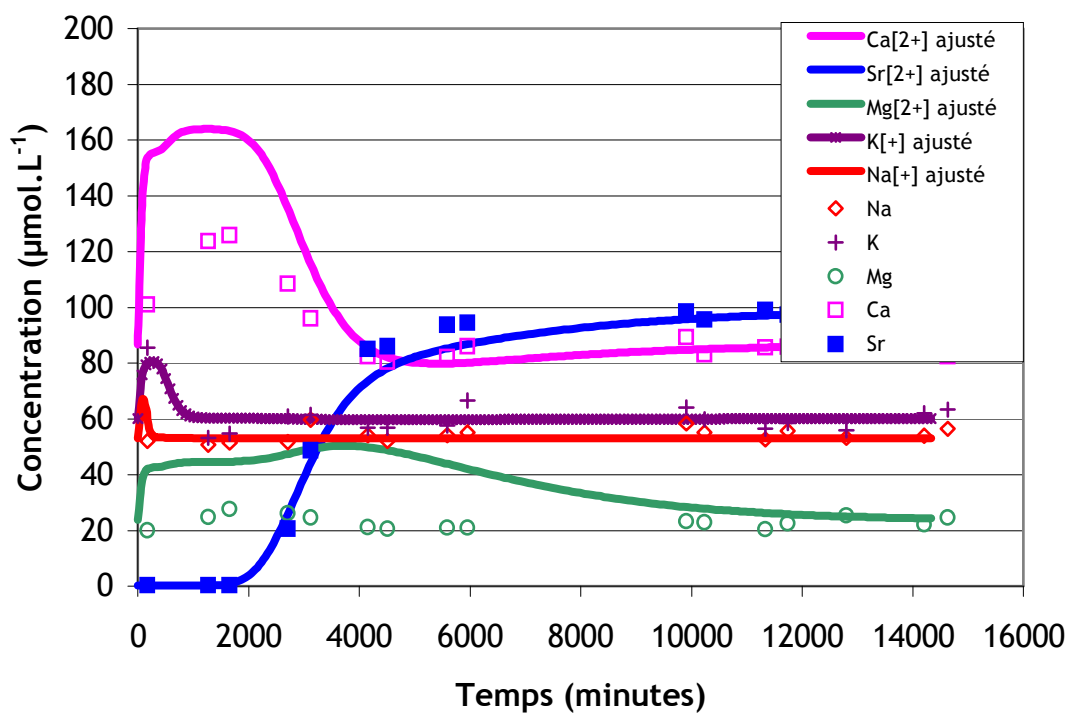


Figure V-10 : Courbes de percée expérimentales et simulées des cations en solution pour la colonne saturée P7 ( $[\text{Sr}^{2+}] = 9,6 \cdot 10^{-5} \text{ mol.L}^{-1}$ ).

Colonne	P1	P3	P4	P5	P6	P7
Cation	$\text{Log}^{\text{CH}} K_{\text{X/Na}}$	$\text{Log}^{\text{CH}} K_{\text{X/Na}}$	$\text{Log}^{\text{CH}} K_{\text{X/Na}}$	$\text{Log}^{\text{CH}} K_{\text{X/Na}}$	$\text{Log}^{\text{GT}} K_{\text{X}}$	$\text{Log}^{\text{CH}} K_{\text{X/Na}}$
<b>K</b>	0,70	0,70	0,70	0,70	0,70	0,70
<b>Mg</b>	2,06	1,79	1,76	1,78	1,79	1,79
<b>Ca</b>	1,51	1,34	1,31	1,33	1,34	1,24
<b>Sr</b>	1,61	1,44	1,41	1,43	1,44	1,34

Tableau V-5 : Valeurs des constantes de sélectivité  $\text{Log}^{\text{CH}} K_{\text{X/Na}}$  calculées pour le module de géochimie CHESS du code de transport HYTEC pour les cations en solution dans chaque colonne.



*V.1.2.3 Application aux écoulements non saturés - cas de la colonne 6*

Les deux simulations que nous présentons maintenant ont pour objet de tester la robustesse de la modélisation proposée précédemment en écoulement permanent à saturation, en l'étendant à des écoulements non-saturés. Elles permettent également de mettre en évidence l'influence de faibles variations chimiques de la solution observées sur le site de Tchernobyl. L'influence des variations des conditions géochimiques dépasse le cadre de cette étude, mais il semblait intéressant d'évaluer l'impact de ces variations à l'aide du code HYTEC et ainsi d'envisager les suites possibles de ce travail quant à l'influence des conditions géochimiques observables sur le terrain.

Les simulations ont été réalisées à partir de la colonne 6 en simulant l'injection d'un premier créneau d'eau de type PI1 marqué au  $^{85}\text{Sr}$  sur une colonne à l'équilibre hydrostatique avec une succion constante imposée en pied de colonne de 84 cm. Une série de 9 créneaux de type PI1 d'eau synthétique non marquée est alors injectée en haut de colonne, avec une période de redistribution de l'eau entre chaque créneau de 24 heures.

Dans la première simulation, la composition de l'eau synthétique est celle utilisée expérimentalement dans notre étude avec une concentration de strontium stable de  $5 \cdot 10^{-8} \text{ mol.L}^{-1}$  et une concentration en calcium de  $77,3 \cdot 10^{-6} \text{ mol.L}^{-1}$ . Dans la seconde simulation, nous avons simplement augmenté la concentration en calcium de l'eau à la valeur de  $540 \cdot 10^{-6} \text{ mol.L}^{-1}$ , valeur maximale observée dans le panache de pollution sur le site expérimental de Tchernobyl. Le fichier d'entrée HYTEC est présenté en Annexe.

Les profils de  $^{85}\text{Sr}$  obtenus dans les deux cas à la fin de chaque période de redistribution de l'eau sont présentés Figures V-11 et V-12.

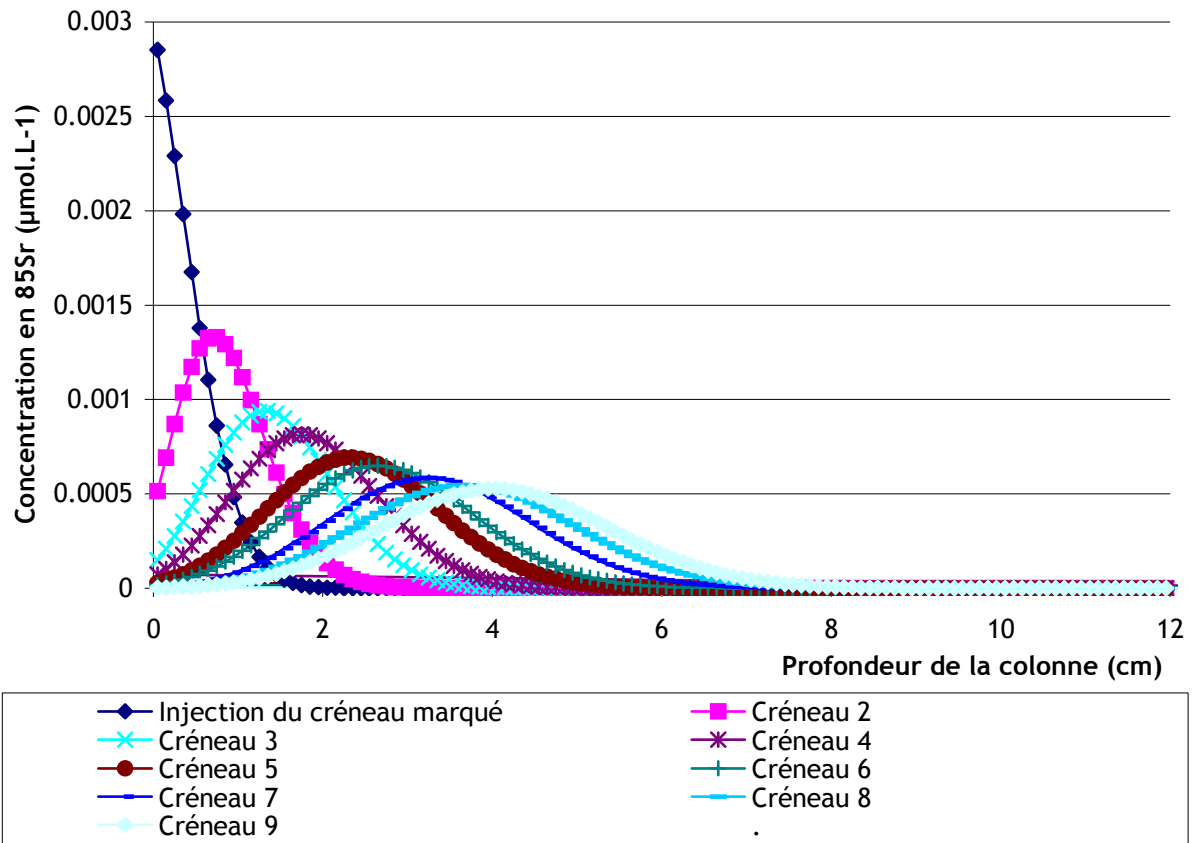


Figure V-11 : Evolution simulée du profil de  $^{85}\text{Sr}$  suite à l'injection de 10 créneaux d'eau de type PI1, en haut de la colonne 6, avec une suction constante imposée en pied de colonne de 84 cm.  $[\text{Sr}] = 5.10^{-8} \text{ mol.L}^{-1}$  et  $[\text{Ca}] = 77,3.10^{-6} \text{ mol.L}^{-1}$ .

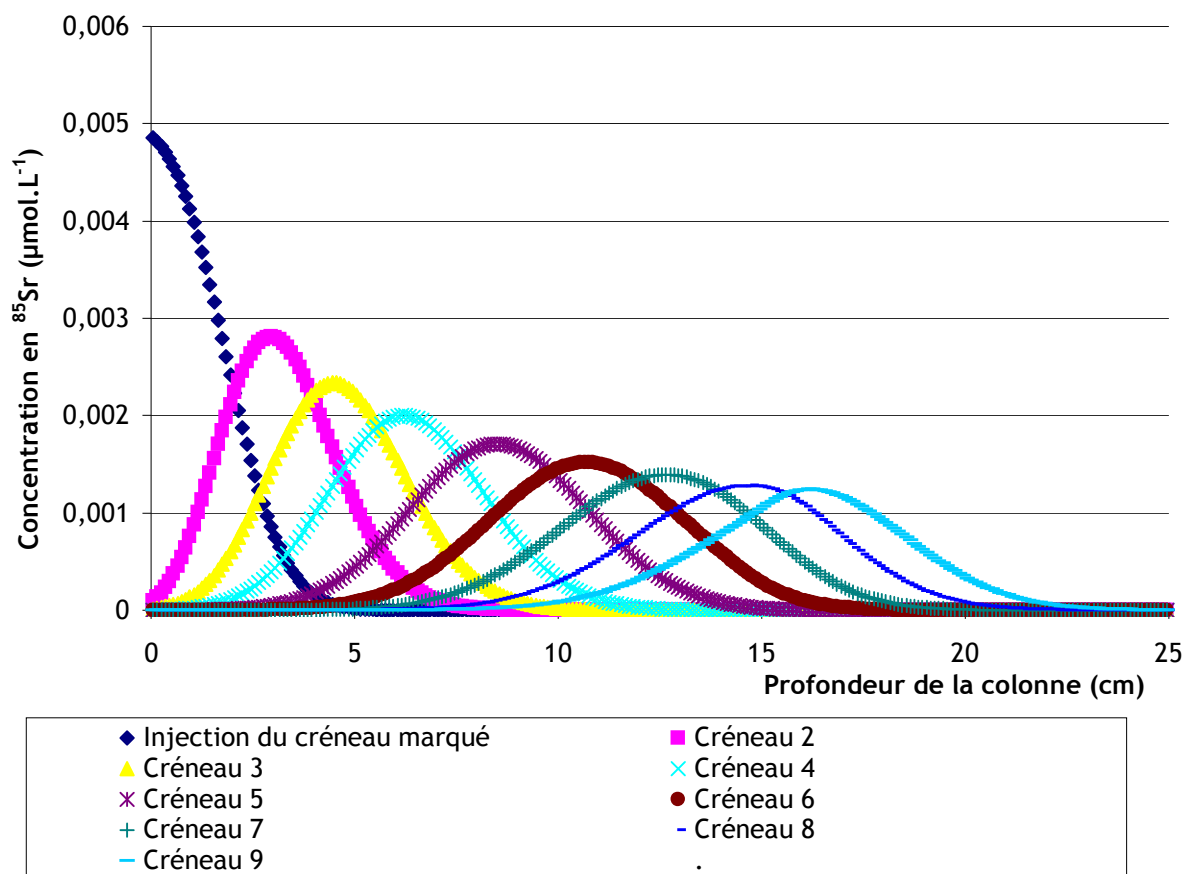


Figure V-12 : Scénario identique à la figure précédente, hormis la concentration en calcium.  $[Sr] = 5 \cdot 10^{-8} \text{ mol.L}^{-1}$  et  $[Ca] = 540 \cdot 10^{-6} \text{ mol.L}^{-1}$ .

On note alors que la migration du  $^{85}\text{Sr}$  est beaucoup plus rapide pour la plus forte concentration en calcium, comme prévu par l'effet de compétition de la sorption du calcium et du strontium. Ce comportement est impossible à représenter par une approche opérationnelle avec un coefficient  $K_d$  constant et justifie alors pleinement l'utilisation d'outils tels que les codes couplés géochimie/transport.

La modélisation couplée chimie-transport, est donc plus générale et plus fiable que l'approche à un seul soluté et elle permet :

1. de définir des coefficients « intrinsèques » constants valables pour différentes conditions aux limites tant chimiques que physiques, et donc d'éviter de multiplier les essais pour couvrir la gamme des cas envisageables,

2. de tester la sensibilité de la propagation d'un soluté réactif à des variations de conditions géochimiques plausibles,
3. d'élargir considérablement le domaine de validité de l'approche.

## V.2 Discussion sur le choix d'une modélisation

---

---

De ce que nous venons de décrire, il ressort que la modélisation couplée est la plus complète et la mieux adaptée à des conditions réelles de terrain, notamment en ce qui concerne la géochimie de l'eau du sol.

En pratique, cette approche est très lourde à mettre en œuvre par le nombre de paramètres qu'elle impose, avec certains paramètres impossibles à déduire directement de la littérature, donc liés à des expériences spécifiques. D'autre part, la géométrie prise en compte ici est très simple (écoulements et transport réactif unidimensionnels) et les durées de transport sont modestes. L'extension à des cas bi ou tridimensionnels, avec stratification des couches de sol, pour prédire des évolutions sur plusieurs dizaines ou centaines d'années conduit à des calculs demandant de très gros moyens informatiques.

Il est donc souhaitable de disposer d'une méthodologie et d'outils opérationnels plus simples permettant d'approcher la description et la prédiction du devenir d'un élément réactif comme le  $^{90}\text{Sr}$  dans un sol, suite à un accident. Nous allons tenter de préciser les conditions d'emploi de l'approche simplifiée.

### V.2.1 Interprétations des coefficients $K_d$ mesurés

Comme nous avons pu le constater précédemment, la détermination expérimentale de la valeur du coefficient  $K_d$  à intégrer dans l'équation de transport pour simuler simplement la migration d'un soluté n'est pas chose aisée. De nombreuses études ont d'ailleurs déjà observé que selon la méthode utilisée de multiples phénomènes physico-chimiques peuvent ou non s'exprimer et modifier les valeurs estimées du coefficient de partage (Limousin et al., 2007).

Dans notre cas, les résultats obtenus en « batch » et sur colonnes, pour des conditions géochimiques identiques et contrôlées, révèlent des différences importantes (cf. chapitre IV).

Bien que dans les deux cas l'augmentation de concentration de strontium stable impose la même tendance, (le coefficient de distribution  $K_d$  diminue), la question se pose alors de savoir quelle valeur prendre pour la modélisation du transfert réactif.

Quelques propositions faites pour tenter d'expliquer ces différences, sont rappelées et commentées.

## **V.2.2 Différence entre méthode « batch » et colonne**

### *V.2.2.1 Condition statique et/ou dynamique*

On raisonne ici avec un seul élément chimique réactif, sans mélange d'isotopes.

