

DETERMINATION EXPERIMENTALE DU COEFFICIENT DE DISPERSION D'UNE MATRICE DE SOL

Reçu le 07/01/2005 – Accepté le 15/06/2005

Résumé

La caractérisation des interactions entre une espèce chimique et une matrice de sol est généralement considérée dans les études des phénomènes de transport. Ce type de réaction est assujéti à l'estimation du coefficient de dispersion D. Ce coefficient représente le gradient de concentration de l'élément et le flux de transport ; il dépend de la distribution de la vitesse, de la porosité du milieu et des courants du liquide. Le présent travail décrit le procédé expérimental et la technique associée utilisés en vue de quantifier le coefficient D de deux traceurs radioactifs. Les résultats obtenus à l'échelle du laboratoire sont très satisfaisants et restent en conformité avec les résultats publiés.

Mots clés: Dispersion, Traceur Radioactif

Abstract

The dispersion of chemical species onto soils is commonly quantified through the determination of a dispersion coefficient (D). This parameter depends upon the velocity distribution, the sediment porosity and the liquid currents. In the present paper, an experimental investigation and the description of the methodology followed for the estimation of the dispersion coefficient are presented. The values obtained for two different of dispersed radionuclides are in the same range of the literature survey.

Keywords: Dispersion, Radioactif Tracer.

R. MAOUI

K. MANSOURI

Département de la Sureté
Radiologique et de la Sureté des
Déchets

Centre de Recherche Nucléaire
Alger, Algérie.

La rapide évolution de l'industrie nucléaire et de ses applications a généré beaucoup de matières radioactives artificielles. Ces matières radioactives se sont retrouvées dans l'environnement sous différentes formes (gaz, liquide ou solide) selon leurs origines. En effet, certains rejets proviennent par exemple d'activités routinières (donc en quantités acceptables et contrôlées) alors que d'autres ont été occasionnés par des rejets accidentels d'installations nucléaires (exemple de Tchernobyl) ou lors des essais nucléaires (aériens ou souterrains). Cette radioactivité conduit à la contamination directe ou indirecte de l'air, l'eau et du sol. Cette contamination intervient selon plusieurs voies et à l'aide de plusieurs vecteurs et phénomènes d'interactions dont les plus importants sont le dépôt après précipitation, re-suspension et déplacement ou migration [1]. Cette radioactivité peut alors entraîner après sa déposition, directement ou indirectement, la pollution de l'environnement (eaux souterraines par exemple) et à travers les différents mécanismes de transferts, atteindre l'homme.

Parmi les différentes voies de contaminations qui peuvent atteindre l'homme, on s'intéresse à la contamination des nappes phréatiques. L'évaluation des conséquences éventuelles de cette contamination exige une compréhension des mécanismes physico-chimiques qui contrôlent le cheminement des radionucléides dans le milieu récepteur (sol) et le vecteur (eau). En effet, une grande partie de radioéléments déposés par l'air sur la surface du sol, est transférée vers d'autres endroits par des phénomènes physiques. Ils sont remis en suspension, s'enfoncent dans le sol par lessivage vers les nappes phréatiques ou atteignent les eaux par érosion, d'où la contamination du cycle alimentaire [1].

L'eau est l'un des vecteurs de transport de la contamination dans différents compartiments du milieu naturel (sédiments, organismes vivants ...); cette contamination se produit par dilution des radionucléides déposés par l'air ou par érosion des sols. Les radionucléides solubles dans l'eau se dispersent alors que les non solubles sont précipités puis déposés par gravitation ou emportés par les mouvements des sédiments [2].

ملخص

مميز التفاعلات بين صنف كيميائي و مصفوفة التربة. عموما تأخذ بعين الاعتبار في دراسات ظواهر النقل هذا نوع من التفاعل يستعمل في تقدير معامل انتشار. هذا المعامل يمثل تدرج في تركيز العنصر و تدفق النقل؛ ويتعلق بتوزيع السرعة، مسامية الوسط و التيارات السائل. العمل المقدم يصف الطريقة التطبيقية و التقنية المرفقة مستعملين من أجل تقدير المعامل "D" للعنصرين الاستشفافي النووي. النتائج المحصل عليها على مستوى المخبر جد مرضية وتبقى مطابقة مع النتائج المنشورة.

