



HAL
open science

Contribution à la quantification des incertitudes portées par la variabilité spatiale des déchets radioactifs enterrés à Tchernobyl

Huong Liên Nguyen

► **To cite this version:**

Huong Liên Nguyen. Contribution à la quantification des incertitudes portées par la variabilité spatiale des déchets radioactifs enterrés à Tchernobyl. Milieux fluides et réactifs. Université Paris sciences et lettres, 2017. Français. NNT : 2017PSLEM045 . tel-01845757

HAL Id: tel-01845757

<https://pastel.hal.science/tel-01845757v1>

Submitted on 20 Jul 2018

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

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

THÈSE DE DOCTORAT

de l'Université de recherche Paris Sciences et Lettres
PSL Research University

Préparée à MINES ParisTech

**Contribution à la quantification des incertitudes portées par la
variabilité spatiale des déchets radioactifs enterrés à Tchernobyl**

Ecole doctorale n°398

Géosciences, Ressources Naturelles, Environnement

Spécialité Géosciences et géo-ingénierie

Soutenue par **Huong Liên NGUYEN
le 14 décembre 2017**

Dirigée par **Chantal de FOUQUET**



COMPOSITION DU JURY :

M. GUY Bernard
MINES Saint-Etienne, Rapporteur

M. GONCALVES Julio
Université Aix Marseille, Rapporteur

M. GOBLET Patrick
MINES ParisTech, Président

M. BUGAI Dmitri
IGS, Examineur

M. BOURGEOIS Marc
IRSN, Examineur

Mme de FOUQUET Chantal
MINES ParisTech, Examineur

Mme COURBET Christelle
IINTERA SAS, Examineur

REMERCIEMENTS

Après ces presque quatre années de thèse, voici enfin les remerciements, qui clôturent cette grande aventure.

Tout d'abord, je souhaite remercier Bernard Guy et Julio Gonçalves d'avoir accepté, un peu in extremis, d'être les rapporteurs de ces travaux multidisciplinaires. Merci pour leurs commentaires et questionnements qui ont amélioré ce travail.

Et dire qu'à l'issue de mon master de recherche, je ne comptais pas faire de thèse ! A la fin de mon école d'ingénieur, en faisant le tri de mes cours, je suis tombée sur celui de géostatistique et je me suis dit « Jamais plus je n'en referai de ma vie ! ». Je l'ai même mis à la poubelle. Miséricorde, si j'avais su que deux ans plus tard, j'allais commencer une thèse avec une grande composante de géostatistique, je ne l'aurais jamais cru. Le chemin a été long, brumeux, semé de doutes et d'obstacles en tout genre. Maintes fois je me suis demandée pourquoi j'avais commencé cette thèse. Mais à force d'acharnement, j'ai tenu bon et je ne regrette aucunement de l'avoir entreprise car je n'en ressors que grandie (pas dans le sens littéral, certes).

Je n'y serais jamais parvenue jusqu'au bout sans compter l'expertise de Chantal de Fouquet. Merci pour son encadrement, sa patience, sa disponibilité jusqu'à la toute fin, ses conseils avisés en géostatistique et sur tous les sujets que nous avons abordés. Son recul sur l'ensemble des données que nous avons traitées m'a toujours impressionné. La géostatistique n'a pas été ma tasse de thé, mais je pense avoir acquis les bases à l'issue de cette riche expérience, et après une pause, je me réjouirai peut-être d'en refaire un jour car je trouve assez incroyable le nombre de domaines auxquels la géostatistique peut être appliquée.

Je tiens à remercier le centre de géosciences et l'équipe de géostatistique pour leur accueil et leur aide lors de mes (rares) venues à Fontainebleau. En particulier, merci à Jacques Rivoirard de m'avoir acceptée au sein de l'équipe de géostatistique et d'avoir donné l'accord de ma prolongation de contrat de thèse au sein de MINES Paristech. Merci également à Christian Lajaunie qui, grâce à une question soulevée lors de ma soutenance de première année de thèse, a permis la construction de tout un pan de mon manuscrit et de publier un article. Merci à Fabien Ors qui a toujours été très réactif concernant les problèmes informatiques, de réseau ou concernant le logiciel ISATIS. Merci infiniment à Nathalie Dietrich, Isabelle Schmitt, Dominique Vassiliadis et Véronique Lachasse pour leur gentillesse et leur aide administrative. Mes venues à Fontainebleau ont été ponctuées de moments sympathiques partagés avec les doctorants que j'ai eu la chance de rencontrer, je pense à Sara, Jihane, Amin, Marine, Jean, Anna, Dariouche et j'en oublie certainement...

Je souhaite également exprimer ma grande reconnaissance au support de Géovariances lorsque je rencontrais des difficultés sur ISATIS. Un big big merci à Christophe Bessin pour toutes ses explications lors de mes débuts en géostatistique et pour les pauses de midi partagées ensemble à Bleau city. Ce n'était pas une mince affaire mais les petits cours particuliers du tout début de thèse m'ont bien dépannée !

Je n'aurais jamais eu la force ni le courage de terminer cette thèse sans compter la précieuse aide de Christelle Courbet. Elle a été un grand moteur par son dynamisme, sa pugnacité et ses idées foisonnant à mille à l'heure. Elle m'a aussi secouée lorsque je divaguais ou lorsque je me reposais un peu trop sur mes lauriers, elle a été le lien avec un grand nombre de personnes avec qui j'ai pu travailler. Elle s'est battue (presque littéralement ?) et s'est pliée en quatre pour que nous puissions partir à Tchernobyl et pour que mon contrat puisse être prolongé. Avec Caroline Simonucci, elles étaient à l'origine de ce sujet de thèse et m'ont suivie jusqu'au bout malgré divers rebondissements. Merci à elles de m'avoir choisie pour ce sujet, pour leurs encouragements et leur soutien sans faille !

Remerciements

Un grand merci à Patrick Goblet d'avoir présidé mon jury de thèse. Merci aussi à lui pour sa disponibilité, sur Paris ou Fontainebleau, et ses remarques constructives sur la partie modélisation hydrogéologique. Merci également à Hocine Bendjoudi sorti de sa retraite pour me conseiller sur la modélisation également.

Mille mercis à Marc Bourgeois d'avoir fait partie de mon jury et pour son aide inestimable lors de mon épopée dans les méandres de MELODIE. Soit dit en passant, c'est un bel outil interne de modélisation, qui j'espère trouvera de nombreux adeptes dans le futur. Marc s'est toujours montré plus que disponible pour venir à la rescousse que ce soit en débogueant mon modèle, en trouvant des combinaisons de paramètres numériques pour que les simulations tournent plus vite ou encore en créant des outils pour traiter plus rapidement mes résultats. J'en profite pour remercier du fond du cœur Hanen Amor pour son aide sur MELODIE et Linux ainsi que pour sa gentillesse.

Дякую Dmitri Bugai who came all the way from Ukraine to be part of my thesis examiners. Thank you for your considerable help during my PhD whenever I needed some information or some specification on more than 15 year old data. Also thank you for all your observations on my manuscript. I hope that the IRSN collaboration with Ukraine and the Exclusion will go on.

I would also like to warmly thank all the people I met during our Tchernobyl field trip: Valentyn Protsak, Valeriy Kashparov, Slava Levchuk, Sergii Obrizan, Alina Geyko, and people from CEMRW. Many thanks for your great help, your kindness and expertise. What an experience! If it wasn't that complicated to get into the Exclusion Zone, I would definitely come back anytime to work with you. Merci également à Christine Brun-Yaba pour tout le côté administratif de notre excursion.

Cette mission de terrain à Tchernoby restera certainement l'un des meilleurs souvenirs de cette thèse. Nous sommes partis à neuf avec Christelle Courbet, Carolina Hoyos Hernandez, Olivier Diez, Fabien Panza, Benjamin Foissard, Albane Saintenoy, Emmanuel Léger et Catherine Larose. Quelle équipe de choc ! Nous avons profité d'un bel été indien sur les terres contaminées de Tchernobyl. Malgré le cadre qui aurait pu faire fuir bon nombre de personnes saines d'esprit, nous étions tous très heureux d'avoir la chance de faire partie de cette aventure. Merci infiniment à eux pour leur bonne humeur et leur contribution au projet. Merci à Albane et Emmanuel pour la nouvelle campagne de géoradar et la détermination des paramètres hydrodynamiques de la zone non saturée. Merci au SIAR de nous avoir prêté leur matériel et notamment, merci à Fabien et Benjamin pour leur campagne de mesures de spectrométrie gamma *in situ*. Merci à Olivier pour son aide sur les prélèvements d'échantillons d'eau jusqu'à leur analyse en laboratoire.

Bien évidemment, je remercie profondément l'IRSN d'avoir entièrement financé cette thèse et de m'avoir permis de participer à plusieurs conférences et formations durant mon parcours de doctorante. Merci à Flavien Lemoine de m'avoir intégrée au sein du SRTG (actuel SEDRE) et d'avoir accepté mes prolongations de thèse. Egalement merci à Jean-Dominique Barnichon de m'avoir accueillie au sein du LETIS, puis merci à Sylvain Bassot de m'avoir recueillie au sein du LAME, devenu LT2S, dont Charlotte Cazala a repris le flambeau. Un grand merci à elle pour l'intérêt porté à ma thèse et le financement de mes prolongations de thèse. Elle m'a permis de la terminer dans de très bonnes conditions. Merci à Sabine Vivier pour toute son aide administrative.

Merci à Evelyne Barker pour l'analyse des échantillons d'eaux souterraines, merci à elle et à Rodolfo Gurriaran pour leurs remarques et leur contribution significative sur l'article scientifique soumis. Sans la formule « établie sur un coin de table » de Rodolfo, nous n'aurions jamais pu publier. Merci à Matthieu Le Coz pour son regard sur la partie hydrogéologie de ce manuscrit.

Je remercie chaleureusement les nombreux collègues qui ont partagé mon bureau, des discussions et qui se sont occupés de mes plantes, dans l'ordre chronologique : Guillaume, Elodie, Philippines, Katy, Chloé, Ekoé, Nahla, Josselin, Imhad. Merci à tous mes collègues du SRTG, SEDRAN et du SCAN pour les moments passés entre les excursions à la cantine, les quelques sessions courses et piscine de midi à deux, les paupauses et les repas du midi au coin café et toutes les discussions. En particulier, merci à Carolina, Elif, Vincent, Levent, Thomas, Sergio, Ludmila, Ashish, Marina, Catherine, Augustin, Charles, Jean-Michel, Greg, Maxence, François, Pierre, Alexandre, Magdalena, Mathilde, Zakaria, Camille, Alkis, Maxime, Sophie, Emilie, Majda... J'en oublie certainement et je les prie de m'en excuser ! Je pense aussi à toutes les personnes que j'ai pu rencontrer au cours de mes différentes formations, conférences, journées de thèses, journées des doctorants et j'en passe.

Chacun à leur façon, ils ont égayé mon quotidien de thésarde.

Pensées toutes particulières à Philippines, co-bureau et co-galérienne. Cette thèse aurait été complètement différente si nous n'avions pas vécu cette expérience ensemble ! On a pu râler et se raconter nos tracas et soucis, sortir, partager plein de thé et des paupauses avec Maxime... Le chemin a été ardu, mais on a atteint le bout du tunnel ! Carolina, ton sourire, ton rire et ton peps m'ont beaucoup manqué à ton départ ! Toujours la patate quoi qu'il arrive (alors que tu en as vu des vertes et des pas mûres !), et c'était toujours un réel plaisir de partager des moments avec toi. Maxime, nos paupauses avec Philippines ont beaucoup changé mon quotidien du 8^{ème} étage en découvrant le 7^{ème} étage. Wouaw, que de distance parcourue ! C'était peut-être même le moment le plus attendu de la journée, haha ! Nahla, une belle rencontre à la presque toute fin de la thèse, une personne avec un grand cœur, qui a été un peu comme une maman pour moi, à me réconforter et à me nourrir de succulentes pâtisseries et autres friandises tunisiennes ! Sophie, Emilie et Majda, merci pour les bons moments pendant les pauses de midi au coin café ou sur l'herbe malgré le rush de la fin !

Merci infiniment à Rose d'avoir grandement contribué à mon bien-être au bureau en s'occupant des plantes lors de mes absences et en prenant un soin particulier à la propreté de notre lieu de travail.

Merci du fond du cœur à ma famille, plus particulièrement mes sœurs Thanh Mi et Laetitia (pensée pour toi aussi Matthieu), ma tante Bich et mon oncle Paul, pour leur présence qui m'a été d'un grand réconfort et leur soutien. Un grand merci à ma belle-famille, notamment mes beaux-parents d'avoir assisté à ma soutenance et de m'avoir épaulée pour le fameux pot de thèse (oui Fabien, je sais que tu y es pour beaucoup aussi) ! Merci à mes amis qui ont suivi de loin ce que je faisais mais qui ont su bien me distraire de mes préoccupations de thésarde, spéciale casse-dédi à Luc qui a pu comprendre ce que je traversais, merci à Coco et Marie-Paule d'avoir été là à ma soutenance malgré le boulot ! A huge thank you to Aamon for all the revisions he made every time I had something to write in English, even though he did not understand a thing of what I was writing. Thank you Aaaaamon !

De tendres pensées à ma mère qui a toujours eu un détachement déconcertant dans mes études, mais malgré les 18000 km qui nous sépare, elle a toujours été là dans les moments les plus difficiles. Je pense aussi fort à mon père qui m'a épaulée tout au long de mes longues études lorsque j'en avais besoin et qui n'a jamais remis en question mon parcours, à Serge d'avoir été un père par procuration, et à Khanh malgré le temps et la distance qui nous ont peu à peu séparés.

Mes derniers remerciements reviennent à Fabien, qui m'a suivie jusqu'en région parisienne pour que je débute cette thèse et qui a bien plus profité de ma cuisine que moi de la sienne... Mais non ! Ce n'est pas ce que je retiens ! Il a surtout éclairé mon quotidien de sa bonne humeur, son sourire et son humour. Merci pour ton soutien, ta persévérance, ta patience, ta compréhension et ta présence chaque jour à mes côtés.