En réacteur fermé "batch" (condition statique), le coefficient  $K_d$  est calculé à partir du rapport des concentrations  $C_s/C_{aq}$  une fois l'équilibre thermodynamique atteint dans le système. Il correspond à la pente de la droite passant par l'origine du repère sur lequel l'isotherme est tracée (Figure V-13). Mais cette détermination n'est représentative d'une isotherme linéaire que dans la partie concernant les faibles concentrations. Le coefficient  $K_d$  mesuré en "batch" n'est donc extrapolable que si l'on reste dans cette partie linéaire de l'isotherme. Il n'est par ailleurs réellement représentatif que s'il est obtenu sur un sol initialement conditionné pour les conditions géochimiques auxquelles il sera extrapolé. Or le conditionnement géochimique d'un sol en réacteur fermé (par lavages successifs par exemple) n'est pas chose aisée.

Le coefficient  $K_d$  déterminé par traçage sur colonne peut être utilisé même en dehors de la zone de linéarité de l'isotherme à partir du moment où la géochimie du système dans lequel il est réutilisé reste identique et constante. Le coefficient  $K_d$  déterminé à partir de courbe de percée de traçage sur colonne correspond à la pente de la tangente à l'isotherme. Son calcul à partir de l'équation de transport fait intervenir le rapport  $dC_s/dC_{aq}$  (Appelo C.A.J. and Postma D., 2005).

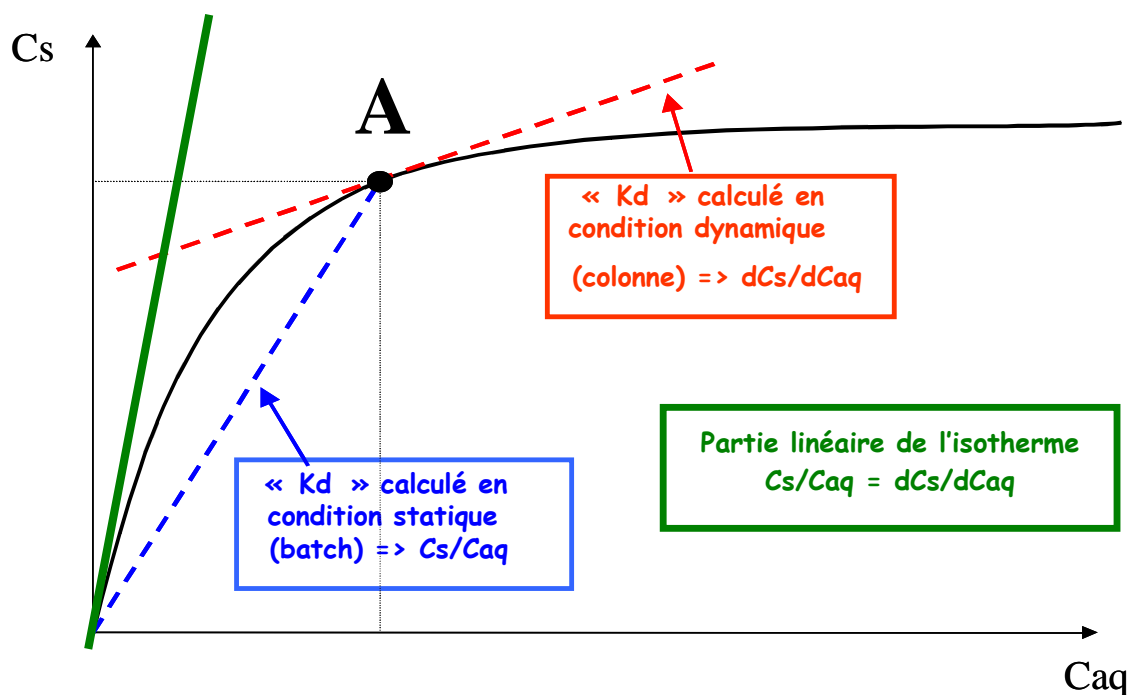


Figure V-13 : Interprétation graphique de la mesure du coefficient  $K_d$  d'un isotope radio-actif par méthode statique «batch» ( $K_d=C_s/C_{aq}$ ) et dynamique par traçage sur colonne ( $K_d=dC_s/dC_{aq}$ ).

Dans la partie linéaire, la courbe assimilée à une droite passant par l'origine et la tangente à l'isotherme sont confondues. La détermination du coefficient  $K_d$  du soluté par les deux méthodes (statique et dynamique), pour un système géochimiquement conditionné initialement de façon identique, devrait théoriquement donner le même résultat.

Au-delà de la partie linéaire, le coefficient  $K_d$  le plus représentatif des conditions expérimentales semble celui déterminé en condition dynamique par traçage sur colonne. En effet les conditions géochimiques ne sont contrôlables et reproductibles que sur « réacteurs » ouverts. En effet, si on part d'un équilibre dans le système correspondant au point A de la figure ci-dessus :

4. pour un essai batch, l'ajout du soluté réactif se fait avec de l'eau (dont la géochimie ne peut être identique à celle de l'eau initiale à l'équilibre) et l'adsorption est fortement dépendante de cette modification de la géochimie,
5. pour un essai en réacteur ouvert ou colonne, l'apport de soluté réactif est fait dans de l'eau à géochimie contrôlée et identique à celle préexistante.

Si l'on s'en tient uniquement à la comparaison des pentes, en dehors de la partie linéaire de l'isotherme, la détermination du  $K_d$  par méthode "batch" aurait tendance à surestimer les propriétés de rétention du sol étudié. Dans cette zone, en effet, pour une isotherme de type Langmuir, la pente de la droite passant par l'origine du repère apparaît plus importante que la pente de la tangente à l'isotherme (par exemple au point A de la figure ci-dessus).

#### *V.2.2.2 Milieu dispersé ou compact*

Une autre explication souvent proposée pour expliquer les différences obtenues sur les coefficients de distribution entre les méthodes « batch » et colonne est celle de la différence du rapport masse de solide / masse de solution ( $m/v$ ) engendrée par la différence des systèmes de mesure (dispersé ou compact). Dans le premier cas, pour nos conditions expérimentales, le rapport  $m/v$  est de l'ordre de 0,5 alors que pour les colonnes ce rapport est d'un ordre de grandeur supérieur (5). L'influence du rapport  $m/v$  a été discutée (notamment le changement d'accessibilité aux sites de sorption sur les grains du milieu poreux). Une modélisation géochimique des interactions entre le sable et la solution doit permettre d'expliquer quantitativement les différences des valeurs des  $K_d$  obtenus avec les deux techniques.

#### **V.2.3 Coefficient $K_d$ d'un isotope radioactif et d'un élément stable :**

Lorsque deux isotopes sont présents simultanément dans un sol, ils doivent être considérés comme deux espèces en compétition.

Lorsqu'on conditionne un sable en saturant les sites de sorption accessibles par exemple avec du strontium stable, le  $^{85}\text{Sr}$  ne se comporte pas pour autant comme un élément non réactif (traceur de l'eau). Il possède toujours un facteur de retard. Par contre, si sur cette même colonne conditionnée, un pulse de strontium stable est injecté, il doit normalement ressortir en même temps que l'eau du pulse. Dans ce cas, les deux espèces n'ont donc pas le même coefficient  $K_d$  «apparent».

Si les conditions géochimiques du système placent les concentrations des deux espèces (stable et radioactive) dans la partie linéaire de l'isotherme, alors les deux espèces auront le même

coefficient  $K_d$  « apparent ». Par contre, si la concentration de strontium stable (faisant partie de la géochimie de l'eau percolante) se situe au delà de la zone de linéarité, la valeur du coefficient  $K_d$  « apparent » du radioélément sera plus importante que celle du strontium stable et dépendra de la valeur de la concentration de ce dernier.

Par exemple, faisons un essai d'adsorption en partant d'un équilibre de Sr stable correspondant au point A de la figure ci-dessus. Dans un premier cas on ajoute du Sr stable, alors l'isotherme évolue sur la pente de la tangente à l'isotherme non linéaire au point A (droite pointillée rouge). Dans un second cas on ajoute du  $^{85}\text{Sr}$ , alors la concentration dans la phase liquide évolue selon la pente de la droite passant par l'origine (pointillés bleus). En effet, dans ce second cas, une partie du  $^{85}\text{Sr}$  est consommée par un échange isotopique entre le Sr stable et le  $^{85}\text{Sr}$  qui pré-existait sur le solide.

Le résultat est que l'on étudie l'effet du Sr stable comme celui d'un autre ion compétiteur, tel que le calcium dans notre cas, et dont l'augmentation ou la diminution de la concentration présente dans le système joue fortement sur la nature de l'isotherme mesurée.

En résumé des trois paragraphes précédents, dans le cadre de notre étude, les calculs du coefficient de distribution du  $^{85}\text{Sr}$  sur le sable éolien de Tchernobyl par méthode « batch » aboutissent à des valeurs de  $K_d$  significativement différentes de celles observées sur colonnes (cf. chapitre IV). Etant donné que ces valeurs ont pour objectif de quantifier la rétention du radionucléide durant son transport sur colonne, les calculs obtenus par « traçage » sur colonne nous paraissent beaucoup plus représentatives de nos conditions expérimentales et s'avèrent d'ailleurs par la suite beaucoup plus cohérentes.

### V.3 Retour sur le transport de $^{85}\text{Sr}$

---

---

#### V.3.1 Influence des conditions hydrauliques

Pour étudier l'influence des écoulements transitoires sur la migration du  $^{85}\text{Sr}$  dans les lits de sable éolien de Tchernobyl, nous avons analysé l'évolution de la profondeur du centre de masse des profils de  $^{85}\text{Sr}$  (moment d'ordre 1) mesuré dans la colonne 8 en fonction de la lame d'eau cumulée ayant percolé à travers le lit de sable (cf. Chapitre IV et Figure V-14).



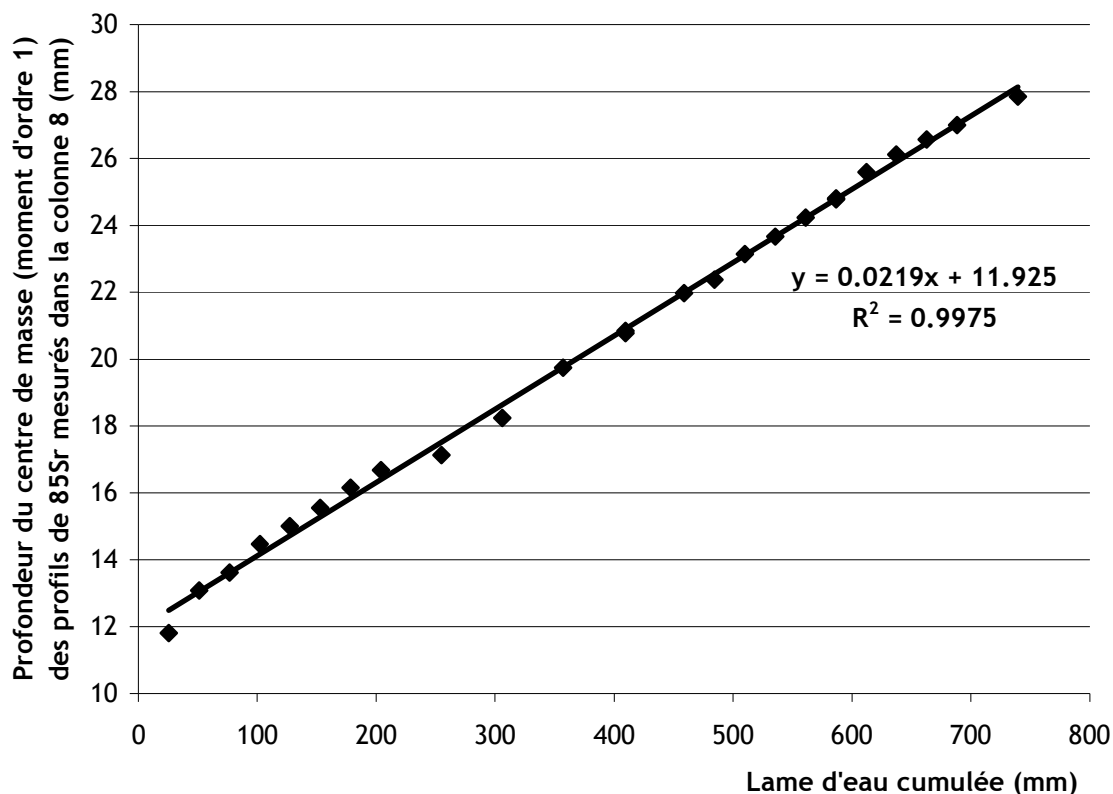


Figure V-14 : Evolution de la profondeur du centre de masse du profil de <sup>85</sup>Sr en fonction de la lame d'eau cumulée infiltrée dans la colonne non-saturée 8.

Bien qu'ayant été soumis à différents types de créneaux hydrauliques (cf. chapitre IV), une corrélation linéaire apparaît entre les deux paramètres étudiés.

Pour expliquer ce résultat, nous considérons tout d'abord l'expression du facteur de retard R, pour un régime permanent équivalent, par le rapport des distances respectivement parcourues par l'eau (Zw) et le soluté (Zr).

$$R = Z_w / Z_r \quad \text{Équation V-1}$$

La distance moyenne parcourue par l'eau Zw, pour un profil de teneur en eau quasi uniforme, peut par ailleurs, en régime permanent, être obtenue à partir de la relation suivante :

$$Z_w = \text{Lame} / \theta$$

où Lame correspond à la hauteur d'eau cumulée infiltrée (mm) ayant percolé à travers le sol et  $\theta$  est la teneur en eau.

En intégrant cette expression de  $Z_w$  dans l'Equation V-1 et en posant l'égalité avec l'autre forme du facteur de retard  $R = 1 + \rho d \cdot K_d / \theta$ , on obtient la relation suivante :

$$R = \frac{Lame}{\theta \cdot Z_r} = 1 + \frac{\rho d \cdot K_d}{\theta}$$

La distance moyenne  $Z_r$  (centre de masse) parcourue par un soluté dans la zone non-saturée peut donc être calculée par la relation :

$$Z_r = \frac{1}{\theta + \rho d \cdot K_d} \cdot Lame \quad \text{Équation V-2}$$

La pente de la droite  $Z_r = f(Lame)$ , présentée Equation V-2, est donc égale à  $\frac{1}{\theta + \rho d \cdot K_d}$ . Pour le cas de la Figure V-14, la régression linéaire appliquée aux points expérimentaux donne une droite dont la valeur de la pente est de 0,0219. En prenant en compte les conditions expérimentales utilisées pour le transport du  $^{85}\text{Sr}$  dans la colonne 8, la valeur numérique du produit  $\rho d \cdot K_d$  apparaît largement supérieure à celle de  $\theta$  (comprise entre 0,05 et 0,25). Une approximation numérique de  $\theta + \rho d \cdot K_d$  par  $\rho d \cdot K_d$  semble alors justifiée. La masse volumique  $\rho d$  étant de l'ordre de  $1,9 \text{ Kg} \cdot \text{L}^{-1}$  dans cette partie de la colonne, le calcul donne un coefficient  $K_d$  de  $24 \text{ L} \cdot \text{Kg}^{-1}$ . Cette valeur du coefficient de distribution du strontium 85 apparaît cohérente avec les résultats d'étude de sorption réalisée à saturation dans des conditions géochimiques comparables sur les petites colonnes (concentration de strontium stable de  $10^{-5} \text{ mol} \cdot \text{l}^{-1}$ , cf. chapitre IV).

Si l'on pose,  $R' = \frac{1}{\theta + \rho d \cdot K_d}$  la pente de l'expression  $Z_r = f(lame)$ , celle-ci s'apparente finalement à un facteur de retard « spatial » par rapport à la hauteur d'eau ayant pénétrée dans le sol. Dès lors on peut considérer :

- Soit  $R' = \frac{1}{\theta + \rho d \cdot K_d}$  le facteur de retard « spatial » par rapport à la lame d'eau cumulée (en fait la distance moyenne parcourue par l'eau),

- Soit  $R = 1 + \frac{\rho d \cdot Kd}{\theta}$  le facteur de retard «temporel» par rapport au temps de séjour moyen de l'eau entre la surface et une profondeur de mesure

Les deux coefficients sont liés par la relation  $R = 1 / \theta \cdot R'$

Afin de déterminer, dans l'expression de  $R'$ , à partir de quelle valeur de  $Kd$ , l'approximation de  $\theta + \rho d \cdot Kd$  par  $\rho d \cdot Kd$  peut être envisagée, nous avons analysé la sensibilité numérique de l'expression  $\frac{1}{\theta + \rho d \cdot Kd}$ . Pour cela, nous fixons tout d'abord la valeur de la masse volumique  $\rho d$  à 1,9. Nous bornons ensuite la teneur en eau  $\theta$  entre ses deux valeurs extrêmes  $\theta_r$  et  $\theta_{sat}$  et faisons varier le coefficient  $Kd$ .

