

REPUBLIQUE DU CAMEROUN

PAIX-TRAVAIL-PATRIE

UNIVERSITE DE YAOUNDE I

FACULTE DES SCIENCES

CENTRE DE RECHERCHE ET DE FORMATION
DOCTORALE EN SCIENCES, TECHNOLOGIES ET
GEOSCIENCES DOCTORALE

UNITE DE RECHERCHE ET DE FORMATION DOCTORALE
"PHYSIQUE ET APPLICATION"

BP 812 Yaoundé

Email : crf-stg@uy1.uninet.cm

REPUBLIC OF CAMEROON

Peace-Work-Fatherland

UNIVERSITY OF YAOUNDE I

FACULTY OF SCIENCE

POSTGRADUATE SCHOOL OF SCIENCE
TECHNOLOGY
AND GEOSCIENCES

RESEARCH AND POSTGRADUATE TRAINING
UNIT FOR "PHYSICS APPLICATION"

PO BOX 812 Yaoundé

Email : crf-stg@uy1.uninet.cm



**LABORATOIRE DE PHYSIQUE NUCLEAIRE, ATOMIQUE, MOLECULAIRE ET
BIOPHYSIQUE**

***MODELE D'ADVECTION-DISPERSION FRACTIONNAIRE
POUR LE TRANSPORT ANORMAL DES RADIONUCLEIDES
DANS UN SYSTEME DE DEPOT EN COUCHE***

Mémoire Présenté par l'étudiante

TCHAKOUTE NYOFU Lionel Prescilla

Matricule : 17A2929

Titulaire d'une Licence en physique (UY1)

En vue de l'obtention du diplôme de Master en physique

Option : **Physique Nucléaire, Atomique, Moléculaire et Biophysique**

Spécialité : **Physique Nucléaire, Dosimétrie et Radioprotection**

Sous la co-direction de :

BEN-BOLIE Germain Hubert

Professeur

Université de Yaoundé I

ELE ABIAMA Patrice

Maitre de Recherche

MINRESI



Année 2024

MODELE D'ADVECTION-DISPERSION FRACTIONNAIRE POUR LE TRANSPORT ANORMAL DES RADIONUCLEIDES DANS UN SYSTEME DE DEPOT EN COUCHE

Présenté par :

TCHAKOUTE NYOFU Lionel Prescillia

Matricule : **17A2929**

Sous la Co-direction de

BEN-BOLIE Germain Hubert

Professeur

Université de Yaoundé I

et

ELE ABIAMA Patrice

Maître de Recherche

MINRESI

Octobre 2024

Table des matières

Dédicace	i
Remerciements	ii
Liste des abréviations	vii
Resumé	viii
Abstract	ix
Introduction générale	1
1 Revue de la littérature sur la contamination des radionucléides et leurs transports dans les sites de dépôt	3
Introduction	3
1.1 Radioactivité dans l'environnement	3
1.1.1 Définition et types de radioactivité	3
1.1.2 Origines des radionucléides	5
1.2 Les déchets radioactifs	8
1.2.1 Définition	8
1.2.2 Les types de déchets radioactifs	8
1.2.3 Stockage des déchets radioactifs	9
1.3 Transport des déchets radioactifs dans les sites de dépôt	11
1.3.1 La convection	11
1.3.2 La diffusion moléculaire	12
1.3.3 La dispersion cinétique ou cinématique	13
1.3.4 La sorption	14
1.3.5 La dégradation	15
1.3.6 Equation de transport des radionucléides en milieux poreux	15
1.4 Transport anormal des contaminants	16

1.5	Travaux récents concernant le transport anormal des radionucléides	17
1.5.1	Transport hors équilibre des radionucléides dans les roches	17
1.5.2	Transport anormal des radionucléides dans les roches en tenant compte des interactions structurelles	18
2	Matériels et méthodes	20
	Introduction	20
2.1	Méthodes de résolution des problèmes de transport dans les milieux en couches	20
2.1.1	Méthode de la GITT	22
2.1.2	Méthode de la transformée de Laplace	25
2.2	Modélisation du problème	29
2.2.1	Formulation du problème	29
2.2.2	Résolution du problème de transport anormal	30
2.2.3	Inversion numérique	33
2.3	Configuration expérimentale pour la validation du modèle	34
2.3.1	Matériel et composition minérale : Microscope électronique et tomodensitométrie	34
2.3.2	Méthode expérimentale	35
	Conclusion	36
3	Résultats et discussion	37
	Introduction	37
3.1	Présentation des résultats expérimentaux utilisés	37
3.1.1	Résultats expérimentaux de mesures sur un radiotraceur non réactif (HTO) et des traceurs radioactif réactifs (Se et Cs)	37
3.1.2	Comparaison des résultats expérimentaux au résultats du modèle et à ceux du transport normal	40
3.2	Effet du paramètre fractionnaire	45
3.2.1	Résultats du modèle pour un milieu à deux et à cinq couches	45
3.2.2	Discussion sur l'impact du paramètre fractionnaire	49
	Conclusion	50
	Conclusion générale	51
	Références bibliographiques	53

DÉDICACE

À :

Mr et Mme NYOFU pour leurs soutient et encouragements de chaque jour.

REMERCIEMENTS

Mes remerciements vont à l'endroit :

- De Dieu le Père Tout Puissant pour la bénédiction, la force et le courage qu'il m'a donné ;
- Du Professeur BEN-BOLIE Germain Hubert, Chef de Laboratoire de Physique Nucléaire, Atomique, Moléculaire et Biophysique de l'Université de Yaoundé I, pour avoir accepté de m'encadrer, pour sa disponibilité, ses remarques, ses conseils et surtout sa rigueur dans le travail malgré ses diverses occupations ;
- Du Dr ELE ABIAMA Patrice, Maître de Recherche au Ministère de la Recherche Scientifique et de l'Innovation, pour avoir accepté de m'encadrer, pour sa disponibilité, ses remarques, ses conseils malgré ses diverses occupations ;
- Du Professeur NDJAKA Jean-Marie Bienvenu, Chef de Département de Physique pour les encouragements dans la finalisation de ce travail ;
- Des Enseignants du Département de Physique de l'Université de Yaoundé I pour la qualité de leurs enseignements dispensés ;
- Du Dr TJOCK-MBAGA Thomas pour sa disponibilité, son accompagnement, sa patience, et ses conseils durant la réalisation de ce travail ;
- Des Aînés du Laboratoire de Physique Nucléaire du Département de Physique de la Faculté de Sciences de l'Université de Yaoundé I, plus particulièrement : Dr NGA ONGODO Dieudonné, Dr TAKEMBO Clovis, Dr MAH TSILA Phillipe , Dr MBIDA MBEMBE Serge, Dr NGOUBI HENOCK, M. TSAFACK FEUDJIO Diderot Patrick, M. NDZONO Victor Paulin pour leurs conseils et aides multiformes ;
- De mes camarades de promotion pour les discussions édifiantes de tous les jours ;
- De Maman Hortence TANKOUA et de Papa David FAMPOU pour leur amour inconditionnel à mon endroit ;
- De mes frères et soeurs, NGAKEUTCHA NYOFU Franck, YONKEU Cédric, TCHOUMBA NYOFU Grace et NGAKEUTCHA Anaëlle pour leur amour indéfectible et leurs encouragements ;
- De BIDIMA EYENGA Jean Marie pour son soutien, ses conseils et ses encouragements ;
- De mes amis, JOUNANG Suzie Claire, EYENGA Bijou Gertrude, AMBASSA Denis Daniel, Fokoua Kevin, NGONO Larissa, EKASSI Christiane, OYONO Constantin, EBOLO Joel pour leur soutien et pour toutes les expériences de vie partagées ;
- De tous ceux qui ont pu contribuer à l'aboutissement de ce travail. Qu'ils trouvent ici l'expression

de ma profonde gratitude.

Liste des figures

1.1	Radioactivité α de l' ^{238}U (Radioactivité alpha. © Yuvanoe/CEA)	4
1.2	Radioactivité β du Thorium-234 en Uranium-234 (Radioactivité bêta. © Yuvanoe/CEA)	
	5	
1.3	Radioactivité γ (Radioactivité gamma. © Yuvanoe/CEA)	5
1.4	Chaines de désintégrations de l' ^{238}U , U-235 et Th-232 (Researchgate).	6
1.5	Origine et typologie simplifiées des effluents d'une installation nucléaire. (Crédit © Chromatiques/IRSN - Source : IRSN)	7
1.6	Déchets radioactifs (EDf, 2018).	9
1.7	Principe de stockage géologique profond (INPNPP, 2024)	10
1.8	Entreposage de déchets radioactifs (youmatter.word. 2017)	11
1.9	Conduction Convection (Dreamstime.com)	12
1.10	Schéma des différents processus du transport des solutés dans un milieu fracturé idéalisé (Zhang et al., 2022)	17
2.1		20
3.1	Courbes d'évolution temporelle des concentrations de HTO, Se, Cs en fonction de la longueur du trajet	38
3.2	Courbes d'évolution des concentrations de HTO, Se, Cs en fonction des volumes des pores ($PV=vt/L$) pour différentes longueur du trajet	39
3.3	Comparaison de l'évolution temporelle des concentrations des radionucléides obtenus à l'aide du modèle à l'équilibre isotherme linéaire et les résultats expérimentaux	41
3.4	Comparaison de l'évolution temporelle des concentrations des radionucléides obtenus à l'aide du modèle fractionnaire utilisant la dérivée de Caputo-Fabrizio et les résultats expérimentaux	42
3.5	Comparaison de l'évolution temporelle des concentrations des radionucléides obtenus à l'aide du modèle fractionnaire utilisant la dérivée d'Atangana-Baleanu et les résultats expérimentaux	43

3.6	Distributions spatiales des concentrations du ^{137}Cs et du ^{85}Sr dans un site de dépôt à deux couches, obtenus pour différentes valeurs de α à l'aide de la DFAB et de la DFCE	47
3.7	Distributions spatiales des concentrations du ^{137}Cs et du ^{85}Sr dans un site de dépôt à cinq couches, obtenus pour différentes valeurs de α à l'aide de la DFAB et de la DFCE . . .	48

Liste des tableaux

2.1	Définition des fonctions $A_i(x, s)$, $B_i(x, s)$ et $P_i(x, s)$ apparaissant dans les équations (2.89)-(2.91)	34
2.2	Les conditions expérimentales de l'EAD utilisées dans cette étude	36
3.1	Les Paramètres d'ajustement de HTO, Se, Cs utilisés pour les comparaisons des résultats de simulation à ceux des mesures expérimentales	40
3.2	Les écarts quadratiques entre les résultats de simulation et les résultats expérimentaux	44
3.3	Les coefficients de corrélation entre les résultats de simulation et les résultats expérimentaux	45
3.4	Les Paramètres de transport utilisés pour étudier l'effet du paramètre α sur la distribution du ^{137}Cs et du ^{85}Sr	46

LISTE DES ABRÉVIATIONS

ACRO : Association pour le Contrôle de la Radioactivité dans l'Ouest

GITT : Generalized Integral Transform Technique

ATSDR : Agency for Toxic Substances and Diseases

Bq : Becquerels

Cs : césium

Sr : Strontium

I : Iode

Pu : Plutonium

Am : Américium

Tc : Technétium

Te : Tellure

Nb : Niobium

CR : concentration relative

DHA : déchets à haute activité

Da : daltons

EQM : Ecart Quadratique Moyen

Fig :figure

IRSN : Institut de la Radioprotection et de Sureté Nucléaire

kg : kilogrammes

km : kilomètres

Kd : coefficient de distribution

pH : potentiel d'hydrogène

RMSE : Root Mean Square Error

UNSCEAR : United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation Report of the General Assembly

Se : selenium

RESUMÉ

Ce travail propose une équation d'advection-dispersion fractionnaire pour simuler la migration anormale des radionucléides dans des milieux poreux peu perméables avec barrières multiples, un concept clé dans le stockage géologique profond des déchets de haute activité. L'advection-dispersion fractionnaire présentée dans ce modèle utilise diverses définitions de dérivées fractionnaires et est analysée à l'aide de la méthode de transformation intégrale de Laplace. La comparaison des résultats obtenus à ceux des mesures expérimentales menées dans les colonnes de liquides et des résultats du transport normal montre que le modèle est fiable. De plus, il en ressort que le modèle fractionnaire permet de mieux décrire le transport des radionucléides dans les sites de dépôt en couches parce qu'il tient compte d'autres phénomènes de dispersion. Les résultats obtenus montrent aussi que le paramètre fractionnaire impacte considérablement sur la distribution spatiale des radionucléides dans le site de dépôt. Les écarts de concentration observés dépendent de la définition de la dérivées fractionnaire utilisée. Cette recherche pose une base théorique pour d'autres simulations de migration des radionucléides dans un système multi-barrières au sein de hauts dépôts de déchets.

Mots clés : Dérivée fractionnaire ; césium ; Advection-dispersion ; coefficient de dispersion ; équilibre linéaire ; Stockage géologique profond.

ABSTRACT

This work proposes fractional advection-dispersion equation for the simulation of radionuclide anomalous migration in low-permeability porous media with multiple barriers, a key concept in deep geological disposal of high-level waste. The presented fractional advection-dispersion models utilize various definitions of fractional derivatives and are analyzed using the Laplace integral transform method. The comparison of the results obtained with measurements from experiments conducted in liquid columns indicates that the model is reliable. Furthermore, it demonstrates that the fractional model provides a better description of the transport of radionuclides in layered deposition sites by incorporating various dispersion phenomena. The results also reveal that the fractional parameter significantly influences the spatial distribution of radionuclides within the repository site. The observed concentration gaps depend on the definition of the fractional derivative used. This research lays a theoretical foundation for further simulations of radionuclide migration in a multi-barrier system within high-level waste repositories.

Keywords : Fractional derivative; cesium; Advection-dispersion; dispersion coefficient; linear equilibrium; Deep geological storage.

INTRODUCTION GÉNÉRALE

L'avènement de la technologie nucléaire a permis aux pays qui l'utilisent de bénéficier de nombreux avantages en l'occurrence l'augmentation de la production d'énergie. Sa qualité de très faible production de gaz à effet de serre l'a fait connaître un essor considérable 25 ans après l'accident de Tchernobyl (Bai, 2020 ; Ren et Hu, 2017). Cependant, comme pour toute activité liée à l'industrialisation, il y'a inévitablement une production de déchets, mais le volume de déchets radioactifs produit est très faible par rapport à d'autres résidus industriels. Les demi-vies relativement longues de certains radionucléides présents dans ces matériaux, ainsi que leur activité et leur toxicité élevées, constituent un fardeau pour les générations actuelles et futures. Une partie de ces déchets, les déchets de haute activité résultant du retraitement et de l'élimination du combustible usé (DHA - déchets de haute activité), restent dangereux pendant des milliers d'années et doivent donc être soigneusement stockés, en utilisant des barrières qui retardent la migration des radio-isotopes vers la biosphère (Claudia Siqueira da Silveira et al., 2013).

La migration des déchets radioactifs dans les sites de dépôt peut être modéliser à l'aide de l'Equation d'Advection-Dispersion (EAD), qui prend la forme d'une équation aux dérivées partielles. En première approximation, cette équation peut être décrite par la loi de Fick classique, qui stipule une relation linéaire entre le flux massique et le gradient de concentration. Cette approche est pratique car elle permet de décrire le transport à l'aide d'une seule équation et de la résoudre à l'aide de méthodes conventionnelles. Des études ont exploré le transport Fickien des radionucléides dans les milieux poreux. On peut citer G.F. Thomas (1993), Gao et al., 2013, Shackelford et Moore (2013), Tjock-Mbaga et al. (2022) ; Tjock-Mbaga et al. (2023). Ce modèle classique peine à quantifier avec précision le transport anormal des nucléides dans un environnement géophysique et chimique complexe (Zhaoyang et al., 2023, Allwright et Atangana, 2018).

Depuis plusieurs décennies, les chercheurs étudient le transport non-fickien, qui désigne les phénomènes qui ne sont pas conformes à la relation linéaire décrite par la loi de Fick. Ce type de transport est également appelé transport anormal de contaminants. En raison de leurs contributions importantes à la compréhension des processus internes de l'environnement, les recherches continuent de démêler les complexités du comportement non-fickien du transport des radionucléides. Plusieurs modèles ont été utilisés dans la littérature pour rendre compte du transport anormal des radionucléides. Ces modèles incluent la moyenne stochastique de l'équation classique d'advection-dispersion (De Smidts et Devooght, 1998 ; Soheili et Arezoomandan, 2013), le modèle de transfert de masse à taux multiples (Silva

et al., 2009 ; Benson et Meerschaert, 2009 ; Tecklenburg et al., 2016), le modèle de marche aléatoire en temps continu (Painter et al., 2008 ; Li et al., 2019), la méthode de l'équation d'advection-dispersion fractionnaire dans le temps ou l'espace (Wei et al., 2021 ; Yang et al., 2022) et les modèles à deux étapes ou plus (Huang et Goltz, 2015 ; Chopra et al., 2015 ; Chen et al., 2019 ; Sharma et al., 2021). Ces modèles se sont limités au cas du transport des radionucléides dans une seule couche pourtant, le système de barrières multiples est le plus utilisé dans les sites de dépôt pour empêcher la migration des radionucléides dans l'environnement.

L'objectif de ce travail est d'étudier la migration anormale des radionucléides dans les systèmes de stockage géologiques à barrières multiples à l'aide du modèle fractionnaire afin d'obtenir les distributions dans chaque couche. Le travail tient compte des processus de sorption des radionucléides à l'équilibre isotherme linéaire. Les résultats de simulation obtenus sont comparés aux résultats de mesures expérimentales ainsi qu'aux modèles de transport normal des radionucléides dans les sites de dépôt à une et plusieurs barrières, pour la validation du modèle mais aussi, pour voir le modèle qui illustre le mieux le transport des déchets radioactifs dans les sites de dépôt pour une meilleure évaluation de la sûreté nucléaire. Enfin, les effets de l'ordre de la dérivée fractionnaire sur la distribution des radionucléides dans les sites de dépôt sont étudiés. Les résultats fournissent des techniques importantes pour les systèmes de stockage des DHA dans un avenir proche. Pour mener à bien notre objectif, le travail s'articulera en trois(03) chapitres :

- Le chapitre 1 est focalisé sur la revue de la littérature portant sur la la contamination des radionucléides et leur transport dans les sites de dépôt ;
- Le chapitre 2 est consacré au matériel et aux méthodes ;
- Dans le chapitre 3, nous présentons les différents résultats et les discussions.

REVUE DE LA LITTÉRATURE SUR LA CONTAMINATION DES RADIONUCLÉIDES ET
LEURS TRANSPORTS DANS LES SITES DE DÉPÔT

Introduction

L'expansion de la technologie nucléaire suscite l'attention d'un grand nombre de personnes du fait des risques encourus mais aussi de la production d'importantes quantités de déchets. Pour limiter les risques liés aux déchets radioactifs, la plupart de ces déchets sont souvent stockés dans des sites constitués de plusieurs barrières qui, parfois sont perméables. La présence des déchets radioactifs dans les sols entraînent des conséquences importantes à long terme sur la vie humaine à cause de leur migration. Pour comprendre les mécanismes de contamination et de transport des radionucléides dans les sites de dépôt, nous aborderons notamment dans ce premier chapitre les points suivants : radioactivité dans l'environnement, déchets radioactifs , transport des déchets radioactifs dans le site de dépôt, et transport anormal.

1.1 Radioactivité dans l'environnement

1.1.1 Définition et types de radioactivité

La matière est constituée fondamentalement d'atomes. L'atome est constitué d'un noyau (contenant des protons chargés positivement et des neutrons) autour duquel gravitent les électrons (chargés négativement). La plupart des noyaux sont stables et d'autres sont instables car ils possèdent trop de protons ou de neutrons. Cette instabilité du noyau provient de quatre(04) types d'interactions dans les atomes à savoir l'interaction forte, l'interaction faible, l'interaction électromagnétique et l'interaction électrostatique (Ben-Bolie, 2023). Pour revenir vers un état stable, un radionucléide, noyau instable, va tendre vers la stabilité en se transformant par désintégration et/ou désexcitation. Ce phénomène spontané de transformation de noyaux en d'autres afin de revenir vers un état plus stable est appelé : radioactivité. On peut ainsi la définir comme l'ensemble de processus physique par lesquels les atomes instables émettent une quantité d'énergie sous forme des rayonnements et / ou des particules pour redevenir stables (Orano, 2020). On distingue trois grandes familles de radioactivité correspondant aux trois (03) types de rayonnements émis lors des transformations des noyaux : la radioactivité alpha (α),

la radioactivité bêta (β) et la radioactivité gamma (γ).