الكلمات المفتاحية: انتشار، عنصر استشفافي نووي

A ce titre, dans le présent travail, nous allons étudier la dispersion de radionucléides dans le sol traversé par une eau naturelle. Sachant que chaque type de sol présente des caractéristiques particulières qui renseignent sur sa perméabilité, il s'agit pour nous de déterminer l'un de ces paramètres qui est le coefficient de dispersion à l'aide d'un procédé expérimental. Cela consiste à faire passer de l'eau contaminée par un traceur radioactif au travers d'une matrice de sol et de mesurer le temps de transit correspondant. La détection et la mesure de la radioactivité des échantillons récupérés sont faites par comptage spectrométrique en utilisant un détecteur à scintillation liquide pour le Tritium et un détecteur de type NaI(TL) pour l'Iode.

GENERALITES SUR LE COMPORTEMENT DES RADIOELEMENTS :

Les radionucléides présentent un comportement dans le milieu où ils se trouvent (transport, sorption, advection, dispersion) qui dépend de certains paramètres physico-chimiques du milieu (l'eau, l'air, le sol) tels que la granulométrie, la composition chimique, le pH, etc. Les principaux paramètres agissants ou déterminants de ces phénomènes physico-chimiques :

- 1. La vitesse :** C'est la distance parcourue par un élément ou un ensemble d'éléments pendant l'unité de temps [3].
- 2. Le Coefficient de rétention :** qui est défini comme le rapport de la quantité d'un élément dans la phase solide et la quantité du même élément qui se concentre librement en solution. Cette relation est affectée d'un coefficient de distribution K_d [3].

Le coefficient de rétention K_d peut être déterminé expérimentalement par la technique statique ou dynamique sur colonne [3].

- **Méthode Statique dite de Batch :** c'est une méthode statique qui consiste à faire dissoudre dans l'eau le nucléide et de le mettre en contact avec le matériau géologique préparé dans un récipient. Après un temps d'interaction, on sépare les deux phases et on détermine la concentration du radioélément dans la phase liquide.

- **Méthode dynamique sur colonne :** C'est une méthode qui consiste à faire passer à travers une colonne remplie d'un matériau, une solution d'eau contenant le nucléide ; ensuite on détermine la concentration du radioélément présent dans le filtrat récupéré.

- 3. Le coefficient de dispersion :** représentant le gradient de concentration de l'élément et le flux de transport. Il dépend de la distribution de la vitesse des eaux dans les pores, du milieu, des courants du fluide et de la diffusion moléculaire de l'élément.

PROCEDE EXPERIMENTAL :

Lors de notre expérience, la technique dynamique sur colonne a été utilisée pour la détermination des caractéristiques de la migration (retard). Le radioélément en solution dans l'eau passe (par pression ou par gravité) à travers une colonne contenant le sol à étudier. Le retard est déterminé par la mesure de l'activité dans la solution éluée. Cette technique permet de mesurer les caractéristiques du

mouvement (vitesse, dispersion ...) du radionucléide. Pour cela, on fait passer de manière continue de l'eau au travers d'une colonne contenant une matrice (échantillon du sol) sur la surface de laquelle a déjà été injecté un radionucléide de concentration connue. En vue d'assurer un flux constant, le radionucléide d'activité A_0 est directement injecté à la surface de la matrice géologique sur laquelle on ajoutera le volume d'eau nécessaire (fig.1-a). Deux essais sur deux colonnes (une grande et une petite) qui contiennent des matrices géologiques de différentes granulométries (17 - 17.5 μm et 22 - 22.5 μm respectivement) ont été réalisés. Dans la première colonne, les premières gouttes sont apparues en sortie après trois jours alors que dans la deuxième (contient une matrice de granulométrie supérieure) l'infiltration de l'eau a eu lieu le même jour. La porosité de la matrice est calculée à partir du volume d'eau retenu. Le volume total des pores ou la rétention capillaire est déterminé par la perte de poids (humide - sec).