L'évolution de  $R$  (ou  $R'$ ) en fonction du coefficient  $Kd$  pour deux valeurs extrêmes possibles de teneur en eau ( $\theta_r = 0,02$  et  $\theta_{sat} = 0,4$ ), révèle (pour  $R$  par exemple, Figure V-15) que le rôle joué par la teneur en eau diminue assez rapidement (à partir de  $Kd=1$ ). Les deux courbes rejoignant l'asymptote de pente  $\rho d / \theta$ . La profondeur atteinte par le polluant en fonction de la lame d'eau cumulée n'est alors plus qu'essentiellement dépendante de la valeur du produit  $\rho d \cdot Kd$ .

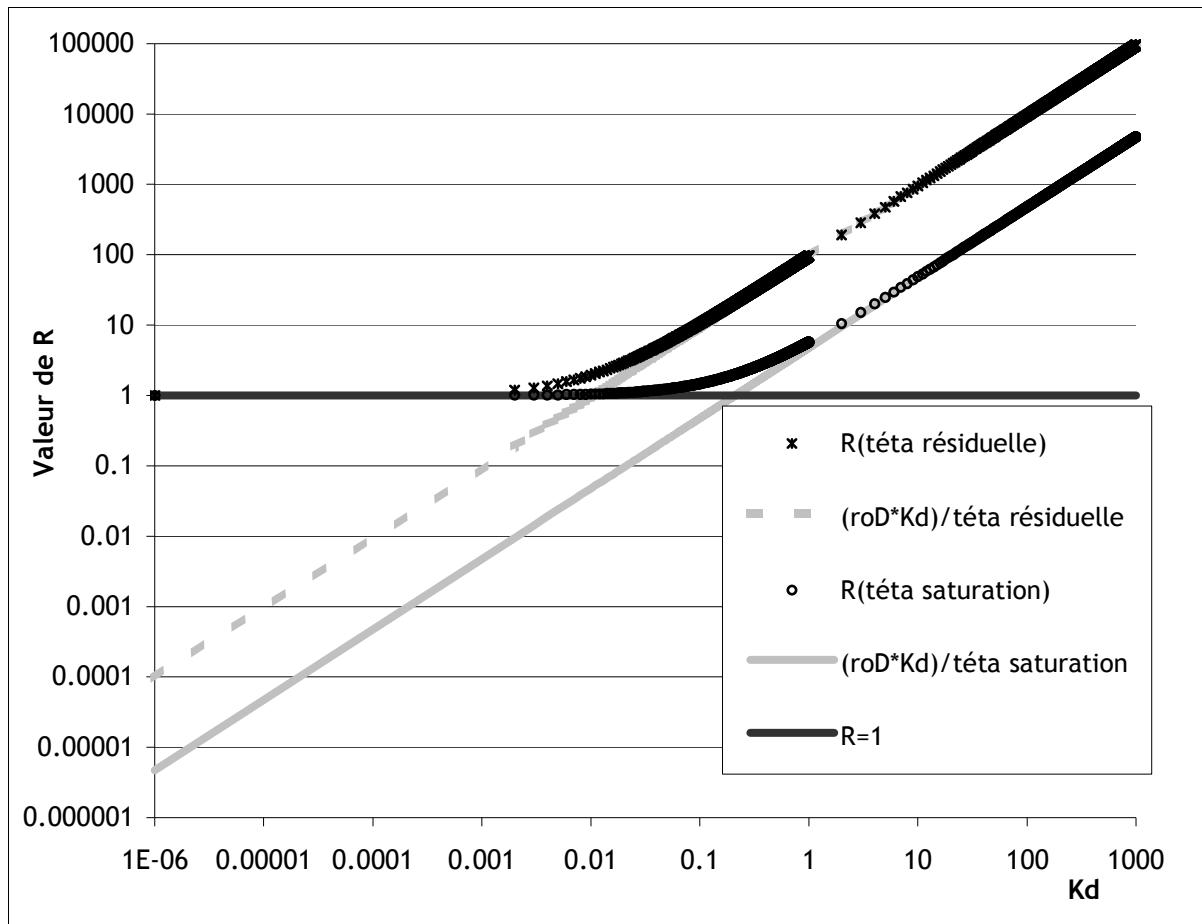


Figure V-15 : Evolution du facteur de retard  $R=1+(pd*Kd/\theta)$  en fonction du coefficient  $Kd$  pour les deux valeurs extrêmes de teneur eau  $\theta_r$  et  $\theta_{sat}$  prises respectivement égales à 0,02 et 0,4. La masse volumique  $pd$  est fixée à  $1,9 \text{ g.cm}^{-3}$ .

Cette analyse permet finalement de constater qu'à partir d'une certaine valeur du coefficient  $Kd$  (ici pour des porosités de l'ordre de 0,3 ou supérieures), écrire que  $\theta+pd*Kd \approx pd*k_d$ , revient à écrire que le facteur de retard  $R = 1+pd*Kd/\theta \approx pd*Kd/\theta$  et revient à considérer la masse de soluté contenu dans la phase liquide comme négligeable devant la masse totale de polluant essentiellement fixée sur la phase solide.

En résumé lorsque le transport d'un soluté répond aux conditions du modèle  $Kd$  et que la valeur de son coefficient  $Kd$  est supérieure à 1, la distance moyenne  $Z_r$  parcourue par le soluté peut être calculé à partir de la hauteur d'eau infiltrée dans le sol et le produit de la masse volumique par le coefficient  $Kd$ . La nature des évènements hydrauliques (saturée, non-saturée, permanent ou transitoires) ne jouant dès lors plus un rôle prépondérant sur la distance moyenne parcourue.

$$Zr \approx \frac{1}{\rho d \cdot Kd} \cdot L \cdot a_{me}$$

Équation V-3

A la question classique, au bout de combien de temps le centre de masse du panache de polluant aura-t-il atteint la profondeur  $z$  ? La réponse n'est donc plus au bout de tant d'heures mais quand il se sera infiltré (pluie efficace) tant de mm d'eau.

Cependant, pour les solutés ayant un coefficient  $Kd$  proche de 1 :

- la teneur en eau dans les expressions précédentes ne peut être négligée, et la distance moyenne parcourue par le soluté dépend de la nature du régime hydraulique,
- il peut exister une relation entre la teneur en eau et le coefficient  $Kd$ .

### **V.3.2 Influence de la concentration de strontium stable et du fond géochimique**

L'influence de la concentration de strontium stable sur le transport du strontium 85 dans les colonnes de sable de Tchernobyl apparaît de façon très significative en la faisant varier dans le système (corrélation inverse entre la valeur du coefficient  $Kd(^{85}\text{Sr})$  et la concentration strontium stable). Sur le terrain du site pilote IRSN à Tchernobyl, la concentration de strontium stable est de l'ordre de  $10^{-6} \text{ mol.L}^{-1}$ , ce qui correspond à un coefficient  $Kd$  de l'ordre de  $25 \text{ L.Kg}^{-1}$  pour le  $^{85}\text{Sr}$ . Dans ces conditions, l'approximation faite précédemment concernant la pente de la droite  $Zr = f(L \cdot a_{me})$  par  $1/\rho d \cdot Kd$  paraît correct et atténuer l'importance due aux variations de teneur en eau.

Parmi les autres éléments majeurs présents dans l'eau souterraine de Tchernobyl, le calcium est le principal compétiteur du strontium concernant l'interaction avec le sable éolien et l'accès aux sites de sorption. Cependant la valeur de sa concentration sur le terrain (entre 4 et 10  $\text{mg.L}^{-1}$  en aval de la tranchée) ne peut faire descendre le coefficient  $Kd$  du strontium jusqu'à des valeurs de l'ordre de 1 (sauf peut être au sein même de la tranchée où la concentration de calcium semble beaucoup plus importante !). L'approximation précédente sur le rôle du changement de degré de saturation reste donc encore valable.

L'influence du fond géochimique sur la migration du transport du  $^{85}\text{Sr}$  dans le sable de Tchernobyl est essentielle puisqu'elle détermine la valeur du coefficient  $K_d$ . Le fond géochimique observé cependant sur le terrain (hormis au sein de la tranchée?) place le  $^{85}\text{Sr}$  dans des conditions dans lesquelles l'influence des transitoires hydrauliques ne joue visiblement pas de rôle fondamental sur la distance moyenne parcourue par le centre de masse du radioélément.

### **V.3.3 Discussion autour de la dispersion**

Avec la profondeur à laquelle le polluant se trouvera dans le sol au bout d'une certaine quantité d'eau infiltrée, une autre problématique du transport de soluté dans les sols est le problème de l'étalement du pic de pollution. Une des causes de cet étalement est la dispersion hydromécanique.

Cette dispersion est généralement calculée avec la relation  $D = \alpha \cdot v + D^*$  faisant intervenir à la fois  $\alpha$ , le coefficient de dispersivité,  $v$  la vitesse de pore (tous deux dépendant de la teneur en eau  $\theta$ ) et  $D^*$  le coefficient de diffusion.

On distingue en général, plusieurs types de régime dispersif selon l'augmentation de la vitesse d'écoulement :

- Un régime essentiellement diffusif aux faibles vitesses,
- Un régime mixte pour des vitesses un peu plus élevées et pour lequel le soluté est à la fois dispersé par l'hétérogénéité des vitesses et la diffusion,
- Un régime dominé par une dispersion cinématique ou hydrodynamique,
- Et un régime turbulent sortant du domaine de validité de cette expression.

Comme il a été rappelé dans le chapitre I, la dispersion d'un soluté pendant son transport en milieu poreux est généralement appréhendé uniquement en terme de dispersion hydrodynamique ( $D = \alpha \cdot v$ ).

Dans nos conditions opératoires, la dispersion du radioélément par diffusion, même pendant les périodes de redistribution des écoulements transitoires, ne semble pas être un processus essentiel auquel le  $^{85}\text{Sr}$  est soumis durant son transport (cf. paragraphe IV.2.3.6). La prise en compte du coefficient de dispersion  $D$  par l'expression  $D = \alpha \cdot v$  apparaît donc acceptable ici.

Mais si cette dispersion dépend de la vitesse de pore  $v$ , la nature de l'écoulement transitoire peut jouer un rôle non négligeable. Le coefficient de dispersivité  $\alpha$  peut dépendre également de la teneur en eau. La question se pose alors d'une dispersion hydrodynamique équivalente lors d'une série de transitoires hydrauliques où la vitesse et la teneur en eau varient en fonction du temps.

Nous avons pour cela étudié l'évolution du moment d'ordre 2 (variance signature de l'étalement) des profils de  $^{85}\text{Sr}$  dans la colonne 8 lors de l'applications des trois types de créneaux (PI1, PF et PI2). Les résultats obtenus sont présentés Figure V-16.

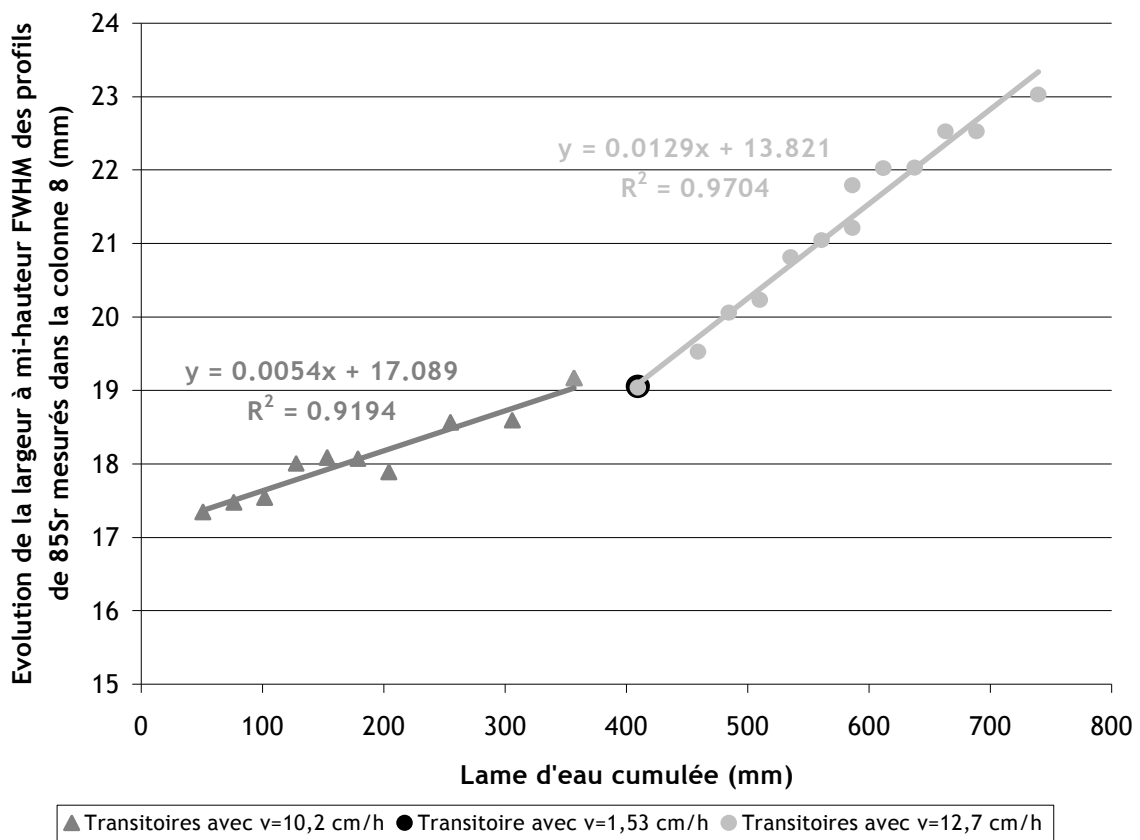


Figure V-16 : Evolution de la largeur à mi-hauteur FWHM des profils de  $^{85}\text{Sr}$  dans la colonne en fonction de la lame d'eau cumulée - Présence de rupture de pente au niveau des changements de type de transitoire appliqué (différentes vitesses de pore).

L'analyse du graphique obtenu révèle effectivement des tendances différentes selon le type de créneau appliqué. On remarque notamment :

- d'une part que l'évolution du moment d'ordre 2 lors de l'application d'une série d'écoulements transitoires identiques varie linéairement avec la lame d'eau.

- d'autre part que pour les deux séries de créneaux les pentes varient significativement.

On peut proposer de faire une étude future de sensibilité à ce mécanisme, notamment en regardant si l'étalement du pic a une influence significative sur l'abattement de la valeur du maximum de concentration au pic.

#### **V.3.4 Evolution à cote fixe**

Les phénomènes mesurés lors du suivi à cote fixe de l'activité totale du radioélément durant l'application des transitoires sont multiples (notamment l'évolution simultanée des concentrations en phase liquide et solide). Cependant, si l'on reprend l'expression de la concentration totale de soluté dans un élément de volume unitaire :  $C_t = \theta \cdot C_{aq} + \rho d \cdot C_s$  et que l'on considère les hypothèses du modèle du  $K_d$ , on peut écrire  $C_t = \theta \cdot C_{aq} + \rho d \cdot K_d \cdot C_{aq}$  soit  **$C_t = C_{aq} (\theta + \rho d \cdot K_d)$** .

Etant donné ce que nous avons démontré précédemment concernant l'approximation possible de  $\theta + \rho d \cdot K_d$  par  $\rho d \cdot K_d$ , pour nos conditions opératoires, la mesure faites de  $C_t$  à cote fixe nous donne finalement, si l'on considère que le coefficient  $K_d$  ne dépend pas ou très peu de la teneur en eau, une mesure de la concentration de traceur en phase solide à  $\rho d$  près.



## V.4 Résumé et conclusions sur l'approche opérationnelle

---

---

Comme on l'a vu, les conditions théoriques et pratiques d'application d'une approche très simplifiée « opérationnelle », avec la prise en compte d'un coefficient  $K_d$  et de l'estimation d'une pénétration dans le sol d'un pic de pollution à partir d'une lame d'eau « efficace » sont très restrictives et doivent être respectées.