• **La radioactivité alpha (α)** : Elle est constituée de particules composées de deux protons et de deux neutrons (noyau d'hélium). Elle concerne les noyaux lourds : l' ^{238}U par exemple, se transforme en ^{234}Th (voir Figure 1.1). Ce rayonnement, qui perd très vite son énergie, a un pouvoir de pénétration très faible. Il ne parcourt que quelques centimètres dans l'air. L'équation générale de la désintégration alpha se traduit par :

$${}^A_Z X \rightarrow {}^{A-4}_{Z-2} Y + {}^4_2 \text{He} \quad (1.1)$$

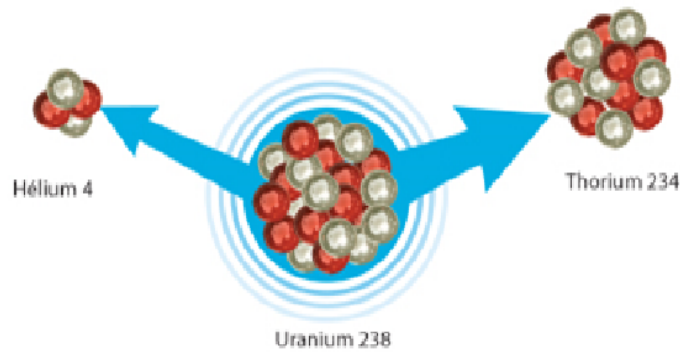


Figure 1.1 – Radioactivité α de l' ^{238}U (Radioactivité alpha. © Yuvanoë/CEA)

• **La radioactivité bêta (β)** : provient de la transformation dans le noyau, soit d'un neutron en proton (il y a alors émission d'un électron β^-), soit d'un proton en neutron (il y a émission d'un positon, " électron " de charge positive β^+). Ce rayonnement ne parcourt que quelques mètres dans l'air. Il est stoppé par une vitre ou une feuille d'aluminium.

L'équation générale de la désintégration bêta plus (β^+) émettant les positrons est :

$${}^A_Z X \rightarrow {}^A_{Z-1} Y + {}^0_1 e + {}^0_0 \bar{\nu} \quad (1.2)$$

La désintégration bêta moins (β^-) libérant des électrons se traduit par l'équation :

$${}^A_Z X \rightarrow {}^A_{Z+1} Y + {}^0_{-1} e + {}^0_0 \nu \quad (1.3)$$

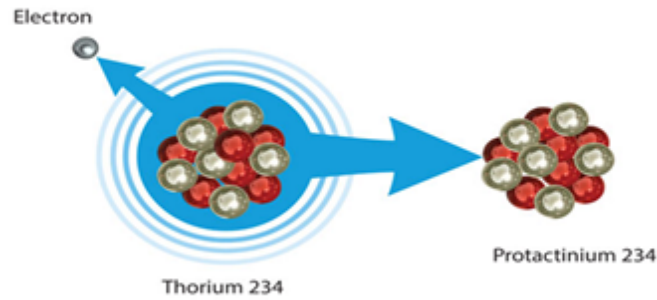


Figure 1.2 – Radioactivité β du Thorium-234 en Uranium-234 (Radioactivité bêta. © Yuvanoe/CEA)

• **La radioactivité gamma (γ)** : est un rayonnement électromagnétique, comme la lumière visible ou les rayons X, mais plus énergétique. Il est émis le plus souvent par des noyaux possédant encore un excès d'énergie à évacuer après une désintégration α ou β . C'est un rayonnement très pénétrant et son parcours dans l'air est de plusieurs centaines de mètres.

L'équation de la désexcitation gamma γ se traduit par :

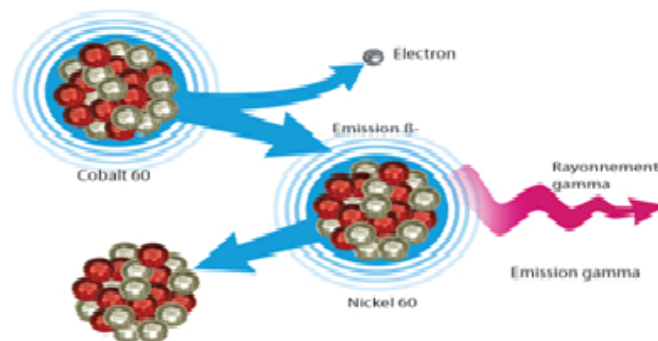


Figure 1.3 – Radioactivité γ (Radioactivité gamma. © Yuvanoe/CEA)

1.1.2 Origines des radionucléides

Les radionucléides sont des substances qui libèrent une énergie portant le nom de radiation. Certains radionucléides sont produits par les humains, comme le ^{137}Cs , et d'autres sont présents dans la nature comme le ^{40}K .

■ Les radionucléides d'origine naturels

Les principales origines naturelles de la radioactivité sont :

• **Le rayonnement cosmique** : il provient soit des ions issus des galaxies, soit du soleil par le biais du " vent solaire " constitué principalement de protons. Le champ magnétique

terrestre forme avec l'atmosphère un écran protecteur de sorte qu'une partie négligeable de ce rayonnement arrive au niveau de la mer (livret de la SFRP, 1998).

- **La radioactivité atmosphérique** : elle est principalement due à la présence de ^{222}Rn sous forme gazeuse (issu de l' ^{238}U) dans l'atmosphère.

- **Le rayonnement tellurique** : il correspond à la radioactivité du sol qui est principalement émise par les éléments radioactifs présents dans l'écorce terrestre tels que l'uranium et le thorium.

- **La radioactivité des eaux** : dépendant des propriétés chimiques des terrains lessivés en surface, Certaines eaux souterraines sont riches en gaz radon dissous (livret de la SFRP, 1998).

- **La radioactivité induite** par les produits d'activation présents dans le corps humain tels que le carbone 14 (^{14}C).

Certains radionucléides naturels présents dans l'environnement sont membre d'une chaîne de désintégration radioactive. Les trois (03) familles de désintégration naturelles radioactive sont celles de l' ^{238}U , l' ^{235}U et du l' ^{232}Th (voir Figure 1.4)

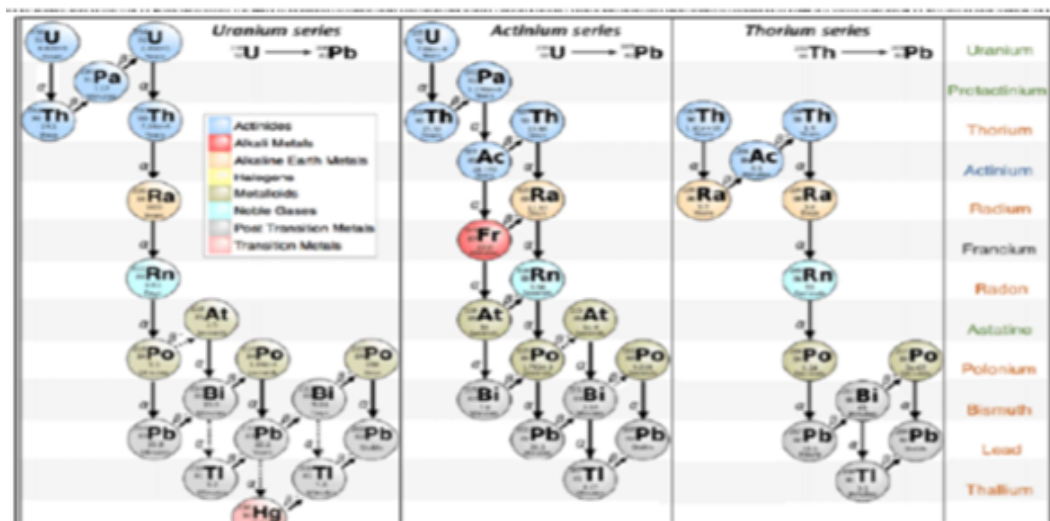


Figure 1.4 – Chaines de désintégrations de l' ^{238}U , U-235 et Th-232 (Researchgate).

■ Les radionucléides d'origine artificiels

Par opposition aux radionucléides naturels, les radionucléides " artificiels " désignent les éléments radioactifs qui , et qui sont recréés artificiellement depuis le début du XXe siècle grace aux activités humaines. Ces radionucléides artificiels proviennent principalement :

- **Des applications médicales** : certains radionucléides peuvent être utilisés comme source de rayonnements pour des radiographies ou comme source d'irradiation pour des radiothérapies.

- **Des retombées d'essais atmosphériques d'armes nucléaires (de 1940 à 1980)** : Elles ont rejeté d'énormes quantités de radionucléides dans l'environnement. Actuellement, une dizaine de radionucléides artificiels sont régulièrement mesurés dans l'environnement français

dont le ^{90}Sr , ^{137}Cs , ^{131}I et les isotopes du (^{238}Pu , ^{239}Pu et ^{240}Pu) ainsi que ^{241}Am (IRSN, 2013).

- **Des rejets autorisés en fonctionnement normal des installations nucléaires :** Les radionucléides rejetés par les installations nucléaires sont multiples et diffèrent en fonction du type d'installation et de sa phase de fonctionnement (production, arrêt pour maintenance, démantèlement etc.). Les radionucléides évacués ont une période radioactive relativement courte (quelques jours au maximum), mais leur apport est régulier. Parmi ces radionucléides nous pouvons citer ^{131}I et ^{99}Tc utilisés en médecine nucléaire.

- **Des rejets accidentels :** Les catastrophes majeures de Tchernobyl (Avril 1986) et de Fukushima (mars 2011) ont engendré une importante contamination environnementale avec des quantités importantes des radionucléides rejetés dans l'environnement (Steinhauser et al., 2014). Six radionucléides artificiels (^{131}I , ^{137}Cs , ^{129}Te , ^{95}Nb , ^{136}Cs) ont été détectés dans les échantillons de sols autour de Fukushima (Jagetiya et al., 2014).

Les autres potentielles sources de radionucléides sont la combustion du charbon, la production de ciment et l'utilisation des engrais phosphates dans l'agriculture. Une des conséquences immédiates du rejet massif des radioisotopes dans l'atmosphère est la pollution de la biosphère. La figure ci-dessous présente l'origine des déchets radioactifs d'une centrale nucléaire.

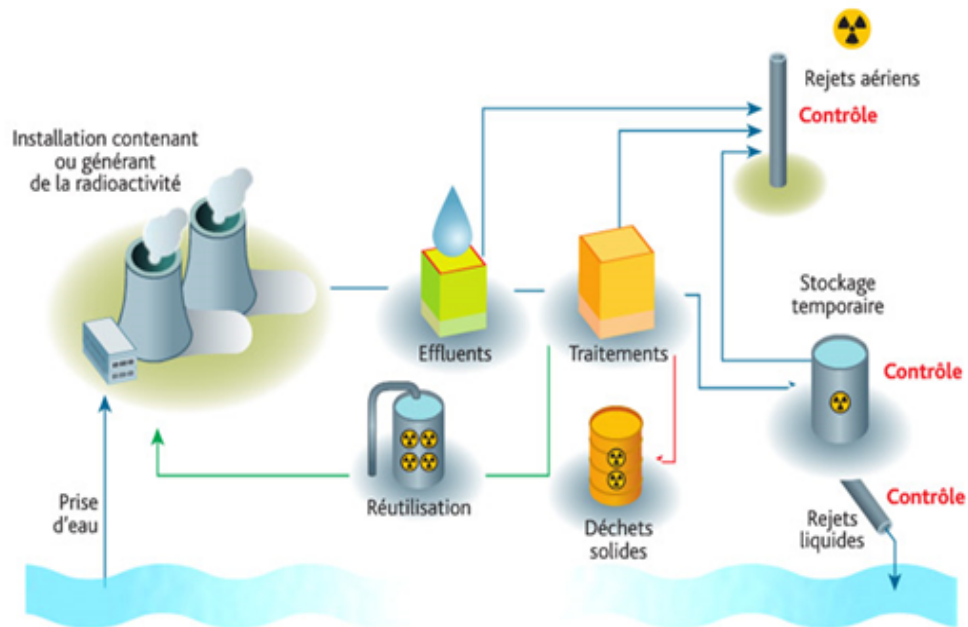


Figure 1.5 – Origine et typologie simplifiées des effluents d'une installation nucléaire. (Crédit © Chromatiques/IRSN - Source : IRSN)

1.2 Les déchets radioactifs

1.2.1 Définition

Toute activité humaine génère des déchets. La production d'électricité d'origine nucléaire engendre la majeure partie de déchet, mais elle n'est pas la seule origine des déchets, 15% du volume total provenant des activités de recherche, de la médecine et de l'industrie (Bataille, 1991). Ces déchets se composent de toutes sortes de substances, de matériaux, d'outils, d'appareils, de conduites et de revêtements de protections qui ne peuvent plus être utilisés : ce sont les déchets radioactifs. On peut ainsi les définir comme des types de déchets dangereux contenant des matières radioactives. Cela comprend tout matériau qui est intrinsèquement radioactif ou qui a été contaminé par la radioactivité et qui est considéré comme n'ayant plus d'utilisation (Dongyang et al., 2020). Les déchets radioactifs constituent une menace importante pour la santé environnementale et humaine ; ils doivent donc être gérés correctement pour garantir que l'exposition radioactive ne dépasse pas les normes et réglementations (Poskas et Poskas, 2019)

1.2.2 Les types de déchets radioactifs

Il existe 2 grandes catégories de déchets radioactifs : les déchets radioactifs à gestion à court terme et les déchets radioactifs à gestion à long terme (ONDRAF, 2018).

■ Déchets radioactifs à gestion à court terme

Pour leur gestion à court terme, les déchets radioactifs sont repartis en 3 grandes catégories :

- **Les déchets de faible activité (DFA)** : Ce sont des déchets radioactifs dont le débit de dose au contact (dose à laquelle un individu est exposé au contact) est inférieur à 5 millisievert par heure. Ces déchets proviennent de la production d'électricité au moyen de l'énergie nucléaire, des applications de la radioactivité en médecine, en agriculture et dans l'industrie.

- **Les déchets de moyenne activité (DMA)** : Ce sont des déchets radioactifs dont le débit de dose au contact se situe entre 5 millisievert et 2 sievert par heure. La plupart de ces déchets proviennent de la fabrication et du retraitement des combustibles nucléaires.

- **Les déchets de haute activité (DHA)** : Ce sont des déchets radioactifs dont le débit de dose au contact est supérieur à 2 sievert par heure. Ces déchets dégagent de la chaleur. Ce sont les produits de fission issus du retraitement des combustibles nucléaires usés, les combustibles usés eux-mêmes s'ils ne sont pas retraités.

■ Déchets radioactifs à gestion à long terme

Pour leur gestion à long terme, les déchets radioactifs sont repartis en 3 grandes catégories :

- **Les déchets de faible ou moyenne activité et de courte durée de vie ou déchets de catégorie A** : Ce sont des déchets conditionnés dont les radioéléments présentent des

concentrations d'activité suffisamment faibles et des durées de vie suffisamment courtes pour pouvoir être mis en dépôt final en surface (ONDRAF, 2018). Ils regroupent les déchets de faible et de moyenne activité à courte durée de vie (30 ans maximum), mais peuvent également contenir d'infimes quantités d'éléments radioactifs à longue durée de vie.

- **Les déchets de faible ou moyenne activité et de longue durée de vie ou déchets de catégorie B** : Ils regroupent les déchets conditionnés de faible et de moyenne activité contaminés par les émetteurs alpha de longue durée de vie en quantité trop importantes pour pouvoir être rangés dans la catégorie A. Ils génèrent cependant très peu de chaleur pour appartenir à la catégorie C. Ces déchets contiennent aussi des quantités variables d'émetteurs bêta et gamma.

- **Les déchets de haute activité et de courte ou longue durée de vie ou déchets de catégories C** : Ce sont des déchets non recyclables issus du traitement des combustibles usés des centrales nucléaires.

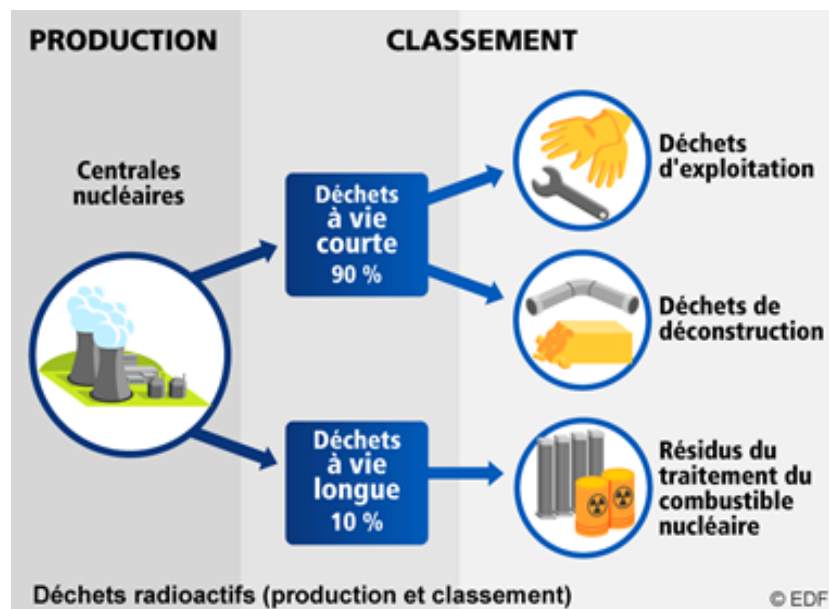


Figure 1.6 – Déchets radioactifs (EDF, 2018).

1.2.3 Stockage des déchets radioactifs

Les questions concernant le stockage, le retraitement et l'élimination sûrs des déchets radioactifs continuent de préoccuper les scientifiques, les hommes politiques et les juristes. En effet, il existe trois principaux types de déchets radioactifs : les déchets faiblement, moyennement et fortement radioactifs. A la fin de leur durée d'utilisation, les matières radioactives qui deviennent des déchets radioactifs sont d'abord stockées, c'est-à-dire sécurisées et protégées pendant un certain temps. Il existe plusieurs types de stockage des déchets radioactifs : stockage géologique profond et le stockage surfacique (IAEA, 2023)

- **Le stockage géologique profond** : Les déchets sont enfouis à grande profondeur dans

les formations géologiques stables et elle convient pour les déchets de haute activité (DHA) et à vie longue. Le concept principal du stockage géologique des DHA repose sur une combinaison de barrières artificielles et naturelles, appelées système à barrières multiples. L'objectif principal de ce système à barrières multiples est d'empêcher les radionucléides d'atteindre l'environnement humain. Une illustration représentative du concept de stockage géologique profond des DHA est présentée à la Figure 1.7. Le système à barrières multiples est simplifié en deux couches adjacentes pour représenter la barrière artificielle (remblai de bentonite) et la barrière naturelle (roche hôte granitique), (Shuai Yang et al., 2022). Il est largement admis que le stockage géologique profond est la meilleure solution pour l'élimination définitive de la plupart des déchets radioactifs produits (World Nuclear Association, 2024).

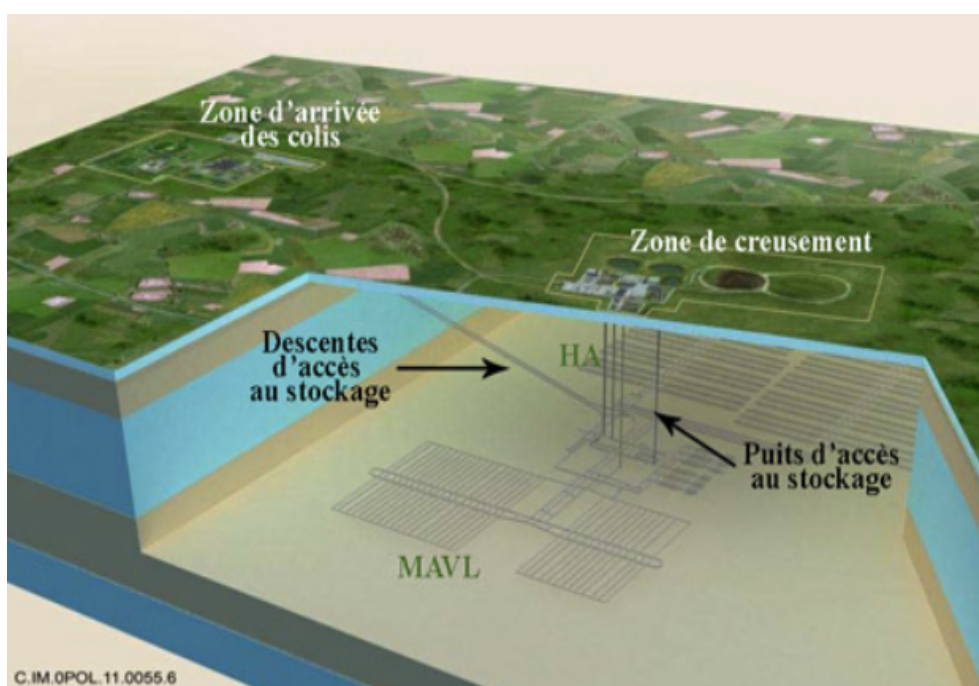


Figure 1.7 – Principe de stockage géologique profond (INPNPP, 2024)

- **Le stockage surfacique** : Dans le stockage de surface, les déchets sont placés dans des installations à faible profondeur c'est à dire des installations situées à la surface ou sous la surface, où la couche protectrice est épaisse de quelques mètres et des installations dans des cavernes souterraines. Les déchets sont conditionnés dans les futs, les conteneurs ou des colis avant leur stockage ; ce type de stockage convient aux déchets de faible et moyenne activité à vie courte. Une surveillance et un entretien à long terme est nécessaire pour s'assurer de l'intégrité des barrières de confinement (voir Figure 1.8).