SOMMAIRE

REMERCIEMENTS	I
SOMMAIRE	IV
LISTE DES FIGURES	IX
LISTE DES TABLEAUX	XIII
LISTE DES SIGLES ET DES ABBREVIATIONS	XIV
INTRODUCTION	1
CHAPITRE 1 CARACTERISATION DU SITE EPIC ET ETAT DES CONNAISSANCES SUR LES PROCESSUS DE TRANSFERT DES RADIONUCLEIDES	3
1 GEOLOGIE ET HYDROGEOLOGIE DU SITE	3
1.1 Structure géologique	3
1.2 Propriétés lithologiques	4
1.3 Nappes principales	6
1.3.1 Nappe libre des sables du Quaternaire	6
1.3.2 Nappe captive des sables de l'Eocène	7
2 PROCESSUS DE TRANSFERT DES RADIONUCLEIDES DANS LA ZONE NON SATUREE ET LA ZONE SATUREE	7
2.1 Radionucléides prépondérants et leurs propriétés	7
2.2 Particules de combustible	8
2.3 Principaux processus géochimiques et migration biogénique	10
3 TRAVAUX DE RECONNAISSANCE DE LA TRANCHEE T22	11
3.1 Méthodes de reconnaissance	11
3.1.1 Géoradar	11

3.1.2	Mesures radiométriques	12
3.1.3	Prélèvements des eaux souterraines	14
3.2	Résultats antérieurs	14
3.2.1	Géométrie 3D de la tranchée	14
3.2.2	Détermination du stock de césium-137 et de strontium-90	16
3.2.3	Distribution du Sr90 dans la zone non saturée et dans l'aquifère	17
4	SYNTHESE	17

CHAPITRE 2 ANALYSE DE LA CORRELATION ENTRE COMPTAGE GAMMA ET ACTIVITE : INCIDENCE SUR LE STOCK ET LES INCERTITUDES LIEES A LA VARIABILITE SPATIALE 19

1	INTRODUCTION	20
2	MATERIALS AND METHODS	21
2.1	Synthetic dataset built from numerical geostatistical simulations	21
2.1.1	General principle	21
2.1.2	Reference case	22
2.1.3	Sensitivity runs	22
2.2	Geostatistical model of the activity concentration field	24
2.2.1	Principle	24
2.2.2	Parameterization of the sensitivity runs	25
2.3	Assessment of the correlation strength	26
2.4	Error assessments associated with the linear regression and the back-transformation of logarithm values	27
3	RESULTS	27
3.1	Reference case	27
3.2	Sensitivity analysis	29
3.2.1	Variogram range	29
3.2.2	Nested structures	30
3.2.3	Standard deviation of activity	31
3.2.4	Core length	31
3.2.5	Water content	32
3.2.6	Multiple radionuclide pollution	33
4	APPLICATION TO THE EPIC SITE	36
4.1	Experimental dataset from Chernobyl Exclusion Zone	36
4.2	Study of the ACR correlation	37
4.3	Geostatistical study of gamma count rates and laboratory measurements of 2015 ¹³⁷ Cs data	38
4.4	Comparison of different activity estimators	40
5	SYNTHESIS AND DISCUSSION	41

CHAPITRE 3	INCERTITUDES SUR LE STOCK DE LA TRANCHEE T22	43
1	EVALUATION DU VOLUME DE LA TRANCHEE T22	43
1.1	Les différents types de données : géoradar et radiométrie	43
1.1.1	Géoradar	43
1.1.2	Mesures radiométriques	44
1.2	Analyse statistique	46
1.3	Analyse variographique	47
1.4	Estimation	51
1.4.1	Validation croisée	51
1.4.2	Cartographie des limites	52
1.5	Calcul du volume de la tranchée	53
2	EVALUATION DU STOCK	55
2.1	Les données d'activité convertie	55
2.2	Analyse statistique	56
2.3	Analyse variographique	56
2.4	Estimation	58
2.5	Effet proportionnel	60
2.6	Simulations conditionnelles	61
2.7	Calcul du stock de radionucléides et incertitudes associées	64
3	VERS UNE CARACTERISATION DU STOCK EN 2015	66
3.1	Effet de l'échantillonnage	66
3.1.1	Dégradation selon le plan d'échantillonnage de 2015	66
3.1.2	Dégradation aléatoire	67
3.2	Estimation	67
4	SYNTHESE	68
CHAPITRE 4	PROPAGATION DES INCERTITUDES LIEES A L'ESTIMATION DU STOCK EN RADIONUCLEIDES DANS UN MODELE DE TRANSFERT VIA LES EAUX SOUTERRAINES DEPUIS LA TRANCHEE T22	69
1	ETUDE BIBLIOGRAPHIQUE SUR LES PARAMETRES D'ECOULEMENT ET DE TRANSPORT DU SITE EPIC70	
1.1	Caractéristiques de la zone saturée	70
1.1.1	Propriétés hydrauliques des différents aquifères	70
1.1.2	Fluctuations du niveau de la nappe	71
1.1.3	Distribution du gradient hydraulique horizontal et vertical	72
1.1.4	Paramètres hydrodispersifs	73
1.2	Caractéristiques de la zone non saturée	74
1.2.1	Paramètres de la zone non saturée	74

1.2.2	Estimation de la recharge	75
1.3	Migration du strontium-90 dans la zone non saturée et la zone saturée	79
1.3.1	Distribution du strontium-90 dans la zone non saturée et la zone saturée	79
1.3.2	Paramètres de sorption du strontium	81
2	APPROCHE ANTERIEURE DE LA MODELISATION DU TRANSPORT DU STRONTIUM-90	83
2.1	Modélisation avec STERM 1D et approche 2D	84
2.1.1	Principe	84
2.1.2	Résultats antérieurs	85
2.2	Améliorations possibles de la modélisation	86
3	VERS UNE MODELISATION EN 1D NON SATURE ?	86
3.1	Principe et hypothèses	86
3.2	Code MELODIE	87
3.3	Conceptualisation et paramètres du modèle 1D avec MELODIE	88
3.4	Résultats et discussion	89
4	MODELISATION EN 2D NON SATURE AVEC MELODIE	90
4.1	Principe	90
4.2	Paramètres du modèle	91
4.3	Calage des paramètres d'écoulement	94
4.4	Représentation du terme source	96
4.5	Extension de la chronique piézométrique	97
4.6	Analyse de sensibilité sur les paramètres d'écoulement et de transport	98
4.6.1	Cas de référence	98
4.6.2	Influence de l'activité maximale admise dans les eaux souterraines	102
4.6.3	Influence de la recharge	104
4.6.4	Influence du Kd	104
4.6.5	Influence de la conductivité hydraulique	107
4.6.6	Influence du stock et de sa répartition	109
5	DISCUSSION ET SYNTHESE	113
CONCLUSION		115
REFERENCES		117
ANNEXES		122
ANNEXE CHAPITRE 2		122

ANNEXES CHAPITRE 3	123
Estimation des limites de la tranchée	123
Estimation du stock de la tranchée	124
Simulations	126
ANNEXES CHAPITRE 4	128

LISTE DES FIGURES

Figure 0-1 : Zone d'exclusion et répartition de la contamination en strontium-90 en 1997 (carte de l'Ukrainian Institute of Agricultural Radiology)	1
Figure 0-2 : Localisation du site EPIC	2
Figure 1-1 : Coupe géologique régionale du site EPIC modifiée de Bugai et Dewiere (2004)	4
Figure 1-2 : Direction générale de l'écoulement des eaux souterraines dans la nappe libre des sables du quaternaire en juillet 1999 (Bugai et al., 2012a)	7
Figure 1-3 : Radionucléides prépondérants dans l'environnement après l'accident (adapté de Smith et Beresford, 2005)	8
Figure 1-4 : Particules de combustibles observées au microscope électronique à balayage sous forme d'oxydes d'uranium UO_2 et UO_{2+x} (gauche) et d'oxydes d'uranium et de zirconium : ZrU_yO_x (droite) (Ahmdach et Stammose, 2000)	9
Figure 1-5 : Cinétique de dissolution des différentes formes de particules de combustible (Kashparov et al., 2012).....	10
Figure 1-6 : Processus géochimiques dans la tranchée T22 (Martin-Garin et al., 2012)	11
Figure 1-7 : Localisation des profils géoradar et positionnement des points de lever de topographie sur le site EPIC (Matoshko, 2002)	12
Figure 1-8 : Répartition de l'ensemble des forages réalisés pour la spectrométrie gamma in situ le gamma-logging en 1999, 2002 et 2003 (Bugai et al., 2005; Bugai et Dewière, 2003).....	13
Figure 1-9 : Plan d'échantillonnage des sols en 2015	13
Figure 1-10 : Localisation des piézomètres et éléments de construction des groupements de piézomètres 18-00 et 19-00 (Kashparov et al., 2012) Le profil « WS » correspond au profil CD et le profil « LAB » correspond au profil AB.	14
Figure 1-11 : Exemple de profil géoradar X4 (Matoshko, 2002). L'échelle horizontale et verticale est la même.	15
Figure 1-12 : Limites de la tranchée déterminées à partir de l'analyse géostatistique des mesures radiométriques <i>in situ</i> (Bugai <i>et al.</i> , 2000)	15
Figure 1-13 : Distribution de la radioactivité dans la tranchée T22 (Bugai et Dewière, 2003).....	16
Figure 1-14 : Migration du ^{90}Sr depuis la tranchée T22 dans la nappe superficielle (Van Meir et al., 2009) ..	17
Figure 2-1 : Corrélation entre nombre de coup et activité en ^{137}Cs (Kashparov et al., 2004)	19
Figure 2-2 : Principe of the 3D activity model built for studying the relationship between the count rate measured into a borehole with a gamma probe and the activity concentration of a gamma emitter measured by laboratory gamma-spectrometry on a core sample.	21
Figure 2-3: Stratified media notation used for studying the impact of a stratified moisture content variation with depth	23
Figure 2-4 : (a) 2D plots along the x_1 and x_2 axes of the two nested meshes used for computing geostatistical simulations of the gamma-emitter activity field and (b and c) example of two realizations along the x_1 and x_2 directions of a Gaussian whose variogram range is equal to 5 times the size of the mesh (p : range/mesh = 5). The scale color represents the activity logarithm.	25
Figure 2-5: Impact of the simulation number on the stability of the correlation. On the left, on arithmetic values, on the right, on logarithm values.	28
Figure 2-6: Reference case results for 800 simulations (left) and comparison of empirical regressions on 2 sets of 400 simulations (right).	28
Figure 2-7: Effect of the ratio between range and mesh size	29
Figure 2-8 : Effect of the anisotropy: (top) the short range is in the vertical direction (bottom) the short range in one of the horizontal directions.....	30
Figure 2-9: Effect of a nested structure combining a nugget effect and a spherical component	31

Figure 2-10: Effect of the standard deviation.....	31
Figure 2-11: Effect of the core length	32
Figure 2-12: Effect of stratified moisture content zonation considered for the spatially-variable attenuation case	33
Figure 2-13: Effect of another gamma-emitting radionuclide ⁶⁰ Co considering an increasing ⁶⁰ Co mean from 1 to 100 and a fixed spatial structure for each radionuclide.....	33
Figure 2-14 : Location of boreholes drilled in Trench T22 in Chernobyl Exclusion Zone in September 2015.	37
Figure 2-15: Linear regression (left) and lognormal regression (right) on data acquired in the Chernobyl Zone in September 2015	37
Figure 2-16: Simple and cross-variograms. The histograms represents the number of pairs used to calculate the experiemental variogram.	39
Figure 2-17: Comparison of estimated values and real values for the cokriging, the linear regression and the lognormal regression	40
Figure 3-1 : Topographie des profils et topographie issue de la campagne topographique (échelle Z magnifiée x10).....	44
Figure 3-2 : Données d'activité en ¹³⁷ Cs - Vue en 3D, en coupe et le long d'un profil.....	45
Figure 3-3 : Histogramme des données d'activité. A gauche, les valeurs réelles, à droite les valeurs transformées en logarithme translaté. En rouge, les valeurs égales à 0 kBq/kg. En bleu, les valeurs supérieures à 800 kBq/kg. Les statistiques ne tiennent pas compte des valeurs nulles.	46
Figure 3-4 : Localisation des données utilisées pour la détermination des limites de la tranchée T22 (gauche) - Restriction des données géoradar autour des données d'activité pour le cokrigeage et données utilisées pour une partie de la validation croisée en rouge (droite).....	47
Figure 3-5 : Variogrammes omnidirectionnels des cotes issues de l'activité (gauche) et géoradar (droite) et histogrammes du nombre de couples utilisés pour construire les variogrammes	48
Figure 3-6 : Variogrammes expérimentaux directionnels, leur ajustement sur les données de cotes de l'activité et les histogrammes du nombre de couples utilisés pour construire les variogrammes. (gauche) et du géoradar (droite) dans le cas stationnaire monovariabile.....	48
Figure 3-7 : Ajustement de la covariance croisée par une structure gigogne (combinaison d'un effet de pépite et d'un modèle exponentiel)	50
Figure 3-8 : Nuage de corrélation des valeurs estimées (abscisse) et réelles (ordonnées) de la validation dans le cas bivariable.....	52
Figure 3-9 : Comparaison des résultats du krigeage monovariabile (gauche) et bivariable (droite) et de leur écart-type d'estimation (bas). L'échelle de couleur représente la cote du fond de la tranchée.....	53
Figure 3-10 : Résultats du cokrigeage En bleu les valeurs estimées dont l'écart-type de krigeage est supérieur à 0.5 m. Ces valeurs ont été écartées pour obtenir l'estimation des limites de la tranchée. L'échelle de couleur représente l'activité en ¹³⁷ Cs.	54
Figure 3-11 : Evaluation du volume de la tranchée et effet de seuil sur les simulations conditionnelles Recouplement avec les limites de la tranchée : estimation (1), estimation + 2σ _K (2), estimation - 2σ _K (3), sans recouplement avec les limites de la tranchée (4).....	55
Figure 3-12 : Données utilisées pour la validation croisée (en rouge).....	56
Figure 3-13 : Variogrammes directionnels en X, Y et Z de l'activité transformées (haut) et des valeurs brutes (bas)	58
Figure 3-14 : Exemple d'ajustement des variogrammes directionnels avec un modèle structural combinant effet de pépite, composantes gaussienne, sphérique et linéaire	58
Figure 3-15 : Comparaison valeurs réelles et valeurs estimées (gauche) et erreur d'estimation standardisée (droite) pour le modèle structural et le voisinage retenus. Les valeurs nulles ont été réintégrées au jeu de données pour l'estimation.	58
Figure 3-16 : Résultats du krigeage après recouplement des limites de la tranchée et de la topographie : coupe verticale et vue en 3D.....	59
Figure 3-17 : Mise en évidence de l'effet proportionnel dans le cas d'une sélection de points (29 points) sur un forage (gauche) ou deux forages (droite).....	61
Figure 3-18 : Ecart-type d'estimation avant et après correction de l'effet proportionnel Vue sur de la tranchée à une cote de 113.5 m a.s.l.	61
Figure 3-19 : Anamorphose calculée à partir des valeurs d'activité supérieures à 0 kBq/kg et histogramme de la transformée gaussienne	62