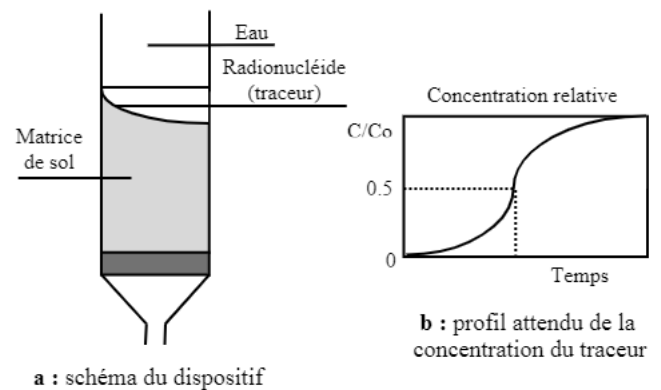


Figure 1 : Dispositif expérimental

1. Types de traceurs utilisés : Le choix du traceur le plus approprié pour réaliser une expérience dépend du terrain, de la distance parcourue, du temps de transit, de l'équipement de mesure et de ce qu'on désire réaliser [4]. Il n'existe aucun traceur qui peut être considéré comme idéal sur tous les aspects pratiques. Actuellement, les traceurs radioactifs sont très importants et présentent d'appréciables avantages par rapport aux traceurs chimiques, mais leur manipulation est très délicate et exige parfois une autorisation d'utilisation. Par ailleurs, il est important que sa concentration dans le sol ne dépasse en aucun cas une certaine norme établie, afin d'éviter tout risque de contamination permanente [4].

Pour les besoins de notre expérience, deux traceurs ont été choisis :

a. Le Tritium (H^3) : employé comme eau tritiée (HTO), il est considéré comme un traceur idéal ; c'est un émetteur β^- pur de faible énergie, difficile à détecter. La mesure se fait au laboratoire avec une sensibilité de 50 à 100 TU avec $1TU = 10^{-18} T/H$. Sa période est de 12,4 Années et son comportement est très similaire à celui de l'eau. Il présente un flux d'échange isotopique dans les terrains argileux ou à contenu élevé en acide humique. Sa toxicité est faible, il est bon marché et facile à acquérir, à conditionner et sa manipulation est simple. La solution traceur du Tritium utilisée avait une activité de $0,76 \cdot 10^{-7} Ci$ à la date

1.05.1993 et de 25.3 μCi le jour de l'expérience. Ames and Rai (1978) ont présenté une revue sur le comportement de ce traceur aussi bien lors de son utilisation dans les études in-situ qu'au laboratoire [5].

b. Iode 131 (I^{131}) : employé comme porteur sous forme de NaI ou KI. C'est un émetteur β et γ , sa détection est simple avec un compteur Geiger- Muller ou à scintillation. Il n'existe pas dans les eaux naturelles. Sa période est de 8,05 jours ; il convient pour les expériences de quelques jours à quelques semaines. Il est très peu retenu dans les sols, sauf ceux très argileux ou qui contiennent beaucoup de matériaux organiques. Cependant, sa radiotoxicité est un peu élevée mais son transport et sa manipulation sont relativement faciles. La solution iodée utilisée avait une activité de 42.32 mCi le 25.09.1996 et de 0.2 μCi au jour de l'expérience.

2. Procédure expérimentale : Les deux solutions (avec traceurs dilués) ont été utilisées lors des différentes expériences d'injections. Chaque solution est déposée dans l'une des deux colonnes auxquelles on ajoute un volume de 10ml d'eau toutes les heures jusqu'à l'ajout d'un volume totale de 170ml pour la colonne contaminée au Tritium et de 90ml pour celle à l'Iodé. Au fur et à mesure que l'élution se fait, des volumes successifs d'environ 2ml pour H-3 et de 5 ml pour I-131 de solution sont recueillis dans des flacons codifiés en enregistrant le temps de passage correspondant. Le lavage total de la colonne est obtenu lorsque le comptage de la solution recueillie est comparable à celui du témoin.