Figure 1.8 – Entreposage de déchets radioactifs (youmatter.word. 2017)

1.3 Transport des déchets radioactifs dans les sites de dépôt

Le mécanisme du transport des radionucléides en général et des déchets radioactifs en particulier dans les sites de dépôt est régi par des phénomènes physiques, chimiques et environnementaux. Ces phénomènes dépendent des propriétés physico-chimiques des sites de dépôts et des déchets eux-mêmes (Quirk et Millington, 1961 ; INERIS, 2010 ; Vasudevan et al., 2015). Il s'agit des phénomènes de convection, diffusion moléculaire, dispersion cinématique et d'adsorption.

1.3.1 La convection

La convection est l'ensemble des mouvements internes (verticaux ou horizontaux) qui animent un fluide et qui impliquent alors le transport des propriétés des particules de ce fluide au cours de son déplacement (<https://fr.wikipedia.org/wiki/Convection>). Lors de ce transport, le flux unidirectionnel est le produit de la quantité d'eau qui circule par la concentration du soluté dissout. Elle est régie par l'équation de continuité :

$$J_c = \eta_e \cdot v \cdot C. \quad (1.5)$$

où J_c désigne le flux de convection ($kg\,m^{-2}s^{-1}$), v est la vitesse d'écoulement de l'eau ($m\,s^{-1}$), C représente la concentration volumique du polluant dissout ($kg\,m^{-3}$) et η_e la porosité du milieu.

L'équation de transport d'un soluté par convection dans un milieu s'écrit :

$$\frac{\partial C}{\partial t} = -\eta_e \cdot v \cdot C, \quad (1.6)$$

Il existe deux types de convections :

- **La convection forcée** : elle suppose la présence d'un dispositif pour mettre en mouvement le fluide (pompe, compresseur...);
- **La convection libre** : le mouvement du fluide résulte de l'existence d'un gradient de température dans le fluide.

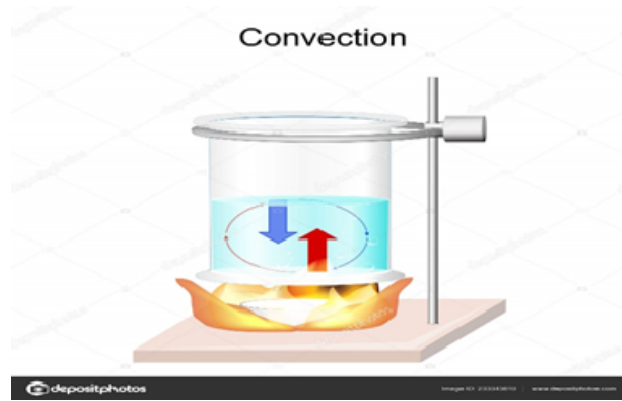


Figure 1.9 – Conduction Convection (Dreamstime.com)

1.3.2 La diffusion moléculaire

Elle se définit comme étant la migration naturelle des radioéléments sous formes d'espèces dissoutes dans l'eau contenue dans les minuscules pores de la roche. Elle dépend des concentrations des éléments radioactifs dissouts et du milieu. Même s'il n'y a pas écoulement dans le fluide, lorsque le gradient de concentration incident (des polluants) est supérieur à celui du fluide, la diffusion reste possible sous l'influence de l'agitation brownienne (activité cinétique) des molécules ou des produits ioniques. On peut décrire ce phénomène par la loi de Fick :

$$J_d = -D^* \frac{dC}{dx}, \quad (1.7)$$

où J_d représente le flux massique de diffusion par unité de section et par unité de temps ($kg/(m^2s)$), D^* est le coefficient de diffusion moléculaire (m^2/s) et $\frac{dC}{dx}$ est le gradient de température. Dans le cas où le flux et la concentration varient, nous avons plutôt l'équation suivante :

$$\frac{\partial C}{\partial t} = -\frac{\partial J_d}{\partial x}. \quad (1.8)$$

Cependant, à cause de la nature tortueuse du milieu, le chemin parcouru par le soluté est différent de celui à l'eau libre. Il faut donc prendre en considération la tortuosité du chemin parcourue en définissant un coefficient τ tel que :

$$D_e^* = \tau D^*, \quad (1.9)$$

avec D_e^* coefficient de diffusion moléculaire effectif (m^2/s) et τ représente la tortuosité dont la valeur est le rapport entre le chemin parcourue en ligne droite et celui réellement parcouru.

1.3.3 La dispersion cinétique ou cinématique

Les déchets radioactifs dissouts dans un site peuvent avoir deux directions ; une longitudinale et l'autre verticale. Cette hétérogénéité des directions et des vitesses donne naissance à la dispersion mécanique car elle donne des informations sur le milieu. Il existe une relation entre le coefficient de dispersion cinématique (D_m) la vitesse d'écoulement de l'eau donnée par :

$$D_m = \alpha.v, \quad (1.10)$$

avec α la dispersivité du milieu (m).

La dispersion des vitesses s'explique par trois(03) mécanismes :

- Le vecteur vitesse de soluté est maximum au niveau des chenaux et minimum au contact avec la partie solide de roche ;

- La distribution des vitesses dépendant de la section laissée par les pores ;
- La nature tortueuse des grains des roches devant le vecteur vitesse.

En effet, les composantes de dispersion sont :

- **La dispersion longitudinale** : elle se fait selon le sens de l'écoulement du fluide. C'est lorsque la concentration de celui-ci se dirige selon le vecteur vitesse du milieu qu'on parle de la dispersion longitudinale. D'après (Elshamy, 2007 ; Renu, 2016), la valeur de la dispersion longitudinale vaut le 1/10ème du panache ou de l'observation. Pour une échelle de 1m, elle vaut 0,01m et 0,1m pour ce qui est d'analyse approximative de 10m ;

- **La dispersion transversale** : elle représente la concentration normale du soluté au sens de l'écoulement. Elle représente 1/100ème de la longueur du panache ou de l'observation (Renu et Kumar, 2016 ; Inazumi et al., 2017). La distribution peut être verticale vers le haut ou vers le bas. Mais s'il faut le préciser, la proportion de dispersion vers le haut est quand-même très basse.

On peut relier les deux types de dispersion par la formule :

$$D_{ij} = \alpha_T |V| \delta_{ij} + (\alpha_T + \alpha_L) \frac{V_i V_j}{|V|} + D * \delta_{\tau_{ij}}, \quad (1.11)$$

avec V_i la vitesse d'écoulement de l'eau ; V la norme du débit réel, τ la tortuosité, δ le symbole de kronecker et α_L et α_T représentant respectivement les dispersions longitudinale et transversale.

1.3.4 La sorption

La sorption est l'ensemble des processus par lesquels des molécules, des atomes ou des ions d'un fluide (gaz ou liquide) s'accumulent à la surface d'un solide, formant ainsi une couche. Le processus de sorption sur un matériau poreux comme le sol comprend l'adsorption, la chimisorption, l'absorption et l'échange d'ions. Pour modéliser les processus de sorption en une dimension, on définit la fonction :

$$S = S(x, t), \quad (1.12)$$

qui représente la quantité du soluté absorbée. La quantité du soluté sorbé est souvent mesurée en terme de masse du soluté par unité de masse du sol (kg/kg) à cause de l'attachement des solutés aux particules minérales.

La masse du sol par unité de volume du milieu poreux est $\rho_b(\eta - 1)$ et par conséquent, le taux d'adsorption est donné par :

$$F = -\rho_b(1 - \eta)s_t, \quad (1.13)$$

où F représente le taux d'adsorption, ρ_b est la densité (masse volumique) du milieu poreux (kg/m^3) et S_t la quantité du soluté (kg/kg).

On peut en première approche considérer le processus d'adsorption comme une réaction chimique réversible dans laquelle un site d'adsorption du solide réagit avec une particule pour produire une particule absorbée. La réversibilité de la réaction signifie que, dans un sens strict, le processus est un processus d'adsorption-desorption. La réaction se présente ainsi que suit :



où σ désigne la densité des sites d'adsorption dans la fabrique solide immobile.

Lorsque le processus de sorption est rapide par rapport à la vitesse d'écoulement de l'eau, la concentration sorbée sur le sol atteindra un équilibre local et le processus pourra être décrit par une isotherme de sorption à l'équilibre. Dans le cas inverse, où le soluté vis à vis de la surface solide sera dans un état de non équilibre local, il faudra utiliser un modèle de sorption décrivant cet état de non équilibre.

En général, le phénomène de sorption induit un effet de retard dans le transport de polluant dissout dans le milieu aquifère. Particulièrement, le coefficient de partage sol-eau (K_d) qui peut se déduire de la fraction en carbone organique de la matrice poreuse (f_{OC}) par la relation :

$$K_d = K_{OC} \cdot f_{OC}. \quad (1.15)$$

Cette expression n'est valable que pour les composés organiques uniquement (Clement et al., 2008). En tenant compte de ce phénomène, la sorption sera introduite dans l'équation de transport par :

$$\frac{\partial C}{\partial t} = \frac{\rho b}{\eta} \frac{\partial S}{\partial t}. \quad (1.16)$$

1.3.5 La dégradation

Les processus de dégradations sont des phénomènes qui affectent la disparition des composés chimiques. Ils peuvent être biologiques (matières organiques) ou naturelles (radionucléides). Les bactéries et les champignons sont les principaux acteurs de la biodégradation. Selon la structure des composés chimiques, chaque composé ne sera pas dégradé selon les mêmes paramètres car il se peut que certains soient persistants par rapport aux autres. La dégradation est un phénomène complexe. Il existe différents modèles cinétiques décrivant mathématiquement ce processus. Pour les radionucléides et certaines substances organiques, elle est décrite par un modèle de premier ordre donné par (Simpkins et al., 1985 ; Bossew et Kirchner, 2004, Schafer et al., 2005) :

$$\frac{dC}{dt} = -\lambda C, \quad (1.17)$$

où λ représente la constante de dégradation du premier ordre encore appelée constante de désintégration (s^{-1}). On en déduit dans ce cas une période ou demi-vie $T(s)$ par dégradation d'un composé liée à la constante de dégradation par :

$$T = \frac{\ln 2}{\lambda}. \quad (1.18)$$

1.3.6 Equation de transport des radionucléides en milieux poreux

L'équation de transport des radionucléides en milieu poreux est une équation de conservation de la masse des radionucléides dans le domaine. En tenant compte de chacun des phénomènes cités ci-dessus et intervenants lors du transport, on obtient l'équation suivante (Tjock et al., 2022) :

$$R \frac{\partial C}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x} \left(D \frac{\partial C}{\partial t} - vC \right) - R\lambda C + \gamma, \quad (1.19)$$

où $R = 1 + \frac{K_d \rho_b}{\eta}$ est le coefficient de retard.

Cependant, lorsque les radionucléides au cours de leur transport traversent des formations géologiques différentes, on parle du transport multicouche. On rencontre ce type de transport à

l'occurrence dans les sites de dépôt des déchets radioactifs. Pour tenir compte des différences des propriétés physiques et chimiques des différentes couches traversées, l'équation (1.19) doit être modifiée pour considérer des valeurs différentes de chaque paramètre. Ainsi, on aura l'équation de transport multicouche suivante :

$$R_i \frac{\partial C_i}{\partial t} = D_i \frac{\partial^2 C_i}{\partial x^2} - v_i \frac{\partial C_i}{\partial x} - \lambda R_i C_i, \quad (i = 1, 2, \dots, m) \quad (1.20)$$

Dans cette équation, R_i , C_i , v_i et D_i représentent respectivement le facteur de retard, la concentration, la vitesse d'écoulement de l'eau et le coefficient de dispersion dans la couche i .

1.4 Transport anormal des contaminants

Certaines formations géologiques ont des compositions, des propriétés et des processus physiques et chimiques uniques que l'ADE conventionnelle basée sur la loi de Fick ne peut pas expliquer, en particulier les augmentations de concentration. De plus, dans les roches souvent utilisées pour le stockage géologiques des déchets radioactifs, l'eau et les contaminants se déplacent dans des petits pores appelés fractures. Le modèle de transport à l'équilibre ne parvient pas à bien décrire la distribution des contaminants dans de pareils roches. Pour ces derniers, il faut donc étudier le transport non Fickien, qui fait référence à des phénomènes non conformes à la relation linéaire décrite par la loi de Fick. Ce type de transport est aussi appelé transport anormal de contaminants.

Des études ont montré que ce transport anormal des contaminants dans l'environnement peut être entraîné par des événements naturels et les activités humaines. La diffusion et la sorption sont reconnues comme deux processus dominants de retard du transport des radionucléides dans les roches cristallines (Yang et al., 2017), qui sont respectivement quantifiés par un coefficient de diffusion effectif et un coefficient de distribution de sorption pour la sorption linéaire. Pour comprendre les deux processus, diverses techniques de laboratoire ont été appliquées pour déterminer les paramètres pertinents, notamment la sorption discontinue (Lehto et al., 2019), la diffusion par diffusion (Aromaa et al., 2019). Au cours de la dernière décennie, les chercheurs en transport souterrain se sont de plus en plus concentrés sur la dispersion anormale (c'est-à-dire non Fickienne) dans les formations géologiques naturelles. Il a été reconnu que ce phénomène implique une non-localité spatiale et éventuellement temporelle dans la théorie constitutive décrivant le flux dispersif. Plus récemment, plusieurs chercheurs ont modélisé la dispersion anormale en utilisant une théorie constitutive qui repose sur des dérivées fractionnaires, par opposition à des dérivées entières, du champ de concentration (Cushman et Ginn., 2000).

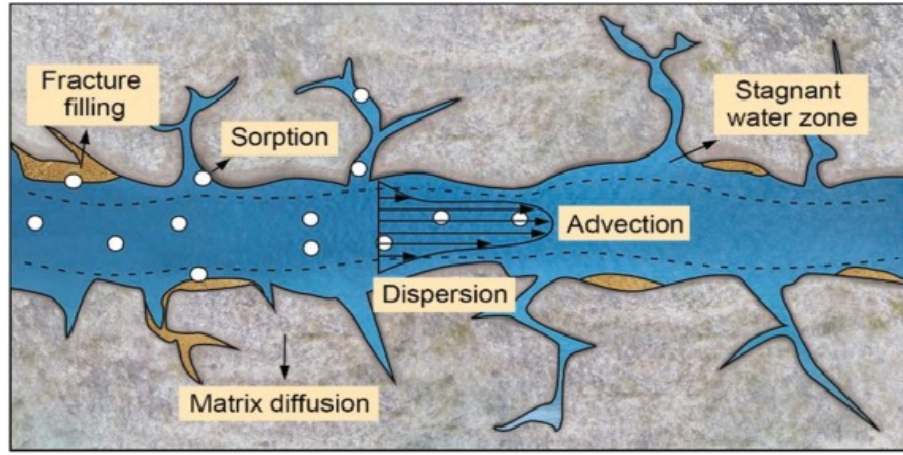


Figure 1.10 – Schéma des différents processus du transport des solutés dans un milieu fracturé idéalisé (Zhang et al., 2022)

1.5 Travaux récents concernant le transport anormal des radionucléides

Vu les enjeux écologiques et les risques encourus par les déchets radioactifs, la modélisation du transport de ces derniers dans les sites de dépôt a connu un essor important ces dernières années. Les chercheurs se penchent de plus en plus sur le transport anormal, qui est celui permettant de mieux ressortir les informations sur la structure interne des sites de dépôt.

1.5.1 Transport hors équilibre des radionucléides dans les roches

Lee et al. (2021) ont étudié le transport par advection et dispersion hors équilibre du tritium, du sélénium et du césium dans le granite concassé avec différentes longueurs de chemin. Pour cela, ils ont considéré dans un premier temps que le transfert des particules des radionucléides entre les phases liquide et solide était décrit par un taux de sorption limité (non-équilibre chimique ou modèle à deux types de sites sorption). Ensuite, ils ont considéré que les différents milieux étaient constitués de deux types de pores, les uns permettant l'écoulement de l'eau et les autres non (non-équilibre physique ou modèle à deux types régions) : c'est le modèle mobile-immobile (MMI). L'équation addimensionnée du transport des radionucléides dans les deux modèles peut s'écrire de manière générale :

$$\beta R \frac{\partial C_1}{\partial T} + (1 - \beta) R \frac{\partial C_2}{\partial T} = \frac{1}{P} \frac{\partial^2 C_1}{\partial X^2} - \frac{\partial C_1}{\partial X} - \mu C_1, \quad (1.21)$$

$$(1 - \beta) R \frac{\partial C_2}{\partial T} = \omega (C_1 - C_2), \quad (1.22)$$

où les variables addimensionnées dépendent du type de non-équilibre.

Ils ont comparé les résultats obtenus à l'aide de leurs modèles aux résultats expérimentaux et aux résultats obtenus à l'aide du modèle à l'équilibre isotherme linéaire. Les courbes obtenues ont montré que les résultats des modèles hors équilibre permettent de décrire les distributions des concentrations obtenues expérimentalement. Par contre, les résultats obtenus à l'aide du modèle à l'équilibre s'éloignent des résultats expérimentaux.

1.5.2 Transport anormal des radionucléides dans les roches en tenant compte des interactions structurelles

Lin et al. (2023) ont présenté une nouvelle approche du transport de solutés fondée sur la théorie temporellement assouplie de la loi de Fick. La méthodologie consistait à introduire deux temps de relaxation pour tenir compte des collisions et l'attachement des particules de soluté, conduisant à la dérivation d'une nouvelle équation d'advection-dispersion. Le problème fut formulé ainsi :

$$R(t + \tau_J \frac{\partial}{\partial t}) \frac{\partial C}{\partial t} = (t + \tau_C \frac{\partial}{\partial t}) \frac{\partial C}{\partial x} [D \frac{\partial C}{\partial x} - vC], \quad (1.23)$$

où τ_J (s) et τ_C (s) sont respectivement les paramètres de retard de flux et de retard de stockage. Les conditions initiales et aux limites du problème sont données par :

$$C(x, t) = \frac{\partial C(x, t)}{\partial x} = 0, \quad 0 \leq x < \infty; t = 0, \quad (1.24)$$

$$v \frac{\partial C}{\partial t} \Big|_{x=0} = Aq(C_0(t)) - C(x = 0), \quad (1.25)$$

$$C(x \rightarrow \infty, t) = 0. \quad (1.26)$$

Le problème fut résolu à l'aide de la transformée intégrale de Laplace. Ils ont montré que les temps de relaxation possèdent des propriétés similaires aux paramètres de transport dans le Modèles MIM et RLS, et que leur solution peut être appliquée pour prédire avec précision les paramètres de transport à partir des expériences à sol sur colonnes. Cette approche innovante permet de mieux comprendre le transport des solutés et son impact sur contamination des eaux souterraines.

Conclusion

Ce chapitre était dédié à la revue de la littérature sur la contamination des radionucléides et leurs transports dans les sites de dépôt. Nous avons d'abord présenté la radioactivité dans l'environnement et il en ressort que la radioactivité présente dans l'environnement est issue de deux

origines : une origine naturelle et une autre artificielle. Les installations nucléaires produisent d'énormes quantités de déchets radioactifs dont certains doivent être stockés pour des besoins de radioprotection. Ce qui nous a donc amené à présenter par la suite, quelques techniques de stockage des déchets radioactifs. Ensuite, nous avons décrit quelques phénomènes qui régissent le transport des déchets radioactifs dans les sites de dépôt à l'occurrence l'advection, la dispersion, la bioturbation et la dégradation. Le chapitre s'est achevé par une présentation brève de deux modèles récents sur le transport anormal des radionucléides. Dans le prochain chapitre, nous allons déterminer des solutions semi-analytiques du problème de transport anormal des déchets radioactifs dans les sites de dépôt en couche.

MATÉRIELS ET MÉTHODES

Introduction

L'énergie nucléaire est une option idéale pour les sources d'énergie durables issues de la fission de l'uranium-235. Cependant, la production de cette énergie génère des déchets radioactifs à long terme qui sont un danger pour l'Homme et son environnement. Néanmoins, les mesures de sécurité restent envisageables. Nous avons énuméré des techniques de stockage des déchets radioactifs, leur transport dans le site de dépôt et leur transport anormal dans le chapitre précédent. Dans ce chapitre consacré aux matériels et méthodes, nous présenterons dans un premier temps les méthodes de résolutions des problèmes de transport dans les milieux poreux en couche. En suite, un modèle fractionnaire de transport par advection-dispersion sera proposé pour simuler la migration des radionucléides dans les sites de dépôt et sera résolu. Le chapitre s'achèvera par la présentation du dispositif expérimental qui servira à la validation du modèle.