Figure 3-20 : Ajustements des variogrammes directionnels de la transformée gaussienne ponctuelle (gauche) et des variogrammes directionnels de la transformée gaussienne de bloc (droite)	63
Figure 3-21 : Exemple de simulations conditionnelles de l'activité en ¹³⁷ Cs Plan horizontal XY à la cote 113.5 m a.s.l.	63
Figure 3-22 : Ratio entre la racine carrée du variogramme directionnel et le madogramme pour tester le caractère bi-gaussien de la variable	64
Figure 3-23 : Evaluation du stock de ¹³⁷ Cs dans la tranchée et effet de seuil sur les simulations conditionnelles Recouplement avec les limites de la tranchée : estimation (1), estimation + 2σ _K (2), estimation - 2σ _K (3), sans recouplement avec les limites de la tranchée (4).....	65
Figure 3-24 : Sélection de forages respectant le plan d'échantillonnage	66
Figure 3-25 : Influence du plan d'échantillonnage sur les variogrammes directionnels	66
Figure 3-26 : Effet de l'échantillonnage par dégradation aléatoire.....	67
Figure 4-1 : Localisation schématique des piézomètres Encadrés en bleu, les piézomètres équipés d'une sonde piézométrique	71
Figure 4-2 : Niveau de la nappe enregistré sur le piézomètre 2-99 entre 1999 et 2015	72
Figure 4-3: Evolution du de la différence entre les charges hydrauliques mesurées sur les piézomètres 1-01 et 2-00.....	73
Figure 4-4 : Application de la méthode WTF au piézomètre 2-99 d'avril-2012 à mai-2013	76
Figure 4-5 : Recharge mensuelle calculée sur la période 2000-2004 avec la méthode de hydro-physique (en bleu) et la méthode WTF (en vert)	77
Figure 4-6 : Recharge calculée par la méthode de Darcy sur les années 2001, 2003 et 2004	78
Figure 4-7 : Variation temporelle de l'activité en ⁹⁰ Sr sur le profil AB. Haut : Suivi temporel de l'activité en ⁹⁰ Sr sur le piézomètre 19-00-1. Bas : Activité en ⁹⁰ Sr dans les eaux souterraines en mai 2005. Le niveau piézométrique est représenté par un trait en pointillé bleu. La position des piézomètres représente le milieu des crépines.	80
Figure 4-8 : Variation temporelle de l'activité en ⁹⁰ Sr sur le profil CD. En haut : Suivi temporel de l'activité en ⁹⁰ Sr sur le piézomètre 12-02-1. En bas : Activité en ⁹⁰ Sr dans les eaux souterraines en mai 2005. Le niveau piézométrique est représenté par un trait en pointillé bleu. La position des piézomètres représente le milieu des crépines.	81
Figure 4-9 : Schématisation de la modélisation du transport du ⁹⁰ Sr (Bugai et al., 2012a).....	84
Figure 4-10 : Représentation schématique du modèle 1D non saturé	88
Figure 4-11 : Comparaison du niveau piézométrique observé aux niveaux piézométriques simulés pour différentes hauteur de colonne 1D : dépendance des résultats du calage à la position de la condition aux limites	90
Figure 4-12 : Modèle conceptuel 2D non saturé	92
Figure 4-13 : Nombre de Péclet dans la direction X pour un maillage de 0.25 x 0.10 m (haut) et 0.50 x 0.50 m (bas) au temps de simulation t=3480 jours.....	93
Figure 4-14 : Nombre de Péclet dans la direction Z pour un maillage de 0.25 x 0.10 m (haut) et 0.50 x 0.50 m (bas) au temps de simulation t=3480 jours.....	94
Figure 4-15 : Nombre de CFL dans la direction X et Z pour un maillage de 0.50 x 0.50 m au temps de simulation t=3480 jours	94
Figure 4-16 : Comparaison temporelle des niveaux d'eau simulés et observés sur le piézomètre 2-99. En haut, la conductivité hydraulique des sables éoliens est fixée à 5 m/j (5.79 10 ⁻⁵ m/s), en bas, la conductivité hydraulique des sables éoliens est de 20 m/j (2.31 10 ⁻⁴ m/s)	95
Figure 4-17 : Comparaison entre les niveaux d'eau simulés et observés au piézomètre 2-99. A gauche, la conductivité hydraulique des sables éoliens est fixée à 5 m/j (5.79 10 ⁻⁵ m/s), à droite, à 20 m/j (2.31 10 ⁻⁴ m/s).....	96
Figure 4-18 : Exemple de terme source moyenné sur un maillage de 0.5 x 0.5 m (gauche), à partir du terme source sur un maillage de 0.5 x 0.1 m (activité en ¹³⁷ Cs en kBq/kg représentée).....	97
Figure 4-19 : Reconstitution de la chronique piézométrique de 1986 à 2015	98
Figure 4-20 : Simulation de l'écoulement et du transport pour le cas de référence à t = 0 jour, t=1830 jours (-5 ans) et t = 10740 jours (-29,4 ans). La ligne blanche représente le niveau de la nappe. La saturation et l'activité en ⁹⁰ Sr dans la nappe au cours du temps sont présentées pour le piézomètre 19-00-1.	100
Figure 4-21 : Cas de référence - évolution temporelle de l'activité en ⁹⁰ Sr et comparaison des valeurs simulées (en rouge) et observées (points noirs)	101

Figure 4-22 : Cas de référence - comparaison entre valeurs simulées et observées	102
Figure 4-23 : Influence de l'activité maximale admise - évolution temporelle de l'activité en ⁹⁰ Sr et comparaison des valeurs simulées avec celles observées. La légende présente les différentes activités maximales admises testées en Bq/L.....	104
Figure 4-24 : Influence de la recharge - comparaison entre valeurs simulées et observées.....	104
Figure 4-25 : Influence du coefficient de partage pour une conductivité hydraulique fixée à 20 m/j ($2.31 \cdot 10^{-4}$ m/s) - comparaison entre valeurs simulées et observées	105
Figure 4-26 : Influence du coefficient de partage pour une conductivité hydraulique fixée à 20 m/j ($2.31 \cdot 10^{-4}$ m/s) - évolution temporelle de l'activité en ⁹⁰ Sr et comparaison des valeurs simulées avec celles observées	106
Figure 4-27 : Influence de la conductivité hydraulique pour un coefficient de partage fixé à 3 mL/g - comparaison entre valeurs simulées et observées.....	107
Figure 4-28 : Influence de la conductivité hydraulique pour un coefficient de partage fixé à 3 mL/g - évolution temporelle de l'activité en ⁹⁰ Sr et comparaison des valeurs simulées avec celles observées.....	108
Figure 4-29 : Influence de la multiplication du stock sur une couche d'un modèle de tranchée stratifié en 3 couches horizontales d'égale épaisseur et comparaison des réponses sur le piézomètre 19-00-1	110
Figure 4-30 : Influence de la répartition du stock d'un modèle de tranchée stratifié en 3 couches horizontales d'égale épaisseur et comparaison des réponses sur le piézomètre 19-00-1.....	110
Figure 4-31 : Comparaison des réponses entre le stock des profils AB et CD.....	111
Figure 4-32 : Incertitudes liées à la variabilité du terme source - évolution temporelle de l'activité en ⁹⁰ Sr et comparaison des valeurs simulées avec celles observées. Chaque courbe représente une simulation géostatistique du terme source.	112

LISTE DES TABLEAUX

Tableau 1-1 : Caractéristiques générales des sédiments du site EPIC (Bugai et Dewière, 2004a; Dzhepo et Skalskii, 2002; Matoshko et al., 2004)	6
Tableau 1-2 : Fractions initiales de ⁹⁰ Sr associées aux particules chaudes dans la tranchée T22 (Kashparov et al., 2012).....	9
Tableau 3-1 : Statistiques élémentaires des données de cotes issues de l'activité et du géoradar.....	47
Tableau 3-2 : Comparaison des statistiques entre les cotes issues du géoradar des profils X11-1 et des autres profils.....	49
Tableau 3-3 : Statistiques élémentaires des données utilisées pour l'analyse géostatistique.....	56
Tableau 4-1 : Synthèse des valeurs de conductivité hydraulique du site EPIC et du site analogue Pripyat Zaton	70
Tableau 4-2 : Résultats des essais de traçage dans l'aquifère des sables éoliens au niveau du site EPIC (Bugai et al., 2012a)	74
Tableau 4-3 : Synthèse des paramètres de la zone non saturée du site EPIC et de son analogue Pripyat Zaton ainsi que les paramètres pour la formulation de van Genuchten - Mualem ($m=1-1/n$)	75
Tableau 4-4 : Comparaison des résultats de l'estimation de la recharge annuelle à ceux de Saprykin et al. (2015).....	78
Tableau 4-5 : Synthèse des valeurs de Kd déterminées dans le cadre du site EPIC	83
Tableau 4-6 : Paramètres du modèle 1D. En jaune, les paramètres utilisés pour l'analyse de sensibilité.	89
Tableau 4-7 : Paramètres du modèle 2D non saturé	92
Tableau 4-8: Paramètres de l'analyse de sensibilité	98
Tableau 4-9 : Répartition du stock dans les cas testés	109

LISTE DES SIGLES ET DES ABBREVIATIONS

^{103,106}Ru : ruthénium-103, 106

¹³⁷Cs : césium-137

^{141,144}Ce : cérium-141, 144

^{154,155}Eu : europium-154, 155

^{238,241}Pu : plutonium-238, 241

²⁴¹Am : américium-241

⁹⁰Sr : strontium-90

⁹⁵Zr : zirconium-95

⁹⁹Mo : molybdène-99

a.s.l. : above sea level

ACR Activity Count Rate

Bq : Becquerel (une désintégration par seconde)

EPIC : Experimental Platform in Chernobyl

IGS : Institute of Geological Sciences (Ukraine)

IRSN : Institut de radioprotection et de sûreté nucléaire

Kd : coefficient de distribution

MO : matière organique

NUBIP : National University of Life and Environmental Sciences of Ukraine

PC : particules de combustible

PZ : Pripjat Zaton

RN : radionucléide

UIAR : l'Ukrainian Institute of Agricultural Radiology

ZNS : zone non saturée

INTRODUCTION

La catastrophe de Tchernobyl a eu lieu au nord de l'Ukraine, à environ 100 km au nord de Kiev et 15 km de la frontière biélorusse, le 26 avril 1986. Elle a relâché près de 13.10^{19} Bq de radionucléides (RN) dans l'atmosphère. Cette contamination a entraîné la délimitation d'une zone d'exclusion de 30 km autour de la centrale (Figure 0-1).

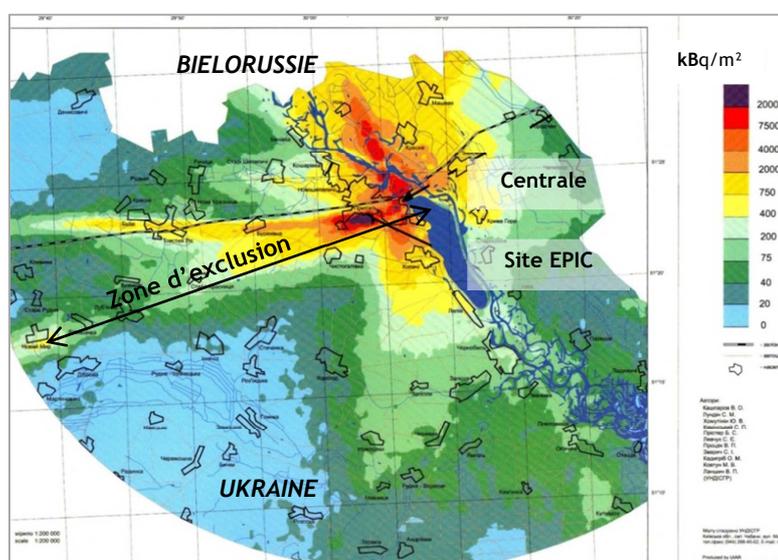


Figure 0-1 : Zone d'exclusion et répartition de la contamination en strontium-90 en 1997 (carte de l'Ukrainian Institute of Agricultural Radiology)

Les déchets générés par l'explosion du réacteur n°4 ont été stockés selon leur activité pour éviter leur dissémination dans l'atmosphère. Les déchets de moyenne et haute activité (10^7 à plus de 10^9 Bq/kg) ont été maintenus, sous contrôle, dans des casemates en béton ou dans des tranchées à fond étanche recouvertes d'une couverture argileuse. Les déchets de faible à moyenne activité (entre 10^5 et 10^7 Bq/kg), constitués de sols, déchets, bois, matériaux de constructions ont été stockés sous forme de tumulus de terre ou enfouis dans des tranchées de 2 à 4 m de profondeur, de quelques mètres de large et pouvant mesurer quelques centaines de mètres de long. Ces structures sont localisées dans un rayon de 10 km autour du réacteur, creusées dans des sables éoliens (Ferrand, 2011a; Péres, 2006) et recouvertes d'une couche de sables de 0,2 à 0,5 m d'épaisseur (Dzhepo et Skalskii, 2002).

Ainsi, de 1986 à 1987, près de 800 tranchées ont été construites pendant le nettoyage du territoire contigu à la centrale (Ferrand et Simonucci, 2011). Leur surface totale est d'environ 8 km² et le volume des déchets radioactifs enfouis est estimé à 10⁶ m³. Le stock principal de l'activité est localisé dans les zones « Stroibaza » et « Ryzhii Les » (zone de la forêt rousse) où de fortes activités spécifiques en ⁹⁰Sr et ¹³⁷Cs de 10^5 à 10^6 Bq/kg et de 10^3 à 10^4 Bq/kg pour les isotopes du Pu ont été recensées (Dzhepo et Skalskii, 2002).

La majorité des tranchées ne présente cependant aucune structure étanche et ne constituent donc pas une barrière efficace contre la migration des radionucléides dans la nappe superficielle. Une migration progressive des radionucléides dans les eaux souterraines a été détectée à partir des années 1989-1992 (Dzhepo et Skalskii, 2002).

A l'échelle du bassin versant, les modèles actuels de transport réactif des radionucléides contenus dans les tranchées indiquent que les panaches générés par celles-ci ne constituent pas le risque le plus significatif dans l'export de contamination (D. Bugai et al., 1996; D. A. Bugai et al., 1996; Shestopalov et Shestopalov, 2002). Néanmoins, ces modèles n'intègrent pas les incertitudes liées à la variabilité spatiale des paramètres majeurs que sont, entre autres : le stock de radionucléides, les propriétés hydrodynamiques et la recharge des formations aquifères et la recharge.

Dans le cadre d'une reconquête des territoires, il devient nécessaire de vérifier l'estimation des risques liés aux transferts des radionucléides vers les eaux de surface depuis ces tranchées.

Nous examinons ici comment quantifier pour une tranchée donnée les incertitudes associées :

- au volume de la tranchée et à son stock en radionucléides ;
- à la corrélation entre activité mesurée en laboratoire et mesure de taux de comptage in situ, sur laquelle sont basées les estimations du volume et du stock;
- à l'effet de la variabilité spatiale du stock de radionucléides sur le panache de radionucléides relâché en aval de la tranchée.

Depuis 1999, l'IRSN étudie la tranchée T22, localisée à 2,5 km de la centrale de Tchernobyl, dans la zone de la forêt rouge, sur le site expérimental EPIC (*Experimental Platform in Chernobyl*) (Figure 0-2). Elle a été choisie pour la relative simplicité des systèmes géologique et hydrogéologique dans laquelle elle se trouve, son accessibilité et une migration observable de radionucléides. En effet, la tranchée est orientée perpendiculairement à l'écoulement de la nappe (Ferrand, 2011b).

De nombreux équipements, dont un laboratoire *in situ*, un réseau d'une centaine de piézomètres, une station météorologique et une fosse instrumentée, y ont été installés afin d'étudier les processus de transfert des radionucléides vers les eaux souterraines et les écosystèmes terrestres. Une campagne de terrain a été effectuée en septembre 2015 dans le cadre des travaux de thèse.

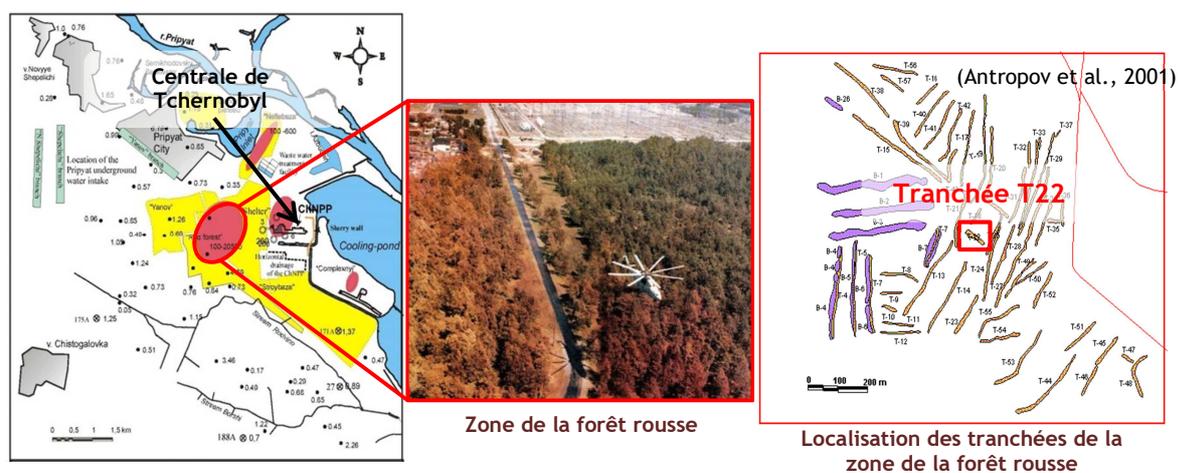


Figure 0-2 : Localisation du site EPIC

Roux (2013) et Ferrand (2011) ont déjà synthétisé les travaux de recherche menés sur la tranchée T22.

Le Chapitre 1 compile les résultats antérieurs qui serviront à l'étude de la relation entre activité et taux de comptage gamma (Chapitre 2), l'évaluation des incertitudes relatives au stock de la tranchée (Chapitre 3) et la construction d'un modèle hydrogéologique (Chapitre 4).