RESULTATS EXPERIMENTAUX

L'objet de cette étude consiste à analyser le comportement de ces traceurs en milieu géochimique et de quantifier la mobilité, la solubilité, le pouvoir de rétention du radionucléide dans le milieu considéré.

Les échantillons récupérés sont comptés dans un détecteur à scintillation liquide pour le cas du Tritium et à l'aide d'un détecteur NaI(TL) pour le cas de l'I-131. Les résultats des activités calculées en fonction du temps (pour les différents échantillons) après comptage sont donnés sur la figure 2.a et 2.b pour le Tritium et l'Iode respectivement. On remarque que les allures de ces deux courbes sont similaires à celle attendue (fig.1.b) [3].

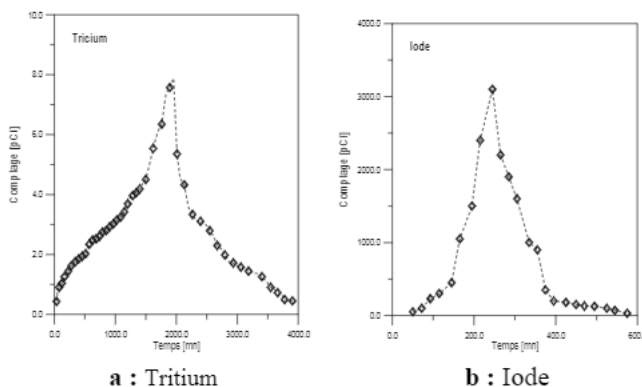


Figure 2 : Distribution de l'activité en fonction du temps de passage

1. Formulation mathématique :

Dans le présent cas, le modèle de dispersion pour un traceur stable est utilisé en tenant compte que lorsque le traceur est une substance radioactive, sa concentration diminue avec le temps ; cette concentration est déterminée en faisant un bilan de masse comme suit [6]:

$$\frac{\partial c}{\partial t} = -\lambda c \quad (6)$$

avec λ : constante de désintégration.

L'application du modèle du traceur stable est justifiée lorsque la période radioactive du traceur est plus grande que la durée de l'expérience. Si on admet que le traceur est introduit instantanément dans la colonne, on peut corriger en introduisant le facteur de correction de décroissance radioactive $e^{-\lambda t}$.

L'équation de dispersion est résolue lorsque le déplacement du traceur se fait à vitesse constante et avec les conditions aux limites suivantes :

- $x = 0$; l'origine des distances situées dans la zone centrale de la colonne;
- $t = 0$; l'instant initial;
- $x < 0$; la zone contenant l'eau avec traceur à concentration c_0 ;
- $x > 0$, la zone contenant l'eau pure.

De plus, il est supposé une interface de séparation brusque (à ce moment s'initie le mouvement unidimensionnel du fluide à une vitesse moyenne v_a), la solution est [6] :

$$c/c_0 = \frac{1}{2} \operatorname{erfc} \left[\frac{x - vt}{\sqrt{4Dt}} \right] \quad (8)$$

où erfc est la fonction complémentaire d'erreur.

Cette équation donne la concentration le long de la colonne en fonction du temps et la déviation type de l'équation (8) est $\sigma = \sqrt{2Dt}$.

D'après Gershon et Nir [6], σ est la distance entre les points pour lesquels $c/c_0 = 0.159$ ou $c/c_0 = 0.841$ et la valeur correspondante à $c/c_0 = 0.5$.

Si on pose $\bar{x} = v t$, la distance moyenne dans le milieu parcouru par le fluide, alors l'équation (8) s'écrit :

$$c/c_0 = 1/2 \operatorname{erfc} \left(\frac{x - \bar{x}}{\sqrt{4D_0t}} \right) \quad (9)$$

Dans le cas de la colonne remplie de matériaux poreux et dans la quelle l'eau marquée est introduite par l'extrémité, il se produit un effet de bord changeant de milieu avec la partie supérieure : ce qui altère la solution donnée en (9).