2.1 Méthodes de résolution des problèmes de transport dans les milieux en couches

Dans cette partie, nous présentons quelques méthodes les plus utilisées pour la résolution des problèmes de transport des contaminants non conservatifs (tels que les radionucléides) dans les milieux en couches. Considérons le transport de soluté à travers un milieu poreux à m -couches divisées comme suit $0 = l_0 < l_1 < \dots < l_{m-1} < l_m = L$ (Figure 2.1).

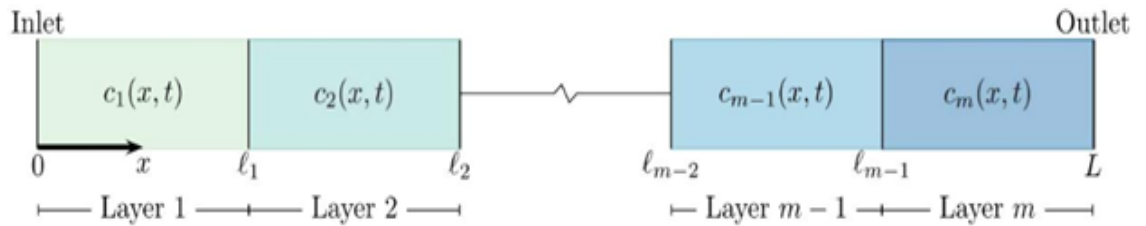


Figure 2.1

Soit $C_i(x, t)$ la concentration du soluté ($kg.m^{-3}$) dans la i ème couche, où $x \in (l_{i-1}, l_i)$ est la

distance de l'entrée à $x = 0$ et ($t > 0$) est le temps. L'équation de transport déterminante dans la i ème couche qui tient compte de l'advection, la dispersion, la sorption, la désintégration et la production du soluté s'écrit :

$$R_i \frac{\partial c_i}{\partial t} = D_i \frac{\partial^2 c_i}{\partial x^2} - v \frac{\partial c_i}{\partial x} - \mu_i c_i + \gamma_i, \quad (2.1)$$

où $R_i > 0$ est le facteur retard [-], $D_i > 0$ est le coefficient de dispersion ($m^2.s^{-1}$), v_i est la vitesse de l'eau interstitielle ($m.s^{-1}$), μ_i est la constante de vitesse pour la désintégration du premier ordre (s^{-1}), et γ_i est la constante de vitesse pour la production d'ordre zéro ($kg.m^{-3}s^{-1}$) (Van Genuchten et Alves, 1982). Désignons par $c(x, t)$ le résultat de la fusion des concentrations de couches, $c_i(x, t)$ ($i = 1, \dots, m$), tel que défini sur la Figure 2.1. Les équations de transport (1) sont accompagnées de conditions initiales, d'interfaces et limites. La concentration est initialement supposée constante dans chaque couche :

$$c_i(x, 0) = f_i. \quad (2.2)$$

La concentration et le flux dispersif sont supposés continus aux interfaces entre couches adjacentes ($i = 1, \dots, m - 1$) (Leij et al., 1991 ; Liu et al., 1998 ; Pérez Guerrero et al., 2013) :

$$c_i(l_i, t) = c_{i+1}(l_i, t), \quad (2.3)$$

$$\theta_i D_i \frac{\partial c_i}{\partial x}(l_i, t) = \theta_{i+1} D_{i+1} \frac{\partial c_{i+1}}{\partial x}(l_i, t). \quad (2.4)$$

Les conditions aux limites générales de Robin sont prises en compte à l'entrée ($x = 0$) et à la sortie ($x = L$) telles que :

$$a_0 c_1(0, t) - b_0 \frac{\partial c_1}{\partial x}(0, t) = g_0(t), \quad (2.5)$$

$$a_L c_1(0, t) + b_L \frac{\partial c_1}{\partial x}(0, t) = g_L(t). \quad (2.6)$$

La constante θ_i apparaissant dans la condition d'interface (Equation 2.4) est la teneur volumétrique en eau ($m^3.m^{-3}$) dans la i ème couche (Van Genuchten and Alves 1982). Dans les conditions aux limites des (Equations 2.5 et 2.6), a_0 , b_0 , a_L et b_L sont des constantes ; $g_0(t)$ et $g_L(t)$ sont des fonctions du temps, spécifiées arbitrairement 0 et L désignant l'entrée ($x = 0$) et la sortie ($x = L$), respectivement (Figure 2.1). Nous remarquons que b_0 et b_L sont tous deux non négatif, a_0 ou b_0 doit être différent de zéro et au moins un de a_L et b_L doit être différent de zéro .

Pour les problèmes de transport des solutés, on a généralement (Leij et al. 1991 ; Liu et al. 1998 ; Goltz and Huang 2017), soit une condition aux limites de type concentration :

$$c_1(0, t) = c_0(t); \quad (2.7)$$

ou une condition aux limites de type flux :

$$v_1 c_1(0, t) - D_1 \frac{\partial c_1}{\partial x}(0, t) = v_1 c_0(t), \quad (2.8)$$

appliquée à l'entrée, où c_0 est la concentration d'entrée spécifiée, tandis qu'un gradient de concentration nulle est appliqué à la sortie :

$$\frac{\partial c_m}{\partial x}(L, t) = 0. \quad (2.9)$$

Ces conditions aux limites sont obtenues à partir des conditions aux limites générales (Equations 2.5 et 2.6) en définissant $a_0 = 1$, $b_0 = 0$, $g_0(t) = c_0(t)$ (Equation.2.7), $a_0 = v_1$, $b_0 = D_1$, $g_0(t) = v_1 c_0(t)$ (Equation 2.8) et $a_L = 0$, $b_L = 1$, $g_L(t) = 0$ (Equation 2.9), respectivement.

Plusieurs méthodes peuvent être utilisées pour résoudre le problème de transport multicouches formulé par les Equations 2.1 à 2.6. Nous n'en présenterons ici que deux dans cette partie.

2.1.1 Méthode de la GITT

L'objectif ici est de trouver une solution analytique sous forme fermée pour le problème de l'advection-dispersion mentionné plus haut. Pour ce faire, les procédures de la GITT sont employées.

• Homogénéisation des conditions aux limites

La méthode de la GITT débute par une substitution de variables dans l'équation (2.1), pour homogénéiser les conditions aux limites des équations (2.5) et (2.6), et pour faire converger la solution aux limites. Les conditions aux limites du problème sont homogénéisées en introduisant la fonction " filtre " $F_i(x)$ et une fonction inconnue $H_i(x, t)$ tels que :

$$c_i(x, t) = F_i(x) + H_i(x, t). \quad (2.10)$$

Lorsque $F_i(x)$ est choisie de manière appropriée, en remplaçant l'équation(2.10) dans les équations (2.1)-(2.6), on obtient un problème avec des conditions aux limites homogènes en termes de variables dépendantes $H_i(x, t)$. Une substitution de l'équation (2.10) dans les équations (2.1)-(2.6) donne :

$$R_i \frac{\partial H_i}{\partial t} = L_i H_i; \quad x_{i-1} < x < x_i, \quad i = 1, 2, 3, \dots, m \quad (2.11)$$

$$u_1 H_1 - D_1 \frac{\partial H_1}{\partial x} = 0; \quad x = x_0 = 0, \quad (2.12)$$

$$H_i = H_{i+1}$$

$$k_i \frac{\partial H_i}{\partial x} = k_{i+1} \frac{\partial H_{i+1}}{\partial x}; \quad x = x_i; \quad i = 1, 2, 3, \dots, m-1 \quad (2.13)$$

$$\frac{\partial H_m}{\partial x} = 0; \quad x = x_m, \quad (2.14)$$

$$H_i(x, 0) = G_i(x) - F_i(x); \quad x_{i-1} < x < x_i; \quad i = 1, 2, 3, \dots, m, \quad (2.15)$$

ici, $k_i = \theta_i D_i$.

• **Le problème des valeurs propres d'advection-dispersion associé**

Nous devons définir un problème homogène auxiliaire pour la variable spatiale $\psi_i(x)$ dans les mêmes couches du problème original. Le problème auxiliaire d'advection-dispersion qui en résulte est :

$$L_i \psi_i + R_i \lambda^2 \psi_i = 0; \quad x_{i-1} < x < x_i; \quad i = 1, 2, 3, \dots, m, \quad (2.16)$$

$$u_1 \psi_1 - D_1 \frac{d\psi_1}{dx} = 0; \quad x = x_0 = 0 \quad (2.17)$$

$$\left. \begin{array}{l} \psi_i = \psi_{i+1} \\ k_i \frac{d\psi_i}{dx} = k_{i+1} \frac{d\psi_{i+1}}{dx} \end{array} \right\}; \quad x = x_i \quad i = 1, 2, 3, \dots, m-1, \quad (2.18)$$

$$\frac{d\psi_m}{dx} = 0; \quad x = x_m. \quad (2.19)$$

• **Solution du problème des valeurs propres**

La solution générale de l'Eq.(2.16) peut être écrite en termes de deux solutions linéairement indépendantes $\phi_{i,k}(x) \equiv \phi_{i,k}(x; \lambda_k)$ et $\theta_{i,k}(x) \equiv \theta_{i,k}(x, \lambda_k)$ et de deux coefficients $A_{i,k}$ et $B_{i,k}$:

$$\psi_{i,k}(x) = A_{i,k} \phi_{i,k}(x) + B_{i,k} \theta_{i,k}(x); \quad x_{i-1} < x < x_i \quad i = 1, 2, 3, \dots, m \quad (2.20)$$

avec

$$A_{i,k} = \exp \left[\frac{x_{i-1}}{2} \left(\frac{u_{i-1}}{D_{i-1}} - \frac{u_i}{D_i} \right) \right] \overline{A_{i,k}}, \quad (2.21)$$

et

$$B_{i,k} = \exp \left[\frac{x_{i-1}}{2} \left(\frac{u_{i-1}}{D_{i-1}} - \frac{u_i}{D_i} \right) \right] \overline{B_{i,k}}. \quad (2.22)$$

Les équations (2.20) et (2.21)-(2.22) peuvent être combinés pour donner, après simplification appropriée, une expression pour les fonctions propres $\psi_{i,k}(x)$:

$$\psi_{i,k}(x) = \exp\left(\frac{u_i x}{2D_i} + S_i\right) \overline{A_{i,k}} \sin(\beta_{i,k}x) + \overline{B_{i,k}} \cos(\beta_{i,k}x),$$

$$x_{i-1} < x < x_i \quad i = 1, 2, 3, \dots, m \quad k = 1, 2, 3, \dots, \infty \quad (2.23)$$

• Orthogonalité et norme du problème des valeurs propres

Le système des valeurs propres a été réécrit en la forme des problèmes de diffusion auto-adjoint de classe II et la relation d'orthogonalité est donnée par (Mikhailov et Ozisik, 1984) :

$$\sum_{i=1}^m \int_{x_{i-1}}^{x_i} w_i(x) \psi_{i,k}(x) \psi_{i,j}(x) dx = \delta_{kj} N_k, \quad (2.24)$$

où N_i est la norme et l'expression de forme fermée suivante pour la norme est :

$$N_k = \sum_{i=1}^m \bar{N}_{i,k}. \quad (2.25)$$

• La paire de transformées intégrales

La représentation de la fonction $H(x, t)$ sous la forme d'un développement en série en termes de fonction propres $\psi_{i,k}(x)$ permet d'obtenir la paire de transformées intégrales suivante :

$$H_i(x, t) = \sum_{k=1}^{\infty} \frac{\psi_{i,k}(x)}{N_k} \bar{H}_k(t) \quad (Inverse); \quad (2.26)$$

$$\bar{H}_k(t) = \sum_{i=1}^m \int_{x_{i-1}}^{x_i} w_i(x) \psi_{i,k}(x) H(x, t) dx \quad (Transform). \quad (2.27)$$

• Transformée intégrale de l'équation différentielle

En rappelant la formule inverse (Equation 2.26) à l'équation (2.11) et en rappelant le problème des valeurs propres (Equation 2.16), on obtient :

$$R \frac{\partial}{\partial t} \sum_{j=1}^{\infty} \frac{\psi_{i,j}(x)}{N_j} \bar{H}_j(t) = - \sum_{j=1}^{\infty} \frac{R_i \lambda_j^2 \psi_{i,j}(x)}{N_j} \bar{H}_j(t); \quad x_{i-1} < x < x_i, \quad i = 1, 2, 3, \dots, m. \quad (2.28)$$

En utilisant la propriété d'orthogonalité (Equation 2.24), on obtient ce qui suit :

$$\frac{d\bar{H}_k(t)}{dt} = -\lambda_k^2 \bar{H}_k(t); \quad x_{i-1} < x < x_i, \quad i = 1, 2, 3, \dots, m. \quad (2.29)$$

La condition initiale (Equation 2.15) est également transformée pour donner :

$$\bar{H}_k(0) = \sum_{i=1}^m \bar{f}_{i,k}; \quad x_{i-1} < x < x_i, \quad i = 1, 2, 3, \dots, m. \quad (2.30)$$

• **Solution analytique pour les problèmes de transformées et originaux**

La résolution de l'équation (2.29) avec la condition initiale, équation (2.30) donne :

$$\bar{H}_i(t) = \bar{H}_i(0) \exp(-\lambda_i^2 t). \quad (2.31)$$

Enfin, en invoquant la formule inverse et la relation de l'équation (2.10), on obtient une solution analytique en forme fermée pour l'équation de transport dans les milieux multicouches :

$$C_i(x, t) = F_i(x) + \sum_{k=1}^{\infty} \frac{\psi_{i,k}(t)}{N_k} \bar{H}_k(0) \exp(-\lambda_k^2 t); \quad x_{i-1} < x < x_i; \quad i = 1, 2, 3, \dots, m \quad (2.32)$$

2.1.2 Méthode de la transformée de Laplace

Cette méthode fut proposée pour la première fois par Carr (2020) en faisant une extension sur les problèmes de transport multicouches. Pour résoudre le modèle de transport multicouche formulé par les équations (2.1)-(2.6), le problème est reformulé en m -problèmes de transport monocouche isolés (Carr and Turner 2016 ; Rodrigo and Worthy 2016 ; Zimmerman et al. 2016). Pour celà, des fonctions de temps inconnues, $g_i(t)$ ($i = 1, \dots, m-1$), sont introduites pour désigner le multiple scalaire suivant du flux dispersif (négatif) aux interfaces des couches adjacentes (Carr and Turner 2016 ; Rodrigo and Worthy 2016) :

$$g_i(t) = \theta_i D_i \frac{\partial c_i}{\partial t}(l_i, t). \quad (2.33)$$

Cette transformation conduit à la forme équivalente du modèle de transport multicouche (2.1)-(2.6) suivante :

- Première couche ($i = 1$)

$$R_1 \frac{\partial c_1}{\partial t} = D_1 \frac{\partial^2 c_1}{\partial x^2} - v_1 \frac{\partial c_1}{\partial x} - \mu_1 c_1 + \gamma_1, \quad (2.34)$$

$$c_1(x, 0) = f_1, \quad (2.35)$$

$$a_0 c_1(0, t) - b_0 \frac{\partial c_1(0, t)}{\partial x} = g_0(t) \quad (2.36)$$

$$\theta_1 D_1 \frac{\partial c_1(l_1, t)}{\partial x} = g_1(t) \quad (2.37)$$

- Couches intermédiaires ($i = 2, \dots, m - 1$) :

$$R_i \frac{\partial c_i}{\partial t} = D_i \frac{\partial^2 c_i}{\partial x^2} - v_i \frac{\partial c_i}{\partial x} - \mu_i c_i + \gamma_i, \quad (2.38)$$

$$c_i(x, 0) = f_i, \quad (2.39)$$

$$\theta_i D_i \frac{\partial c_i(l_{i-1}, t)}{\partial x} = g_{i-1}(t), \quad (2.40)$$

$$\theta_i D_i \frac{\partial c_i(l_i, t)}{\partial x} = g_i(t). \quad (2.41)$$

- Dernière couche ($i = m$) :

$$R_m \frac{\partial c_m}{\partial t} = D_m \frac{\partial^2 c_m}{\partial x^2} - v_m \frac{\partial c_m}{\partial x} - \mu_m c_m + \gamma_m, \quad (2.42)$$

$$c_m(x, 0) = f_m, \quad (2.43)$$

$$\theta_m D_m \frac{\partial c_m(l_{m-1}, t)}{\partial x} = g_{m-1}(t), \quad (2.44)$$

$$a_L c_m(L, t) + b_L \frac{\partial c_m(L, t)}{\partial x} = g_L(t). \quad (2.45)$$

En appliquant la transformée de Laplace aux problèmes isolés monocouches (2.34)-(2.37), (2.38)-(2.41) et (2.42)-(2.45), nous obtenons :

- Première couche ($i = 1$)

$$D_1 \frac{d^2 \bar{C}_1}{dx^2} - v_1 \frac{d\bar{C}_1}{dx} - (\mu_1 + R_1 s) \bar{C}_1 = -R_1 f_1 - \frac{\gamma_1}{s}, \quad (2.46)$$

$$a_0 \bar{C}_1(0, s) - b_0 \frac{d\bar{C}_1(0, s)}{dx} = G_0(s) \quad (2.47)$$

$$\theta_1 D_1 \frac{d\bar{C}_1(l_1, s)}{dx} = G_1(s). \quad (2.48)$$

- Couches intermédiaires ($i = 2, \dots, m - 1$)

$$D_i \frac{d^2 \bar{C}_i}{dx^2} - v_i \frac{d\bar{C}_i}{dx} - (\mu_i + R_i s) \bar{C}_i = -R_i f_i - \frac{\gamma_i}{s}, \quad (2.49)$$

$$\theta_i D_i \frac{d\bar{C}_i(l_{i-1}, s)}{dx} = G_{i-1}(s), \quad (2.50)$$

$$\theta_i D_i \frac{d\bar{C}_1(l_i, s)}{dx} = G_i(s) \quad (2.51)$$

- Dernière couche ($i = m$)

$$D_m \frac{d^2 \bar{C}_m}{dx^2} - v_m \frac{d\bar{C}_m}{dx} - (\mu_m + R_m s) \bar{C}_m = -R_m f_m - \frac{\gamma_m}{s}, \quad (2.52)$$

$$\theta_m D_m \frac{d\bar{C}_m}{dx}(l_{m-1}, s) = G_{m-1}(s), \quad (2.53)$$

$$a_L \bar{C}_m(L, s) - b_L \frac{d\bar{C}_m}{dx}(L, s) = G_L(s) \quad (2.54)$$

,

où $\bar{C}_i(x, s) = L\{C_i(x, t)\} = \int_0^\infty C_i(x, t)e^{-st}dt$ désigne la transformée de Laplace de $C_i(x, t)$;

$G_i(s) = L\{g_i(t)\} = \int_0^\infty g_i(t)e^{-st}dt$ désigne la transformée de Laplace de $g_i(t)$ pour $i = 1, \dots, m-1$.

Les transformées de Laplace de $G_0(s) = L\{g_0(t)\}$ et $G_L(s) = L\{g_L(t)\}$ sont supposées être déterminées analytiquement. Les problèmes aux valeurs limites (2.46)-(2.48) et (2.49)-(2.51), (2.52)-(2.54) font tous intervenir des équations différentielles du second ordre avec coefficients constants qui peuvent être résolues en utilisant les techniques standard (les détails de résolution ne sont pas mentionnés ici) pour donner les expressions des concentrations suivantes dans le domaine de Laplace :

$$C_1(x, s) = A_1(x, s) G_0(s) + B_1(x, s) G_1(s) + P_1(x, s), \quad (2.55)$$

$$C_i(x, s) = A_i(x, s) G_{i-1}(s) + B_i(x, s) G_i(s) + P_i(x, s); \quad i = 2, \dots, m-1, \quad (2.56)$$

$$C_m(x, s) = A_m(x, s) G_{m-1}(s) + B_m(x, s) G_L(s) + P_m(x, s), \quad (2.57)$$

où les fonctions $A_i(x, s)$, $B_i(x, s)$ et $P_i(x, s)$ sont définies dans le Tableau 1 de (Carr, 2020).