CHAPITRE 1

Caractérisation du site EPIC et état des connaissances sur les processus de transfert des radionucléides

Ce chapitre aborde le milieu dans lequel la station EPIC est située, puis les processus de transfert des radionucléides actuellement prépondérants et enfin les travaux de reconnaissance qui ont permis de les étudier.

1 GEOLOGIE ET HYDROGEOLOGIE DU SITE

1.1 Structure géologique

La tranchée T22 est localisée sur une terrasse alluviale, au-dessus de la plaine d'inondation, en rive droite de la rivière Pripyat. La surface de la zone d'étude est relativement plane, à une altitude de 111.5-115 m a.s.l. (*above sea level*) (Bugai et Dewière, 2004a; Matoshko et al., 2004). Elle se situe dans une couverture sédimentaire de 130 à 190 m d'épaisseur, constituée de dépôts marins et continentaux qui reposent sur le substratum cristallin à 20-80 m a.s.l. (Matoshko et al., 2004).

La zone non saturée (ZNS) et la première partie de l'aquifère superficiel sont composées de sédiments sableux du Pléistocène-Holocène et du Pliocène (Figure 1-1). L'épaisseur totale de l'ensemble de ces dépôts est d'environ 30 m. Ils sont subdivisés en sables éoliens et sables alluviaux et reposent sur des silts carbonatés et des marnes de l'Eocène. Ces dépôts sont recouverts d'une couche « technogénique ».

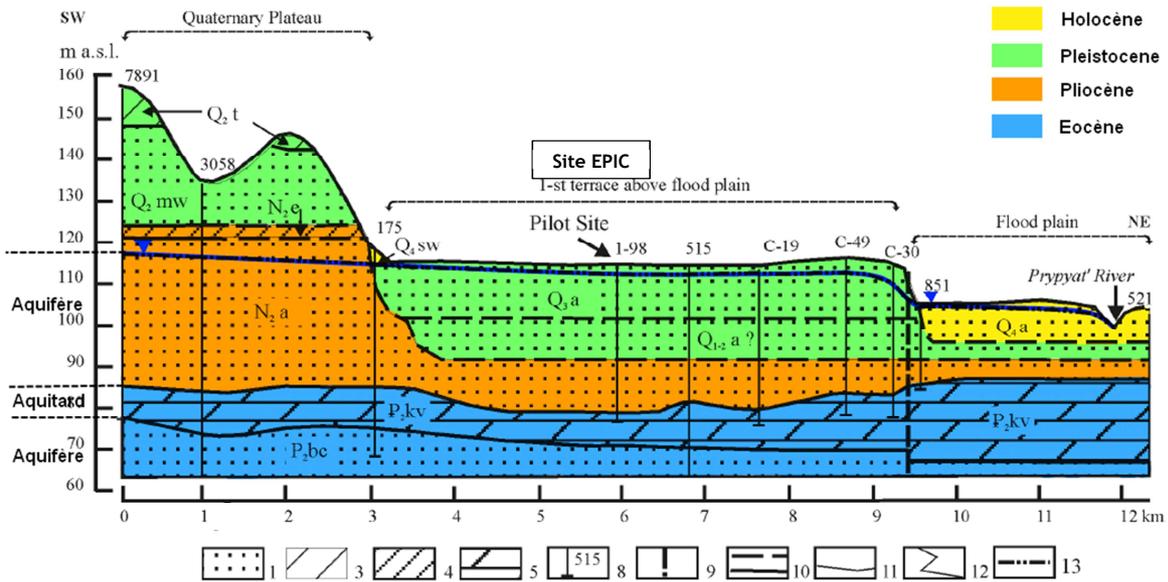


Figure 1-1 : Coupe géologique régionale du site EPIC modifiée de Bugai et Dewiere (2004)

Légende :

1- sables, 3- dépôt glaciaire, 4- argiles, 5- marnes, 8- forages numérotés, 9- déduction d'une faille, 10- limites entre les séquences : supposées (supérieures) et établies (inférieures), 11- limites entre les faciès de dépôts, 12- faciès de transition, 13- niveau de la nappe (en bleu sur la figure).

Indices : Q₄- Holocène, Q₃₋₄- Pléistocène supérieur - Holocène non stratifié, Q₃- Pléistocène supérieur, Q₂₋₁- Pléistocène inférieur - Pléistocène moyen non stratifié, N₂- Pliocène, P₂- Eocène, kv- Kiev, bc- Buchack, a- alluvial, mw- eau issue de la fonte de neige, eol- éolien, e- supposition d'une couche de déchets, sw- pente de ruissellement, ob- plaine d'inondation, ch- chenal, a-ch- chenal abandonné

1.2 Propriétés lithologiques

L'analyse d'échantillons prélevés dans des forages de 8 m de profondeur sur le site EPIC a permis la distinction de quatre types de dépôts, dont les caractéristiques principales sont les suivantes (Bugai et Dewière, 2004a; Matoshko et al., 2004) :

- Les dépôts « technogéniques » sont composés de podzols actuels, de sols remaniés lors des opérations de nettoyage de la zone, de restes de végétation ou de débris de béton et d'asphalte. Ils ont une épaisseur de 0.5 à 1.25 m et sont situés à une altitude de 113.5 à 114.5 m a.s.l..
- Les dépôts éoliens relativement homogènes sont principalement composés de sables à grain fin-moyen avec une prédominance de silts (62-64%) et d'argiles (16%) (Matoshko et al., 2004). En termes de minéralogie, ces sables sont constitués en majorité de quartz. Ils ont une épaisseur de 3.5 à 5 m et sont situés à une altitude de 110 à 113.5 m a.s.l. Ces dépôts sont similaires à ceux du site Pripjat Zaton (PZ), considéré comme site analogue à celui de Tchernobyl (Szenknect, 2003) et qui a permis une étude plus précise de ces dépôts. Deux faciès se distinguent par leur structure sédimentaire et la variation verticale de leur granulométrie : la partie supérieure des sables éoliens est constituée de silts sableux avec des sous-couches de sables, sous forme de laminations ondulées. L'observation de veines cryogéniques informe sur la présence d'un permafrost, ou tout du moins, une pénétration profonde du gel dans la couche du Pléistocène dans des conditions de température atmosphérique autour de 0 et -6°C, pouvant

indiquer des chemins préférentiels d'infiltration (Matoshko et al., 2004). Ce point n'est cependant pas traité dans ces travaux, mais peut faire l'objet de futurs travaux.

- Les **dépôts alluviaux** présentent deux faciès :
 - Les **sables alluviaux à faciès chenaux (lit de rivière)** sont caractérisés par des sables homogènes fins à moyens intercalés par des lamines de silts, avec une prédominance de silts (62-64%) et d'argiles (environ 16%), d'une épaisseur de 2 à 3 m, situés à une altitude de 107.5 à 110 m a.s.l.. Des lentilles de tourbe d'une épaisseur allant jusqu'à 0.5 m peuvent être présentes dans la partie supérieure de cette couche. Dans de nombreux cas, le faciès à chenaux constitue intégralement les sables alluviaux. Le plus souvent, il est couvert par le faciès de plaine d'inondation et bras morts avec une limite de contact nette.
 - Les **sables alluviaux du faciès de plaine d'inondation, chenaux abandonnés ou bras morts** composés d'une alternance de couches de sables et de silts, situés en-dessous de 107.5 m a.s.l.. L'épaisseur des lentilles de tourbe varie généralement entre quelques centimètres et 1 à 2 m et leur extension varie de quelques mètres à une centaine de mètres ou plus.

La minéralogie des dépôts alluviaux du bassin de Pripyat est décrite par une prédominance de quartz avec un mélange de feldspaths K-Na et de minéraux accessoires. La fraction argileuse (particules < 0.01mm) est constituée de minéraux altérés (hydromica avec un mélange de montmorillonite, calcite finement dispersée, quartz, oxydes de fer amorphes) avec une grande surface spécifique (Matoshko et al., 2004). La matière organique (MO) est présente de manière très irrégulière dans les alluvions - ce paramètre est difficile à prendre en compte dans la capacité d'adsorption des dépôts alluviaux.

La porosité des dépôts sableux de la ZNS et de l'aquifère est de l'ordre de 33 à 42 %, les sables éoliens présentant une porosité inférieure à celle des sables alluviaux. La densité apparente (*bulk density*) est de l'ordre de 1.6 à 1.72 kg/m³ (Matoshko et al., 2004). Les caractéristiques des sédiments présents sur le site expérimental sont résumées au Tableau 1-1.

Tableau 1-1 : Caractéristiques générales des sédiments du site EPIC (Bugai et Dewière, 2004a; Dzhepo et Skalskii, 2002; Matoshko et al., 2004)

Dépôts, type, faciès	Minéralogie	Densité (kg/m ³)	Porosité (%)	Teneur en argiles (<0.01 mm) (%)	Épaisseur (m)
Sables éoliens	Quartz (98-99%) Minéraux accessoires (1-2%)	1.72	34 - 36	1 - 2	3.5 - 5
Sables alluviaux, faciès chenaux	Quartz (90-94%) Feldspaths Na-K (5-9%) Minéraux accessoires (<0.5%)	1.67	37	2 - 8	2 - 3
Sables alluviaux, faciès bras morts et plaine d'inondation	Fraction argileuse : hydromicas, montmorillonite, calcite, quartz, oxydes de fer amorphes	1.73	35	10 - 20	12 - 24.5

1.3 Nappes principales

Plusieurs horizons aquifères peuvent être distingués dans la zone d'étude :

- les sables du Pliocène et du Pléistocène-Holocène (nappe libre),
- les sables de l'Eocène (nappe captive),
- les calcaires du Crétacé (nappe captive) (Dzhepo et Skalskii, 2002).

Les nappes contenues dans ces aquifères sont principalement alimentées par les précipitations. De nombreux échanges hydrauliques ont lieu dans les deux premières nappes et influencent directement les conditions hydrogéologiques dans les alentours du site EPIC. Les informations sur ces nappes viennent majoritairement des études de Bugai et Dewière (2004a).

1.3.1 Nappe libre des sables du Quaternaire

La nappe libre est contenue dans les sables éoliens et alluviaux du Pliocène et du Pléistocène-Holocène. Le niveau de la nappe se trouve entre 0 et 3-4 m de profondeur. L'écoulement régional est dirigé vers la rivière Pripyat et ses bras, ainsi qu'en direction du bassin de refroidissement et des canaux de la centrale de Tchernobyl. L'eau souterraine est aussi partiellement drainée par les ruisseaux Rodvino, Borschi et la galerie de drainage de la centrale. Le gradient hydraulique est compris entre 0.001 et 0.003 m/m (Figure 1-2). L'épaisseur de la ZNS varie entre 0 et 10 m. Des zones marécageuses apparaissent de manière saisonnière et peuvent influencer le régime hydraulique (i.e. la direction et le gradient hydraulique) au niveau du site EPIC. Le relief relativement plat et la prédominance de dépôts sableux constitutifs des premiers centimètres de sol permettent une infiltration importante des précipitations. Le niveau de la nappe varie de 0.5 à 1 m à l'intérieur de la zone de partage des eaux (i.e. le plateau glaciaire Quaternaire), de 1 à 1.5 m à l'intérieur des terrasses de la rivière, et de 1 à 2 m ou plus dans la plaine d'inondation (Bugai et Dewière, 2004a).

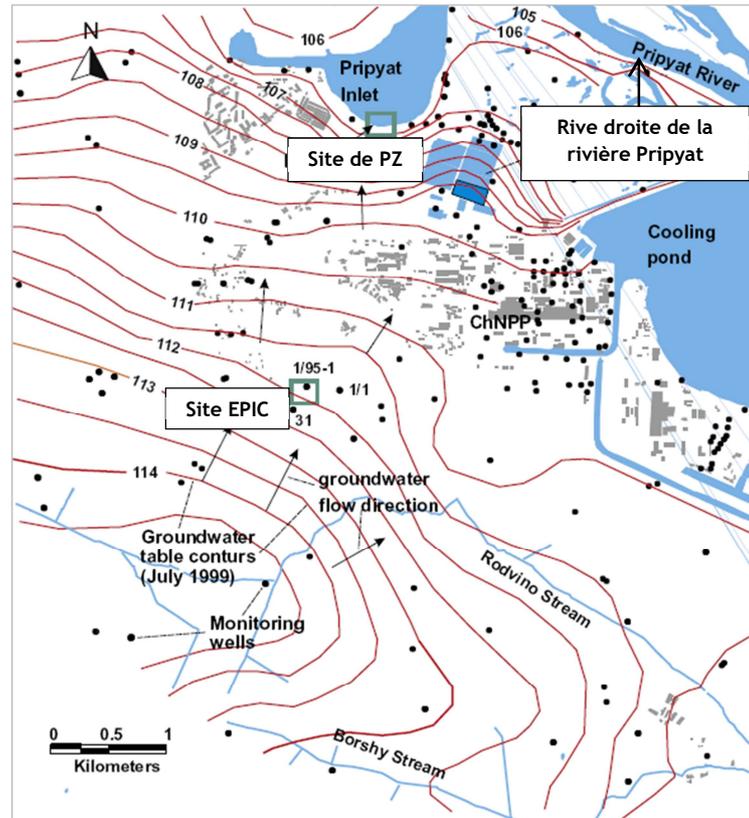


Figure 1-2 : Direction générale de l'écoulement des eaux souterraines dans la nappe libre des sables du quaternaire en juillet 1999 (Bugai et al., 2012a)

1.3.2 Nappe captive des sables de l'Eocène

Les marnes calcaires de Kiev de l'Eocène, d'une épaisseur de 15 à 20 m au niveau du site EPIC, constituent le premier aquitard régional qui sépare la nappe libre de la nappe captive des sables de l'Eocène, d'une épaisseur de 30 à 48 m. Les marnes se situent à environ 20 à 30 m de profondeur au niveau de la terrasse et de la plaine d'inondation, et à environ 40 à 90 m de profondeur en s'éloignant de la terrasse alluviale (Bugai et Dewière, 2004a).

Le niveau aquitard est absent au niveau de la rive droite de la rivière Pripjat et en-dessous de la centrale nucléaire de Tchernobyl. La nappe captive est composée des dépôts marins du Buchakskaya et Kanevskaya de l'Eocène, représentés par des sables fins avec couches de grès, de siltites et d'argiles (Bugai et Dewière, 2004a).

La recharge de la nappe de l'Eocène s'effectue par drainage depuis la nappe libre en fonction de la présence ou l'absence de l'aquitard marneux (Bugai et Dewière, 2004a).

2 PROCESSUS DE TRANSFERT DES RADIONUCLÉIDES DANS LA ZONE NON SATURÉE ET LA ZONE SATURÉE

2.1 Radionucléides prépondérants et leurs propriétés

Les principaux radionucléides contributeurs à l'activité relâchés lors de l'explosion de la centrale étaient le xénon-133, le tellure-132, l'iode-133 et 131 et le neptunium-239 (Smith et Beresford, 2005). Trente ans après, la majeure partie de la radioactivité émanant du combustible nucléaire réside dans les produits de

fission que sont le césium-137 (^{137}Cs) et le strontium-90 (^{90}Sr) (Shestopalov et Gudzenko, 2002), l'américium-241 et les isotopes du plutonium (Figure 1-3).