Le coefficient  $K_d$  introduit dans les modèles de transport peut être déterminé :

- indifféremment par la méthode « batch » ou colonne si les conditions géochimiques correspondent à la partie linéaire de l'isotherme de l'élément pour le système étudié,
- 6. uniquement par la méthode réacteur ouvert (condition dynamique faisant intervenir la pente de la tangente  $dC_s/dC_{aq}$  à l'isotherme  $C_s=f(C_{aq})$  et conditions géochimiques contrôlées) si les concentrations se situent au-delà de la zone de linéarité de l'isotherme de l'élément pour le système étudié et s'il n'y a qu'un seul isotope présent,
- 7. par un réacteur ouvert et en considérant la pente de la droite passant par l'origine pour un isotope en élément trace dans un fond contenant l'isotope stable.

Pour des raisons de structure du milieu poreux et probablement aussi notamment de l'influence du rapport  $m/v$ , la détermination par traçage sur colonne paraît plus représentative des conditions naturelles sur le terrain.

Dans la continuité du travail de Szenknect (2003), notre étude tend par ailleurs à montrer qu'effectivement la valeur du coefficient de distribution du  $^{85}\text{Sr}$  sur le sable éolien de Tchernobyl (ou tout autre soluté dont l'interaction avec le milieu poreux se caractérise par un coefficient  $K_d$  assez fort) ne semble pas être modifiée par le degré de saturation dans lequel le soluté migre. La valeur mesurée sur colonne de laboratoire en condition hydraulique saturée pouvant donc être utilisée en non saturée à partir du moment où les conditions géochimiques ne changent pas (donc a priori faux si un déversement d'eau contenant un soluté compétiteur survient par exemple !).

Pour ce qui concerne les **processus hydrodynamiques** de la zone non saturée, l'approche opérationnelle peut prendre en compte un « flux d'eau moyen » (quotidien, mensuel ou annuel selon les données disponibles et selon le temps caractéristique étudié.

Cette donnée est relativement accessible à partir de calculs sur des données telles que la pluie totale, l'évapotranspiration et le ruissellement, pour obtenir enfin la pluie efficace (celle s'infiltrant réellement dans le sol).

Cette approche permet ainsi de simplifier également les équations de transport en supposant, de plus, que la teneur en eau est constante.

Dés lors, en appliquant à la fois l'approche opérationnelle à la géochimie ( $K_d$  constant) et à l'hydrodynamique (flux et teneur en eau moyenne constants), le **transport d'un soluté réactif en zone non saturé** est souvent appréhendé, de façon globale, par l'intermédiaire d'un **facteur de retard R** par rapport à la vitesse de migration de l'eau, définit de la façon suivante :

$$R = 1 + \frac{\rho d \cdot K_d}{\theta}$$

Ce facteur de retard appliqué à la profondeur de pénétration du soluté réactif par rapport à la profondeur de pénétration de la lame d'eau efficace se réduit à :

$$R' = \frac{1}{\rho d \cdot K_d}$$

**lorsque la valeur du coefficient  $K_d$  est largement supérieure à 1.**

Pour ce qui concerne le transfert du  $^{85}\text{Sr}$  dans la zone non saturée du sol (hors tranchée) du site de Tchernobyl, l'hypothèse de réversibilité semble vérifiée et l'approche par  $K_d$  et lame d'eau paraît correcte car rares sont les situations dans lesquelles le coefficient  $K_d$  du Strontium 85 s'approche de l'unité et dans lesquelles la géochimie est profondément modifiée.



# Conclusions & Perspectives



## **Conclusions & Perspectives**

### **Principales conclusions**

L'objectif de ce travail était d'étudier la migration d'un radionucléide (le strontium) dans un milieu poreux (le sable éolien de Tchernobyl) soumis à un régime hydraulique transitoire non saturé.

Nous avons choisi pour cela de réaliser des expériences de transport à l'échelle de la colonne de laboratoire afin de maîtriser les conditions opératoires. L'utilisation de colonnes, soumises à des transferts de traceurs de l'eau et de marqueurs des solutés permet de travailler sur un système simplifié se rapprochant des conditions de terrain, et de découpler les phénomènes impliqués par un contrôle précis des conditions hydro-physico-chimiques.

Une partie des résultats confirme les travaux précédents de S. Szenknect et les prolonge avec des essais complémentaires à géochimie constante et différentes valeurs des concentrations en strontium stable. Dans cette partie on peut retenir :

- les traçages au tritium en sol non saturé , en écoulement permanent, sur des colonnes courtes, font ressortir la présence d'eau immobile, avec un échange par diffusion moléculaire entre les fractions d'eau. Ce phénomène peut être très important pour le transport d'un soluté réactif puisqu'il ajoute une cinétique physique. Cependant, certaines de nos expériences montrent que cet effet disparaît lorsque le temps caractéristique de l'échange devient faible devant le temps de séjour de l'eau (colonne longues, vitesses d'écoulement faibles).
- le fond géochimique aqueux peut influencer fortement sur le transport réactif, tant pour la mise en équilibre entre solutés et phase solide que pour la compétition (réactions homogènes et hétérogènes) entre espèces chimiques dissoutes et solutés étudiés. La concentration en strontium stable (et/ou en calcium) change le coefficient de partage du strontium 85 qui diminue (entre environ 50 et 10 L.kg<sup>-1</sup>) lorsque les concentrations en Sr stable augmentent (entre environ 4.5 10<sup>-8</sup> M et 10<sup>-4</sup> M).
- le coefficient de partage du strontium 85 et du strontium stable sont proches pour un même fond géochimique. Ce même coefficient de partage, relatif au sol non saturé, peut être déduit de mesures en conditions saturées. La détermination expérimentale du coefficient

de partage du soluté peut être faite de manière statique (batch), ou dynamique (réacteur ouvert ou colonne). Les mesures en dynamique sont préférables, car on peut maîtriser la géochimie de l'eau, et s'affranchir de biais difficilement contournables comme les équilibres géochimiques entre le sol et les solutés. Les essais sur colonne se rapprochent le plus de la réalité du terrain, notamment par le rapport entre volume d'eau et volume de sol.

- les systèmes expérimentaux développés permettent d'établir des écoulements contrôlés et des transferts de solutés réactifs en sol non saturés et la méthodologie proposée est adaptée au découplage des mécanismes.
- plusieurs modélisations sont possibles, selon le degré de complexité des conditions imposées.

Une autre partie des résultats est totalement nouvelle et concerne les écoulements transitoires, avec successions d'infiltrations et drainages.

Dans un premier temps, nous avons caractérisé, grâce au dispositif expérimental d'auscultation gammamétrique, les propriétés hydrodynamiques du milieu poreux. Les courbes de rétention d'eau  $h(\theta)$  et de conductivité hydraulique  $K(\theta)$  sont représentées par les fonctionnelles de Brooks & Corey (1964) et/ou Van Genuchten (1981). Le calage des coefficients des fonctionnelles s'est révélé satisfaisant pour reproduire, par modélisation, les écoulements d'eau transitoires non saturés.

Pour ce qui concerne la migration du strontium en condition hydraulique transitoire, les conditions initiales et aux limites choisies correspondent à un dépôt initial de  $^{85}\text{Sr}$  (« Dirac ») à la surface du sol entraîné par une succession de pluies à flux constant espacées par une redistribution de l'eau dans le sol. Les expériences sur colonnes montrent que les données mesurées, (avancée et dispersion du profil d'activité totale mesuré le long de la colonne) de manière non destructive, à l'aide du banc gammamétrique, peuvent être reproduites très correctement en utilisant un modèle de type convection/dispersion CDE (absence d'eau immobile), un coefficient de partage  $K_d$  constant (correspondant à celui mesuré en condition saturée, par traçages sur colonnes, effectués dans les mêmes conditions géochimiques), une dispersivité  $\alpha$  constante (calée sur les expériences « transitoires »). On obtient de très bons résultats :

- soit en modélisant l'application des créneaux d'eau d'alimentation en haut de colonne, avec alternance d'infiltrations et de drainage,
- soit en utilisant un flux constant reproduisant une lame d'eau équivalente à la somme des créneaux, la valeur de la teneur en eau moyenne fictive du sol étant peu sensible.

La profondeur  $Z_r$  du centre de masse du profil de  $^{85}\text{Sr}$  varie linéairement avec la lame d'eau appliquée sur le créneau initial :  $Z_r \approx \frac{1}{\rho d \cdot K_d} \cdot \text{lame}$ .

Cette relation permet de prédire la profondeur du soluté sans avoir à déterminer la teneur en eau équivalente d'un épisode hydraulique transitoire. Ce comportement est évidemment dépendant de la nature de l'interaction entre le  $^{85}\text{Sr}$  et le sol. Dans l'hypothèse d'une interaction instantanée et réversible, nous avons fait un calcul de sensibilité à la valeur du coefficient  $K_d$ . Il apparaît que cette relation est acceptable pour des coefficients de distribution supérieurs à  $1 \text{ L} \cdot \text{Kg}^{-1}$ .

La valeur de la pente de la relation  $Z_r \approx \frac{1}{\rho d \cdot K_d} \cdot \text{lame}$ , soit  $R' = \frac{1}{\rho d \cdot K_d}$ , semble par ailleurs une bonne alternative « opérationnelle » à l'estimation du facteur de retard. Elle est basée sur la mesure du retard spatial qu'a un soluté réactif par rapport à un traceur de l'eau du sol (que l'on peut estimer à partir de l'apport en lame d'eau). La question de l'estimation de la profondeur de pénétration du  $^{85}\text{Sr}$  n'est plus de savoir au bout de combien de temps le soluté a atteint telle profondeur mais de savoir qu'il a atteint la profondeur  $Z_r$  lorsque tant de mm d'eau se sont infiltrés.

**Cette approche opérationnelle** est simple et très séduisante. Elle présente, toutefois, l'inconvénient majeur de faire appel à un coefficient de partage dépendant des conditions d'essai, via la géochimie de l'eau.

Nous avons alors mis en œuvre une approche couplée géochimie/transport, qui permet de prendre en compte d'autres éléments chimiques présents dans la solution d'alimentation et des réactions d'échanges cationiques sur les sites interactifs des surfaces solides. Des essais spécifiques sur colonnes simples ont permis de vérifier que certaines constantes thermodynamiques disponibles dans la littérature sont correctes et d'identifier les constantes propres à notre système (CEC et constantes relatives aux échanges du strontium). La reproduction, par le calcul, des variations de



concentrations en strontium et en cations majeurs, est très satisfaisante pour les essais sur petites colonnes saturées, en écoulement d'eau permanent. Ceci est vrai pour toutes les concentrations en strontium stables explorées pour le fond géochimique. Cette modélisation, extrapolée aux écoulements transitoires (en conservant les mêmes valeurs des coefficients) est également très satisfaisante. Enfin, la modélisation a pu être utilisée pour faire une analyse rapide de sensibilité au fond géochimique. Les résultats montrent que, pour nos conditions exploratoires, un changement de géochimie, notamment sur les concentrations d'ions compétiteurs tels que le calcium ou le strontium stable, perturbe de façon beaucoup plus significative, pour un apport en eau équivalent, le transport du  $^{85}\text{Sr}$  que des changements de degré de saturation sous forme de cycles d'infiltrations et de redistributions.

**Cette approche plus mécaniste** possède un domaine de validité beaucoup plus large et est plus robuste que l'approche précédente. Elle évite de mesurer les variations du coefficient de partage (ou du facteur de retard) en fonction de plusieurs concentrations d'éléments chimiques compétitifs. Si les mécanismes prépondérants intervenant dans les réactions chimiques en solution et en surface du solide poreux ont été correctement identifiés, les coefficients (constantes thermodynamiques) représentatifs des réactions sont intrinsèques au milieu et constants. Il est également possible d'expliquer les éventuelles différences de valeurs des facteurs de retard inhérentes au mode de mesure. Elle nécessite la mesure de concentrations d'éléments chimiques autres que celui étudié (par exemple strontium stable, cations et anions majeurs dans notre étude).

Pour prédire le devenir d'un radionucléide épandu en surface d'un sol, il est extrêmement difficile de préconiser, *a priori*, une des deux approches (opérationnelle ou mécaniste), puisqu'il s'agit de concilier différentes contraintes, parfois contradictoires (telles que moyens analytiques, moyens expérimentaux, disponibilité de logiciels, compétences) et que l'on cherche à mettre en œuvre la modélisation la plus significative, à minima de coefficients à déterminer. On peut, toutefois, recommander de confronter le plus tôt possible résultats expérimentaux et simulations issues de modèles, pour invalider (éventuellement) des hypothèses erronées retenues lors de la conceptualisation des mécanismes prépondérants.

### Perspectives

#### Dispositif expérimental :

Le banc avec mesures gammamétriques non destructives, *in situ*, de la teneur en eau et de concentrations en radionucléides émetteurs gamma est un outil original, novateur et opérationnel . Il doit être utilisé pour compléter et pour prolonger l'étude de transferts de radionucléides en sols non saturés soumis à des écoulements non permanents. On peut, notamment, utiliser des éléments chimiques plus mobiles (facteur de retard plus proches de l'unité) et/ou plus complexes (par exemple à différents degrés d'oxydation).

Quelques améliorations devront être apportées au banc :

- modifier la condition à la limite supérieure pour éviter la modification de la masse volumique sèche du sol au cours des infiltrations successives, tout en maintenant une possibilité d'évaporation,
- modifier la condition à la limite inférieure pour pouvoir simuler des variations de niveau de l'aquifère tout en permettant la collecte d'un traceur de l'eau,
- modifier la programmation du pilotage du dispositif de mesure et d'acquisition des données pour assouplir les conditions de mesures (intervalles de déplacements, position des mesures, temps de comptages) pour adapter la densité spatio-temporelle des données aux profondeurs et aux temps les plus intéressants.

Le reste de l'équipement (batchs, petites colonnes, réacteurs ouverts) sont également à conserver et utiliser.

#### Quelques questions scientifiques induites :

Les réactions chimiques retenues sont hautement probables, et pour la plupart sont décrites et testées dans plusieurs publications. Les modélisations que nous avons faites laissent penser qu'elles ne sont pas irréalistes. Il serait souhaitable de confirmer leur réalité en mesurant la spéciation du strontium, notamment sur les surfaces solides, par des méthodes spectrométriques. C'est un problème délicat, car les interactions sur le solide ont lieu préférentiellement sur la fraction granulaire fine (argiles, matière organique) qu'il faut séparer et qui est rare.

Une étude en laboratoire permet de résoudre des problèmes, non solvables in situ, grâce à la possibilité de contrôler les conditions d'essai. Ces conditions restent éloignées de la réalité du terrain et il faut s'en rapprocher progressivement. Ainsi il serait souhaitable d'étudier l'impact de l'évaporation sur la pénétration du pic de  $^{85}\text{Sr}$ . En effet, la reprise par évapotranspiration à Tchernobyl est de l'ordre de 50% de la pluie, en moyenne annuelle. L'évaporation est susceptible de ralentir fortement l'avancement du pic de pollution, non seulement par un apport plus faible d'eau (déjà pris en compte dans cette étude), mais aussi par remontée capillaire et par re-concentration par évaporation. Notre outil expérimental peut facilement être adapté, pour permettre une évaporation significative pendant les phases de redistribution. D'autre part, l'hypothèse de conditions géochimiques constantes dans l'espace et le temps n'est pas toujours vérifiée sur le terrain, les modifications des conditions de pH, de concentrations ou des conditions d'oxydo-réduction du milieu peuvent jouer fortement, soit directement soit indirectement, sur les équilibres géochimiques et donc sur les propriétés de rétention des solutés. Ceci se traduit in fine, par des variations locales des vitesses et des distances de transport des polluants.

D'autres radionucléides doivent être étudiés, pour tester la pertinence de la méthodologie utilisée, pour préciser le domaine de validité des modèles employés et pour définir des classes de polluants représentatifs.