Toutes les autres variables des équations (2.55)-(2.57) étant définies pour déterminer $G_1(s), \dots, G_{m-1}(s)$, les transformées de Laplace des fonctions inconnues aux interfaces $g_1(t), \dots, g_{m-1}(t)$, on impose la continuité de la concentration à chaque interface dans le domaine de Laplace (Carr and Turner, 2016 ; Rodrigo and Worthy, 2016 ; Carr and March, 2018).

$$C_i(l_i, s) = C_{i+1}(l_i, s); \quad i = i, \dots, m-1 \quad (2.58)$$

La substitution des équations (2.55)-(2.57) dans le système d'équations (2.58) donne un système linéaire pour $X = [G_1(s), \dots, G_{m-1}(s)]^T$, qui peut s'exprimer sous la forme matricielle ainsi que suit :

$$AX = b \quad (2.59)$$

où $\mathbf{X}$ est une matrice colonne ayant pour éléments $G_i(s)$, les éléments de la matrice tridagonale $(m-1) \times (m-1) \mathbf{A} (\{a_{ij}\})$ et du vecteur de longueur $(m-1) \mathbf{b} (\{b_i\})$ ($i = 1, 2, \dots, m-1$) sont donnés par :

$$\begin{aligned} a_{x,1} &= B_1(s_1, s) - A_2(l_1, s), \\ a_{s,2} &= -B_2(x_1, s), \\ a_{i,i-1} &= A_i(x_i, s), \quad i = 2, \dots, m-2, \\ a_{i,i} &= B_i(x_i, s) - A_{i+1}(l_i, s), \quad i = 2, \dots, m-2, \\ a_{i,i+1} &= B_{i+1}(x_i, s), \quad i = 2, \dots, m-2, \\ a_{m-1,m-2} &= A_{m-1}(x_{m-1}, s), \\ a_{m-1,m-1} &= B_{m-1}(l_{m-1}, s) - A_m(l_{m-1}, s), \\ b_1 &= P_2(x_1, s) - P_1(x_1, s) - A_1(x_1, s)G_0(s), \\ b_i &= P_{i+1}(x_i, s) - P_i(l_i, s) \quad i = 2, \dots, m-2, \\ b_{m-1} &= P_m(x_{m-1}, s) - P_{m-1}(x_{m-1}, s) - B_m(x_{m-1}, s)G_L(s). \end{aligned}$$

La résolution du système linéaire de l'équation (2.59) permet de calculer les fonctions $G_1(s)$, ..., $G_{m-1}(s)$ et donc, la transformée de la concentration des équations (2.55)-(2.57) peut être évaluée à n'importe quel x et s du domaine de Laplace.

Pour convertir les expressions des équations (2.55)-(2.57) du domaine de Laplace au domaine temporel et ainsi obtenir la concentration, nous devons calculer la transformée de Laplace inverse donnée par :

$$C_i(x, t) = L^{-1} \{ \overline{C}_i(x, s) \} = \frac{1}{2\pi i} \int_{\Gamma} e^{st} \overline{C}_i(x, s) ds; \quad (2.60)$$

où Γ représente le contour de Hankel qui commence à $-\infty - 0i$, s'enroule autour de l'origine et se termine à $-\infty + 0i$ (Trefethen et al. 2006). En introduisant le changement de variable $z = st$ et en utilisant l'approximation rationnelle de e^z et par application du théorème des résidues (Trefethen et al. 2006), on obtient la formule d'inversion numérique suivante :

$$C_i(x, t) = L^{-1} \{ \overline{C}_i(x, s) \} = -\frac{2}{t} R_e \left\{ \sum_{k \in \mathcal{O}_N} w_k \overline{C}_i(x, s_k) \right\}, \quad (2.61)$$

où N est pair, $\mathbb{O}_N$ est l'ensemble des nombres impairs plus petit que N , $s_k = z_k/t$ et $w_k, z_k \in \mathbb{C}$ sont les résidus et les pôles de la meilleure approximation rationnelle (N, N) de e^z dans la droite réelle négative. w_k et z_k sont des constantes, qui sont indépendantes de x et t et calculées à l'aide d'une fonction MATLAB fournie.

2.2 Modélisation du problème

Dans cette partie, nous allons rassembler quelques phénomènes qui peuvent régir le mouvement des radionucléides dans les sites de dépôt afin d'établir un modèle mathématique fractionnaire représentant le transport anormal des radionucléides. Ce modèle mathématique permet d'obtenir une idée concernant le niveau de l'activité volumique dans les roches, dans l'espace mais aussi dans le temps pour le cas de la contamination suite à un stockage des déchets radioactifs dans une formation géologique.

2.2.1 Formulation du problème

Considérons le transport d'un radionucléide à travers un milieu poreux à m -couches divisé comme suit : $0 = l_0 < l_1 < \dots < l_{m-1} < l_m = L$ (confère Figure 2.1). Ce type de problème peut être rencontré lors du transport des radionucléides après un stockage dans une formation géologique profonde, dépendant de l'activité et de la période de la source. Dans ces systèmes constitué de barrières géologiques (qui forment ici les couches), les radionucléides se déplacent souvent dans des fractures ou des pores de très petites dimensions. Un tel transport ne peut pas complètement être décrit à l'aide de l'équation de Fick conventionnelle car, il tient lieu de transport anormal. Pour décrire ce transport anormal, dans ce travail, nous utilisons l'approche basée sur la dérivée fractionnaire par rapport à la variable temporelle. Soit $C_i(x, t)$ la concentration du radionucléide dans la i ème couche (i ème barrière), où $x \in (l_{i-1}, l_i)$ est la distance de l'entrée à $x = 0$ et ($t > 0$) est le temps. L'équation déterminante traduisant le transport non-Fickien du radionucléide dans la i ème couche s'écrit :

$$R_{i0} D_t^\alpha [C_i(x, t)] = D_i \frac{\partial^2 C_i}{\partial x^2} - v_i \frac{\partial C_i}{\partial x} - \mu_i C_i, \quad (2.62)$$

où ${}_0 D_t^\alpha$ représente ici la dérivée fractionnaire de la concentration C_i par rapport au temps, aux sens de Caputo-Fabrizio et Atangana-Baleanu. Dans l'équation (2.62), nous avons considéré qu'il n'existe aucune source de production du radionucléide dans chacune des barrières.

En négligeant le bruit de fond du radionucléide dans chaque couche, la condition initiale dans chaque couche peut s'écrire :

$$C_i(x, t = 0) = 0. \quad (2.63)$$

Les sources de radionucléides sont d'une grande importance pour la simulation du transport des radionucléides dans les sites de dépôt car elles régissent l'ampleur des concentrations de la radioactivité, les formes et tailles des panaches des nucléides. Ici, nous considérons une région source qui contient des quantités spécifiées de sources de nucléides par section transversale, perpendiculaire à la direction d'écoulement de l'eau et supposons que le taux de libération du nucléide est proportionnel aux quantités de nucléides restant dans le dépôt. La condition aux limites de type de Dirichlet est mieux adaptée pour décrire l'entrée de la source de contamination à l'origine du domaine ($x = 0$). Une condition de flux de concentration nulle est considérée à la fin du domaine ($x = L$). Les conditions aux limites s'écrivent donc de façon générale :

$$C_1(x = 0, t) = C^0 e^{-\lambda t}, \quad (2.64)$$

$$\frac{\partial C_1}{\partial x}(x = L, t) = 0. \quad (2.65)$$

Au niveau des interfaces entre couches adjacentes, nous imposons la continuité de la concentration et du flux dispersif :

$$C_i(l_i, t) = C_{i+1}(l_i, t), \quad (2.66)$$

$$\theta_i D_i \frac{\partial C_i}{\partial x}(l_i, t) = \theta_{i+1} D_{i+1} \frac{\partial C_{i+1}}{\partial x}(l_i, t). \quad (2.67)$$

2.2.2 Résolution du problème de transport anormal

Pour résoudre le problème de transport anormal de migration des radionucléides dans un site de dépôt en couche décrit par les équations (2.63) à (2.67), l'une des méthodes proposées dans la section précédente peut être utilisée. Cependant, à cause du nombre de couches, la résolution des équations transcendentes de la méthode de la GITT est très compliquée. Par conséquent, la solution semi-analytique du système d'équations (2.63) à (2.67) est obtenue dans le domaine de Laplace en utilisant la procédure proposée par Carr (2020).

◆ Le modèle est reformulé par un système de m -problèmes de transport anormal dans chaque couche isolée séparément par introduction de fonctions inconnues $f_i(t)$ ($i = 1, \dots, m - 1$) représentant le gradient négatif du flux de la concentration du radionucléide aux interfaces des couches :

• Première couche ($m = 1$)

$$R_{10} D_t^\alpha [C_1(x, t)] = D_1 \frac{\partial^2 C_1}{\partial x^2} - v_1 \frac{\partial C_1}{\partial x} - \mu_1 C_1, \quad (2.68)$$

$$C_1(x, t = 0) = 0; \quad 0 < x < l_1, \quad (2.69)$$

$$C_1(x = 0, t) = f(t); \quad t \geq 0, \quad (2.70)$$

$$\theta_1 D_1 \frac{\partial C_1(x = l_1, t)}{\partial x} = f_1(t); \quad t \geq 0, \quad (2.71)$$

• **Couches intermédiaires** ($i = 2, 3, \dots, m - 1$)

$$R_{i0} D_t^\alpha [C_i(x, t)] = D_i \frac{\partial^2 C_i}{\partial x^2} - v_i \frac{\partial C_i}{\partial x} - \mu_i C_i \quad 0 \leq x \leq l_i, \quad (2.72)$$

$$C_i(x, t = 0) = f_i; \quad l_{i-1} \leq x \leq l_i, \quad (2.73)$$

$$\theta_i D_i \frac{\partial C_i}{\partial x}(x = l_{i-1}, t) = f_{i-1}(t); \quad t \geq 0, \quad (2.74)$$

$$\theta_i D_i \frac{\partial C_i}{\partial x}(x = l_i, t) = f_i(t); \quad t \geq 0, \quad (2.75)$$

• **Dernière couche** ($i = m$)

$$R_{m0} D_t^\alpha [C_m(x, t)] = D_m \frac{\partial^2 C_m}{\partial x^2} - v_m \frac{\partial C_m}{\partial x} - \mu_m C_m; \quad l_{m-1} \leq x \leq L, \quad (2.76)$$

$$C_m(x, t = 0) = 0; \quad l_{m-1} \leq x \leq L, \quad (2.77)$$

$$\theta_m D_m \frac{\partial C_m(x = l_{m-1}, t)}{\partial x} = f_m(t); \quad t \geq 0, \quad (2.78)$$

$$\frac{\partial C_m(x = L, t)}{\partial x} = 0; \quad t \geq 0. \quad (2.79)$$

Avec chaque problème couplé aux autres en imposant la continuité de la concentration aux interfaces des couches adjacentes tel que donné par l'équation (2.66).

♦ En appliquant la transformée de Laplace des problèmes de transport pour chaque couche isolée aux équations (2.68)-(2.71), (2.72)-(2.75) et (2.76)-(2.79), on obtient les systèmes d'équations du second degré suivants dans le domaine de Laplace :

• **Première couche** ($i = 1$)

$$D_1 \frac{d^2 \bar{C}_1}{dx^2} - v_1 \frac{d \bar{C}_1}{dx} - \bar{\mu}_1(s, \alpha) \bar{C}_1 = 0; \quad 0 \leq x \leq l_1, \quad (2.80)$$

$$\bar{C}_1 = \frac{C_0}{(s + \lambda)}, \quad (2.81)$$

$$\theta_1 D_1 \frac{d\bar{C}_1}{dx} = F_1(s). \quad (2.82)$$

• **Couches intermédiaires** ($i = 2, \dots, m - 1$)

$$D_i \frac{d^2 \bar{C}_i}{dx^2} - v_i \frac{d\bar{C}_i}{dx} - \bar{\mu}_i(s, \alpha) \bar{C}_i = 0; \quad l_{i-1} \leq x \leq l_i, \quad (2.83)$$

$$\theta_i D_i \frac{d\bar{C}_i}{dx}(l_{i-1}, s) = F_{i-1}(s); \quad (2.84)$$

$$\theta_i D_i \frac{d\bar{C}_i}{dx}(l_i, s) = F_i(s). \quad (2.85)$$

• **Dernière couche** ($i = m$)

$$D_m \frac{d^2 \bar{C}_m}{dx^2} - v_m \frac{d\bar{C}_m}{dx} - \bar{\mu}_m(s, \alpha) \bar{C}_m = 0; \quad l_{m-1} \leq x \leq L, \quad (2.86)$$

$$\theta_m D_m \frac{d\bar{C}_m}{dx}(l_{m-1}, s) = G_{m-1}(s), \quad (2.87)$$

$$a_L \bar{C}_m(L, s) - b_L \frac{d\bar{C}_m}{dx}(L, s) = G_L(s), \quad (2.88)$$

où $\bar{C}_i(x, s) = L \{C_i(x, t)\} = \int_0^\infty C_i(x, t) e^{-st} dt$ désigne la transformée de Laplace de $C_i(x, t)$

avec $\bar{\mu}_i(\alpha, s) = \begin{cases} \mu_i + \frac{1}{(1-\alpha)} \frac{s}{s + \frac{\alpha}{1-\alpha}}, & AB \\ \mu_i + \frac{1}{(1-\alpha)} \frac{s^\alpha}{s^\alpha + \frac{\alpha}{1-\alpha}}, & CF \end{cases}$, ici les constantes de normalisation sont choisies

égales à 1. $F_i(s) = L \{f_i(t)\} = \int_0^\infty f_i(t) e^{-st} dt$ désigne la transformée de Laplace de $f_i(t)$ pour $i = 1, \dots, m - 1$.

En utilisant l'approche standard de résolution des équations différentielles homogènes du second ordre, on obtient les expressions suivantes des concentrations dans chaque couche :

• **Première couche** ($i = 1$)

$$\bar{C}_1(x, s) = A_1(x, s) F_0(s) + B_1(x, s) F_1(s). \quad (2.89)$$

• **Couches intermédiaires** ($i = 2, \dots, m - 1$)

$$\bar{C}_i(x, s) = A_i(x, s) F_{i-1}(s) + B_i(x, s) F_i(s). \quad i = 2, \dots, m - 1 \quad (2.90)$$

• **Dernière couche** ($i = m$)

$$\bar{C}_m(x, s) = A_m(x, s) F_{m-1}(s). \quad (2.91)$$

Les fonctions $A_i(x, s)$, $B_i(x, s)$ et $P_i(x, s)$ sont définies dans le Tableau (2.1).

2.2.3 Inversion numérique

La dernière étape consiste à appliquer la transformée inverse de Laplace pour obtenir la concentration du radionucléide dans la couche i ($C_i(x, t)$). Les solutions représentant les concentrations du radionucléide dans chacune des couches dans le domaine de Laplace ($\bar{C}_i(x, s)$) présentent des défis considérables lorsqu'on tente de dériver les expressions analytiques ou de les convertir dans le domaine temporel en raison de leur complexité. Cependant, l'utilisation d'une transformée numérique de Laplace inverse (TNLI) offre une approche viable pour déterminer les concentrations dans le domaine temporel. Pour ce faire, le schéma CME-S (Horváth et al., 2023), une version étendue de la méthode CME proposée par Horváth et al. (2020) est appliquée pour inverser nos solutions du domaine de Laplace. Comparée à la méthode de Trefethen (Trefethen, 2006), la méthode CME-S offre une meilleure stabilité numérique, évite les problèmes de dépassement et de sous-dépassement et permet d'obtenir des résultats précis au fur et à mesure que l'ordre utilisé dans le CME augmente. De plus, la méthode de Trefethen peut conduire à des résultats peu fiables lorsque l'advection domine le transport des contaminants surtout à proximité des limites (Carr, 2021).

La CME-S est basée sur l'évaluation numérique de l'intégrale donnant l'inversion de la transformée inverse de la concentration suivante :

$$C_i(x, t) = L^{-1} \{ \bar{C}_i(x, s) \} = \frac{1}{2\pi i} \int_{\Gamma} e^{st} \bar{C}_i(x, s) ds, \quad (2.92)$$

où Γ représente le contour de Hankel qui commence à $-\infty - 0i$ s'enroule autour de l'origine et se termine à $-\infty + 0i$ (L. N. Trefethen, J. A. C. Weideman and T. Schmelzer 2006).

Cette intégrale peut s'exprimer sous la forme exponentielle suivante :

$$C_i(x, t) = \varrho \Theta e^{\Theta t} \mathbf{1}, \quad (2.93)$$

où ϱ est un vecteur réel de longueur N , Θ est une matrice réelle d'ordre $N \times N$ et $\mathbf{1}$ est un vecteur colonne de longueur N et d'éléments 1 (Asmussen et Bladt,).

En supposant que $\mathbf{A}$ est diagonalisable, l'équation (2.93) peut se mettre sous la forme :

$$C_i(x, t) = \sum_{k=1}^N \varepsilon_{k_i} e^{-\omega_{k_i} t}. \quad (2.94)$$

Tableau 2.1 – Définition des fonctions $A_i(x, s)$, $B_i(x, s)$ et $P_i(x, s)$ apparaissant dans les équations (2.89)-(2.91)

Première couche
$P_1(x, s) = 0$
$A_1(x, s) = \frac{1}{\beta_1(s)} [\alpha_{1,2}(s)\Phi_{1,2}(l_1, s)\Phi_{1,1}(x, s) - \alpha_{1,1}(s)\Phi_{1,2}(x, s)]$
$B_1(x, s) = \frac{1}{\theta_1 D_1 \beta_1(s)} [(v_1 - D_1 \alpha_{1,1}(s))\Phi_{1,1}(0, s)\Phi_{1,2}(x, s) - (v_1 - D_1 \alpha_{1,2}(s))\Phi_{1,1}(x, s)]$
avec
$\beta_1(s) = \alpha_{1,2}(s) \exp(-[\alpha_{1,1}(s) - \alpha_{1,2}(s)]l_1) - \alpha_{1,1}(s)$
Couches intermédiaires (i=1,2,...,m-1)
$P_i(x, s) = 0$
$A_i(x, s) = \frac{1}{\theta_i D_i \beta_i(s)} [\alpha_{i,2}(s)\Phi_{i,2}(l_i, s)\Phi_{i,1}(x, s) - \alpha_{i,1}(s)\Phi_{i,2}(x, s)]$
$B_i(x, s) = \frac{1}{\theta_i D_i \beta_i(s)} [\alpha_{i,1}(s)\Phi_{i,1}(l_{i-1}, s)\Phi_{i,2}(x, s) - \alpha_{i,2}(s)\Phi_{i,1}(x, s)]$
avec
$\beta_i(s) = \alpha_{i,1}(s)\alpha_{i,2}(s)\{\exp(-[\alpha_{j,1}(s) - \alpha_{j,2}(s)](l_j - l_{j-1})) - 1\}$
Dernière couche (i=m)
$P_m(x, s) = 0$
$A_m(x, s) = \frac{1}{\theta_m D_m \beta_m(s)} [\alpha_{m,2}(s)\Phi_{m,2}(L, s)\Phi_{m,1}(x, s) - \alpha_{m,1}(s)\Phi_{m,2}(x, s)]$
$B_m(x, s) = \frac{1}{\beta_m(s)} [\alpha_{m,1}(s)\Phi_{m,1}(l_{m-1}, s)\Phi_{m,2}(x, s) - \alpha_{m,2}(s)\Phi_{m,1}(x, s)]$
avec
$\beta_m(s) = \alpha_{m,2}(s)\alpha_{m,1}(s) \exp(-[\alpha_{m,1}(s) - \alpha_{m,2}(s)](l_m - l_{m-1})) - \alpha_{m,1}(s)\alpha_{m,2}(s)$
Pour toutes les couches (i=1,2,...,m)
$\Phi_{i,1}(s) = \exp[\alpha_{i,1}(s)(x - l_i)]$
$\Phi_{i,2}(s) = \exp[\alpha_{i,2}(s)(x - l_{i-1})]$
$\alpha_{i,1}(s) = \frac{v_i + \sqrt{v_i^2 + 4D_j \mu_i(s)}}{2D_i}$
$\alpha_{i,2}(s) = \frac{v_i - \sqrt{v_i^2 + 4D_i \mu_i(s)}}{2D_i}$

Pour la validation du modèle, les résultats obtenus seront comparés aux résultats de mesures expérimentales menées sur certains radionucléides.

2.3 Configuration expérimentale pour la validation du modèle

2.3.1 Matériel et composition minérale : Microscope électronique et tomographie

Pour caractériser les roches, la méthode d'analyse utilisée est la diffraction à rayon X (DRX) (Shi et al., 2021). Il s'agit ici de diffracter les rayons X sur les roches pour recueillir l'information

du signal atténué afin de caractériser les roches. Les appareils utilisés sont le SkyScan 1076, le Kontich, le Belgium. Pour analyser les pores de roches, on ajuste le bruit du signal des rayons X, l'intensité ou la résolution. La DRX qui est une méthode non destructive qui permet de détecter les différences dans l'atténuation du signal des rayons X entre les micropores et les grains intacts. Là, on diffracte les rayons X sur un échantillon ; les raies produites donnent des informations sur les éléments chimiques de l'échantillon. La tomodensitométrie (TMD) quand à elle, dans cette étude sert à mesurer la porosité des matières hétérogènes . L'image qui est affichée lors de la TDM est scannée en trois dimensions et on obtient alors la porosité, l'hétérogénéité et la saturation du milieu qui sont caractéristiques du milieu.