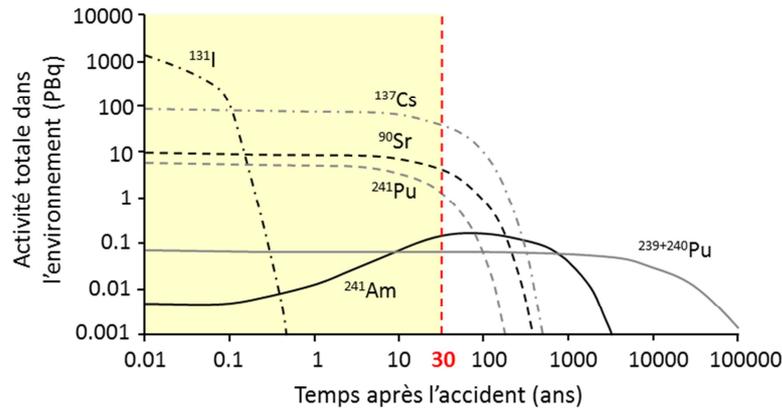


Figure 1-3 : Radionucléides prépondérants dans l'environnement après l'accident (adapté de Smith et Beresford, 2005)

Le ^{90}Sr est un émetteur beta de période égale à 29,14 ans. Dans la solution des sols, il se trouve essentiellement sous sa forme ionique Sr^{2+} . Il peut se substituer au calcium Ca^{2+} dans les minéraux et les carbonates (et dans une moindre mesure au potassium K^+ dans les argiles, lorsque la silice est substituée par l'aluminium (Cole et al., 2000; IRSN, 2005a). C'est un élément considéré comme mobile et sa mobilité dépend grandement de la concentration en Ca^{2+} mais aussi en strontium stable $^{85}\text{Sr}^{2+}$ (Szenknect, 2003). Sa sorption étant réversible, si les conditions hydrogéochimiques du milieu sont stables, la migration du ^{90}Sr peut être modélisée via l'équation de transport advectif-dispersif où les interactions chimiques sont représentées par un coefficient de retard qui est décrit par le Kd, un coefficient qui définit la distribution d'un élément entre sa fraction sorbée et celle en solution (Szenknect et al., 2005).

Le ^{137}Cs est aussi un émetteur beta dont la demi-vie est de 30 ans. Il est considéré comme un émetteur gamma car il donne naissance au baryum ^{137}Ba de période très courte (de l'ordre de la minute) qui émet une émission gamma dont l'énergie caractéristique est de 661,7 keV (IRSN, 2005b). Le césium est un élément très peu mobile, sa rétention s'effectue majoritairement par échange d'ions entre sa forme majoritaire, le Cs^+ , de la solution des sols et les cations K^+ essentiellement, et dans une moindre mesure Na^+ , Ca^{2+} et Mg^{2+} sorbés sur des minéraux argileux comme l'illite ou la kaolinite (IRSN, 2005b). Le transport du césium est plutôt modélisé par une approche à deux Kd (coefficient de distribution, sorption et désorption) (IRSN, 2005b), toutefois son transfert par l'eau dans la biosphère n'apparaît pas comme le vecteur principal de son déplacement, son facteur de retard étant supérieur à 6600 (Szenknect, 2003). Sa migration dans l'aquifère alluvial superficiel n'est donc pas étudiée ici.

Dans la suite, nous nous focalisons en particulier sur la quantification du stock en ^{137}Cs et le transfert du ^{90}Sr . Parmi les produits de fission de l'uranium 235, ils figurent parmi les radionucléides présentant les risques sanitaires les plus importants, du fait de leur temps de demi-vie relativement long et leur propriété de substitution avec le potassium et le calcium, notamment dans les organismes vivants. Ils peuvent donc transiter très facilement dans la chaîne alimentaire et être reconcentrés.

Pour les études relatives au transfert des isotopes du plutonium, se référer à Levchuk et al. (2009, 2007).

2.2 Particules de combustible

La tranchée T22 contient des sols contaminés de la forêt rousse mélangés à des débris organiques, des troncs d'arbres de la forêt rousse (Smith et Beresford, 2005). La pollution radioactive est principalement due aux particules de combustibles (PC) relâchées lors de l'explosion de la centrale nucléaire et qui se sont déposés sur le sol autour de la centrale dans un rayon de plus de 30 km. Ce sont des oxydes d'uranium de 4 à 6 μm sous forme de grains, de cristaux ou encore de conglomerats. Les ratios d'activité des produits de fission réfractaires et des éléments transuraniens (^{95}Zr , ^{99}Mo , $^{89,90}\text{Sr}$, $^{103,106}\text{Ru}$, $^{141,144}\text{Ce}$, $^{154,155}\text{Eu}$, $^{238,241}\text{Pu}$,

²⁴¹Am, etc.) contenus dans les PC correspondent à ceux du combustible nucléaire du réacteur n°4 de la centrale de Tchernobyl au moment de l'accident (Kashparov et al., 2012).

La contamination de la zone est survenue à différentes étapes : explosion, puis incendie. La nature physico-chimique des particules déposées varie donc, avec pour conséquence, des vitesses de dissolution et de dégradation différentes (Ahamdach et Stammose, 2000). Trois types de PC peuvent être distingués (Figure 1-4) (Kashparov et al., 2012) :

- PC oxydées dans une matrice de UO_{2+x} , instable chimiquement. Ces particules se sont formées après l'oxydation du combustible nucléaire entre le 26 avril et le 5 mai 1986.
- PC non oxydées dans matrice de UO_2 , stable chimiquement, formées lors de la première explosion et dues à la destruction mécanique du combustible nucléaire.
- PC extra-stables chimiquement dans une matrice de ZrU_yO_x , formées à haute température à partir de UO_2 et en présence de matériaux du réacteur composé de Zr.

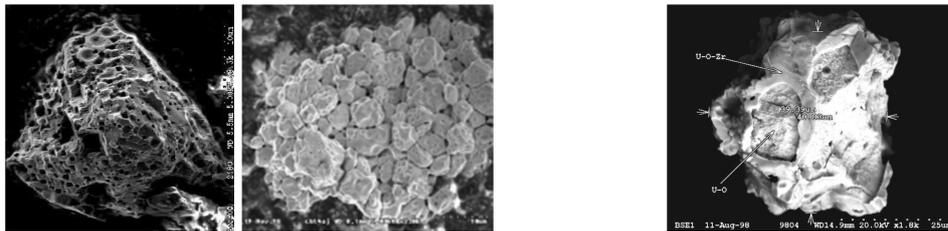


Figure 1-4 : Particules de combustibles observées au microscope électronique à balayage sous forme d'oxydes d'uranium UO_2 et UO_{2+x} (gauche) et d'oxydes d'uranium et de zirconium : ZrU_yO_x (droite) (Ahamdach et Stammose, 2000)

Les études physico-chimiques des PC ont montré que 52 % de l'activité en ¹³⁷Cs y était associée (Kashparov et al., 2004). La fraction de la forme mobile du ⁹⁰Sr au début des retombées atmosphériques était initialement très faible et peut être estimée à 2 ± 1 % (Kashparov et al., 2012). La fraction de ⁹⁰Sr associée aux PC dans les déchets de la tranchée a été déterminée par une méthode d'extractions séquentielles (Kashparov et al., 2004; V. A. Kashparov et al., 2000). Les résultats indiquent qu'en 2001-2002, 64 ± 13 % de l'activité initiale en ⁹⁰Sr était associée aux différents types de PC, principalement sous forme de UO_2 peu mobile (Kashparov et al., 2012) (Tableau 1-2). La fraction restante n'est pas associée aux particules de combustible et est potentiellement sous forme mobile. La partie ayant pu migrer dans les eaux souterraines entre les années 1987 et 2000 a été estimée à 7 ± 5 % de l'activité initiale (Dewière et al., 2004; Kashparov et al., 2012).

Tableau 1-2 : Fractions initiales de ⁹⁰Sr associées aux particules chaudes dans la tranchée T22 (Kashparov et al., 2012)

Paramètre	Valeur
Fraction initiale de ⁹⁰ Sr sous forme d'ion échangeable (%)	2 ± 1
Fraction initiale de ⁹⁰ Sr sous forme de UO_{2+x} (%)	21 ± 15
Fraction initiale de ⁹⁰ Sr sous forme de UO_2 (%)	57 ± 15
Fraction initiale de ⁹⁰ Sr sous forme de ZrU_yO_x (%)	19 ± 10

Les observations post-accidentelles ont montré que ces PC sont sujettes à une dissolution progressive en conditions naturelles. La vitesse de dissolution dépend des caractéristiques physico-chimiques des PC (comme le ratio de la teneur en UO_2/U_3O_8 et la présence de mélanges), du pH de la solution interstitielle et de la présence d'oxygène (Kashparov et al., 2012). A un pH neutre, la vitesse de dissolution est relativement faible tandis qu'elle augmente à des pH plus alcalins ou acides (Figure 1-5).

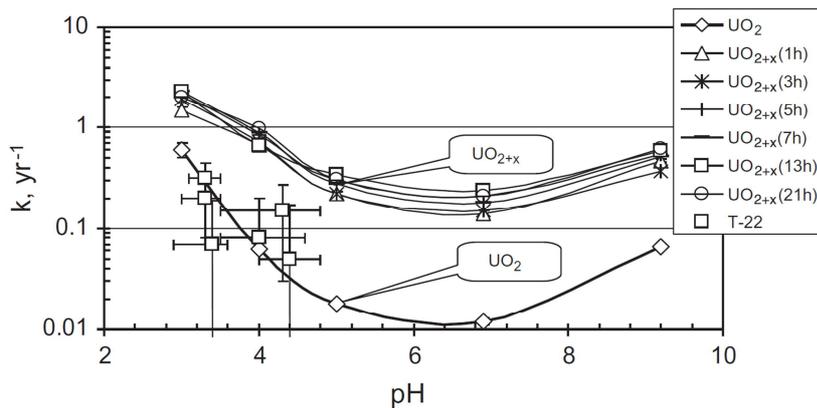


Figure 1-5 : Cinétique de dissolution des différentes formes de particules de combustible (Kashparov et al., 2012)

2.3 Principaux processus géochimiques et migration biogénique

Afin de mieux comprendre les processus de migration des RN, il est nécessaire de caractériser la géochimie du milieu dont les principaux processus géochimiques sont résumés à la Figure 1-6. Bugai et al. (2012a) distinguent deux zones dans l'aquifère :

- une zone influencée par la tranchée, caractérisée par de fortes concentrations en Ca^{2+} , Mg^{2+} , SO_4^{2-} , NO_3^- et un pH plus faible, résultant de la dégradation de la matière organique enfouie dans la tranchée ;
- une zone représentative du fond géochimique naturel dont la composition est liée à l'évapotranspiration et aux précipitations atmosphériques.

L'analyse des tendances à long terme des chroniques des concentrations des éléments majeurs indique que l'impact géochimique de la tranchée est plus prononcé en 1998-1999 qu'en 2004-2005. Ces observations peuvent en partie s'expliquer par la décomposition de la matière organique dans la tranchée : l'oxydation de la matière organique entraîne l'acidification des eaux porales qui elle-même entraîne un lessivage plus important des cations adsorbés dans le sol et donc une diminution de la sorption du ^{90}Sr dû à l'effet de compétition entre les ions Ca^{2+} et Sr^{2+} (Bugai et al., 2012a). La baisse progressive de la concentration en ions majeurs observée à partir des années 1998-1999, et plus particulièrement du Ca^{2+} et du strontium stable, ainsi que l'augmentation du pH dans le panache de pollution émergeant de la tranchée conduisent à l'augmentation des valeurs de K_d du ^{90}Sr dans la tranchée et dans l'aquifère et à l'atténuation de la concentration en RN dans les eaux souterraines et au retard des processus de migration en sub-surface. Ceci peut être expliqué par une diminution progressive du stock de la tranchée, l'humification de la matière organique et le pompage racinaire des pins implantés sur le site (Bugai et al., 2012b; Martin-Garin et al., 2012; Roux, 2013).

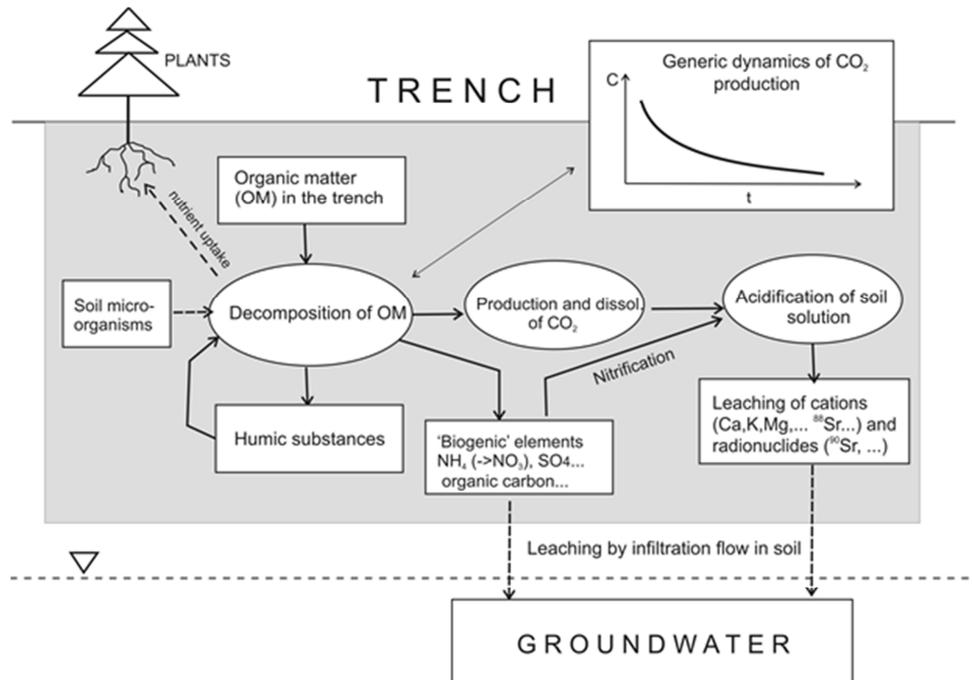


Figure 1-6 : Processus géochimiques dans la tranchée T22 (Martin-Garin et al., 2012)

De larges rangées de pins ont été plantées en 1988-1989, entre lesquelles des bouleaux et des arbustes ont été introduits (Thiry et al., 2009). La croissance des pins et donc l'augmentation de leurs apports nutritifs font que pour la période 1998-2008, le flux de ⁹⁰Sr vers la végétation au-dessus de la tranchée T22 est au moins égal au flux des RN vers les eaux souterraines (Bugai et al., 2012b; Thiry et al., 2009).

3 TRAVAUX DE RECONNAISSANCE DE LA TRANCHEE T22

3.1 Méthodes de reconnaissance

3.1.1 Géoradar

Le géoradar est un outil géophysique non destructif permettant de caractériser le sous-sol (texture, composition, teneur en eau) et de détecter, localiser voire identifier des objets enfouis en milieu peu conducteur. Il utilise les propriétés de réflexion des ondes électromagnétiques dont les fréquences sont de l'ordre du MHz au GHz (Sagnard et Rejiba, 2010).

Une campagne de mesures a été menée en 2002 sur le site EPIC et sur le site analogue PZ afin d'identifier les limites des couches géologiques, en particulier la limite entre les sables éoliens et les sables alluviaux, de caractériser la géométrie de sub-surface de la tranchée et de vérifier la présence de veines cryogéniques (et donc la présence de chemins préférentiels) mises en évidence sur le site de PZ (Matoshko, 2002).

Sur le site EPIC, des antennes avec impulsions de fréquences électromagnétiques de 300 à 500 Hz, correspondant à une profondeur d'investigation de 1 à 20 m et avec une résolution de 2 à 3 cm, ont été appliquées. La longueur totale de la campagne de mesures est de 1800 m (Matoshko, 2002). Au total, 11 profils orientés N-S (X1 à X11) et un profil E-W (X11-1) ont été entrepris en 2002 (Figure 1-7).