Dans ces conditions, une solution de substitution est proposée [7] :

$$c/c_0 = 1/2 \left[\operatorname{erfc} \left[\frac{x - vt}{\sqrt{4Dt}} \right] + \exp \left[\frac{-vx}{D} \right] \operatorname{erfc} \left[\frac{x + vt}{\sqrt{4Dt}} \right] \right] \quad (10)$$

Cependant pour les valeurs de $x > D/v$, ($x > D_0$), le second terme est très petit et la solution se réduit à celle donnée en (9). Ceci est confirmé par ailleurs expérimentalement [6].

2. Exploitation des résultats expérimentaux :

2.1. Calcul de la porosité :

Sur le tableau 1, les caractéristiques techniques de la colonne sont résumées.

Par définition :

Tableau 1 : Caractéristique de la colonne et de la matrice.

	Poids (à vide)	Poids total (avec matrice)	Poids total (à saturation)	Poids total (à sec)	Hauteur	Diamètre
	g	G	G	g	Cm	Cm
Colonne	181.15	228.75	107.6	330.8	10	4

A partir des données de ce tableau on peut estimer la porosité de la matrice de sol utilisée dans cette colonne en utilisant la définition standard suivante [3]:

Porosité effective :

$$\eta = \frac{V_e}{V} \quad (11)$$

avec :

V_e le volume effectif de l'eau donné par :

$$V_e (\text{cm}^3) = \frac{P(\text{g})}{d(\text{g/cm}^3)} = \frac{\text{poids de l'eau retenue}}{\text{densité d'eau}} \quad (12)$$

et V le volume total de la colonne.

Une simple application numérique permet de déterminer une porosité de 1.67%.

Tableau 2 : Paramètres de calcul du coefficient de dispersion

c/co	t ₁	t ₂	σ ₁ = t ₂ -t ₁	t ₃	σ ₂ = t ₃ -t ₂	σ _{moy}	D _{moy}	D _o	A= Σ A _i	R = A/Ao*
	mn	Mn	mn	mn	mn	mn	cm ² /mn	cm	pCi	%
TRITIUM										
15.9	620	-	820	-	-	990	6.10 ⁻³	1.2	235.5	93.1
50	-	1440		-	1160					
84	-	-		-						
IODE – 131										
15.9	180	-	70	-	-	82.5	22.10 ⁻³	0.55	18115	90.6
50	-	250		-	95					
84	-	-		-						

2.2. Calcul de la vitesse d'infiltration :

Le temps t_0 représente l'instant où le maximum de l'activité est observé.

Sur la figure 2.a et 2.b, on constate que ce temps est de $t_0=2000$ mn pour le Tritium et $t_0=250$ pour l'Iode. Ce qui permet de trouver une vitesse d'infiltration de 3.10^{-3} m/h dans le cas du Tritium et de 24.10^{-3} m/h pour l'Iode.

2.3. Calcul du coefficient de dispersion D :

D'après Custodio [4], la déviation standard σ est déduite à partir des figures dites de percolation (figures 2.a et 2.b) :

$C/C_0=f[t(\text{minutes})]$. La déviation peut être prise entre soit entre 15.9% et 50% ou entre 50% et 84.12% de C/C_0 .

La déviation standard est définie par [4]

$$\sigma^2 = \frac{2Dt_0^3}{v^2} (\text{min}^2)$$

Si X (hauteur de la colonne) $\gg D_0$ (dispersivité)

$$D_0 = \frac{\text{Coefficient de dispersion (cm)}}{\text{vitesse de filtration}}$$

$$v = \frac{X}{t_0} \quad \text{et} \quad D = \frac{\sigma^2 X^2}{2t_0^3} (\text{m/min})$$

L'utilisation de ces définitions et des courbes 2.a et 2.b, permettent d'aboutir aux résultats du tableau 2.