2.3.2 Méthode expérimentale

■ Système à colonnes dynamiques

Toutes les valeurs d'entrées et les images utilisées dans cette partie sont décrites dans la littérature de Lee et al. (2021). Les roches utilisées sont les échantillons tirés sur les îles environnantes de Kinmen dans la province de Fujian en Chine. Cette méthode consiste à disposer des colonnes homogènes. Les roches échantillonnées sont prétraitées avant d'être mises dans les colonnes. On les écrase et les passe à travers des tamis à mailles pour être lavées plusieurs fois entre les 15 à 30 minutes avec l'eau désionisée. Les instruments utilisés lors de ces mesures contiennent des réservoirs de solution (radio traceur et les eaux souterraines synthétiques), un approvisionnement en eau multicanal d'une pompe péristaltique (MASTERFLEX L/S , Cole-Parmer Instrument Co., Chicago, IL, USA) à colonnes (type modifié, Hsinchu ZeGi Industrial Co., Ltd., Hsinchu, Taiwan) et le collecteur de fractions automatiques. (confère Figure 2.2). On dispose que le transport du soluté se fasse dans un milieu homogène en une seule dimension ; on ouvre les vannes de commutation au niveau deux (No 2), et on laisse couler le soluté à un taux de 2.0 ± 0.2 mL /min jusqu'au niveau huit (No 8). Lors du processus de saturation des pores, on échantillonne toutes les 30 minutes, 10 mL des effluents dans chaque colonne. Les concentrations des radionucléides tels que Na, Mg, Ca et K sont mesurées en couplant la spectrométrie d'émission optique à plasma (ICP-OES, DV 7000, PerkinElmer, Waltham, MA, USA).

■ Setup expérimental pour un radio traceur non réactif et un radio traceur réactif.

Pour connaître les caractéristiques de transport des radionucléides, on prépare toutes les colonnes de la Figure 2.1.a de la même façon. Les échantillons de HTO étaient mesurés en utilisant l'analyseur à scintillation liquide (LSA, Perkin Elmer Tri-Carb 3170 TR/SL) avec une efficacité de 51% et 10mL des échantillons sont mélangés avec 10 mL du cocktail à scintillation (packard LLT USA) dans 20 mL du polyéthylène. Tous les éléments chimiques utilisés dans

cette expérience étaient désionisés et purifiés analytiquement. En ce qui concerne les radios traceurs réactifs (Se et Cs), on s'est servi de dioxyde de Sélénium (Sigma Aldrich, Germany, SeO_2) et le Chlorure de Césium (CsCl, Merck, Germany) pour les marquer comme les traceurs des isotopes stables respectivement. Trois millilitres de la solution étaient utilisés pour améliorer l'analyse de la concentration pour le Se en utilisant ICP-OES et pour le Cs par spectromètre d'adsorption atomique à flamme (FAAS, Ice3000, Thermo, Germany).

Tableau 2.2 – Les conditions expérimentales de l'EAD utilisées dans cette étude

Paramètres	No.1	No.2	No.3
Longueurs	2	4	8
Volumes de pores	18,06	36,11	72,22
Densités volumiques	/	1,45	/
Debits	/	$2.0 \pm 0,2$	/
Contractions de HTO	/	$A_0 = 50 \text{ Bq.mL}^{-1}$ ($V_0 = 5000 \text{ mL}$)	/
Concentrations de Se et Cs	/	$C_0 = 1.10^{-4} \text{ M}$	/

Le slash (/) signifie que la valeur est identique à celle de la deuxième colonne.

Conclusion

Dans ce chapitre, il était question de présenter les matériels et méthodes utilisés pour la résolution du modèle de transport des radionucléides multicouches. Nous avons dans un premier temps présenté certaines méthodes de résolution du transport des radionucléides dans les milieux en couches. Parmi ces méthodes, nous avons : la méthode de la GITT et la méthode basée sur la transformée de Laplace. Ensuite, nous avons présenté le modèle de transport proprement dit et l'avons résolu à l'aide de la transformée de Laplace. Le chapitre s'est terminé par la présentation de la configuration expérimentale pour la validation du modèle. Dans le dernier chapitre, nous allons présenter les différents résultats obtenus, tout en nous appuyant sur l'effet du paramètre fractionnaire sur la distribution spatiale des radionucléides.

RÉSULTATS ET DISCUSSION

Introduction

Dans le chapitre précédent, un modèle de transport fractionnaire des déchets radioactifs par advection-dispersion dans un site de dépôt a été présenté et résolu à l'aide de la transformée de Laplace. Le modèle a tenu compte de la présence de plusieurs barrières lors du stockage géologique des déchets radioactifs et de la migration des radionucléides dans les micropores. Dans ce chapitre, nous présenterons les différents résultats obtenus. Il sera d'abord question de vérifier la validité du modèle et la fiabilité du code numérique utilisé pour ce type de problème en comparant les résultats obtenus à ceux des mesures expérimentales et à ceux de la littérature pour des cas particuliers. Par la suite, nous analyserons l'influence du paramètre fractionnaire sur la distribution spatiale des radionucléides dans chacune des couches (barrières).

3.1 Présentation des résultats expérimentaux utilisés

La littérature comporte des travaux sur le transport des radionucléides dans les sites de dépôt, mais nous n'avons pas pu entrer en possession des résultats expérimentaux sur les systèmes de barrières multiples. Pour cette raison, nous comparons les résultats obtenus pour une couche à ceux des résultats expérimentaux pour une barrière constituée de la roche haute qui est ici le granite. A cet effet, trois radionucléides (HTO, Se et Cs) sont utilisés pour plusieurs longueurs du trajet dans le granite.

3.1.1 Résultats expérimentaux de mesures sur un radiotraceur non réactif (HTO) et des traceurs radioactif réactifs (Se et Cs)

Le HTO, qui est un radiotraceur non réactif (pas de processus de sorption) a été utilisé pour caractériser les principaux processus de transport physique dans le système à colonnes dynamiques proposé avant d'utiliser Se (IV) et Cs. La figure 3.1 montrent l'évolution temporelle des courbes de concentration obtenues pour les trois radiotraceurs dans la colonne de liquide. La figure 3.1(a) montre que les courbes d'évolution temporelle de HTO pour les différents trajets

ont atteint la valeur 1 ($C/C_0 = 1$). Cependant, la figure montre une différence entre les courbes de concentration de Se et Cs ($C/C_0 < 1$) due à leurs facteurs de retard ($R > 1$) supérieurs à celui de HTO où son facteur de retard est engendré seulement par les réactions de sorption.

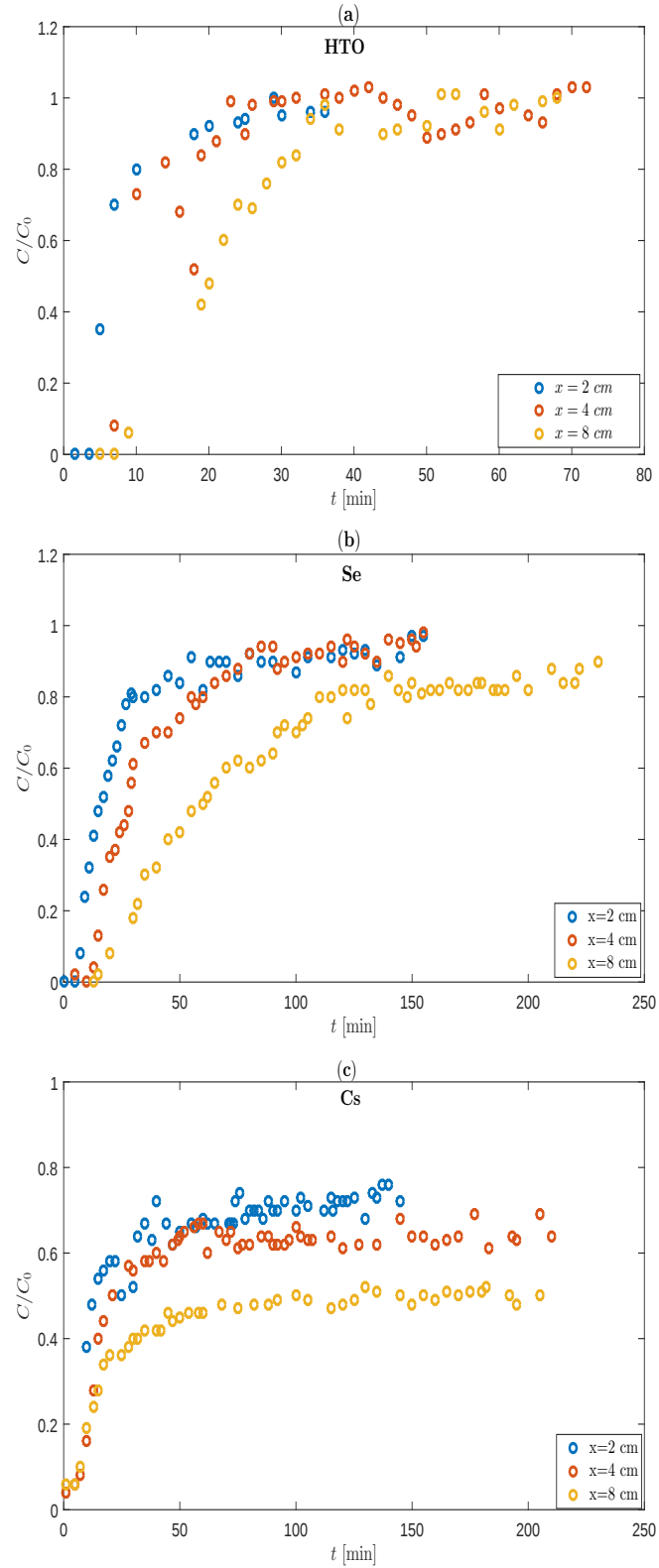


Figure 3.1 – Courbes d'évolution temporelle des concentrations de HTO, Se, Cs en fonction de la longueur du trajet

En outre, les valeurs de concentrations maximales atteintes quelque soit la longueur du trajet suivent les amplitudes $C_s < Se < HTO$. Ce qui signifie que le Cs est fortement attaché par les particules solides du granite.

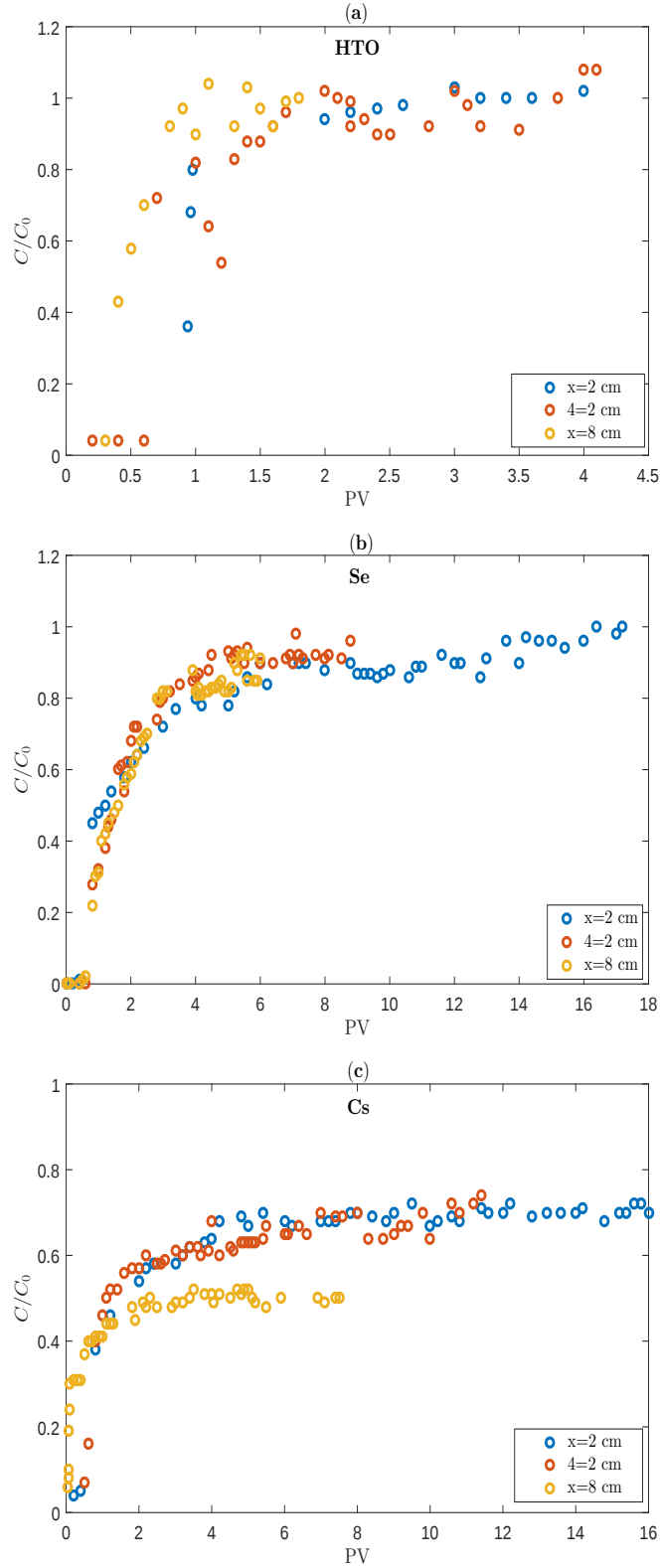


Figure 3.2 – Courbes d'évolution des concentrations de HTO, Se, Cs en fonction des volumes des pores ($PV=vt/L$) pour différentes longueur du trajet

3.1.2 Comparaison des résultats expérimentaux au résultats du modèle et à ceux du transport normal

Pour évaluer le modèle qui décrit le mieux le transport des radionucléides dans les sites de dépôt, nous comparons les résultats de mesure expérimentales aux résultats semi-analytiques obtenus dans ce travail et les résultats obtenus en utilisant le transport Fickien proposé par Van Genuchten et Alves (1982). Pour ce faire, le modèle de transport anormal multicouches proposé dans cette étude a été transformé en un modèle de transport anormal pour une seule couche en considérant $v_i = v$, $D_i = D$, $R_i = R$ et $\theta_i = \theta$ dans chacune des couches. Les paramètres de transport utilisés pour cette comparaison proviennent des mesures effectuées sur le site de dépôt et sont présentées dans le Tableau 3.1.

Tableau 3.1 – Les Paramètres d’ajustement de HTO, Se, Cs utilisés pour les comparaisons des résultats de simulation à ceux des mesures expérimentales

Radionucléides	D (cm ² /min)	θ (–)	α (cm)	R
HTO	0,1158	0,46	0,53	1,00
	0,1173	0,46	0,53	1,00
	0,2627	0,46	1,19	1,00
Se	0,4889	0,46	2,22	1,47
	0,3296	0,46	1,50	1,67
	1,2847	0,46	5,84	1,34
Cs	0,5641	0,46	2,56	4,00
	0,8889	0,46	4,04	4,00
	3,0345	0,46	13,79	4,00

Pour évaluer le degré avec lequel les résultats de prédiction (C_p) s’écartent des valeurs expérimentales (C_e), on utilise l’écart quadratique moyen (EQM, en anglais Root Mean Square Error (RMSE)) donné par :

$$RMSE = \sqrt{\frac{\sum (C_p - C_e)^2}{N}} \quad (3.1)$$

A contrario, pour évaluer le degré avec lequel les résultats de prédiction se rapprochent des valeurs expérimentales, on détermine le coefficient de corrélation R. Plus ce coefficient tend vers 1, plus le modèle permet de mieux approcher la réalité.

La figure 3.4 illustre les comparaisons entre les résultats de simulation obtenus avec le modèle à l’équilibre isotherme (Van Genuchten et Alves, 1982) et les résultats expérimentaux pour les

trois radionucléides.

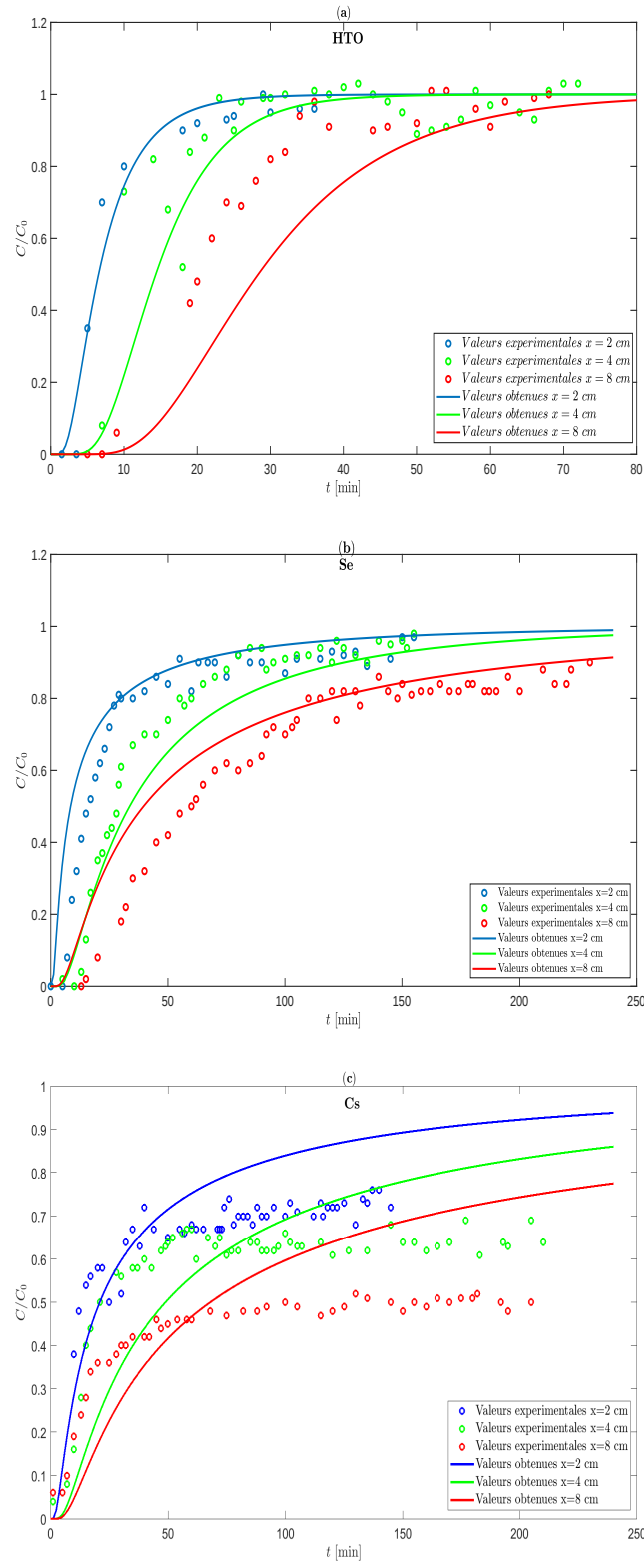


Figure 3.3 – Comparaison de l'évolution temporelle des concentrations des radionucléides obtenus à l'aide du modèle à l'équilibre isotherme linéaire et les résultats expérimentaux

Les courbes montrent que le modèle à l'équilibre isotherme linéaire ne permet pas de décrire l'évolution temporelle des concentrations observées surtout pour le ^{137}Cs . Néanmoins, les courbes

de simulation obtenues et les résultats expérimentaux montrent que les concentrations augmentent avec le temps jusqu'à des valeurs maximales. Les valeurs des EQM et des coefficients de corrélation sont regroupées dans les tableaux 3.2 et 3.3.

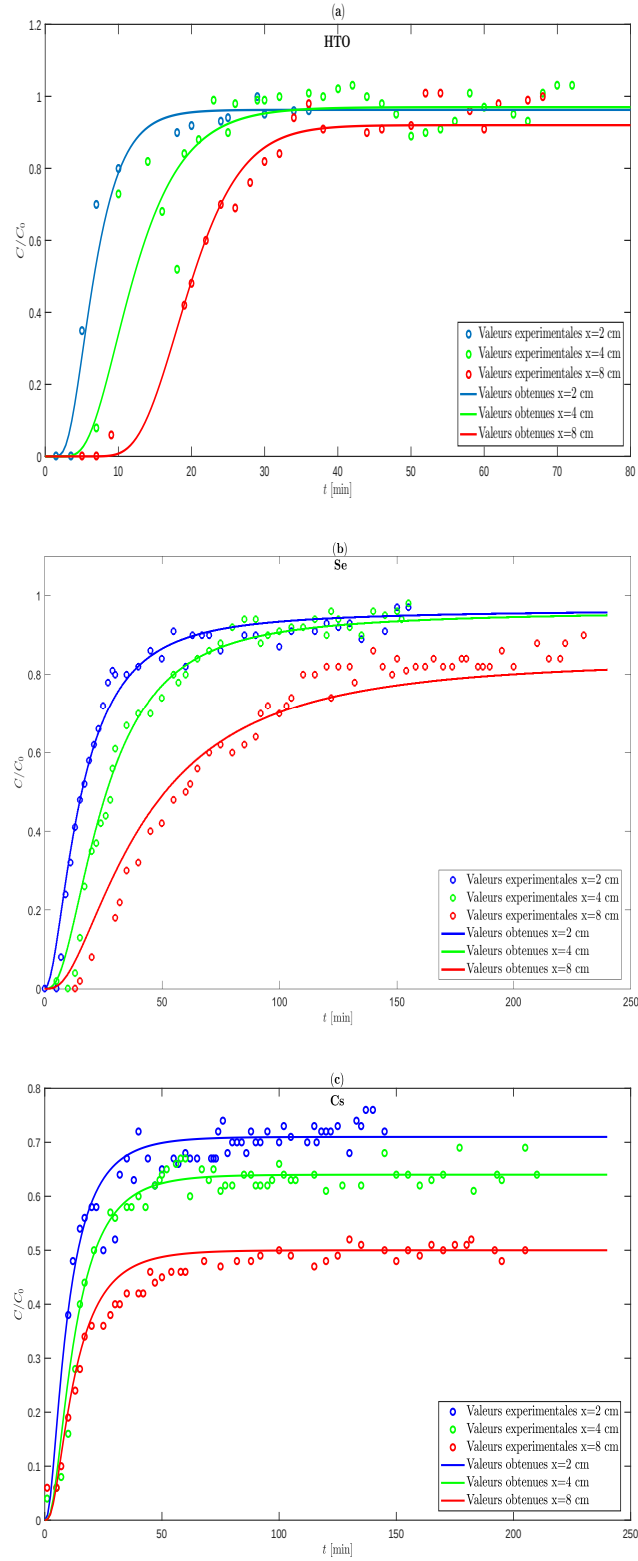


Figure 3.4 – Comparaison de l'évolution temporelle des concentrations des radionucléides obtenus à l'aide du modèle fractionnaire utilisant la dérivée de Caputo-Fabrizio et les résultats expérimentaux

La figure 3.4 illustre les comparaisons entre les résultats de simulation obtenus à l'aide du modèle fractionnaire utilisant la dérivée de Caputo-Fabrizio ($\alpha = 0,85$) et les résultats expérimentaux pour les trois radionucléides.