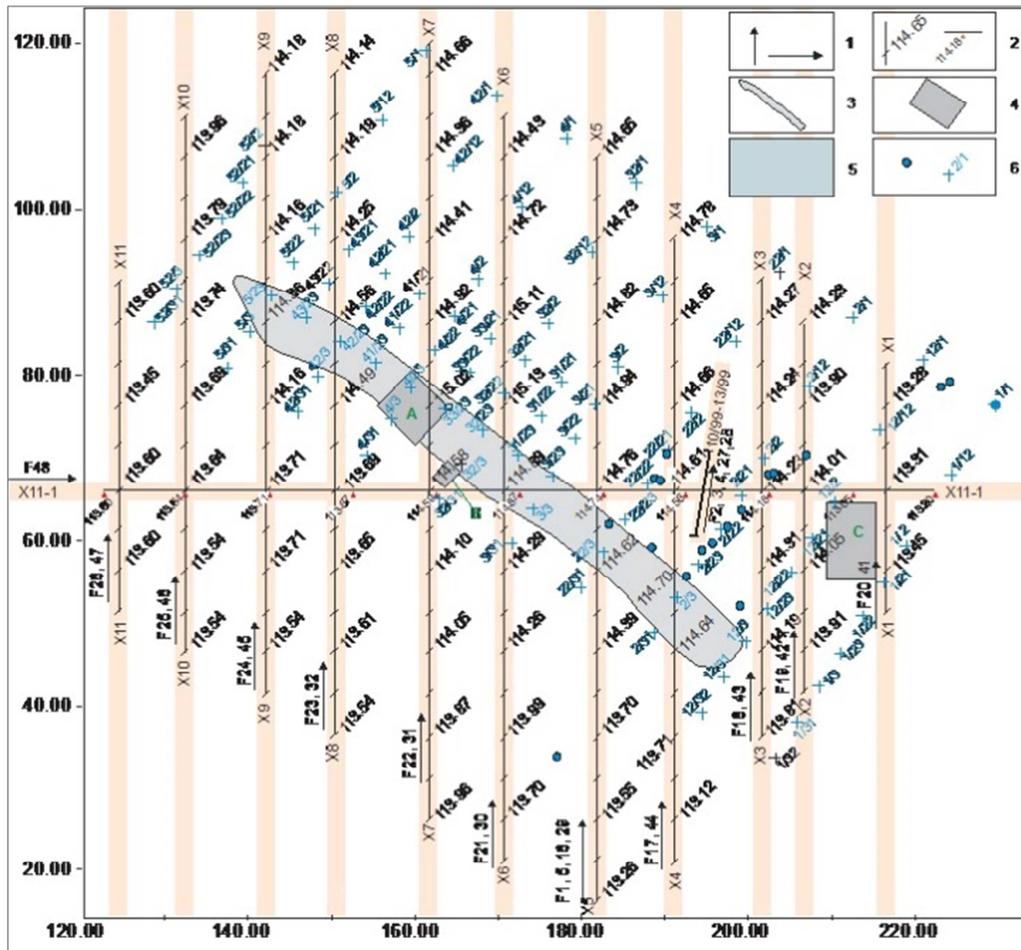


Figure 1-7 : Localisation des profils géoradar et positionnement des points de lever de topographie sur le site EPIC (Matoshko, 2002)

3.1.2 Mesures radiométriques

La spectrométrie gamma est une méthode de mesure nucléaire non destructive utilisée pour identifier et quantifier des éléments radioactifs en mesurant l'énergie et le nombre de rayons gamma émis à la source (Panza, 2012).

Des mesures de spectrométrie gamma ont été réalisées à l'aplomb de la tranchée, jusqu'à 20 cm de profondeur et sur une vingtaine d'échantillons de sol (Bugai et al., 2005).

Pour déterminer la répartition spatiale de la radioactivité dans la tranchée, un compteur beta gamma a été utilisé. 138 forages de 6 cm de diamètre et de profondeur comprise entre 2 et 2,5 m, répartis en 16 sections ont été réalisés en 1999 par l'Ukrainian Institute of Agricultural Radiology (UIAR) (Bugai et al., 2005; Bugai et Dewièrè, 2003; Kashparov et al., 2004). La distance entre sections est de 5 m, et celle entre les forages d'une section est de 1 m (Figure 1-8). Dans chaque forage, l'émission de photon a été mesurée tous les 10 cm grâce à un radiamètre de terrain permettant de mesurer les rayons β et γ , et les rayons γ seuls après collimatage (absorption des rayons β). Une corrélation entre nombre de coups et activités en ^{137}Cs et ^{90}Sr mesurées sur une vingtaine d'échantillons de sol par spectrométrie gamma a été utilisée pour convertir ces comptages en profils d'activité de ces deux RN (Kashparov et al., 2004). Nous reviendrons sur ce point au Chapitre 2. Afin d'affiner le maillage, 63 sondages supplémentaires ont été ajoutés en 2002 et 14 sondages en 2003 entre les sections de 1999.

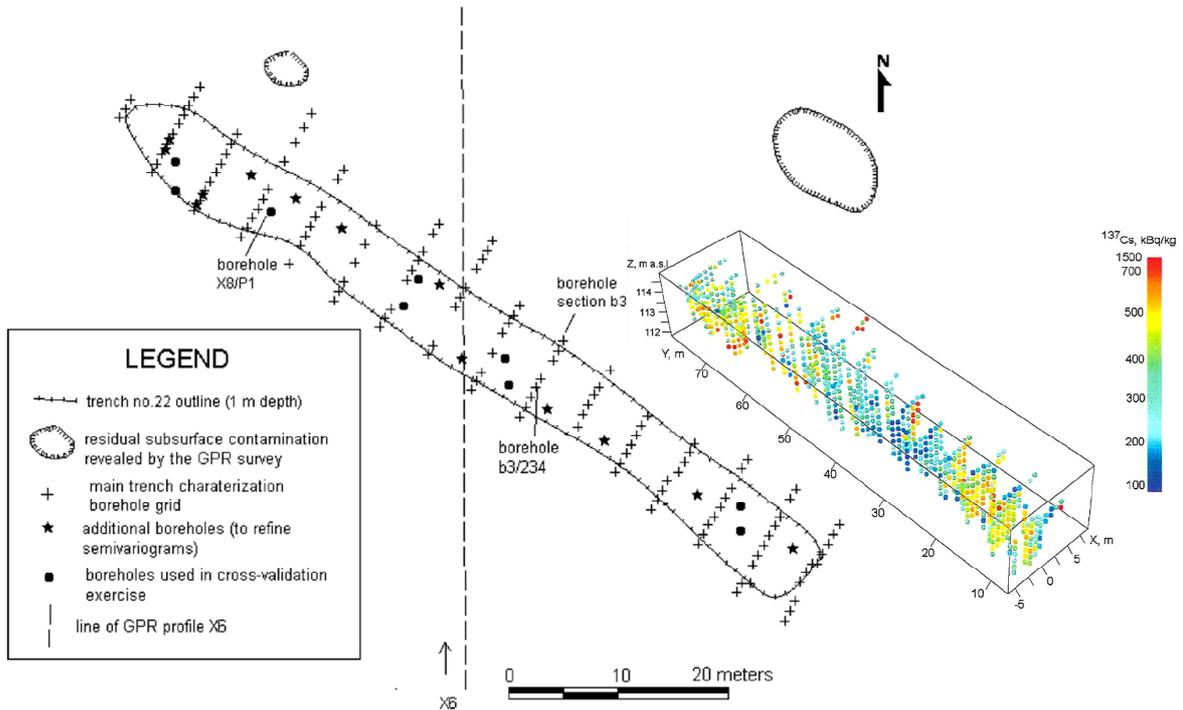


Figure 1-8 : Répartition de l'ensemble des forages réalisés pour la spectrométrie gamma in situ le gamma-logging en 1999, 2002 et 2003 (Bugai et al., 2005; Bugai et Dewière, 2003)

En septembre 2015, une nouvelle campagne de mesures, à laquelle j'ai participé, a été entreprise dans la zone d'exclusion de Tchernobyl. Cette mission a été organisée dans le cadre d'un accord de collaboration entre plusieurs instituts ukrainiens (National University of Life and Environmental Sciences of **Ukraine** (NUBIP)/UIAR, IGS, Ecomonitor LLC, SSE CSK, CRWME) et l'Institut de radioprotection et de sûreté nucléaire (IRSN). Une méthodologie de caractérisation de tranchées de déchets de faible profondeur a été mise en œuvre. Dans ce cadre, selon le plan d'échantillonnage initial (Figure 1-9), 15 sondages (numérotés 1 à 15) ont été forés à la tarière jusqu'à 4 m de profondeur pour atteindre le fond de la tranchée. Ces données serviront à l'actualisation du stock de ^{137}Cs de la tranchée en 2015 abordé au Chapitre 3.

Dans chaque sondage, le nombre de coups a été mesuré avec une sonde $\beta + \gamma$ tous les 0.25 m et 4 échantillons de sols ont été prélevés pour des analyses en ^{137}Cs effectuées par l'institut CRWME (Ukraine). Les sondages ont été localisés par un GPS (Stonex S7-S) dont l'erreur ne dépassait pas 0.8 m. Des échantillons ont été prélevés dans 9 sondages supplémentaires d'une profondeur de 2 m forés à une distance plus petite. Deux échantillons ont été prélevés par sondage aux mêmes cotes et une sonde $\beta + \gamma$ a été descendue dans chaque sondage.

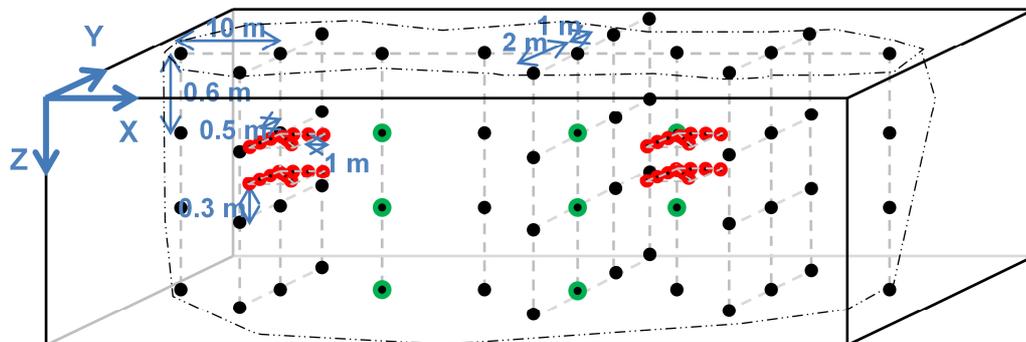


Figure 1-9 : Plan d'échantillonnage des sols en 2015

3.1.3 Prélèvements des eaux souterraines

Le régime hydraulique de la nappe alluviale et le panache de ^{90}Sr sont suivis à travers un réseau de plus de 100 piézomètres construits entre 1994 et 2006. Ces piézomètres en PVC de 5 à 6 m de profondeur sont pour la plupart crépinés dans les sables éoliens ou dans la zone de transition avec les sables alluviaux. La distribution spatiale des radionucléides dans les eaux souterraines selon deux profils (AB et CD) a été étudiée à travers des regroupements de piézomètres dont les crépines se trouvent à différentes profondeurs et sont séparées par des bouchons de bentonite (Kashparov et al., 2012) (Figure 1-10).

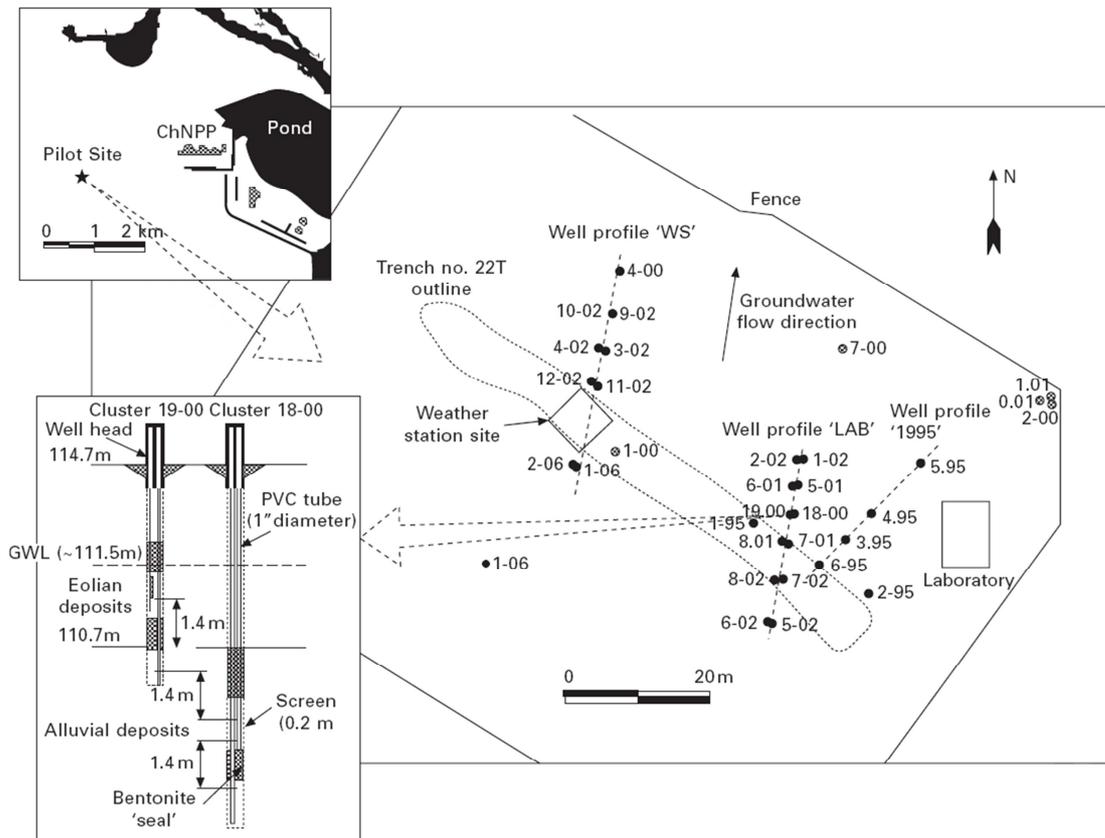


Figure 1-10 : Localisation des piézomètres et éléments de construction des groupements de piézomètres 18-00 et 19-00 (Kashparov et al., 2012)
Le profil « WS » correspond au profil CD et le profil « LAB » correspond au profil AB.

3.2 Résultats antérieurs

3.2.1 Géométrie 3D de la tranchée

Les résultats de la campagne de géoradar de 2002 ont fourni des images dont l'une est présentée à la Figure 1-11. Les profils géoradar ont été ajustés verticalement et horizontalement, puis comparés aux sections géologiques du site de PZ et aux logs des forages du site EPIC. Différentes couches ont pu être distinguées sur ces profils selon leur couleur et la présence de contrastes et d'anomalies (Matoshko, 2002).

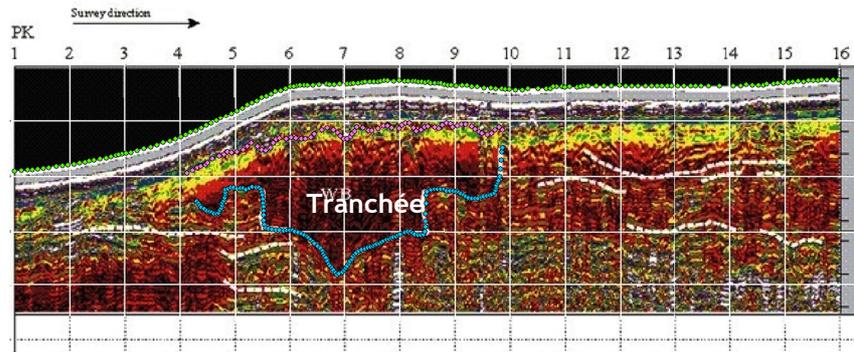


Figure 1-11 : Exemple de profil géoradar X4 (Matoshko, 2002). L'échelle horizontale et verticale est la même.