2.4. Discussions des résultats :

Les résultats des activités obtenues après du passage des traceurs à travers la colonne de laboratoire sont résumés dans le tableau (3). Dans le tableau (3), l'égalité des données d'injection et celles de l'élution (récupérés) en terme de volume et d'activité montre bien la saturation de la matrice lors de l'essai de la porosité et l'inactivité des deux traceurs vis-à-vis du sol ; cela montre également qu'une bonne précision du système de mesure a été atteinte. La valeur de la porosité $\eta = 0.062$ qui est relativement faible est due à la manière de remplissage et tassement des grains dans la colonne. Les temps d'élution ($t_{H-3} = 2000\text{min}$ et $t_{I-131} = 250\text{min}$) qui correspondent aux maximum des pics des courbes de pénétrations figures (2.a et 2.b), montrent bien la presque symétrie de celles-ci comme prévu pour la théorie (figure 1.b). Cependant, il est utile de noter que lorsque la courbe est asymétrique, il y a lieu d'appliquer la méthode de Lenda et Zouber [12] pour estimer le temps t_0 . Les vitesses d'infiltration ($V_{H-3} = 5 \cdot 10^{-3} \text{ cm/min}$ et $V_{I-131} = 40 \cdot 10^{-3} \text{ cm/min}$) sont aussi relativement

faibles car elles sont inversement liées à la porosité, mais concordent avec les valeurs reportées dans la littérature [3, 9, 9, 10, 11, et 12] pour un aquifère constitué en majorité d'Argile.

Tableau 3 : Récapitulatif des résultats

Paramètres	Tritium	Iode-131
Dimension		
Diamètre (cm)	4	4
Longueur (cm)	10	10
Volume de la colonne (cm ³)	125.6	125.6
Données d'Injection		
Débit (ml/h)	2.85	2.85
Temps de saturation (min)	90	90
Volume de saturation (ml)	60	60
Volume total injecté(ml)	170	90
Porosité	0.016	0.016
L'activité injectée (Pci)	253	20 000
Données d'Elution		
Temps (min)	2000	250
Vitesse d'infiltration(cm/min)	$5 \cdot 10^{-3}$	$40 \cdot 10^{-3}$
Coefficient de dispersion : Dispersivité D ₀ (cm)	$6 \cdot 10^{-3}$	$22 \cdot 10^{-3}$
L'activité récupérée (Pci)	1.2	0.57
Rendement	235.55	18115
Matrice de sol		
Poids (g)	107.6	107.6
Granulométrie (µm)	22 - 22.5	22 - 22.5

Les coefficients de dispersion D , dépendent de la déviation standard obtenue des courbes expérimentales ($\sigma_{\text{moyH3}} = 990 \text{ min}$ et $\sigma_{\text{moyI-131}} = 82 \text{ min}$) ; les déviations représentant la distance, entre les points pour les quels $C/C_0 = 0,159$, $C/C_0 = 0,84$ et celui correspondant à $C/C_0 = 0,5$ des courbes de percée figures (2.a et 2.b).

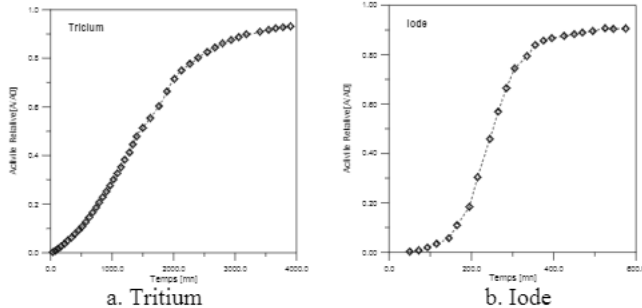


Figure 3 : Distribution de l'activité relative en fonction du temps de passage

Les valeurs des coefficients de dispersions obtenus ($D_{\text{H-3}} = 6.10^{-3} \text{ cm}^2/\text{min}$ et $D_{\text{I-131}} = 22.10^{-3} \text{ cm}^2/\text{min}$), traduisent une dispersivité longitudinale ($D_{0 \text{ H-3}} = 1,2 \text{ cm}$ et $D_{0 \text{ I-131}} = 0,55 \text{ cm}$) ; ces résultats sont en conformité avec ceux reportés dans la littérature (entre 0,01 - 1,0 cm). En tableau 3 sont présentés la synthèse des paramètres de l'expérience et les résultats obtenus.