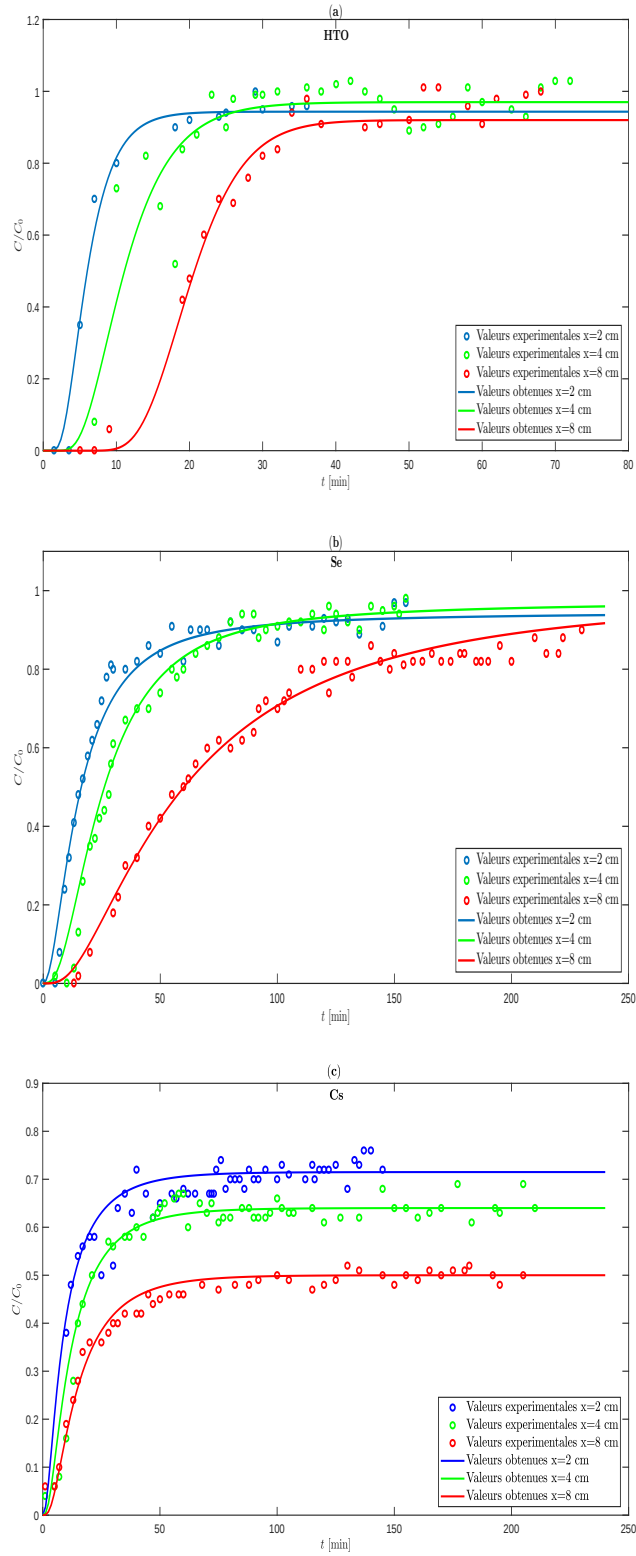


Figure 3.5 – Comparaison de l'évolution temporelle des concentrations des radionucléides obtenus à l'aide du modèle fractionnaire utilisant la dérivée d'Atangana-Baleanu et les résultats expérimentaux

La figure 3.5 illustre les comparaisons entre les résultats de simulation obtenus à l'aide du modèle fractionnaire utilisant la dérivée de Atangana-Baleanu ($\alpha = 0,77$) et les résultats expérimentaux pour les trois radionucléides.

Les courbes montrent que les concentrations de chaque radionucléide augmentent avec le temps jusqu'à des valeurs maximales de concentration données pour la longueur du chemin parcourue dans le granite.

Une comparaison des courbes de simulation avec les résultats expérimentaux montre que les modèles utilisant les dérivés fractionnaires sont plus adaptés pour l'évaluation du niveau de radioactivité lors du stockage des déchets dans le granite quelque soit la longueur du chemin parcouru par les radionucléides. De plus, la qualité de l'ajustement avec le modèle de la dérivée fractionnaire d'Atangana-Baleanu (DFAB) est supérieure à celle du modèle de la dérivée fractionnaire de Caputo-Fabrizio (DFCF) et du modèle fickien.

Il est montré à partir des courbes d'ajustement des données expérimentales figures (3.4) et (3.5) que les modèles DFCF et DFAB proposés peuvent suivre l'évolution temporelle des valeurs expérimentales et on obtient des précisions d'ajustement similaire, qui sont évidemment meilleures que le modèle fickien. Le bon accord entre les résultats théoriques et expérimentaux indique que les modèles de transport fractionnaire proposés sont plus efficaces et flexibles pour caractériser la migration anormale des radionucléides. La principale différence entre les courbes d'ajustement de ces deux types de modèles fractionnaires réside sur la valeur de α qui est plus petite pour la DFAB par rapport à celle de la DFCF. Ceci est due à la non-singularité de l'effet mémoire.

Les valeurs des écarts quadratiques obtenus pour chacun des modèles sont présentées dans le Tableau 3.2 et les valeurs des coefficients de corrélations dans le Tableau 3.3.

Tableau 3.2 – Les écarts quadratiques entre les résultats de simulation et les résultats expérimentaux

Radionucléides	Trajet	LEM	DFCF	DFAB
HTO	2 cm	0,125	0,0221	0,0189
	4 cm	0,256	0,011	0,009
	8 cm	0,401	0,00688	0,00442
Se	2 cm	0,157	0,0119	0,013
	4 cm	0,222	0,017	0,0087
	8 cm	0,235	0,0581	0,0378
Cs	2 cm	0,407	0,0223	0,0189
	4 cm	0,506	0,013	0,01
	8 cm	0,487	0,0189	0,016

Tableau 3.3 – Les coefficients de corrélation entre les résultats de simulation et les résultats expérimentaux

Radionucléides	Trajet	LEM	DFCF	DFAB
HTO	2 <i>cm</i>	0,781	0,912	0,922
	4 <i>cm</i>	0,644	0,791	0,812
	8 <i>cm</i>	0,518	0,862	0,873
Se	2 <i>cm</i>	0,722	0,872	0,885
	4 <i>cm</i>	0,653	0,925	0,931
	8 <i>cm</i>	0,671	0,857	0,863
Cs	2 <i>cm</i>	0,501	0,882	0,917
	4 <i>cm</i>	0,544	0,911	0,920
	8 <i>cm</i>	0,565	0,829	0,834

L'analyse des tableaux montre une bonne corrélation entre les résultats de mesures expérimentales et les modèles de transport anormaux utilisant les dérivées fractionnaires.

3.2 Effet du paramètre fractionnaire

Dans cette partie, nous nous concentrons sur l'impact du paramètre fractionnaire sur la distribution spatiale de la concentration des radionucléides dans les sites de dépôt. Pour ce faire, nous considérons un scénario hypothétique du transport anormal dans un site à deux couches et à cinq couches. Nous étudions la distribution du ^{137}Cs et du ^{85}Sr dans ces deux sites en utilisant chacune des dérivées fractionnaires définies plus haut. Les paramètres utilisés proviennent de Pallàgyi et Štamberg (2010) et sont présentés dans le Tableau 3.4.

3.2.1 Résultats du modèle pour un milieu à deux et à cinq couches

La figure 3.5 illustre les distributions spatiales des concentrations du ^{137}Cs (figures 3.5(a) et 3.5(b)) et du ^{85}Sr (figures 3.5 (c) et 3.5 (d)) dans un site de dépôt à deux couches constitués de Diorite I-Diorite II. Les courbes ont été obtenus à $t = 100$ minutes avec les paramètres du Tableau 3.4 en utilisant différentes valeurs de α dans les définitions des dérivées fractionnaires de Caputo-Fabrizio (CF) et Atangana-Baleanu (AB). Les lignes continues indiquent les solutions obtenues en utilisant le modèle des dérivées fractionnaires et les cercles indiquent les solutions obtenues à l'aide du modèle de transport fickien (Carr, 2020). La ligne pointillée verticale indique l'emplacement de l'interface à $x = 4\text{cm}$. Les courbes montrent que pour chaque définition de la dérivée fractionnaire, les concentrations de chaque radionucléide décroissent avec

la position à partir de la valeur 1 jusqu'à une valeur asymptotique qui dépend du radionucléide et de la dérivée fractionnaire utilisée. Ceci est due aux différentes propriétés de chaque radionucléide en particulier au coefficient de distribution mais aussi au comportement de chacune des dérivées fractionnaires. Cependant, les valeurs des concentrations du ^{137}Cs sont plus faibles que celles du ^{85}Sr ; ceci indique que le ^{137}Cs migre rapidement par rapport au ^{85}Sr . On observe également sur la figure 3.5 que l'augmentation de l'ordre de la dérivée fractionnaire entraîne une augmentation de la concentration de chaque radionucléide dans chacune des couches. Ceci peut être attribué à la variation du phénomène de sous-diffusion avec l'augmentation de α . En outre, les différences entre les écarts de concentrations observés sont plus grandes pour le modèle utilisant la DFAB par rapport au modèle de la DFCE. Ceci est due au fait que l'effet mémoire est plus accentué pour la DFAB par rapport à la DFCE. Lorsque le paramètre α est élevé c'est à dire $\alpha = 1$, on observe une diffusion plus rapide et à une propagation plus étendue des radionucléides dans les couches. Pour cette valeur particulière de α , les résultats des deux modèles utilisant les dérivées fractionnaires sont en accord avec le modèle fickien. Ce qui montre une fois de plus la fiabilité du modèle.

Tableau 3.4 – Les Paramètres de transport utilisés pour étudier l'effet du paramètre α sur la distribution du ^{137}Cs et du ^{85}Sr

Roches	R	θ	$D \times 10^4 (\text{m}^2/\text{s})$	$v (\text{cm}/\text{min})$
^{137}Cs				
Diorite-I	227	0,4	0,09	2.1
Diorite-II	90	0,45	0,23	2.1
Gabbro	70	0,4	0,26	2.5
Granit	17	0,45	0,16	2.8
Tonalite	36	0,5	0,12	0.7
^{85}Sr				
Diorite-I	69	0,4	0,13	0,9
Diorite-II	53	0,45	0,20	0,81
Gabbro	35	0,4	0,15	1,1
Granit	13	0,45	0,26	1,3
Tonalite	36	0,5	0,17	0,6

La figure 3.6 illustre les distributions spatiales des concentrations du ^{137}Cs (Figures 3.6(a) et 3.6(b)) et du ^{85}Sr (figures 3.6 (c) et 3.6 (d)) dans un site de dépôt à cinq couches constituée de Diorite I-Diorite II- Gabbro-Granit-Tonalite.

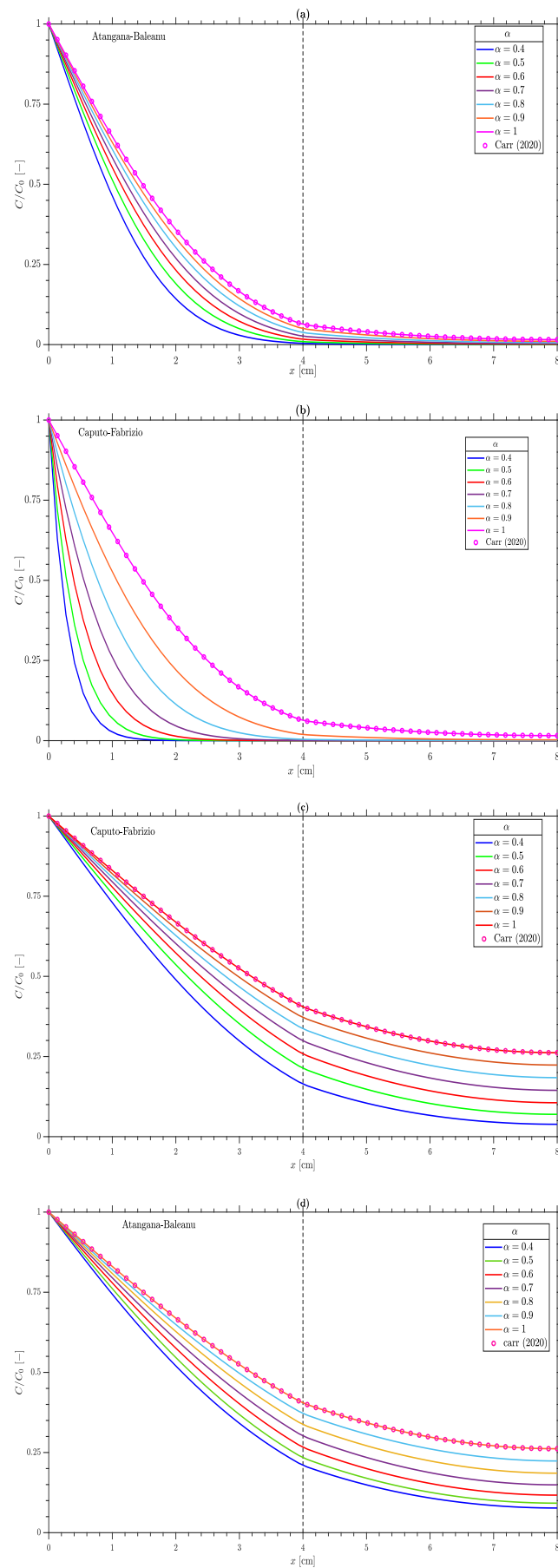


Figure 3.6 – Distributions spatiales des concentrations du ^{137}Cs et du ^{85}Sr dans un site de dépôt à deux couches, obtenus pour différentes valeurs de α à l'aide de la DFAB et de la DFCF

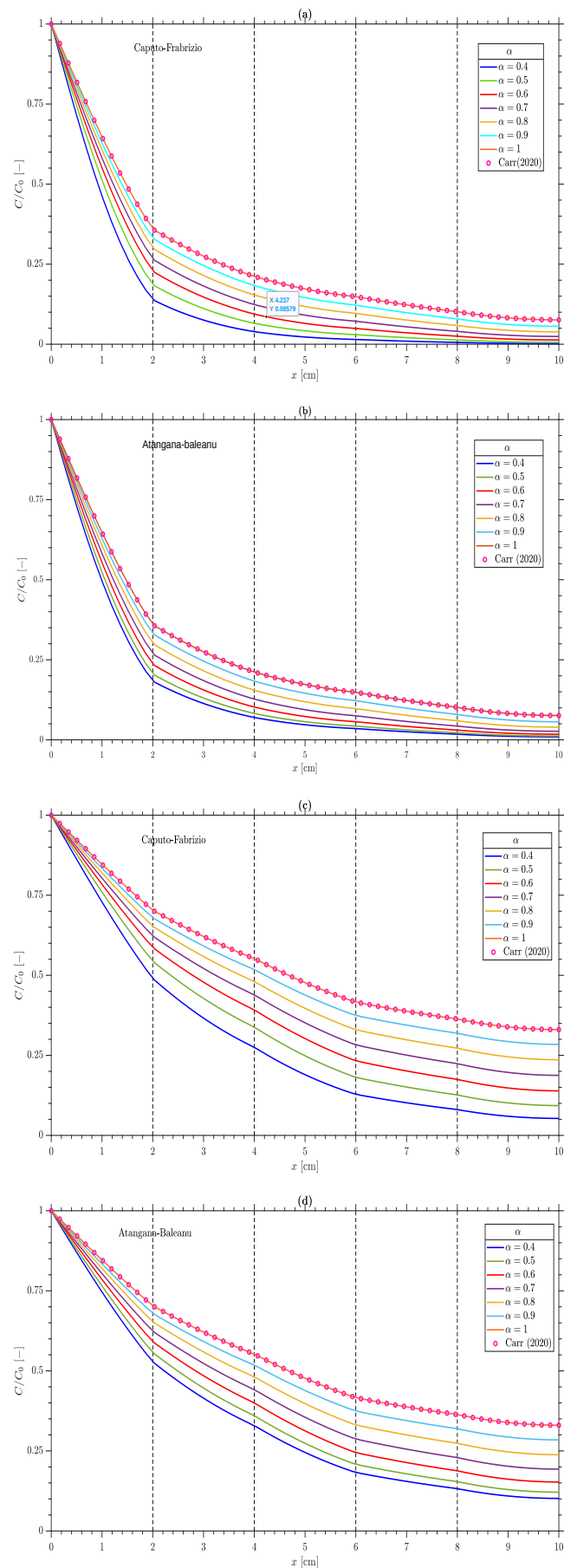


Figure 3.7 – Distributions spatiales des concentrations du ^{137}Cs et du 85 dans un site de dépôt à cinq couches, obtenus pour différentes valeurs de α à l'aide de la DFAB et de la DFCF

Les courbes ont été obtenues avec les paramètres du tableau 3.4 en utilisant pour plusieurs valeurs de α dans les définitions des dérivées fractionnaires de Caputo-Fabrizio (CF) et Atangana-Baleanu (AB). Les lignes continues indiquent les solutions obtenues en utilisant le modèle des dérivées fractionnaires de (CF) et (AB) et les lignes circulaires indiquent les solutions obtenues en utilisant le modèle des dérivées entières ou dérivées du transport normal (Carr, 2020). Les lignes pointillées verticales indiquent les positions des interfaces à $x = 2$ cm, $x = 4$ cm, $x = 6$ cm et $x = 8$ cm. Les courbes montrent des évolutions des concentrations des radionucléides similaires à ceux de la figure 3.5. Plus le paramètre fractionnaire α diminue, plus la concentration diminue également au niveau des différentes couches. Ceci est due au fait que les propriétés des roches ne varient pas assez d'une roche à une autre ainsi que les propriétés des radionucléides.

3.2.2 Discussion sur l'impact du paramètre fractionnaire

L'augmentation des valeurs de la concentration avec le paramètre fractionnaire α et la similarité entre les profils de concentration pour les deux dérivées fractionnaires utilisées montre que les deux dérivées fractionnaires capturent les mêmes phénomènes de transport anormal. L'augmentation des concentrations de chaque radionucléide avec la valeur de α peut être attribuée à la diffusion anormale, à l'hétérogénéité du milieu, à la réduction de la rétention, à l'effet mémoire et au transport non local. En effet, lorsque le paramètre fractionnaire augmente, la diffusion anormale devient plus prononcée, la rétention des particules dans le milieu diminue, les effets d'hétérogénéité dans le milieu deviennent plus importants et le transport non-local devient important; ce qui peut entraîner une augmentation de la concentration. D'un autre côté, on observe que les écarts entre les valeurs des concentrations sont plus grands pour le modèle utilisant la DF_{CF} par rapport à la DF_{AB}. Cette observation peut s'expliquer par le fait que, bien que les deux dérivées fractionnaires décrivent les mêmes phénomènes, la dérivée fractionnaire de Caputo-Fabrizio est plus sensible aux variations du paramètre fractionnaire que la dérivée d'Atangana-Baleanu. Cela peut être dû à la fonction exponentielle utilisée dans la DF_{CF}, qui accentue les effets du paramètre fractionnaire. De plus, l'effet mémoire dans la DF_{AB} est plus prononcé que celui de la DF_{CF} à cause de la fonction de Mittag-Leffler qu'elle utilise; ce qui entraîne une augmentation rapide de la concentration lorsque α augmente par rapport à la DF_{CF}. D'autre part, nous observons que les formes des courbes des concentrations du ^{137}Cs sont plus affectées que celles du ^{85}Sr à cause de son facteur de retard plus élevé qui affecte la diffusion anormale. De plus les écarts entre les valeurs des concentrations du ^{85}Sr sont plus petits que ceux du ^{137}Cs à cause de sa période radioactive légèrement plus petite que celle du ^{137}Cs . Ceci entraîne des comportements de transport anormal plus marqués en raison

de sa désintégration plus rapide.