La profondeur des différentes couches ne correspond cependant pas à celle des couches géologiques du site. La tranchée apparaît comme un faciès remanié dont les ondes réfléchies présentent une structure bruitée que (Bugai et al., 2005) expliquent par le milieu perturbé de la tranchée. Les limites de la tranchée ont ainsi été déterminées à partir des images géoradar (Figure 1-8). La tranchée semble plus large que ce qui avait été estimé précédemment avec la campagne de mesures radiométriques en 1999. Ces zones d'élargissement de la tranchée correspondent à des profondeurs moins importantes et peuvent contenir des déchets moins contaminés qui peut-être n'ont pas pu être caractérisés avec le compteur gamma descendu dans les forages en 1999. Les zones où la tranchée paraît plus profonde correspondent aux contours discernés avec la méthode de gamma-logging (Bugai et al., 2005).

Selon Bugai et Dewière (2003), les limites de la tranchée peuvent être observées au niveau des zones de transition entre zone contaminée et sol non contaminé où les profils d'activité varient de manière exponentielle. Les limites de la tranchée ont été définies à partir des mesures radiométriques effectuées en 1999-2000 par l'institut ukrainien UIAR, en fixant un seuil de 20 kBq/kg pour différencier les points à l'intérieur et en dehors de la tranchée. Les coordonnées des points du sommet et de la base de la tranchée ont été déduites de ce seuil, puis leur surface a ensuite été interpolée en 2D (Figure 1-12) (Bugai et al., 2001). Ces contours définissent ainsi une tranchée d'environ 70 m de long, de 6-8 m de large et de 2-2.5 m de profondeur (Bugai et al., 2005).

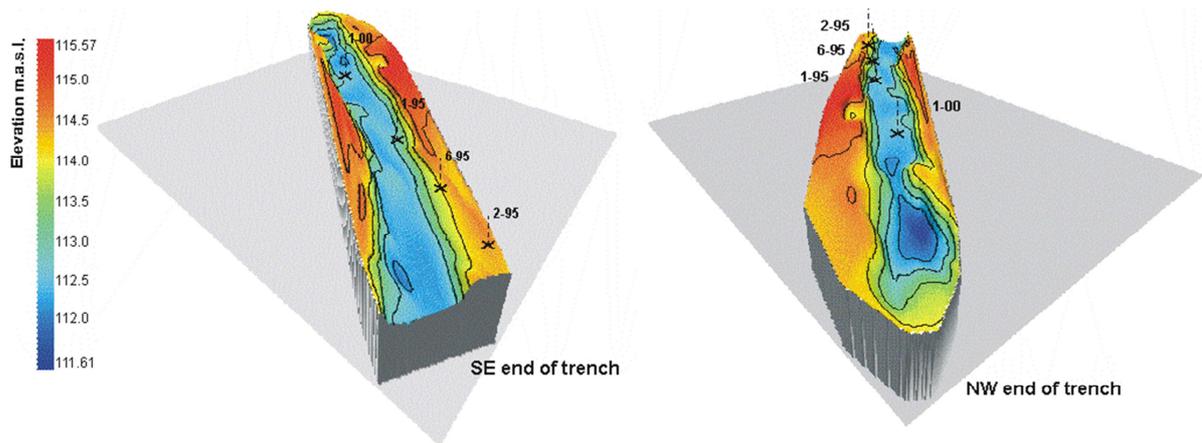


Figure 1-12 : Limites de la tranchée déterminées à partir de l'analyse géostatistique des mesures radiométriques *in situ* (Bugai et al., 2000)

Néanmoins, la définition de ces limites ne prend pas en compte l'incertitude d'estimation, dont la zone d'incertitude peut être déterminée conventionnellement par l'intervalle $[a; b]$ avec $a = Z^* - 2\sigma_K$ et $b = Z^* + 2\sigma_K$, Z^* étant l'altitude estimée à laquelle est située la limite de la tranchée et σ_K l'écart-type d'estimation dans le cas où l'erreur d'estimation est gaussienne et non corrélée à l'estimation :

- Si $Z^*(x) < a$, les points sont en dehors de la tranchée,

- Si $Z^*(x) > b$, les points sont dans la tranchée, et
- Si $Z^*(x)$ est compris dans l'intervalle $[a; b]$, la limite ne peut pas être définie précisément.

Les limites seront donc revues par la suite.

Les données de la campagne de géoradar ne fournissent qu'une détermination grossière des limites. Ces données, bien que moins précises, balayent l'ensemble du site EPIC contrairement aux mesures radiométriques en forage. Ces deux types de mesures seront exploités conjointement pour améliorer la délimitation de la tranchée et les incertitudes associées (cf. Chapitre 3).

3.2.2 Détermination du stock de césium-137 et de strontium-90

Bugai et Dewière (2003) ont effectué une étude géostatistique pour cartographier la variabilité spatiale du stock sur une grille 3D dont la maille a été dimensionnée selon la variabilité des données et le volume élémentaire de sol correspondant à un point de mesure de la radioactivité. Les résultats sont présentés à la Figure 1-13.

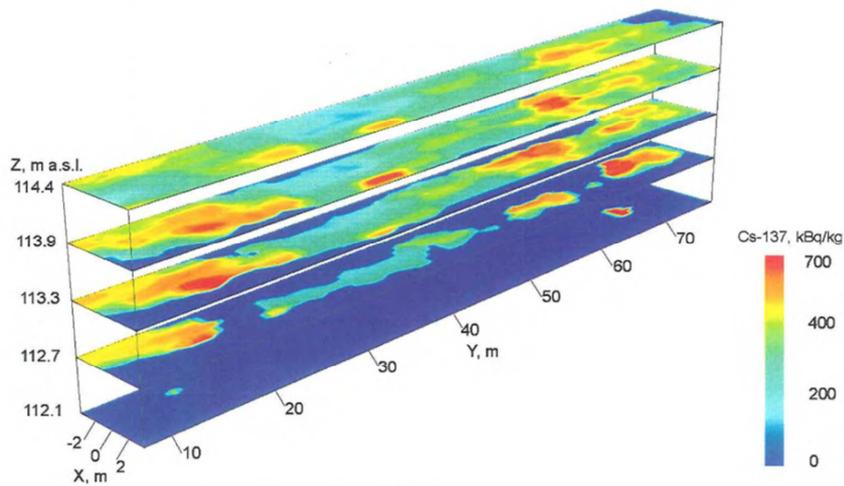


Figure 1-13 : Distribution de la radioactivité dans la tranchée T22 (Bugai et Dewière, 2003)

Le stock de ^{137}Cs en 2000 a été estimé en intégrant spatialement les valeurs d'activité en ^{137}Cs déduites des mesures radiométriques dans la tranchée (Equation 1-1), et non à partir de l'analyse géostatistique de Bugai et Dewière (2003) (Dewière, 2001; Kashparov et al., 2012, 2004; V. Kashparov et al., 2000) :

$$A_{\text{Cs}} = 600 \pm 240 \text{ GBq} \quad \text{Equation 1-1}$$

L'incertitude associée à l'estimation du stock de césium est ainsi de 80%. Le stock total des autres RN dans la tranchée a ensuite été estimé en utilisant le ratio empirique de l'activité de déchets radioactifs dans la tranchée et des particules de combustible. Du fait de la redistribution du ^{90}Sr dans la tranchée et de sa migration dans les eaux souterraines, la corrélation entre activités spécifique en ^{90}Sr et ^{137}Cs dans les déchets radioactifs est assez faible. Afin de déterminer l'activité en ^{90}Sr lors de la construction de ce stockage en 1987, le stock de ^{154}Eu dans la tranchée a d'abord été estimé en utilisant le ratio expérimental de ^{137}Cs et ^{154}Eu calculé dans les déchets radioactifs du site EPIC $R_{\text{Cs-Eu}}^{\text{TR}}$ valant 145 en 2000.

$$A_{\text{Eu}} = \frac{A_{\text{Cs}}}{R_{\text{Cs-Eu}}^{\text{TR}}} = 4 \pm 1.6 \text{ GBq} \quad \text{Equation 1-2}$$

L'incertitude relative est la même que celle du stock en ^{137}Cs . Le ^{154}Eu est un RN peu mobile qui a initialement été associé à la matrice combustible. Une bonne corrélation existe donc entre les activités en ^{90}Sr et ^{154}Eu dans les particules de combustibles, qui permet l'estimation de l'activité initiale en ^{90}Sr dans la tranchée (i.e. pendant la période de sa création en 1987, où le RN était présent sous forme de particules de combustible non dégradé) : le rapport entre les activités en ^{90}Sr et ^{154}Eu dans les particules de combustibles $R_{\text{Sr-Eu}}^{\text{FP}}$ est de 72.

Les ratios Sr-Eu des particules combustible et de la tranchée ont permis d'évaluer l'activité du ^{90}Sr qui a migré de la tranchée :

$$A_{\text{Sr}} = R_{\text{Sr-Eu}}^{\text{FP}} \times A_{\text{Eu}} = 290 \pm 140 \text{ GBq} \quad \text{Equation 1-3}$$

En pratique, le rapport entre les activités en ^{90}Sr et ^{154}Eu dans la tranchée $R_{\text{Sr-Eu}}^{\text{TR}}$ est de 67 en 2000. La fraction de ^{90}Sr ayant migré de la tranchée entre 1987 à 2000 s'exprime donc ainsi :

$$\Delta \text{Sr} = \frac{R_{\text{Sr-Eu}}^{\text{FP}} - R_{\text{Sr-Eu}}^{\text{TR}}}{R_{\text{Sr-Eu}}^{\text{FP}}} 100\% = 7 \pm 5\% \quad \text{Equation 1-4}$$

Cette estimation est en accord avec la fraction lessivée de ^{90}Sr déterminée dans le panache en aval de la tranchée par Matoshko et al. (2004) (Bugai et Dewière, 2004b) à partir des activités observées dans la nappe. Le stock de ^{137}Cs est ré-estimé au Chapitre 3 afin de l'évaluer plus précisément et de déterminer les incertitudes qui lui sont associées.

3.2.3 Distribution du Sr90 dans la zone non saturée et dans l'aquifère

La migration du ^{90}Sr depuis la tranchée a été mise en évidence dans le sens d'écoulement des eaux souterraines. Le panache de ^{90}Sr dans l'aquifère présente des concentrations de 1000-2000 Bq/L et s'étend à environ 10 m en aval de la tranchée (Dewière et al., 2004; Van Meir et al., 2009). Les concentrations diffèrent spatialement d'un profil à l'autre et la chronique des concentrations sur certains piézomètres peut varier d'un voire deux ordres de grandeurs dans le temps. La variabilité spatiale de la concentration en ^{90}Sr peut être expliquée par la grande hétérogénéité spatiale de la distribution de l'activité dans la tranchée T22 (Bugai et Dewière, 2003). La variabilité temporelle peut quant à elle être expliquée par la variation des conditions géochimiques au cours du temps induite par la variation du niveau de la nappe qui envoie périodiquement la base de la tranchée (Van Meir et al., 2007). Ces mécanismes seront étudiés au dernier chapitre.

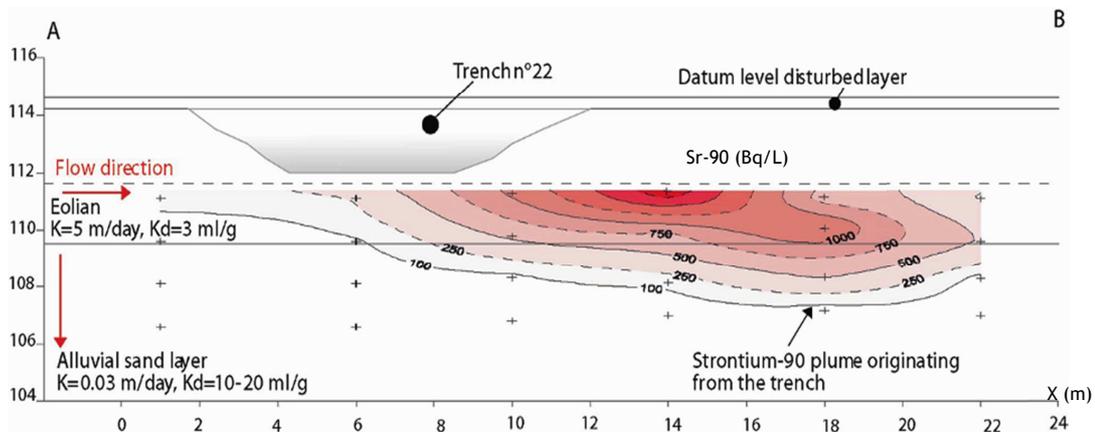


Figure 1-14 : Migration du ^{90}Sr depuis la tranchée T22 dans la nappe superficielle (Van Meir et al., 2009)

4 SYNTHÈSE

La tranchée T22 du site EPIC est composée de sols contaminés mélangés à des débris organiques et des troncs d'arbres. La principale source de radioactivité dans ces déchets lors de leur enfouissement en 1987 correspond aux particules de combustibles, relâchées lors de l'explosion de la centrale nucléaire. La localisation de cette tranchée dans la formation perméable des sables éoliens de l'Eocène a eu pour conséquence la migration des radionucléides causée par l'infiltration de l'eau dans la tranchée et le battement de la nappe sous-jacente, entraînant la dissolution de ces particules de combustible.

Afin de quantifier et de prévoir la migration des radionucléides dans la nappe superficielle, de nombreuses études ont été menées. La dissolution du terme source que constituent les particules de combustible a pu

être quantifiée. Des fractions relativement importantes de ^{137}Cs et ^{90}Sr y étaient encore associées (plus de 50%) à la fin des années 1990. A partir de mesures géoradar, radiométriques, et d'analyses d'eaux souterraines, les limites de la tranchée, le stock en ^{137}Cs en 2000 et en ^{90}Sr en 1987 et la part de ^{90}Sr transférée dans la nappe ont pu être évalués et quantifiés. Cependant, ces résultats quantifient d'une part grossièrement les incertitudes associées au stock ou aux limites de la tranchée, et d'autre part, ils ne prennent pas en compte les incertitudes liées à la mesure et à la corrélation qui a permis le passage d'un nombre de coup à une activité en ^{137}Cs . Ce dernier point sera examiné en détail au chapitre suivant.

CHAPITRE 2

Analyse de la corrélation entre comptage gamma et activité : incidence sur le stock et les incertitudes liées à la variabilité spatiale

Pour caractériser le stock en ^{137}Cs de la tranchée T22, une campagne de mesures radiométriques a été menée en 1999-2003. Une sonde gamma mesurant le taux de comptage gamma a été utilisée. Pour remonter à l'activité, une relation linéaire a été établie entre nombre de coups mesuré sur le terrain avec une sonde $\beta + \gamma$ et activité massique spécifique du ^{137}Cs mesurée sur des échantillons prélevés à sur plusieurs points de la tranchée (Kashparov et al., 2004) :

$$N = 400 \pm 170 \times A^{137}\text{Cs}$$

Avec N le taux de comptage γ

$A^{137}\text{Cs}$ l'activité spécifique en ^{137}Cs

Le taux de comptage a été mesuré avec une sonde $\beta + \gamma$ collimatée qui ne prenait en compte que les émetteurs γ . Les incertitudes associées correspondaient aux incertitudes sur la mesure par spectrométrie et à la variation du ratio comptage sur activité spécifique obtenu lors de la calibration de la sonde (Guillou et al., 2000). Cette relation ne semblait pas linéaire mais plutôt logarithmique (Figure 2-1).

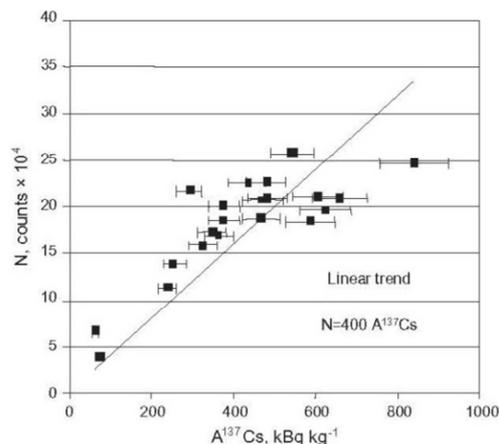


Figure 2-1 : Corrélation entre nombre de coup et activité en ^{137}Cs (Kashparov et al., 2004)

Les fortes incertitudes sur cette corrélation induisent de fortes incertitudes sur le stock de ^{137}Cs .