## **REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES**



## **REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES**

- Allègre C.J., Poirier J.P., Humler E., Hofmann A.W., 1995.** The chemical composition of the Earth. Earth and Planetary Science Letters, Volume 134, Issues 3-4, Pages 515-526.
- Ames L.L. and Rai D., 1978.** Radionuclide interactions with soil and rock media. Volume I: Processes influencing radionuclide mobility and retention, element chemistry and geochemistry, and conclusions and evaluation. EPA 520/6-78-007A, prepared for the U.S. Environmental Protection Agency by the Pacific Northwest Laboratory, Richland, Washington.
- Appelo C.A.J. and Postma D., 2005.** geochemistry, Groundwater and Pollution. 2<sup>nd</sup> Edition. Taylor and Francis Group, 649 p.
- Ardois C., Collin J., Mallet C., Roujou J.L., 2002.** Caractérisation du sable éolien de Tchernobyl utilisé pour les études de sorption. Note technique IRSN/DPRE/SERGD n°02-72.
- ATSDR, 2004.** Toxicological profile for strontium. Agency for Toxic Substances and Disease registry, US Department for Health and Human Services, Atlanta (USA), 387 p.
- Barthes V., Alincant D., Berne Ph., Gousseau G., Szenknect S., 2003.** Chernobyl Pilote site Project. 2002 Yearly Report. Rapport technique DTEN/DR/2003/049/VB-DB.
- Bear J., 1972.** Dynamics of Fluids in Porous Media. American Elsevier. New-York.
- Berne Ph., Blet V., 2001.** Correcting the results of radioactive tracer experiments for the effects of the detection chain. Récents progrès en génie des procédés 15-2001 : Tracers and tracing methods. J.P. Leclerc (ed.), Lavoisier Technique et Documentation, Paris.
- Boltz R.E., Tuve G.L., 1976.** CRC Handbook of tables for Applied Engineering Science. 2nd Edition. Boca Raton (USA): CRC Press, Inc., 1976.
- Bond W.J., Wierenga P.J., 1990.** Immobile water during solute transport in unsaturated sand columns. Watre Resour. Res. 26 (10), 2475-2481.
- Bossew P., Gastberger M., Gohla H., Hofer P. and Hubmer A., 2004.** Vertical distribution of radionuclides in soil of a grassland site in Chernobyl exclusion zone. J. Environ. Radioactiv., 73(1):87-99.
- Brady P.V., Spalding B.P., Krupka K.M., Waters R.D., Zhang P., Borns D.J., Brady W.D., 1999.** Site screening and technical guidance for monitored natural attenuation at DOE sites. SAND99-0464, Sandia National Laboratories, Albuquerque, New Mexico.
- Brooks R.H. and Corey C.T., 1964.** Hydraulic Properties of Porous Media. Hydrol. Paper 3. Colorado State University, Fort Collins.
- Buckingham E., 1907.** Studies on the movement of soil moisture. Bulletin 38, U.S. Department of Agriculture, Bureau of Soils, Washington, DC.
- Bugaï D., Dewiere L., Kashparov V.A., Ahamdach N., 2002.** Strontium-90 transport parameters from source term to aquifer in the Chernobyl Pilot Site. Radioprotection-Colloques, 37-C1, 11-16.
- Bugaï D., Skalskyy O., Matoshko A., Dzhepo S., Olegov D., Kubko Y., Kurilo S., Zvarich S., 2001.** Chernobyl Pilot Site Project. 2000 IGS Yearly Report.

- Bunde R.L., Rosentreter J.J., Liszewski M.J., 1998.** Rate of strontium sorption and the effects of variable aqueous concentrations of sodium and potassium on strontium distribution coefficients of a superficial sediment at the Idaho National Engineering Laboratory, Idaho. *Environ. Geol.* 34 (2-3), 135-142.
- Burdine N.T., 1953.** Relative permeability calculations from pore size distribution data. *Petr. Trans., Am. Inst. Mining Metall. Eng.* 198, 71-77.
- Capo R.C., Stewart B.W. et Chadwick O.A., 1998.** Strontium isotopes as tracers of ecosystem processes : theory and methods. *Geoderma* : 82 (1-3), 197-225.
- Coats K.H. and Smith B.D., 1964.** Dead-end pore volume and dispersion in porous media. *Soc. Pet. Eng. J.* 4, 73-84.
- Comegna V., Coppola A., Sommella A., 2001.** Effectiveness of equilibrium and physical non-equilibrium approaches for interpreting solute transport through undisturbed soil columns. *J. Contam. Hydrol.* 50, 121-138.
- Darcy H., 1856.** Les fontaines publiques de la ville de Dijon. Dalmont (ed.). Paris.
- Davis J.A. et D.B. Kent, 1990.** Surface complexation modeling in aqueous geochemistry: in *Mineral-Water Interface Geochemistry*, M.F. Hochella and A.F. White, eds., *Reviews in Mineralogy*, vol. 23, p.177-260.
- De Smedt F., Wierenga P.J., 1984.** Solute transfer through columns of glass beads. *Water Resour. Res.* 20, 225-232.
- Devol-Brown I., Roujou J.L., Stammose D., 2002.** Etude de la sorption du césium et du strontium sur du sable de Prypyiat Zaton (Tchernobyl). Rapport IRSN/DPRE/SERGD n°02-06.
- Dewière L., 2002.** Validating a Pilot Plan in the Chernobyl Exclusion zone. Area by Means of Experiments. Report 2000-2001. Rapport IRSN/DPRE/SERGD n°02-36.
- Dewiere L., Bugai D., Grenier C., Kashparov V., Ahamdach N., 2004.** <sup>90</sup>Sr migration to the geosphere from a waste burial in the Chernobyl exclusion zone. *J. Env. Rad.*, 74 (1-3), p.139-150.
- Dickin A.P., Exley R.A., Smith B.M., 1980.** Isotopic measurement of Sr and O exchange between meteoric-hydrothermal fluid and the Coire Uaigneich Granophyre, Isle of Skye, N.W. Scotland. *Earth and Planetary Science Letters*, Volume 51, Issue 1, Pages 58-70.
- Duguid J.O. and Reeves M., 1976.** Comparison of mass transport using average and transient rainfall boundary conditions. Proceedings of international symposium on finite elements in water resources; 12 Jul 1976; Princeton, NJ, USA.
- EPA 402-R-99-004A, 1999.** Understanding variation in partition coefficient,  $K_d$ , values. Volume I: The  $K_d$  model, methods of measurement, and application of chemical reaction codes.
- EPA 402-R-99-004B, 1999.** Understanding variation in partition coefficient,  $K_d$ , values. Volume II: Review of geochemistry and available  $K_d$  values for Cadmium, Cesium, Chromium, Lead, Plutonium, Radon, Strontium, Thorium, Tritium (<sup>3</sup>H), and Uranium..
- Faure G., Bowman J.R., Elliot D.H., 1979.** The initial <sup>87</sup>Sr/<sup>86</sup>Sr ratios of the Kirwan volcanics of Dronning Maud Land: Comparison with the Kirkpatrick Basalt, Transantarctic Mountains. *Chemical Geology*, Volume 26, Issues 1-2, Pages 77-90.
- Fesch C., Lehmann P., Haderlein S.B., Hinz C., Schwarzenbach R.P., Flüeler H., 1998b.** Effect of water content on solute transport in a porous medium containing reactive micro-aggregates. *J. Contam. Hydrol.* 33, 211-230.

- Fesch C., Simon W., Haderlein S.B., Reichert P., Schwarzenbach R.P., 1998a.** Nonlinear sorption and nonequilibrium solute transport in aggregated porous media: Experiments, process identification and modeling. *J. Contam. Hydrol.* 33, 373-407.
- Fevrier L., 2001.** Transfert d'un mélange Zn-Cd-Pb dans un dépôt fluvio-glaciaire carbonaté. Approche en colonnes de laboratoire. Thèse de doctorat de l'Institut Nationale des Sciences Appliquées de Lyon.
- Gaidi L., 2002.** Transfert par infiltration de l'eau et du soluté dans les sols non saturés – Utilisation de la méthode TDR (Time Domain Reflectometry). Thèse présentée à l'Institut National des Sciences Appliquées de Lyon pour le grade de docteur d'état.
- Galle P., 1997. Toxiques nucléaires. Masson, Paris. 400 p.
- Gaudet J.P., 1978.** Transferts d'eau et de soluté dans les sols non saturés. Mesures et simulation. Thèse présentée à l'Université Scientifique et Médicale et l'Institut National Polytechnique de Grenoble pour le grade de docteur d'Etat.
- Gaudet J.P., Jegat H., Vachaud G., Wierenga P.J., 1977.** Solute transfer, with exchange between mobile and stagnant water, through unsaturated sand. *Soil Sci. Soc. Am. J.* 41 (4), 665-671.
- Guillou P., 2001.** Etude bibliographique des coefficients de distribution (Kd) du strontium. Note technique IPSN/DPRE/SERGD n°01-10.
- Guillou P., Geiss O., 2000.** Etude de la chimie et de la radiologie d'échantillons d'eaux prélevés en octobre 1998, mai 1999 et octobre 1999 dans des piézomètres situés à proximité de la tranchée 22 sur le Site Pilote de Tchernobyl. Note technique IPSN/DPRE/SERGD n°00-08.
- IRSN, 2003.** Tchernobyl, 17 ans après. Chapitre 3 : L'environnement de Tchernobyl et la gestion des territoires contaminés. Document de l'Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire.
- Ishakoğlu A., Baytas A.F., 2002.** Measurement and evaluation of saturations for water, ethanol and a light non-aqueous phase liquid in a porous medium by gamma attenuation. *Appl. Rad. Iso.* 56, 601-606.
- Izrael Y.A. and Rovinskii F.Y., 1970.** Hydrological uses of isotopes produced in underground nuclear explosions for peaceful purposes. UCRL-Trans-10458, IAEA, Vienna, Austria.
- Jackson R.F. and Inch K.J., 1983.** Hydrogeochemical processes affecting the migration of radionuclides in a fluvial and aquifer at the Chalk River Nuclear Laboratories. *Environ. Sci. Technol.* 17, 231-237.
- Jeong C.H., Kim C.S., Kim S.J., Park S.W., 1996.** Affinity of radioactive cesium and strontium for illite and smectite clay in the presence of groundwater ions. *J. Env. Sci. Health* 31 (9), 2173-2192.
- Jury W.A. and Roth K., 1990.** Transfer Functions and Solute Movement Through Soil: Theory and Applications. Birkhäuser, Basel, Switzerland.
- Jury W.A., Sposito G., White R.E., 1986.** A transfert function model of solute transport through soil. 1. Fundamental concepts. *Water Resour. Res.* 22(2), 243-247.
- Kamra S.K., Lennartz B., Van Genuchten M.Th., Widmoser P., 2001.** Evaluating non-equilibrium solute transport in small soil columns. *J. Contam. Hydrol.* 48, 189-212.
- Kokotov Y.A. and Popova R.F., 1962.** Sorption of long-lived fission products by soils and argillaceous minerals III: Selectivity of soils and clays towards <sup>90</sup>Sr under various conditions. *Soviet Radiochemistry* 4, 292-297.



- Kool J.B. and Parker J.C., 1987.** Development and evaluation of closed-form expressions for hysteretic soil hydraulic properties. *Water Resour. Res.* 23(1), 105-114.
- Koss V. and Kim J.I., 1990.** Modeling of strontium sorption and speciation in a natural sediment - groundwater system. *J. Contam. Hydrol.* 6, 267-280.
- Kryshev II, Romanov G.N., Chumichev V.B., Sazykina T.G., Isaeva L.N. and Ivanitskaya M.V., 1998.** Radioecological consequences of radioactive discharges into the Techa River on the Southern Urals. *J. Environ. Radioactiv.* 38(2):195-209.
- Lagneau V., 2003.** R2D2 – Reactive Transport and Waterflow on an Odd Dimension 2 grid. Notice technique et vérification. Rapport Technique Ecole des Mines de Paris, Centre d'Informatique Géologique LHM/RD/03/05.
- Lefevre F., Sardin M., Schweich D., 1993a.** Migration of strontium in clayey and calcareous sandy soil: precipitation and ion exchange. *J. Contam. Hydrol.* 13, 215-229.
- Lide D., 1999.** Handbook of chemistry and physics. 79 th. edition. Chemical Rubber Company CRC press, Florida (USA).
- Limousin G., 2007.** Transfert de solutés réactifs dans la zone non-saturée des sols à différentes échelles d'observation. Thèse présentée à l'Université Joseph Fourier de Grenoble I pour l'obtention du grade de docteur d'état..
- Limousin G., Gaudet J.P., Charlet L., Szenknect S., Barthés V. et Krimissa M., 2007.** Sorption isotherms: A review on physical bases, modelling and measurement. *Applied Geochemistry*, vol.22, pp. 249-275.
- Maraqqa M.A., Wallace R.B., Voice T.C., 1997.** Effects of degree of water saturation on dispersivity and immobile water in sandy soil columns. *J. Contam. Hydrol.* 25, 199-218.
- Marcos L., 2001.** Etude expérimentale et modélisation du transfert du zinc et du plomb dans des milieux sableux modèles. Thèse présentée à l'Ecole Polytechnique de l'Université de Nantes et à l'Ecole des Mines de Nantes pour le grade de docteur d'état.
- Mazet P., 2005** - Influence des écoulements transitoires sur la mobilité du strontium dans les sols partiellement saturés en eau, rapport d'avancement n°1, Rapport IRSN/DEI/SARG/2005-020.
- Mazet P., 2006** - Influence des écoulements transitoires sur la mobilité du strontium dans les sols partiellement saturés en eau, rapport d'avancement n°2, Rapport IRSN/DEI/SARG/2006-004.
- Meyer-Windel S., Lennartz B. and Widmoser P., 1999.** Bromide and herbicide transport under steady-state and transient flow conditions. *European Journal of Soil Science*, Volume 50, Number 1, pp. 23-33(11).
- Moyes L.N., Bunker D.J., Smith J.T., Livens F.R., Hughes C.R., Hilton J., 1998.** Sorption kinetics of uranium-238, neptunium-237, caesium-134 and strontium-85 on a glacial deposit. *Mat. Res. Soc. Proc.* 506, Symposium sept. 28 – oct., Davos, Material Research Society.
- Mualem Y. and Dagan G., 1978.** Hydraulic conductivity of soils : unified approach to statistical models. *Soil Sci. Soc. Am. J.* 42, 392-395.
- Mualem Y., 1976.** A new model for predicting the hydraulic conductivity of unsaturated porous media. *Water Resour. Res.* 12, 513-522.
- Nuclides-2000, 1999.** An electronic chart of the nuclides. Institute for Transuranium Elements, Joint research center, European commission.

- Ohnuki T., 1994b.** Sorption characteristics of strontium on sandy soils and their components. *Radiochimica Acta* 64, 237-245.
- Pais I. and Benton-Jones J., 1997.** Handbook of Trace Elements. St Lucie Press, Boca-Raton, Florida, USA.
- Pallud C., 2000.** Etude multi-échelle du fonctionnement hydrodynamique et microbiologique d'un sol soumis à un apport de solutés : Application à l'ammonium et au 2.4D. Thèse Mécanique : Université Joseph Fourier – Grenoble I, 256 p.
- Pang L., Goltz M., Close M., 2003.** Application of the method of temporal moments to interpret solute transport with sorption and degradation. *J. Contam. Hydrol.* 60, 123-134.
- Parker J.C. and Van Genuchten M.Th., 1984b.** Determining transport parameters from laboratory and field tracer experiments. *Virginia Agricultural Experiment Station* 84 (3), 1-49.
- Parkhurst D.L. and Appelo C.A.J., 1999.** User's guide to PHREEQC (version2) – A computer program for speciation, batch-reaction, one-dimensional transport, and inverse geochemical calculations. U.S.G.S. Water-Resources Report 99-4259.
- Porro I., Newman M.E., Dunnivant F.M., 2000.** Comparison of batch and column methods for determining strontium distribution coefficient for unsaturated transport in basalt. *Environ. Sci. Technol.* 34, 1679-1686.
- Rambow J. and Lennartz B., 1993.** Laboratory Method for Studying Pesticide Dissipation in the Vadose Zone. *Soil Sci. Soc. Amer. J.* 57:1476–1479.
- Reardon E.J., 1983.** *Geochim. Cosmochim. Acta* 47, 1917-1922.
- Renaud P., Beaugelin C., Maubert H. and Ledenvic P., 1999.** Les retombés en France de l'accident de Tchernobyl : Conséquences radioécologiques et dosimétriques. EDP Sciences, Paris, 146 p.
- Richards L. A., 1931.** Capillary conduction of liquids through porous media. *Physics* 1, 318-333.
- Roussel-Debet S. et Colle C., 2005.** Comportement de radionucléides (Cs, I, Sr, Se, Tc) dans le sol : proposition de valeurs de Kd par défaut. *Radioprotection*, 40(2):203-229.
- Sandman Todd M., 1996.** An Experimental Study of Relationships Between Transport Parameters and Flow Characteristics for Transient and Steady-State Flow in an Unsaturated Sand. Thesis submitted for the degree of Master Of Science in Civil Engineering at the Civil and Environmental Engineering Department, Michigan Technological University, Octobre 1996.
- Schoen R., Gaudet J.P., Bariac T., 1999.** Preferential flow and solute transport in a large lysimeter, under controlled boundary conditions. *J. Hydrol.* 215, 70-81.
- Scott P.S., Farquhar G.J. and Kouwen N., 1983.** Hysteresis effects on net infiltration, *Advances on infiltration*, Publ. 11-83, pp.163-170, Am. Soc. Agri. Eng., St. Joseph, Mich.
- Selker J.S., Keller C.K. and McCord J.T., 1999.** *Vadose Zone Processes*. Lewis Publishers, Boca Raton, London, New York, Washigton, D.C.
- Simunek J., Sejna M. et Van Genuchten M. Th., 1998.** Hydrus-1D Software Package for simulating the One-Dimensional Movement of Water, Heat and Multiple Solutes in Variably-saturated Media – US Salinity Laboratory, Agricultural Research Service, US Department of Agriculture, Riverside, California.
- Sposito G., 1984.** *The surface chemistry of soils*. Oxford University Press, New York.
- Sposito G., 1989.** *The chemistry of soils*. Oxford University Press, New York.