CONCLUSION

L'évaluation des propriétés d'advection dispersion d'un milieu est sujette à la technique de détermination utilisée. Cette dernière, dans notre cas, est celle de traceurs radioactifs sur colonne de laboratoire. Les traceurs utilisés tels le Tritium et l'Iode sont d'emploi très fréquent en hydrogéologie. Les résultats obtenus vis à vis de ce milieu à l'échelle du laboratoire sont très satisfaisants. Par ailleurs les traceurs ne présentent pratiquement pas d'affinité de rétention pour le milieu étudié. Le traceur Tritium, comparativement à l'Iode est plus idéal pour ce type de sol.

REMERCIEMENTS

Ce travail a été réalisé sous la Direction du Dr M.S. Hamlat, chef du Laboratoire de Traitement des Déchets Radioactifs de l'ex-Centre de Radioprotection et Sûreté. Qu'il trouve ici l'expression de notre reconnaissance.

REFERENCES

- [1]- H. De Choudens & G. Troesch. "Introduction à la radioprotection". Edition GEDIM 1985.
- [2]- K. Anderson and B. Allard. "Sorption of radionuclides on geologic media". Departement of nuclear chemistry, Chalmers university of technology - GÖTEBORG - SUÈDE 1983.
- [3]- US Environment Protection Agency Publication, "Unestanding variation in partition coefficient, K_d , values", EPA-402-R-004A (August 1999).
- [4]- E. Gustodio. "Trazadores et Técnicas Radioisotópicas en Hidrología Subterránea". 1º Edición; Ed OMEGA, S.A Auton, 26, 1983, Barcelona-6-España.
- [5]- L. L. Ames and Rai D. "Radionuclide Interactions with Soil and Rock Media. Volume 1: Processes Influencing Radionuclide Mobility and Retention, Element Chemistry and Geochemistry, and conclusions and Evaluation". EPA 520/6-78-007A, prepared for the U.S. Environmental Protection Agency by the Pacific Northwest Laboratory, Richland, Washington, 1978.
- [6]- AIEA-SM-257. "La rétention des radionucléides par les roches dans le cas de transport en milieux compacts fissurés". In environmental migration of long lived radionucléides". AIEA-SM-257 (1982).
- [7]- IAEA (International Atomic Energy Agency). "Behavior of Tritium in the Environment". Proceedings of the International Symposium on the Behavior of Tritium in the Environment Jointly Organized by the International Atomic Energy Agency and the OECD Nuclear Energy Agency and Held in San Francisco, 16-20 October 1978. Proceedings Series, International Atomic Energy Agency, Vienna, Austria.
- [8]- E. C. Rhodehamel, V. B. Kron, and V. M. Dougherty. 1971. Bibliography of Tritium Studies Related to Hydrology Through 1966. Geological Survey Water Supply Paper 1900, U.S. Geological Survey, Washington, D.C.
- [9]- D. H. Thibault, M. I. Sheppard and P. A. Smith. 1990. A Critical Compilation and review of Default Soil Solid/Liquid Partition Coefficients, K_d , for Use in Environmental Assessments. AECL-10125, Whiteshell Nuclear Research Establishment, Pinawa, Manitoba, Canada.
- [10]- G.C MOLT YANER and PANIACONI "Migration of radionucléides in Porous media : analysis of energy of Canada (AECF) April 1984.
- [11]- NEA workshop. "Sorption modelling and measurement for nuclear waste disposal studies". Summary of on NEA workshop, 6 - 7 June 1983, PARIS (France).