En somme, la variation du paramètre fractionnaire dans un milieu hétérogène impacte significativement sur les distributions des concentrations des radionucléides. Les effets dépendent de la formulation de la dérivée fractionnaire utilisée mais aussi des paramètres liés aux radionucléides tels que la période radioactive et le facteur de retard.

A l'intérieur des roches utilisés ici, les radionucléides se déplacent dans des microfissures (fractures). Malgré l'échelle d'étude utilisée, les résultats montrent clairement qu'il est nécessaire de mener des études sur les sites géologiques utilisés pour les dépôts des déchets radioactifs mais aussi sur les radionucléides à stocker. Ceci permet de réduire au maximum les risques de contamination des eaux souterraines mais surtout celle des hommes situés pas loin de ces sites. En outre, lorsqu'on ne tient pas compte de la structure réelle des roches utilisés pour le stockage (cas du modèle de transport fickien), on peut surestimer la concentration des radionucléides.

Conclusion

Ce chapitre était consacré à la présentation des principaux résultats obtenus utilisant le modèle de la dérivée fractionnaire à l'aide de la transformée de Laplace. Nous avons commencé par présenter les résultats expérimentaux. Par la suite, nous avons comparé les résultats obtenus aux résultats expérimentaux pour la validation du modèle et la vérification de la méthode de résolution utilisée. Les distributions de concentrations obtenues par la méthode semi-analytique sont en accord avec ceux des résultats expérimentaux. Mais les résultats des mesures expérimentales s'éloignent des concentrations obtenues à l'aide du modèle du transport fickien. Les effets du paramètre fractionnaire sur les distributions des concentrations des radionucléides dans les sites en couches ont été analysés. Il ressort que ce facteur influence considérablement les niveaux mais n'affecte pas le profil de distribution. Les effets dépendent du radionucléide étudié.

CONCLUSION GÉNÉRALE

Dans ce travail, il était question d'étudier la migration anormale des radionucléides dans les systèmes de stockage géologiques à barrières multiples à l'aide du modèle fractionnaire afin d'obtenir les distributions dans chaque couche.

Le premier chapitre a présenté un aspect général de la contamination de l'environnement par les radionucléides, des déchets radioactifs ainsi que les processus qui gouvernent le transport de ces déchets dans les sites de dépôt. Il ressort que la radioactivité présente dans l'environnement a de deux (02) origines : une origine naturelle et une autre artificielle. Les installations nucléaires produisent d'énormes quantités de déchets radioactifs qui peuvent être classées en plusieurs catégories. Certains de ces déchets doivent être stockés dans des sites de dépôt pour des besoins de radioprotection. Plusieurs processus gouvernent le transport des déchets radioactifs dans les sites de dépôt à l'occurrence l'advection, la dispersion, la bioturbation et la dégradation. Dans la plus part des roches hôtes choisies pour le stockage des déchets radioactifs, on assiste à un transport anormal de ces derniers.

Dans le chapitre deux (02) consacré au matériel et aux méthodes, nous avons dans un premier temps présenté certaines méthodes de résolution du transport des radionucléides dans les milieux en couches. Parmi ces méthodes, nous avons : la méthode de la GITT et la méthode basée sur la transformée de Laplace. Ensuite, nous avons présenté le modèle de transport proprement dit et l'avons résolu à l'aide de la transformée de Laplace. Le chapitre s'est terminé par la présentation de la configuration expérimentale pour la validation du modèle.

Dans le chapitre trois (03) consacré aux résultats et discussion, des analyses comparés aux résultats du modèle et des résultats expérimentaux et des modèles de la littérature appliqués au *HTO*, *Cs* et *Sr* pour différentes longueurs du chemin ont permis de valider le modèle et de vérifier la méthode de résolution utilisée. Par la suite, l'effet du paramètre fractionnaire sur la distribution spatiale des radionucléides dans un système en couche a été étudié. Il ressort qu'une augmentation du paramètre fractionnaire entraîne une augmentation de la concentration de chaque radionucléide dans l'espace. Les différences entre les niveaux de concentrations dépendent du radionucléide et de la définition de la dérivée fractionnaire utilisée.

Cette étude peut être considérée comme un projet à long terme et une première tentative de

mener des expériences de transport dans un milieu interne. En outre, cette comparaison expérimentale et les études de modélisation fournissent un chemin pour l'extrapolation à l'échelle du laboratoire dans des conditions in situ. Néanmoins, cette étude offre des résultats intéressants à propos du transport anormal dans les roches et plus encore, elle permet à la fois d'analyser la courbe d'évolution et les processus de internes dans les roches. A cet effet, les conclusions à tirer de cette étude sont les suivantes :

(1) En termes de courbes d'évolution, se basant sur les résiduels inférieurs (SSQ ou RMSE), les valeurs des concentrations utilisant le modèle du transport anormal donne un meilleur ajustement aux valeurs expérimentales que le modèle fickien. On assiste à une augmentation de la longueur de diffusion pour les radionucléides lors d'un transport anormal ;

(2) Le phénomène de sorption est l'un des processus qui affecte le transport anormal des radionucléides dans les sites de dépôts.

La présente étude a permis :

- de modéliser une nouvelle méthode innovante pour le transport des anormal des radionucléides dans les roches ;
- la prevision l'évolution de la pollution d'un radionucléide dans les roches systèmes ;
- d'être initié dans les techniques de résolution des problèmes de transport dans un milieu en couches ;
- d'être initié à la manipulation des données radiologiques.

Ce travail peut être utilisé pour une étude préliminaire de la prédiction de la distribution de la concentration des radionucléides dans les systèmes de dépôt lors d'un stockage géologique profond. D'autre part, il peut être recommandé comme un outil d'évaluation des risques écologiques et humains liés à la migration des radionucléides dans les roches. Toutefois, nous constatons que le modèle utilisé n'est applicable qu'à un seul radionucléide et prend en compte des coefficients constants. Dans nos travaux futurs, nous améliorerons ce modèle pour qu'il tienne compte :

- des chaînes de désintégration radioactives ;
- de la dépendance temporelle de la vitesse et du coefficient de dispersion.

Références bibliographiques

- Agarwal, R., Yadav, M.P., Agarwal, R.P., Goyal, R. (2019). *Analytic solution of fractional advection dispersion equation with decay for contaminant transport in porous media*. Matematicki Vesnik 71(1) : 5-15.
- Allwright, A., Atangana, A. (2018). *Fractal advection-dispersion equation for groundwater transport in fractured aquifers with self-similarities*. Eur. Phys. J. Plus, 133 (48).
- Arfken, G. (1985). *Mathematical Methods for Physicists*, third ed., Academic Press.
- Aromaa, H. ; Voutilainen, A. ; Ikonen, J. ; Yli-Kaila, M. ; Poteri, A. ; Siitari-Kauppi, M. (2019). *Through diffusion experiments to study the diffusion and sorption of HTO, ^{36}Cl , ^{133}Ba and ^{134}Cs in crystalline rock*. J. Contam. Hydrol., 222 : 101-111.
- Asmussen, S., Bladt, M. (1996). *Renewal theory and queueing algorithms for matrix-exponential distributions, Matrix-Analytic Methods*, in Stochastic Models, Taylor and Francis Group doi :10.1201/b17050-17.
- Bataille, C. (1991). *Rapport sur la gestion des déchets nucléaires de haute activité*. Office parlementaire d'évaluation des choix scientifiques et technologiques.
- Ben-Bolie, G.H. (2023). *Physique nucléaire 2*, notes de cours, Université de Yaoundé 1.
- Benson, D.A., Meerschaert, M.M. (2009). *A simple and efficient random walk solution of multi-rate mobile/immobile mass transport equations*. Adv. Water Resour., 32(4) : 532-539.
- Carr, E.J., Turner, I.W. (2016). *A semi-analytical solution for multilayer diffusion in a composite medium consisting of a large number of layers*. Appl. Math. Model. 40 : 7034-7050.
- Carr, E.J. (2020). *Generalized semi-analytical solution for coupled multispecies advection-dispersion equations in multilayer porous media*. Transp. Porous Med. 135 : 39-58.
- Carr, E.J. (2021). *Generalized semi-analytical solution for coupled multispecies advection-dispersion equations in multilayer porous media*. Appl. Math. Model., 94 : 87-97.
- C.E.A.(2014) *Comprendre la radioactivité*. <https://www.cea.fr/comprendre/Pages/radioactivite/essentiel-sur-la-radioactivite.aspx>.
- Chiou, S.L., Li, S-H.(1993). *Radionuclides transport in fractured porous rock : analytical solution for a kinetic solubility-limited dissolution model*. Nuc. Technol. 104 : 258-271.
- Commission des Communautés Européennes (CCE) (1993). *Communication et troisième rap-*

- port de la commission sur la situation actuelle et les perspectives de la gestion européenne des déchets radioactifs dans la Communauté européenne . Com (88) final. CB-Co-93-109-FR-C.
- Cushman, J.H. ; Ginn, T.R. (2000). *Fractional advection-dispersion equation : A classical mass balance with convolution-Fickian flux*. Water Resour. Res., 36(12) : 3763-3766.
- Dongyang, D., Zhang, L., Dong, M., Raymond E.S., Ofori-Boadu, A., Mehdi, L. (2020). : *Radioactive waste : A review*. Water Environ. Research, 92(10) : 1818-1825.
- EDF (2018). *Les déchets radioactifs*.
- Gao, G., Fu, B., Zhan, H., Ma, Y. (2013). . *Contaminant transport in soil with depth-dependent reaction coefficients and time dependent boundary conditions*. Water Research 47(7) : 2507-2522
- Guerrero, J.S.P., Pimentel, L.C.G., Skaggs, T.H. (2013). . *Analytical solution for the advection-dispersion transport equation in layered media*. Int.J.Heat Mass Transf. 56, 274-282
- Goltz, M., Huang, J. (2017). *Analytical modeling of solute transport in groundwater*. Wiley, Hoboken.
- Horváth, G., Horváth, I., Almousa, S.A.D., Telek, M. (2020). *Numerical inverse Laplace transformation using concentrated matrix exponential distributions*. Perform. Eval. 137, 102067.
- Horváth, I., Mészáros, A., Telek, M. (2023). *Numerical inverse Laplace transformation beyond the Abate-Whitt framework*. J. Comput. Appl. Math., 418, 114651.
- Inazumi, S., Hashida, H., Ueyama, Y. (2017). *Transportation behaviour of radionuclide substances in soils*. Environ. Geotech., 6(8) : 506-520.
- Internatioanal Atomic Energy Agency (I.A.E.A.) (2014). *Questions de prime importante l'entreposage et le stockage définitifs des déchets*. Bulletin 55
- Institut Nationale de Physique Nucléaire et de Physique des Particules (INPNPP) (2024). *La radioactivité*.
- Institutut Radiologique et de Sureté nucléaire (I.R.S.N.) (2013). *Origine et typologie simplifiées des effluents d'une installation nucléaire*.
- Jagetiya, B., Sharma, A., Soni, A., Kumar Khatik, U. (2014). *Phytoremediation of radionuclides : A report on the state of the art, chapter 1 in Radionuclide contamination and remediation through plants*, Springer, Hannovre.
- Koleva, M.N. ; Vulkov, L.G. (2023). *Weak and classical solutions to multispecies advection-dispersion equations in multilayer porous media*. Mathematics, 11(14) : 3103.
- Lee, C.-P. ; Chen, D. ; Hu, Y. ; Jan, Y.-L. ; Shi, Y. ; Wang, Z. ; Wu, E. ; Tien, N.-C. ; Sun, Y. ; Tsai, S.-C. (2021). *An application of safety assessment for radioactive waste repository : non-equilibrium transport of tritium, selenium, and cesium in crushed granite with different path lenghts*. Appl. Sci., 11(20) : 9750.
- Leij, F.J. ; Dane, J.H. ; van Genuchten, M.Th. (1991) *Mathematical analysis of one-dimensional*

- solute transport in a layered soil profile*. Soil Sci. Soc. Am. J., 55 : 944-953.
- Lehto, J. ; Puukko, E. ; Lindberg, A. ; Voutilainen, A. (2019). *Batch sorption experiments of cesium and strontium on crushed rock and biotite for the estimation of distribution coefficients on intact crystalline rock*. Heliyon, 5, Article e02296.
- Lin, Y.-F. ; Huang J. ; Carr, E.J. ; Hsieh T.-C. ; Zhan, H. ; Yu, H.-L. ; (2023). *A temporally relaxed theory of physically or chemically non-equilibrium solute transport in heterogeneous porous media*. J. Hydrol. 620 : 129432. .
- Liu, C. ; Ball, W.P. ; Ellis, J.H. (1998). *An analytical solution to the one-dimensional solute advection-dispersion equation in multi-layer porous media*. Transp. Porous Med. 30 : 25-43.
- Mikhailov, M.D., Ozisik, M.N.(1984). *Unified Analysis and Solution of Heat and Mass Diffusion*. Wiley, New York.
- Odendahl, K. (2016). *Stockage et élimination des déchets radioactifs : la recherche d'une solution mondiale*. Black-Branch, J., Fleck, D. (éd.) Nuclear Non-Proliferation in International Law - Volume III. TMC Asser Press, La Haye.
- O.N.D.R.A.F. (2018). *Qu'est-ce qu'un déchet radioactif?* WWW.ondraf.be
- Organisme National des Déchets Radioactifs et des Matières Fissiles Enrichies (ONDRAF) (2018). *Sortes de déchets radioactifs*.
- Otani, J., Obara, Y. (2004). *Xray CT for geomaterials : Soils, concrete. Rocks*. Balkema. 392 p.
- Otto, G.H. (1989). *A national survey of naturally occurring radioactive materials (N.O.R.M) in petroleum producing and gas processing facilities : American Petroleum Institute, Dallas, Texas*, 265 p.
- Pérez Guerrero, J.S., Skaggs, T.H. (2010). *Analytical solution for one-dimensional advection-dispersion transport equation with distance-dependent coefficients*. J. Hydrol. 390(2010) : 57-65.
- Pérez Guerrero, J.S., Pimentel, L.C.G., Skaggs. T.H., (2013). *Analytical solution for advection-dispersion transport equation in layered media*. Int. J. Heat Mass Transfer, 56 : 274-282.
- Pinot, P. (2015). *Détermination de la porosité des roches calcaires : méthode et incertitude de mesure*. LNE-LCM/Cnam, 61 Rue du Landy, 93210. P. 17.
- Poretti, G.G. (1988). *Abrégé de biophysique des radiations*. Presses Polytechniques et Universitaires Romandes. ISBN-102880741548.
- Quirk, J.M. (2004). *Projet Sphère*, Geneva : Projet Spheère.
- Ren, D.X., Hu, B. (2017). *Global Nuclear Restart and China's Road to Big Nuclear Power Producer and Strong Nuclear PowerProducer*. J. of Sino-Glob. Energy, 22 : 24-32.
- Rodrigo, M.R., Worthy, A.L. (2016). *Solution of multilayer diffusion problems via the Laplace transform*. J. Math. Anal. Appl., 444 : 475-502.

- hspace-0.65cm Shang, D., Geissler, B., Mew, M., Satalkina, L., Zenk, L., Tulsidas, H. Barker, L., El-Yahyaoui, A., Hussein, A., Taha, M., et al. (2021). *Unconventional Uranium in China's Phosphate Rock : Review and Outlook*. Renewable Sustainable Energy Reviews, 140 : 110740.
- Sharma, A., Swami, D., Joshi, N., Chandel. and Šimunek, J. (2021). *The semi-analytical solution for non-equilibrium solute transport in dual permeability porous media* : <https://www.researchgate>.
- Shi, Y., Lee, C.P., Yu, H., Hu, Y., Liu, H., Tien, N.C., Wang, Y., Liu, W., Kong, J. (2021). *Study on advection-dispersion behaviour for stimulation of HTO and Se transport in crushed granite*. J. Radioanal. Nucl. Chem., 328 : 1329-1338.
- Silva, O., Carrera, J., Dentz, M., Kumar, S., Alcolea, A., Willmann, M. (2009). *A general real-time formulation for multi-rate mass transfer problems*. Hydrology Earth Syst. Scie., 13(8).
- Šimunek, J. and van Genuchten, M. T. (2008). *Modeling nonequilibrium flow and transport processes using HYDRUS*. Vadose Zone Journal, 7(2) : 782-797.
- Smith, K.P.; Blunt, D.L.; Williams, G.P.; Tebes, C.L. (1996). *Radiological dose assessment related to management of naturally occurring radioactive materials generated by the petroleum industry : Argonne, Ill.* Argonne National Laboratory, Publication ANL/EAD-2, 65 p.
- Soheili, A.R.; Arezoomandan, M. (2013). *Approximation of stochastic advection diffusion equations with stochastic alternating direction explicit methods*. Applic. Math., 58(4) : 439-471.
- Swami, D.; Sharma, A.; Sharma, P.K.; Shukla, D.P. (2016). *Predicting suitability of different scale-dependent dispersivities for reactive solute transport through stratified porous media*. J. Rock Mechanics Geotech. Eng., 8(6) : 921-927.
- Swami, D.; Sharma, P.K.; Ojha, C.S.P. (2014). *Simulation of experimental breakthrough curves using multiprocess non-equilibrium model for reactive solute transport in stratified porous media*. Sadhana, 39(6) : 1425-1446.
- Swami, D.; Sharma, P.K.; Ojha, C.S.P.; Guleria, A.; Sharma, A. (2018). *Asymptotic behavior of mass transfer for solute transport through stratified porous medium*. Transp. Porous Med. 124(3) : 699-721.
- Tachi, Y.; Ebina, T.; Takeda, C.; Saito, T.; Takahashi, H.; Ohuchi, Y.; Martin, A.J. (2015). *Matrix diffusion and sorption of Cs+, Na+, I-and HTO in granodiorite : Laboratory-scale results and their extrapolation to the in situ condition*. J. Cont. Hydrol., 179 :10-24.
- Tecklenburg, J.; Neuweiler, I., Carrera, J.; Dentz, M. (2016). *Multi-rate mass transfer modeling of two-phase flow in highly heterogeneous fractured and porous media*. , Advances in Water Resources, 63-77.
- Tien, D.T.N. (2008). *Transport de solutés dans un milieu à double porosité non saturé. Modélisation par homogénéisation & applications*. Sciences de la terre, de l'Univers et de l'Environnement. Université Joseph Fourier-Grenoble 1.

- Trefethen, L.N. ; Weideman, J.A.C. ; Schmelzer, T. (2006). *Talbot quadratures and rational approximations*. Numer. Math., 46 : 653-670.
- van Genuchten, M.Th. ; Alves, W.J.(1982) *Analytical solutions of the one-dimensional convective-dispersive solute transport equation* . US Department of Agriculture, Technical Bulletin, No. 1661.
- van Genuchten, M. Th. ; Parker, J.C. (1984). *Boundary conditions for displacement experiments through short laboratory soil columns*. Soil Scie. Society America J., 48 : 703-708.
- van Genuchten, M.Th. ; Wagenet, R.J. (1989). *Two-site/two-region models for pesticide transport and degradation : Theoretical development and analytical solutions*. Soil Scie. Society America J., 53(5) : 1303-1310.
- van Genuchten, M.Th. ; Wierenga, P.J. (1976). *Mass transfer studies in sorbing porous Media I. Analytical solutions*. Soil Scie. Society America J., 40(4) : 473-480.
- Van Genuchten, M.Th. ; Wierenga, P.J. (1977). *Mass transfer studies in sorbing porous media : II. Experimental evaluation with tritium($^3\text{H}_2\text{O}$)* . Soil Scie. Society America J., 41 : 272- 278.
- Vasudevan, G. ; Kumar, S. ; Indumathi, M. ; Nambi Berlin, M. (2015). J. Earth Syst. Scie., 655-674.
- Wang, Q. ; Zhan, H. (2015). *On different numerical inverse Laplace methods for solute transport*. Adv. Water Resour., 75 : 80-92.
- Yang, X. ; Ge, X. ; He, J. ; Wang, C. ; Liu, C. (2017). *Effects of mineral compositions on matrix diffusion and sorption of $^{75}\text{Se}(\text{IV})$ in granite* Environ. Sci. Technol., 52 : 1320-1329.
- Yang, S. ; Wei, Q.(2022). *Fractional advection diffusion models for radionuclide migration in multiple barriers system of deep geological repository*. Mathematics, 10, 2491.
- Zhang, X. ; Ma, F. ; Dai, Z. ; Wang, J. ; Chen, L. ; Ling, H. (2022). *Radionuclide transport in multi fractured rocks : A review*. J. Hazard. Mater., 424.
- Zimmerman , R.A., Jankowski, T.A, Tartakovsky, D.M. (2016). *Analytical models of axisymmetric reaction-diffusion phenomena in composite media*. Int.J.Heat Mass Transf.99, 425-431