- Stevenson F.J. and Fitch A., 1986.** Chemistry of complexation metal ions with soil solution organics. In Interactions of Soil Minerals with Natural Organics and Microbes. Huang P.M. and Schnitzer M. (eds.), SSSA special publication n°17. Soil Sci. Soc. Am. Inc., Madison, Wisconsin.
- Szenknect S., 2003.** Transfert de radioéléments en zone non saturée – Etude expérimentale et modélisation appliquées au Site Pilote de Tchernobyl. Thèse présentée à l'Université Scientifique et Médicale et l'Institut National Polytechnique de Grenoble pour le grade de docteur d'état.
- Szenknect S., Ardois C., Gaudet J.P. et Barthès V., 2005.** Reactive transport of <sup>85</sup>Sr in a chernobyl sand column: static and dynamic experiments and modelling. Journal of Contaminant Hydrology, Volume 76, Issues 1-2, Pages 139-165.
- Szenknect S., Ardois C., Dewiere L. et Gaudet J.P., 2008.** Effects of water content on reactive transport of <sup>85</sup>Sr in Chernobyl sand columns. Journal of Contaminant Hydrology, In Press, Corrected Proof, Available online 23 May 2008.
- Toride N., Leij F.J., Van Genuchten M. Th., 1999.** The CXTFIT code for estimating transport parameters from laboratory or field tracer experiments, Version 2.1. Research Report No. 137, US Department of Agriculture, Riverside, CA, USA.
- Tostenfelt B., Andersson K., Allard B., 1982.** Sorption of cesium and strontium on rocks and minerals. Chem. Geol. 36, 123-137.
- UNSCEAR, 2000.** United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation Report to the General Assembly, Sources and effects of Ionizing radiation. Vol I, Annex C, Exposures from man-made sources of radiation, 134 p.
- Vachaud G., Thony J.L., 1971.** Hysteresis during infiltration and redistribution in a soil column at different water content. Water Resour. Res. 7, 111-127.
- Valocchi A.J., 1990.** Use of temporal moment analysis to study reactive solute transport in aggregated porous media. Geoderma 46, 233-247.
- Van der Lee J. and De Windt L., 1999.** CHESST Tutorial and Cookbook. Technical Report LHM/RD/99/05, CIG, Ecole des Mines de Paris, Fontainebleau, France.
- Van der Lee J., De Windt L., Lagneau V. and Goblet P., 2002.** Presentation and application of the reactive transport code HYTEC. In: Computational Methods in Water Resources, Hassanizadeh, S.M (ed.), 47/2, Developments in Water Science Series, Elsevier, pp. 599-606.
- Van der Lee J., De Windt L., Lagneau V. and Goblet P., 2003.** Module-oriented modeling of reactive transport with HYTEC. Computers and Geosciences, 29, pp. 265-275.
- Van Genuchten M.Th. and Wierenga P.J., 1976.** Mass transfer studies in sorbing porous media I. Analytical solutions. Soil. Sci. Soc. Am. J. 40 (4), 473-480.
- Van Genuchten M.Th., 1980.** A closed form equation for predicting the hydraulic conductivity of unsaturated soils. Soil Sci. Soc. Am. J. 44, 892-898.
- Vidal Ph., Clauer N., 1981.** Pb and Sr isotopic systematics of some basalts and sulfides from the East Pacific Rise at 21°N (project RITA). Earth and Planetary Science Letters, Vol. 55, Issue 2, Pages 237-246.
- Wierenga P.J., 1977.** Solute distribution profiles computed with steady state and transient water movement models. Soil Sci. Soc. Amer. J. 41:1050-1055.
- Zurmühl T., 1998.** Capability of convection-dispersion transport models to predict transient water and solute movement in undisturbed soil columns. Journal of Contaminant Hydrology, 30: 101-128.

***ANNEXES***

## Annexe 1 : Protocole de fabrication de l'eau synthétique de Tchernobyl (d'après S.Szenknect, 2003).

Durant les expériences sur colonnes de sable, celles-ci sont alimentées avec une eau synthétique de Tchernobyl préparée au laboratoire. Son protocole de fabrication est rappelé ci-dessous :

Pour 10 L d'eau synthétique :

1. nettoyer soigneusement le bidon de stockage de l'eau,
2. prélever environ 1L d'eau ultra pure Milli-Q pour dissoudre les sels,
3. peser 77,4 mg de  $\text{CaCO}_3$  ; 50,8 mg de  $\text{MgSO}_4,7\text{H}_2\text{O}$  ; 29,4 mg de  $\text{KCl}$ ; 16,9 mg de  $\text{K}_2\text{SO}_4$  ; 40,1 mg de  $\text{Na}_2\text{SO}_4$ ,
4. dissoudre les sels,
5. ajouter 10 ml de  $[\text{SrCl}_2] = 10^{-4}$  mol/L,
6. compléter à 10 L d'eau ultra pure Milli-Q,
7. ajuster le pH à 6,5 avec quelques millilitres de  $\text{H}_2\text{SO}_4$  à 0,1 mol/L,
8. mesurer la conductivité de la solution (de l'ordre de 40  $\mu\text{S}/\text{cm}$ ).

On procédera ensuite à une vérification de la composition de l'eau par dosage des ions majeurs en spectrométrie d'absorption atomique (SAA) par exemple. Les concentrations en ions majeurs doivent alors se trouver dans les gammes suivantes :

Eléments	Concentrations (mol/L)
$\text{K}^+$	$5,9.10^{-5} \pm 0,5.10^{-5}$
$\text{Ca}^{2+}$	$7,7.10^{-5} \pm 1,0.10^{-5}$
$\text{Na}^+$	$5,6.10^{-5} \pm 0,5.10^{-5}$
$\text{Mg}^{2+}$	$2,1.10^{-5} \pm 0,5.10^{-5}$
$\text{Sr}^{2+}$	$1,0.10^{-7} \pm 0,5.10^{-7}$
$\text{Cl}^-$	$4,0.10^{-5} \pm 1,0.10^{-5}$
$\text{SO}_4^{2-}$	$1,1.10^{-4} \pm 0,1.10^{-4}$

## Annexe 2 : Détermination du coefficient d'atténuation massique de l'eau $\mu_{\text{eau}}$ pour nos conditions opératoires.

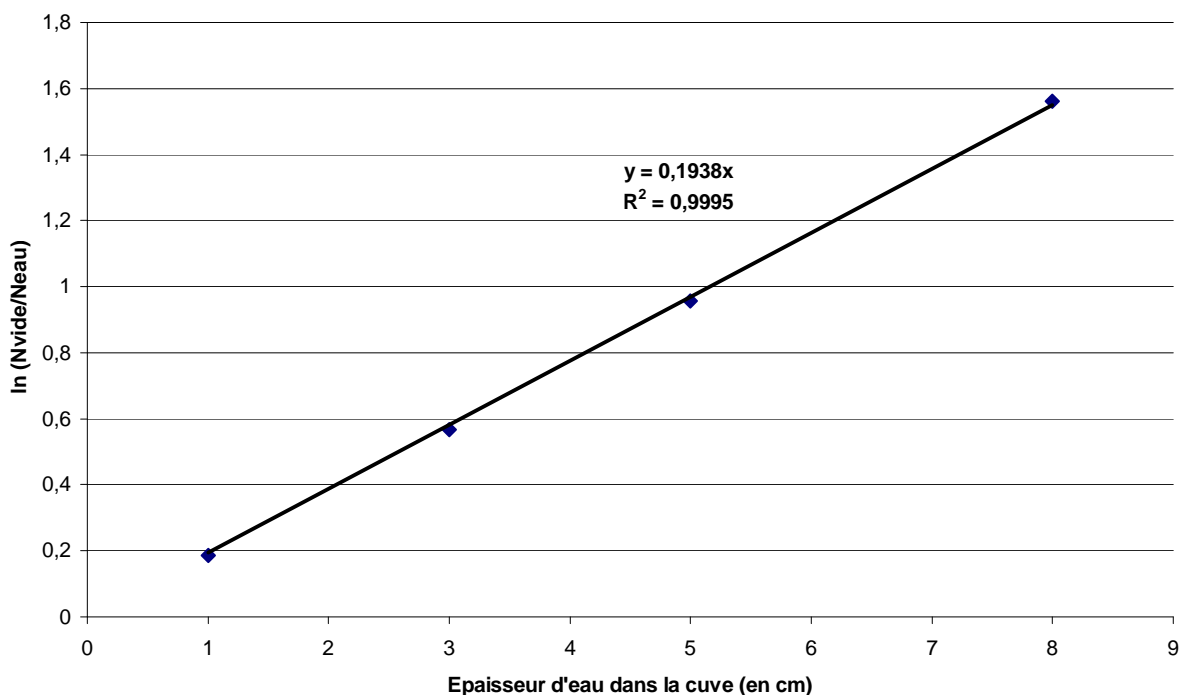
La détermination du coefficient d'atténuation massique de l'eau  $\mu_{\text{eau}}$ , nécessaire dans nos conditions opératoires pour calculer la teneur en eau présente dans les colonnes de sable, est réalisée en mesurant l'atténuation du signal gamma émis par la source d'américium 241 sur 4 cuves d'épaisseurs  $x$  différentes ( $x = 1, 3, 5$  et  $8$  cm) remplies d'eau.

Le temps de comptage utilisé est de 30 secondes pour que les conditions dans lesquelles le résultat est obtenu soient comparables à celles généralement employées lors de l'acquisition des profils d'activité d'américium durant les expériences.

La formule permettant de calculer ce coefficient est rappelée ci-dessous :

$$\mu_{\text{eau}} \cdot \rho_{\text{eau}} \cdot x = \ln \left[ \frac{N_{\text{cuve vide}}}{N_{\text{cuve pleine}}} \right]$$

avec  $\rho_{\text{eau}}$  masse volumique de l'eau ( $\text{g}/\text{cm}^3$ ),  $x$  l'épaisseur d'eau contenu dans la cuve (cm) et  $N_{\text{cuve vide}}$  et  $N_{\text{cuve pleine}}$  le nombre de coups mesuré respectivement à travers la cuve vide et la cuve remplie d'eau.



Les résultats obtenus nous donne  $\mu_{\text{eau}} = 0,1938 + 0,0067 \text{ cm}^2/\text{g}$

## Annexe 3 : Exemples de macro-commande Excel utilisées pour le traitement des données obtenues avec le banc gammamétrique.

1<sup>er</sup> Exemple : Code Visual Basic permettant d'obtenir le graphique d'évolution du profil de teneur en eau dans la colonne à partir des données de sortie du banc gammamétrique.

```
Sub Pier1()
```

```
' Pier1 Macro
```

```
' Macro enregistrée le 21/04/2005 par MAZET-PIE
```

```
' EVOLUTION DES PROFILS DE TENEUR EN EAU
```

```
' Touche de raccourci du clavier: Ctrl+n
```

```
'PREMIERE PARTIE : TRAITEMENTS DES FICHIERS GENERES PAR LE BANC GAMMAMETRIQUE
```

```
' DECLARATION DE VARIABLES
```

```
Dim f As String
```

```
f = Application.InputBox("adresse du répertoire ?")
```

```
Dim j As Integer
```

```
j = Application.InputBox("n° du dernier fichier ?")
```

```
Dim k As Integer
```

```
k = Application.InputBox("nbre de points sur le profil + 1 ?")
```

```
'OUVERTURE PREMIER FICHER
```

```
ChDir "" & (f) & ""
```

```
Workbooks.OpenText Filename:= _
```

```
"" & (f) & "\SourceOuvrte_000.rw"
```

```
Range("A1:K" & k & "").Select
```

```
Selection.Copy
```

```
Windows("Classeur1").Activate
```

```
Range("A1").Select
```

```
ActiveSheet.Paste
```

```
'TRAITEMENT DES FICHIERS DE 1 à 9
```

```
For i = 1 To 9
```

```
If i = 10 Then GoTo line1
```

```
If i > j Then GoTo line4
```

```
ChDir "" & (f) & ""
Workbooks.OpenText Filename:= _
    "" & (f) & "\SourceOuvrte_00" & i & ".rw"
Range("A1:K" & k & "").Select
Selection.Copy
```

```
Windows("Classeur1").Activate
i = (k + 1) * i + 1
Range("A" & i & "").Select
ActiveSheet.Paste
i = (i - 1) / (k + 1)
```

```
Windows("SourceOuvrte_00" & (i - 1) & ".rw").Activate
ActiveWindow.Close
```

```
i = i + 1
If i = 10 Then GoTo line1
If i > j Then GoTo line4
```

```
Workbooks.OpenText Filename:= _
    "" & (f) & "\SourceOuvrte_00" & i & ".rw"
Range("A1:K" & k & "").Select
Application.CutCopyMode = False
Selection.Copy
```

```
Windows("Classeur1").Activate
i = (k + 1) * i + 1

Range("A" & i & "").Select
ActiveSheet.Paste
i = (i - 1) / (k + 1)
```

```
Windows("SourceOuvrte_00" & (i - 1) & ".rw").Activate
ActiveWindow.Close
```

Next

line1:

```
Workbooks.OpenText Filename:= _
    "" & (f) & "\SourceOuvrte_010.rw"
```



```
Range("A1:K" & k & "").Select
Application.CutCopyMode = False
Selection.Copy
Windows("SourceOuverte_009.rw").Activate
ActiveWindow.Close
```

### TRAITEMENT DES FICHIERS DE 10 à 99

```
For i = 10 To 99
If i = 100 Then GoTo line2
If i > j Then GoTo Line5
```

```
ChDir "" & (f) & ""
Workbooks.OpenText Filename:= _
"" & (f) & "\SourceOuverte_0" & i & ".rw"
Range("A1:K" & k & "").Select
Selection.Copy
```

```
Windows("Classeur1").Activate
i = (k + 1) * i + 1
Range("A" & i & "").Select
ActiveSheet.Paste
i = (i - 1) / (k + 1)
```

```
If i = 10 Then GoTo line88
```

```
Windows("SourceOuverte_0" & (i - 1) & ".rw").Activate
ActiveWindow.Close
```

line88:

```
i = i + 1
If i = 100 Then GoTo line2
If i > j Then GoTo Line5
```

```
Workbooks.OpenText Filename:= _
"" & (f) & "\SourceOuverte_0" & i & ".rw"
Range("A1:K" & k & "").Select
Application.CutCopyMode = False
Selection.Copy
```

```
Windows("Classeur1").Activate
```

$i = (k + 1) * i + 1$

Range("A" & i & "").Select

ActiveSheet.Paste

$i = (i - 1) / (k + 1)$

Windows("SourceOuvrte\_0" & (i - 1) & ".rw").Activate

ActiveWindow.Close

Next

line2:

Workbooks.OpenText Filename:= \_

"" & (f) & "\SourceOuvrte\_100.rw"

Range("A1:K" & k & "").Select

Application.CutCopyMode = False

Selection.Copy

Windows("SourceOuvrte\_099.rw").Activate

ActiveWindow.Close

### TRAITEMENT DES FICHIERS DE 100 à 999

For i = 100 To 999

If i = 1000 Then GoTo line3

If i > j Then GoTo Line6

ChDir "" & (f) & ""

Workbooks.OpenText Filename:= \_

"" & (f) & "\SourceOuvrte\_" & i & ".rw"

Range("A1:K" & k & "").Select

Selection.Copy

Windows("Classeur1").Activate

$i = (k + 1) * i + 1$

Range("A" & i & "").Select

ActiveSheet.Paste

$i = (i - 1) / (k + 1)$

If i = 100 Then GoTo Line888

```
Windows("SourceOuvrte_" & (i - 1) & ".rw").Activate  
ActiveWindow.Close
```

Line888:

```
i = i + 1  
If i = 1000 Then GoTo line3  
If i > j Then GoTo Line6  
  
Workbooks.OpenText Filename:= _  
    "" & (f) & "\SourceOuvrte_" & i & ".rw"  
Range("A1:K" & k & "").Select  
Application.CutCopyMode = False  
Selection.Copy
```

```
Windows("Classeur1").Activate  
i = (k + 1) * i + 1
```

```
Range("A" & i & "").Select  
ActiveSheet.Paste  
i = (i - 1) / (k + 1)
```

```
Windows("SourceOuvrte_" & (i - 1) & ".rw").Activate  
ActiveWindow.Close
```

Next

line3:

```
Workbooks.OpenText Filename:= _  
    "" & (f) & "\SourceOuvrte_1000.rw"  
Range("A1:K" & k & "").Select  
Application.CutCopyMode = False  
Selection.Copy  
Windows("SourceOuvrte_999.rw").Activate  
ActiveWindow.Close
```

'FIN DU TRAITEMENT DES FICHIERS

'PREPARATION DES DONNEES POUR TRACER PROFILS DE TENEUR EN EAU

line4:

```
Windows("SourceOuvrte_00" & (j) & ".rw").Activate  
Application.CutCopyMode = False
```

ActiveWindow.Close

Columns("D:D").Select

Selection.Insert Shift:=xlToRight

Range("D1").Select

ActiveCell.FormulaR1C1 = "Profondeur (mm)"

Columns("D:D").EntireColumn.AutoFit

Range("D2").Select

ActiveCell.FormulaR1C1 = "="+RC[-1]"

Range("D2").Select

Selection.AutoFill Destination:=Range("D2:D" & k & ""), Type:=xlFillDefault

ChDir "T:\SARG\lets\Thèse PM\4 - XP\2 - RESULTATS\8 - colonne"

Workbooks.Open Filename:= \_

"T:\SARG\lets\Thèse PM\4 - XP\2 - RESULTATS\8 - colonne\réf sable sec 8.xls"

Sheets("Feuil1").Select

Columns("A:G").Select

Selection.Copy

Windows("Classeur1").Activate

Columns("Q:W").Select

ActiveSheet.Paste

Range("N529").Select

Application.CutCopyMode = False

Selection.ClearContents

Range("O529").Select

Windows("réf sable sec 8.xls").Activate

Range("Y529").Select

ActiveWindow.Close

GoTo Line10

Line5:

Windows("SourceOuvrte\_0" & (j) & ".rw").Activate

Application.CutCopyMode = False

ActiveWindow.Close

Columns("D:D").Select

Selection.Insert Shift:=xlToRight

Range("D1").Select

ActiveCell.FormulaR1C1 = "Profondeur (mm)"

Columns("D:D").EntireColumn.AutoFit

Range("D2").Select

```

ActiveCell.FormulaR1C1 = "+RC[-1]"
Range("D2").Select
Selection.AutoFill Destination:=Range("D2:D" & k & ""), Type:=xlFillDefault
ChDir "T:\SARG\lets\Thèse PM\4 - XP\2 - RESULTATS\8 - colonne"
Workbooks.Open Filename:= _
    "T:\SARG\lets\Thèse PM\4 - XP\2 - RESULTATS\8 - colonne\réf sable sec 8.xls"
Sheets("Feuil1").Select
Columns("A:G").Select
Selection.Copy
Windows("Classeur1").Activate
Columns("Q:W").Select
ActiveSheet.Paste
Range("N529").Select
Application.CutCopyMode = False
Selection.ClearContents
Range("O529").Select
Windows("réf sable sec 8.xls").Activate
Range("Y529").Select
ActiveWindow.Close
GoTo Line10

```

Line6:

```

Windows("SourceOuverte_" & (j) & ".rw").Activate
Application.CutCopyMode = False
ActiveWindow.Close

Columns("D:D").Select
Selection.Insert Shift:=xlToRight
Range("D1").Select
ActiveCell.FormulaR1C1 = "Profondeur (mm)"
Columns("D:D").EntireColumn.AutoFit
Range("D2").Select
ActiveCell.FormulaR1C1 = "+RC[-1]+1"
Range("D2").Select
Selection.AutoFill Destination:=Range("D2:D" & k & ""), Type:=xlFillDefault
ChDir "T:\SARG\lets\Thèse PM\4 - XP\2 - RESULTATS\8 - colonne"
Workbooks.Open Filename:= _
    "T:\SARG\lets\Thèse PM\4 - XP\2 - RESULTATS\8 - colonne\réf sable sec 8.xls"
Sheets("Feuil1").Select
Columns("A:G").Select

```

```

Selection.Copy
Windows("Classeur1").Activate
Columns("Q:W").Select
ActiveSheet.Paste
Range("N529").Select
Application.CutCopyMode = False
Selection.ClearContents
Range("O529").Select
Windows("réf sable sec 8.xls").Activate
Range("Y529").Select
ActiveWindow.Close
GoTo Line10

```

Line10:

```

Windows("Classeur1").Activate
Range("C2").Select

```

## 'DEUXIEME PARTIE : CALCULS DES PROFILS DE TENEUR EN EAU

```

Windows("Classeur1").Activate
Range("N1").Select
ActiveCell.FormulaR1C1 = "Teneur en eau"
Columns("N:N").EntireColumn.AutoFit

```

## 'CALCUL DE LA TENEUR EN EAU POUR LE PREMIER PROFIL

```

Range("N2").Select
ActiveCell.Formula = "=(1/(0.1938*1*5))*Ln(R2/J2)"
Range("N2").Select
Selection.AutoFill Destination:=Range("N2:N" & k & " "), Type:=xlFillDefault

```

## 'CALCUL DE LA TENEUR EN EAU POUR LES PROFILS SUIVANTS

```

n = 1
Do Until (IsEmpty(Worksheets("Feuil1").Cells((n * k) + (n + 1), 1)) = True)
Range("N" & ((n * k) + (n + 2)) & "").Select
ActiveCell.Formula = "=(1/(0.1938*1*5))*Ln(R2/J" & (n * k) + (n + 2) & ")"
Range("N" & ((n * k) + (n + 2)) & "").Select
Selection.AutoFill Destination:=Range("N" & ((n * k) + (n + 2)) & ":N" & ((n * k) + (n + 2) + (k - 2)) &
" "), Type:=xlFillDefault
n = n + 1
Loop

```

## 'TROISIEME PARTIE : CREATION DU GRAPHIQUE AVEC LES PROFILS D'AmCps

### 'OUVERTURE D'UN GRAPHIQUE EXCEL

```
Charts.Add
```

```
ActiveChart.ChartType = xlXYScatterLines
```

### 'AJOUT DES PROFILS D'AmCps

```
Dim o As Integer
```

```
o = 0
```

```
Dim q As Integer
```

```
q = 1
```

```
Do Until (IsEmpty(Worksheets("Feuil1").Cells((o * k) + (o + 1), 1)) = True)
```

```
ActiveChart.SeriesCollection.NewSeries
```

```
ActiveChart.SeriesCollection(q).XValues = "=Feuil1!R" & ((o * k) + (o + 2)) & "C10:R" & ((o * k) + (o + k)) & "C10"
```

```
ActiveChart.SeriesCollection(q).Values = "=Feuil1!R2C4:R" & k & "C4"
```

```
ActiveChart.SeriesCollection(q).Name = "=Feuil1!R" & (o * k) + (o + 2) & "C2"
```

```
o = o + 1
```

```
q = q + 1
```

```
Loop
```

### 'MISE EN FORME DU GRAPHIQUE

```
Dim a As String
```

```
a = Application.InputBox("nom de la manip ?")
```

```
ActiveChart.Location Where:=xlLocationAsNewSheet, Name:="Evolution Profil d'AmCps"
```

```
With ActiveChart
```

```
.HasTitle = True
```

```
.ChartTitle.Characters.Text = "Evolution du profil d'AmCps lors de " & (a) & ""
```

```
.Axes(xlCategory, xlPrimary).HasTitle = True
```

```
.Axes(xlCategory, xlPrimary).AxisTitle.Characters.Text = "AmCps"
```

```
.Axes(xlValue, xlPrimary).HasTitle = True
```

```
.Axes(xlValue, xlPrimary).AxisTitle.Characters.Text = "Profondeur z (mm)"
```

```
End With
```

```
ActiveChart.Axes(xlValue).Select
```

```
With ActiveChart.Axes(xlValue)
```

```
.MinimumScaleIsAuto = True
```

```
.MaximumScaleIsAuto = True
```

```
.MinorUnitIsAuto = True
```

```
.MajorUnitIsAuto = True
```

```
.Crosses = xlAutomatic
```

```

.ReversePlotOrder = True
.ScaleType = xlLinear
.DisplayUnit = xlNone
End With
ActiveChart.ChartArea.Select
ActiveChart.Axes(xlCategory).Select
With ActiveChart.Axes(xlCategory)
.MinimumScale = 2000
.MaximumScale = 6000
.MinorUnit = 100
.MajorUnit = 500
.Crosses = xlCustom
.CrossesAt = 0
.ReversePlotOrder = False
.ScaleType = xlLinear
.DisplayUnit = xlNone
End With

```

## 'QUATRIEME PARTIE : CREATION DU GRAPHIQUE AVEC LES PROFILS DE TENEUR EN EAU

### 'OUVERTURE D'UN GRAPHIQUE EXCEL

```

Charts.Add
ActiveChart.ChartType = xlXYScatterLines

```

### 'AJOUT DES PROFILS DE TENEURS EN EAU

```

Dim g As Integer
g = 0
Dim w As Integer
w = 1
Do Until (IsEmpty(Worksheets("Feuil1").Cells((g * k) + (g + 1), 1)) = True)
ActiveChart.SeriesCollection.NewSeries
ActiveChart.SeriesCollection(w).XValues = "=Feuil1!R" & ((g * k) + (g + 2)) & "C14:R" & ((g * k) + (g + k)) & "C14"
ActiveChart.SeriesCollection(w).Values = "=Feuil1!R2C4:R" & k & "C4"
ActiveChart.SeriesCollection(w).Name = "=Feuil1!R" & (g * k) + (g + 2) & "C2"
g = g + 1
w = w + 1
Loop

```

### 'MISE EN FORME DU GRAPHIQUE

```

Dim t As String

```



```

t = Application.InputBox("nom de la manip ?")

ActiveChart.Location Where:=xlLocationAsNewSheet, Name:="Evolution Profil Teneur en eau"
With ActiveChart
    .HasTitle = True
    .ChartTitle.Characters.Text = "Evolution du profil de teneur en eau pendant " & (t) & ""
    .Axes(xlCategory, xlPrimary).HasTitle = True
    .Axes(xlCategory, xlPrimary).AxisTitle.Characters.Text = "Teneur en eau"
    .Axes(xlValue, xlPrimary).HasTitle = True
    .Axes(xlValue, xlPrimary).AxisTitle.Characters.Text = "Profondeur z (mm)"
End With
ActiveChart.Axes(xlValue).Select
With ActiveChart.Axes(xlValue)
    .MinimumScaleIsAuto = True
    .MaximumScaleIsAuto = True
    .MinorUnitIsAuto = True
    .MajorUnitIsAuto = True
    .Crosses = xlAutomatic
    .ReversePlotOrder = True
    .ScaleType = xlLinear
    .DisplayUnit = xlNone
End With
ActiveChart.ChartArea.Select
ActiveChart.Axes(xlCategory).Select
With ActiveChart.Axes(xlCategory)
    .MinimumScale = 0
    .MaximumScale = 0.4
    .MinorUnit = 0.01
    .MajorUnit = 0.05
    .Crosses = xlCustom
    .CrossesAt = 0
    .ReversePlotOrder = False
    .ScaleType = xlLinear
    .DisplayUnit = xlNone
End With
End Sub

```

2<sup>nd</sup> Exemple : Code Visual Basic permettant d'obtenir le graphique d'évolution de la teneur en eau aux différentes profondeurs mesurées à partir des données de sortie du banc gammamétrique.

```
Sub Pier2()
```

```
' Pier2 Macro
```

```
' Macro enregistrée le 18/05/2005 par Mazet's Job
```

```
'EVOLUTION DE LA TENEUR EN EAU A DIFFERENTES PROFONDEURS DANS LA COLONNE
```

```
'LES DECLARATIONS DE VARIABLES
```

```
Dim a As String
```

```
a = Application.InputBox("adresse du répertoire ?")
```

```
Dim b As Integer
```

```
b = Application.InputBox("n° du dernier fichier + 1?")
```

```
Dim C As Integer
```

```
C = Application.InputBox("nombre de points sur profil ?")
```

```
Dim i As Integer
```

```
Dim j As Integer
```

```
Dim n As Integer
```

```
' L'EXTRACTION DES DONNEES AUX COTES FIXES
```

```
For i = 0 To 9
```

```
'nds$ = Str$(i): nds$ = Mid$(nds$, 2)
```

```
'nds$ est le nom donné à la variable numérique i transformé en chaîne de caractère
```

```
ChDir "" & (a) & ""
```

```
Workbooks.OpenText Filename:= _
```

```
"" & (a) & "\SourceOuvrte_00" & CStr(i) & ".rw"
```

```
j = 2
```

```
n = 1
```

```
Do Until ((j = C + 2) = True)
```

```
Windows("SourceOuvrte_00" & CStr(i) & ".rw").Activate
```

```
Range("A" & CStr(j) & ":K" & CStr(j) & "").Select
```

```
Application.CutCopyMode = False
```

```
Selection.Copy
```

```
Windows("Classeur1").Activate
```

```
Range("A" & CStr((j - 2) * b + (j + i - 1)) & "").Select
```

```
ActiveSheet.Paste
```

```
j = j + 1
```

```
n = n + 1
```

```
Loop
```

```
Windows("SourceOuvverte_00" & CStr(i) & ".rw").Activate
```

```
ActiveWindow.Close
```

```
If i = 10 Then GoTo line1
```

```
If i = (b - 1) Then GoTo line3
```

```
Next
```

```
line1:
```

```
For i = 10 To 99
```

```
'nds$ = Str$(i): nds$ = Mid$(nds$, 2)
```

```
'nds$ est le nom donné à la variable numérique i transformé en chaîne de caractère
```

```
ChDir "" & (a) & ""
```

```
Workbooks.OpenText Filename:= _
```

```
"" & (a) & "\SourceOuvverte_0" & CStr(i) & ".rw"
```

```
j = 2
```

```
Do Until ((j = C + 2) = True)
```

```
Windows("SourceOuvverte_0" & CStr(i) & ".rw").Activate
```

```
Range("A" & CStr(j) & ":K" & CStr(j) & "").Select
```

```
Application.CutCopyMode = False
```

```
Selection.Copy
```

```
Windows("Classeur1").Activate
```

```
Range("A" & CStr((j - 2) * b + (j + i - 1)) & "").Select
```

```
ActiveSheet.Paste
```

```
j = j + 1
```

```
Loop
```

```
Windows("SourceOuvverte_0" & CStr(i) & ".rw").Activate
```

```
ActiveWindow.Close
```

```
If i = 100 Then GoTo line2
```

```
If i = (b - 1) Then GoTo line3
```

Next

line2:

For i = 100 To 999

'nds\$ = Str\$(i): nds\$ = Mid\$(nds\$, 2)

'nds\$ est le nom donné à la variable numérique i transformé en chaîne de caractère

ChDir "" & (a) & ""

Workbooks.OpenText Filename:= \_

"" & (a) & "\SourceOuvrte\_" & CStr(i) & ".rw"

j = 2

Do Until ((j = C + 2) = True)

Windows("SourceOuvrte\_" & CStr(i) & ".rw").Activate

Range("A" & CStr(j) & ":K" & CStr(j) & "").Select

Application.CutCopyMode = False

Selection.Copy

Windows("Classeur1").Activate

Range("A" & CStr((j - 2) \* b + (j + i - 1)) & "").Select

ActiveSheet.Paste

j = j + 1

Loop

Windows("SourceOuvrte\_" & CStr(i) & ".rw").Activate

ActiveWindow.Close

If i = 1000 Then GoTo line3

If i = (b - 1) Then GoTo line3

Next

### 'INSERTION DU NOM DES PARAMETRES EN PREMIERE LIGNE

line3:

If i < 10 Then GoTo line4

If 9 < i < 100 Then GoTo Line5

If 99 < i < 1000 Then GoTo Line6

line4:

Windows("Classeur1").Activate  
Rows("1:1").Select  
Selection.Insert Shift:=xlDown

Workbooks.OpenText Filename:= \_  
    "" & (a) & "\SourceOuvrte\_00" & CStr(i) & ".rw"  
Windows("SourceOuvrte\_00" & CStr(i) & ".rw").Activate  
Range("A1:K1").Select  
Selection.Copy

Windows("Classeur1").Activate  
Range("A1").Select  
ActiveSheet.Paste  
Application.CutCopyMode = False

Windows("SourceOuvrte\_00" & CStr(i) & ".rw").Activate  
ActiveWindow.Close

GoTo line7

Line5:

Windows("Classeur1").Activate  
Rows("1:1").Select  
Selection.Insert Shift:=xlDown

Workbooks.OpenText Filename:= \_  
    "" & (a) & "\SourceOuvrte\_" & CStr(i) & ".rw"  
Windows("SourceOuvrte\_" & CStr(i) & ".rw").Activate  
Range("A1:K1").Select  
Selection.Copy

Windows("Classeur1").Activate  
Range("A1").Select  
ActiveSheet.Paste  
Application.CutCopyMode = False

Windows("SourceOuvrte\_" & CStr(i) & ".rw").Activate  
ActiveWindow.Close

GoTo line7

Line6:

Windows("Classeur1").Activate

Rows("1:1").Select

Selection.Insert Shift:=xlDown

Workbooks.OpenText Filename:= \_

"" & (a) & "\SourceOuvrte\_" & CStr(i) & ".rw"

Windows("SourceOuvrte\_" & CStr(i) & ".rw").Activate

Range("A1:K1").Select

Selection.Copy

Windows("Classeur1").Activate

Range("A1").Select

ActiveSheet.Paste

Application.CutCopyMode = False

Windows("SourceOuvrte\_" & CStr(i) & ".rw").Activate

ActiveWindow.Close

GoTo line7

line7:

'End Sub

'Sub Pier3()

' Pier3 Macro

' Macro enregistrée le 19/05/2005 par Mazet's Job

'DECLARATION DE VARIABLES

'Dim b As Integer

'b = Application.InputBox("n° du dernier fichier + 1?")

'Dim C As Integer

'C = Application.InputBox("nombre de points sur profil ?")

Dim k As Integer

## 'MISE EN PAGE

```
Columns("C:C").Select
Selection.Insert Shift:=xlToRight
Selection.NumberFormat = "dd/mm/yyyy hh:mm:ss"

Range("C2").Select
ActiveCell.FormulaR1C1 = "="+RC[-1]+RC[-2]"
Range("C2").Select
Selection.AutoFill Destination:=Range("C2:C65536"), Type:=xlFillDefault
Range("C2:C65536").Select
Columns("C:C").EntireColumn.AutoFit

Columns("E:E").Select
Selection.Insert Shift:=xlToRight
Range("E1").Select
ActiveCell.FormulaR1C1 = "Profondeur (en mm)"
Range("E2").Select
Range("E2").Select
ActiveCell.FormulaR1C1 = "="+RC[-1]+5"
Range("E2").Select
Selection.AutoFill Destination:=Range("E2:E65536"), Type:=xlFillDefault
Range("E2:E65536").Select
Columns("E:E").EntireColumn.AutoFit

Range("O1").Select
ActiveCell.FormulaR1C1 = "Teneur en eau"
Range("O2").Select
Columns("O:O").EntireColumn.AutoFit
```

## 'CALCUL TENEUR EN EAU

```
For k = 0 To (C - 1)
Range("O" & (k * (b + 1) + 2) & "").Select
ActiveCell.FormulaR1C1 = "="+(1/(0.1938*1*5)*LN(R" & (k + 2) & "C17/RC[-4]))"
Range("O" & (k * (b + 1) + 2) & "").Select
Selection.AutoFill Destination:=Range("O" & (k * (b + 1) + 2) & ":O" & (k * (b + 1) + 2 + (b - 1)) &
""), Type:=xlFillDefault
Next
'End Sub
```

'Sub Pier4()

' Pier4 Macro

' Macro enregistrée le 19/05/2005 par Mazet's Job

### 'DECLARATION DE VARIABLES

'Dim b As Integer

'b = Application.InputBox("n° du dernier fichier + 1?")

'Dim C As Integer

'C = Application.InputBox("nombre de points sur profil ?")

Dim u As Integer

### 'GRAPHIQUES

u = 0

Range("C" & (u \* (b + 1) + 2) & ":C" & (u \* (b + 1) + 2 + (b - 1)) & ",O" & (u \* (b + 1) + 2) & ":O" & (u \* (b + 1) + 2 + (b - 1)) & "").Select

Charts.Add

ActiveChart.ChartType = xlXYScatterSmooth

ActiveChart.SetSourceData Source:=Sheets("Feuil1").Range("C" & (u \* (b + 1) + 2) & ":C" & (u \* (b + 1) + 2 + (b - 1)) & ",O" & (u \* (b + 1) + 2) & ":O" & (k \* (b + 1) + 2 + (b - 1)) & ""), \_

PlotBy:=xlColumns

ActiveChart.SeriesCollection(u + 1).Name = "=Feuil1!R2C5"

For u = 1 To (C - 1)

ActiveChart.SeriesCollection.NewSeries

ActiveChart.SeriesCollection(u + 1).XValues = "=Feuil1!R" & (u \* (b + 1) + 2) & "C3:R" & (u \* (b + 1) + 2 + (b - 1)) & "C3"

ActiveChart.SeriesCollection(u + 1).Values = "=Feuil1!R" & (u \* (b + 1) + 2) & "C15:R" & (u \* (b + 1) + 2 + (b - 1)) & "C15"

ActiveChart.SeriesCollection(u + 1).Name = "=Feuil1!R" & (u \* (b + 1) + 2) & "C5"

Next

Dim s As String

s = Application.InputBox("nom de la manip ?")

ActiveChart.Location Where:=xlLocationAsNewSheet, Name:= \_

"Evol téta à cote fixe"



With ActiveChart

.HasTitle = True

.ChartTitle.Characters.Text = "Evolution de la teneur en eau à cote fixe durant " & (s) & ""

.Axes(xlCategory, xlPrimary).HasTitle = False

.Axes(xlValue, xlPrimary).HasTitle = True

.Axes(xlValue, xlPrimary).AxisTitle.Characters.Text = "Teneur en eau"

End With

ActiveChart.Axes(xlValue).Select

With ActiveChart.Axes(xlValue)

.MinimumScaleIsAuto = True

.MaximumScale = 0.4

.MinorUnit = 0.01

.MajorUnit = 0.05

.Crosses = xlAutomatic

.ReversePlotOrder = False

.ScaleType = xlLinear

.DisplayUnit = xlNone

End With

ActiveChart.Legend.Select

Selection.Left = 651

Selection.Top = 121

ActiveChart.ChartArea.Select

End Sub

## Annexe 4 : Exemple de fichier d'entrée HYTEC.

```
#=====
#=====
output = $*
database = /home/ardois/HYTEC36/chess-perso2_ldw.tdb
launcher {
  transport = /produits/appli/hytec-3.6/bin/r2d2-2.6
  hytec = /produits/appli/hytec-3.6/bin/hytec-3.6
  mpi = mpich, /produits/freeware/mpitch-1.2.7p1/bin/mpirun
}
#=====
# Colonne 6
# Simulation série de transitoires 15 PM
# de la colonne 6 rallongée de 20 cm pour éviter effet de pied
# de colonne (but: avoir un meilleur profil hydrostatique
# en tête de colonne et plus rapidement)
# Geometry and hydrogeology
# -----
# ECOULEMENT
#
flow-regime = unsaturated
storage = 1e-2
permeability = 12 cm/hr
dispersivity = 2 mm
diffusion-coeff = 1e-10 m2/s
porosity = 0.25
unsaturated-model = van-genuchten {
  alpha = 1.67          # 1 / 0.60 m
  n = 4.5
}
# GEOMETRIE
#
domain = 0,0 5,0 5,85.5 0,85.5 cm
zone sand-top {
  geometry = rectangle 2.5,78,5,15 cm, nodes = 1,150
  chemistry = sand0
  head = -0.64 m
  storage = 1e-2
```

```

permeability = 12 cm/hr
porosity = 0.25
water-content {
  start = 0.1
  minimum = 0.02
  maximum = 0.25
}
}
zone sand-main {
  geometry = rectangle 2.5,47.75,5,45.5 cm, nodes = 1,455
  chemistry = sand0
  head = -0.64 m
  storage = 1e-2
  permeability = 12 cm/hr
  porosity = 0.25
  water-content {
    start = 0.2
    minimum = 0.02
    maximum = 0.25
  }
}
zone sand-bottom {
  geometry = rectangle 2.5,12.5,5,25 cm, nodes = 1,25
  chemistry = sand0
  head = -0.64 m
  storage = 1e-2
  permeability = 12 cm/hr
  porosity = 0.25
  water-content {
    start = 0.25
    minimum = 0.02
    maximum = 0.25
  }
}
# Bondary conditions
#
boundary injection {
  coordinates = 0,85.5 5,85.5 cm
  flow-condition = constant-flow at 0,-12 cm/hr
  transport-condition = flux using conditionsable

```

```
modify at 1 d {
  flow-condition = constant-flow at 0,0 cm/hr
}
modify at 2 d {
  flow-condition = constant-flow at 0,-5 cm/hr
  transport-condition = flux using injection85
}
modify at 2.020833 d {
  flow-condition = constant-flow at 0,-0 cm/hr
  transport-condition = flux using conditionsable
}
modify at 3 d {
  flow-condition = constant-flow at 0,-5 cm/hr
  transport-condition = flux using conditionsable
}
modify at 3.020833 d {
  flow-condition = constant-flow at 0,-0 cm/hr
  transport-condition = flux using conditionsable
}
modify at 4 d {
  flow-condition = constant-flow at 0,-5 cm/hr
  transport-condition = flux using conditionsable
}
modify at 4.020833 d {
  flow-condition = constant-flow at 0,-0 cm/hr
  transport-condition = flux using conditionsable
}
modify at 5 d {
  flow-condition = constant-flow at 0,-5 cm/hr
  transport-condition = flux using conditionsable
}
modify at 5.020833 d {
  flow-condition = constant-flow at 0,-0 cm/hr
  transport-condition = flux using conditionsable
}
modify at 6 d {
  flow-condition = constant-flow at 0,-5 cm/hr
  transport-condition = flux using conditionsable
}
modify at 6.020833 d {
```

```

flow-condition = constant-flow at 0,-0 cm/hr
transport-condition = flux using conditionsable
}
modify at 7 d {
flow-condition = constant-flow at 0,-5 cm/hr
transport-condition = flux using conditionsable
}
modify at 7.020833 d {
flow-condition = constant-flow at 0,-0 cm/hr
transport-condition = flux using conditionsable
}
modify at 8 d {
flow-condition = constant-flow at 0,-5 cm/hr
transport-condition = flux using conditionsable
}
modify at 8.020833 d {
flow-condition = constant-flow at 0,-0 cm/hr
transport-condition = flux using conditionsable
}
modify at 9 d {
flow-condition = constant-flow at 0,-5 cm/hr
transport-condition = flux using conditionsable
}
modify at 9.020833 d {
flow-condition = constant-flow at 0,-0 cm/hr
transport-condition = flux using conditionsable
}
modify at 10 d {
flow-condition = constant-flow at 0,-5 cm/hr
transport-condition = flux using conditionsable
}
modify at 10.020833 d {
flow-condition = constant-flow at 0,-0 cm/hr
transport-condition = flux using conditionsable
}
}
boundary bottom {
coordinates = 0,0 5,0 cm
flow-condition = constant-head at -0.64 m
}

```

```

#
# Geochemistry
# -----
unit conditionsable {
    pH = 6.5
    concentration T(aq) = 1 umol/l
    conc Ca[2+] = 540 umol/l
    conc Mg[2+] = 20.6 umol/l
    conc K[+] = 58.8 umol/l
    conc Na[+] = 56.5 umol/l
    conc Cl[-] = 39.4 umol/l
    conc SO4[2-] = 339.5 umol/l
    conc Sr[2+] = 0.05 umol/l
    total HCO3[-] = 757e-6 mol/l
    density = 1000.0 g/l
}
unit injection85 {
    pH = 6.5
    concentration T(aq) = 0.1 umol/l
    conc Ca[2+] = 540 umol/l
    conc Mg[2+] = 20.6 umol/l
    conc K[+] = 58.8 umol/l
    conc Na[+] = 56.5 umol/l
    conc Cl[-] = 39.4 umol/l
    conc SO4[2-] = 339.5 umol/l
    conc Sr[2+] = 0.05 umol/l
    conc 85Sr[2+] = 0.005 umol/l
    total HCO3[-] = 757e-6 mol/l
    density = 1000.0 g/l
}
unit sand0 {
    concentration Argile = 112.28 g/l
    concentration Silice = 5502 g/l
    conc Ca[2+] = 540 umol/l
    conc Mg[2+] = 20.6 umol/l
    conc K[+] = 58.8 umol/l
    conc Na[+] = 56.5 umol/l
    conc Cl[-] = 39.4 umol/l
    conc SO4[2-] = 339.5 umol/l
    conc Sr[2+] = 0.05 umol/l
}

```

```

total HCO3[-] = 757e-6 mol/l
density = 1000.0 g/l
}
# Argile exch.cap. = 1.8 umol/m2
# rho bulk = 1.80
# CEC pour ce calcul = 0.62 meq/100g
# soit CECargile = 34.81 mmol/kg solvant
define mineral Argile {
  surface = 86.6 m2/g
  vol.weight = 2650 kg/m3
  site Argile(Na) {
    exch.cap. = 3.58 umol/m2
    composition = 1 Na[+]
  }
}
define mineral Silice {
  surface = 3.45 m2/g
  vol.weight = 2650 kg/m3
  site MX1-OH {
    exch.cap. = 0.09 umol/m2
  }
  site MX2-OH {
    exch.cap. = 0.09 umol/m2
  }
}
define surface-site Argile(K) {
  composition = 1 Argile(Na), 1 K[+], -1 Na[+]
  logK = 0.7
}
define surface-site Argile(Ca) {
  composition = 2 Argile(Na), 1 Ca[2+], -2 Na[+]
  logK = 1.31
}
define surface-site Argile(Mg) {
  composition = 2 Argile(Na), 1 Mg[2+], -2 Na[+]
  logK = 1.76
}
define surface-site Argile(Sr) {
  composition = 2 Argile(Na), 1 Sr[2+], -2 Na[+]
  logK = 1.41
}

```

```

}
define surface-site Argile(85Sr) {
  composition = 2 Argile(Na), 1 85Sr[2+], -2 Na[+]
  logK = 1.41
}
# Sites de complexation de surface
# Bradbury et Bayens (montmorillonite), 1997
# attachés au minéral Argile
define surface-site MX1-OH2[+] {
  composition = 1 MX1-OH, 1 H[+]
  logK = 4.5(25)
}
define surface-site MX1-O[-] {
  composition = 1 MX1-OH, -1 H[+]
  logK = -7.9(25)
}
define surface-site MX2-OH2[+] {
  composition = 1 MX2-OH, 1 H[+]
  logK = 6(25)
}
define surface-site MX2-O[-] {
  composition = 1 MX2-OH, -1 H[+]
  logK = -10.5(25)
}
# Simulation parameters
# -----
duration = 15 d
timestep = variable {
  start = 10 s
  #maximum = 600 s
# courant-factor = 2
}
# Output specifications
# -----
verbose = enabled
sample = 400
select head, pressure in m
select water-content, moisture
select y-flowrate in cm/hr
select permeability in cm/hr

```



select pH  
select T(aq) in mmol/l  
select aqueous{Ca[2+]} in umol/l  
select aqueous{Sr[2+]} in umol/l  
select aqueous{Mg[2+]} in umol/l  
select aqueous{K[+]} in umol/l  
select aqueous{Na[+]} in umol/l  
select fixed{Ca[2+]} in umol/l  
select fixed{Sr[2+]} in umol/l  
select fixed{Mg[2+]} in umol/l  
select fixed{K[+]} in umol/l  
select fixed{Na[+]} in umol/l  
select fixed{H[+]} in umol/l  
select aqueous{85Sr[2+]} in umol/l  
select fixed{85Sr[2+]} in umol/l