Cette corrélation est donc revue dans la suite de ce chapitre à travers un exercice théorique dans un premier temps. Il vise à reproduire un bloc 3D d'activité en ^{137}Cs simulé par simulations géostatistiques. On y simule un forage, en éliminant une colonne de mailles, dans lequel une sonde gamma mesure un comptage gamma à l'aide d'une expression théorique. Un « échantillon » est prélevé au centre de ce forage. La reproduction d'un certain nombre de simulations permet d'établir une corrélation entre activité

de l'échantillon et comptage gamma mesuré dans le forage. Elle est étudiée est faisant varier certains paramètres liés à la structure spatiale de l'activité ou à l'environnement du bloc 3D.

Dans un deuxième temps, cette corrélation est appliquée sur les données du site EPIC que nous avons acquises en septembre 2015.

La suite de ce chapitre est présenté en anglais et a fait l'objet d'un article, soumis en novembre 2017 à *Journal of Environmental Radioactivity*, dont le titre est « Analysis of the relationship binding in situ gamma count rates and soil sample activities: Implication on radionuclide inventory and uncertainty estimates due to spatial variability ».

1 INTRODUCTION

Because of spatial variability in radionuclide distribution, many measurements are needed for accurately estimating radionuclide inventories in contaminated soils. Recently, for environmental purposes, non-invasive in situ gamma spectrometry techniques have been developed as an alternative to time-consuming soil sampling and laboratory analysis (Benke et Kearfott, 2001; Chesnokov et al., 1999; Clouvas et al., 2007; Kastlander et Bargholtz, 2011; Panza, 2012). The investigation depth of surface gamma spectrometry is generally restricted to 0.2 to 0.4 m, depending on the considered soil and radionuclides (Benke and Kearfott, 2001; Chesnokov et al., 1999; Clouvas et al., 2007; Kastlander and Bargholtz, 2011; Panza, 2012). In situ surface gamma spectrometry is therefore well-suited for quantifying radionuclide fallout (Clouvas et al., 2007). As it relies on an assumption about radionuclide distribution with depth (Boden et al., 2013; Kastlander et Bargholtz, 2005; Panza, 2012), field gamma spectrometry cannot however take into account the large variability of radionuclide distributions in soils, especially when the source term is buried.

Thus, for quantifying gamma-emitting radionuclide inventories in contaminated soils, it is still necessary to get back to invasive methods such as in situ measurements into boreholes (i.e. logging) and measurements on samples retrieved by drilling or coring. Gamma ray logging has thus been widely used (IAEA International Atomic Energy Agency, 1979) and remains the most cost-effective in situ technique for detecting uranium (Mwenifumbo et Mwenifumbo, 2013) and transuranic radionuclides (Rohay et al., 2009).

Inferring activity concentrations from in situ gamma logging relies either on a calibration of the gamma probe (Dodd et Eschliman, 1972) or a correlation between sample analyses and in situ measurements (Carrier, 1964).

On the one hand, complex calibration procedures of gamma probes have been developed for characterizing contaminated sites (e.g. McCain et al. (2013)). As they require the use of homogeneous calibration models containing mixtures of radioactive minerals (e.g. Stromswold (1994)), the calibrated detector response corresponds to a gamma activity originating from a homogeneous uniform distribution of gamma emitters (or gamma-emitting progenies of the targeted radionuclide) within the probe's field of view.

On the other hand, following Matheron (1959) preliminary works in geostatistics, Carrier (1964) studied the relationship between uranium ore grades measured on core samples and gamma logging measurements performed into the associated boreholes within the rock. He especially focused on estimating the error resulting from the use of a relationship between these variables to infer ore grade estimates from gamma logging measurements. Only a few studies about this correlation have been published so far (Asfahani, 2003; Guillou et al., 2000; Tyler et al., 1996) while it has been extensively used in uranium mining since the 1960s.

Cost-effective characterization techniques providing a good coverage of contaminated zones are required for decommissioning nuclear facilities (OECD & NEA, 2014). The correlation between field gamma spectrometry and soil analysis results has thus recently been more investigated (e.g. Thompson et al. (2013)). Field data acquired in remediation projects have however still been relegated to supporting analytical data. In some cases field measurements have yet been shown to have some definite advantages over those made in the laboratory (Ramsey et Boon, 2012). Studying the relationship between in situ count

rates and sample activities from a theoretical standpoint is thus essential to overcome the limited use of in situ measurements in decommissioning and remediation projects.

The paper focuses on identifying which parameters physically build up a correlation between radionuclide activity concentrations of soil core samples and the corresponding in situ count rate measured with a gamma probe (lowered into the boreholes at the same depth where soil samples are collected). This correlation is subsequently called the Activity-Count Rate (ACR) correlation.

This theoretical exercise relies on geostatistical simulations of the spatial variability of gamma emitters in a soil volume. A simplified calculation of in situ count rates that could be theoretically measured by a gamma probe lowered in the holes is performed for studying the ACR correlation into the simulated medium. A sensitivity analysis aims to identify the most influent parameters that control the ACR correlation. Then, the correlation is applied to measurements deployed on the Experimental Platform in Chernobyl (EPIC) site to test the methodology on a complex case which exhibits a deviation from log-normality. The issues raised by a back-transformation of the linear regression established on log-transformed values are here explored in order to draw recommendations for a proper and broader use of the correlation for inventory assessment purposes. Through the discussion, we examine how to use the correlation to plan an effective measurement campaign in order to better estimate radionuclide inventories. In conclusion we suggest some new perspectives on managing inventory uncertainty due to spatial variability.

2 MATERIALS AND METHODS

2.1 Synthetic dataset built from numerical geostatistical simulations

The building of synthetic datasets is first presented together with the geostatistical simulation method.

2.1.1 General principle

A 3D numerical model which represents an activity concentration field in soils for a given gamma emitter (e.g. ^{137}Cs) is built. The volume is a cube discretized on a regular mesh. An activity concentration (Bq/kg) is assigned to each cell according to a geostatistical model described hereafter. A vertical borehole is then simulated by setting to zero the activity concentration of a column of cells selected at the center of the cube (Figure 2-2) for mimicking the removal of material by coring. A count rate is assessed at the center of this borehole as a convolution of the activity concentration of the contaminated media surrounding the borehole. The weighted contributions of each surrounding cell decay exponentially as a function of the distance between the probe and the location of the gamma emitters within the simulated medium.

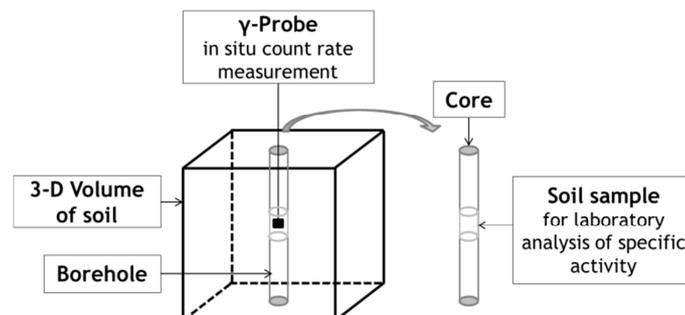


Figure 2-2 : Principle of the 3D activity model built for studying the relationship between the count rate measured into a borehole with a gamma probe and the activity concentration of a gamma emitter measured by laboratory gamma-spectrometry on a core sample.

The measured gamma count rate is calculated according to Equation 2-1.

$$F_{insitu}(x) = \int_V A(u) \times \frac{e^{-\mu r(x,u)d}}{4\pi r(x,u)^2} \times \varepsilon \times d \times S \times f(\theta) du \quad \text{Equation 2-1}$$

Where $F_{insitu}(x)$ is a photon flux whose magnitude is proportional to the *in situ* count rate due to gamma-emitter activities surrounding the measurement point $x = (x_1, x_2, x_3)$ located at the center of the cube. Its dimensions correspond to a number of photons per second perceived at point x through the surface S (m^2) of the probe, equal here to a sphere of one cell size within the borehole; \int_V denotes a volume integral (in each space direction with $du = du_1 du_2 du_3$); $A(u)$ is the activity concentration (Bq/kg) at point $u = (u_1, u_2, u_3)$ within the soil; $r(x, u)$ is the distance (m) between the measurement point x and the point u where a activity concentration $A(u)$ of a gamma emitter is assigned, i.e. $r(x, u) = \sqrt{(x_1 - u_1)^2 + (x_2 - u_2)^2 + (x_3 - u_3)^2}$; d is the bulk soil density (kg/m^3) which is considered, at first, constant in space; μ is the gamma attenuation factor (m^2/kg); $f(\theta)$ is the detector angular response of the probe and ε is the gamma-ray emission intensity (%) of the gamma emitter at the considered energy range corresponding to the percentage of emitted photons by gamma disintegration.

Into the pile of cells corresponding to a borehole, the attenuation of gamma rays through air, which would be the medium encountered into open boreholes drilled within the soil vadose zone, is first neglected. The impact of spatial variations of both density (d) and gamma attenuation factor (μ) over the photon pathways from their emission points (u) to the probe (x) are examined in a second step through a sensitivity analysis.

2.1.2 Reference case

The convolution Equation 2-1 only considers the direct photons emanating from a cell to the probe. It does not take into account the diffuse photons due to inelastic interactions (i.e. Compton scattering) within the soil that are also measured by classical gamma probes. However diffuse photons (which do not follow a straight pathway from their emission point to the probe) are only expected to scramble the ACR correlation. Taking them into account would make computing-intensive Monte Carlo simulations necessary. However, as the purpose is to understand what physically builds up the ACR correlation, the impact of diffuse photons is neglected as a first approximation.

To simplify the calculations, the probe specific parameter $f(\theta)$ will be ignored and set to 1. This calculation Equation 2-1 assesses therefore a count rate measured by a perfect fictional probe having a 100% detection efficiency. Additionally, the uncertainty brought by laboratory analysis of soil samples is ignored meaning that the sampling and measurement errors are neglected. The “measured activity concentration in the laboratory” for the reference case corresponds therefore to the simulated *in situ* activity in the center cell of the core.

The convolution calculation Equation 2-1 is first performed for a reference case which each other setup is next compared to. One gamma emitter corresponding to ^{137}Cs is first considered into a dry soil composed of quartz grains (SiO_2) with a bulk density of $1.6 g/cm^3$ and a porosity of 40%. These parameter values are based on soil properties given by Kashparov et al. (2004) for Chernobyl Exclusion Zone soils. For the considered 661.7 keV energy, ^{137}Cs gamma-ray emission intensity (ε) is fixed to 85.2% and its attenuation factor within this soil is set to $7,7 \cdot 10^{-2} cm^2/g$ according to the XCOM-NIST database developed by (Berger et al., 2010).

2.1.3 Sensitivity runs

For studying how a spatially variable density and attenuation factor may affect the ACR correlation (Figure 2-3) the convolution calculation for the sensitivity runs is modified according to Equation 2-2.

$$F_{insitu}(x) = \int_V A(u) \times \frac{\sum_{i=1}^n e^{-\mu_i r_i d_i}}{4\pi r(x, u)^2} \times \varepsilon \times d(u) \times S \times f(\theta) du \quad \text{Equation 2-2}$$

Where i refers to a stratified medium (Figure 2-3) with a given attenuation factor μ_i (m^2/kg) and density d_i (kg/m^3) crossed by a direct photon through a distance r_i toward the gamma probe; $d(u)$ is the porous medium density (kg/m^3) at the emission point u from which the photon is emitted toward the probe located at point. All the other parameters remain the same as in Equation 2-1.

The different values of spatially-variable densities and attenuation factors are reported in Table 2-1. Two gamma emitters, corresponding to ^{137}Cs and ^{60}Co , will be considered. These radionuclides can usually be found in complex contamination contexts including accidental situations like Chernobyl (Smith et Beresford, 2005) and decommissioning of nuclear facilities (OECD & NEA, 2014) where a substantial amount of other gamma emitters can be detected in addition to Cs. The bulk soil densities are modified from the reference case to take into account a stratified water content which ranges from half-saturated to totally saturated (Table 2-1).

Additionally, in order to study the impact of the soil sample size on the ACR correlation, different lengths of core samples are considered. The influence of the diameter of the borehole could also have been examined. However, as indicated by Carlier (1964), the diameter of the borehole should not influence the shape of the relationship. Indeed, the flux of photons into the borehole does not depend on the borehole diameter on a medium with constant activity.

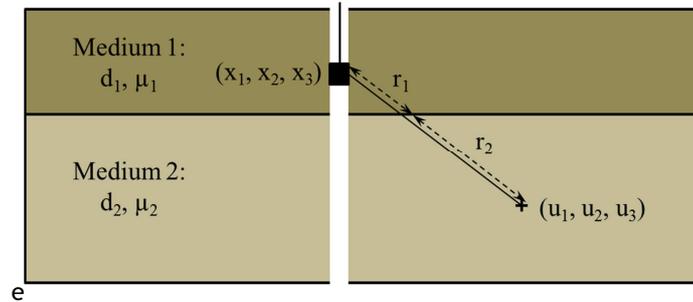


Figure 2-3: Stratified media notation used for studying the impact of a stratified moisture content variation with depth

Table 2-1: Radionuclides, gamma intensity emission factors, environment characteristics, bulk densities and attenuation factors (according to Berger et al. (2010)) considered for parameterizing the sensitivity runs.

Radionuclide	Photon Energy (keV)	Branching Fraction	Environment	Density (g/cm3)	Total attenuation without Coherent Scattering (cm2/g)
Cs137	661.7	85.2	Dry soil 40% Porosity	1.68	7.70E-02
			Half saturated soil 40% Porosity	1.88	7.80E-02
			Saturated soil 40% Porosity	2.08	7.88E-02
			100% Water	1	8.56E-02
			50% Water 50% Air	0.0093	8.13E-02
Co60	1173.2	99.9	Dry soil 40% Porosity	1.68	0.05871
	1332.5	100	Dry soil 40% Porosity	1.68	0.05503

2.2 Geostatistical model of the activity concentration field

2.2.1 Principle

The activity field corresponding to the activity concentration $A(u)$ in Equation 2-1 is classically supposed to be lognormal (Carlier, 1964).

Let us put Equation 2-3:

$$A(u) = M e^{\sigma Y(u) - \frac{\sigma^2}{2}} \quad \text{Equation 2-3}$$

$Y(u)$ is a spatial Gaussian random function. The lognormal random function $A(u)$ has an arithmetic mean equal to M and a logarithmic standard deviation equal to σ^2 . The arithmetic variance D^2 of $A(u)$ is given by Equation 2-4.

$$D^2 = M^2(e^{\sigma^2} - 1) \quad \text{Equation 2-4}$$

In order to build a realistic distribution of a ^{137}Cs activity field, M and σ^2 are chosen according to the dataset of ^{137}Cs activities in contaminated soils of an emergency clean-up disposal in Chernobyl Red Forest (Bugai et al., 2005).

Let us denote $\gamma_Y(h)$ the variogram of Y . The variogram of $A(u)$ is $\gamma_A(h) = M^2 e^{\sigma^2} (1 - e^{-\sigma^2 \gamma_Y(h)})$

In order to build a realistic distribution of a ^{137}Cs activity field, M and σ^2 are chosen according to the dataset of ^{137}Cs activities in contaminated soils of an emergency clean-up disposal in Chernobyl Red Forest (Table 2-2)(Bugai et al., 2005).

Let us denote $\gamma_Y(h)$ the variogram of Y . The variogram of $A(u)$ is $\gamma_A(h) = M^2 e^{\sigma^2} (1 - e^{-\sigma^2 \gamma_Y(h)})$

In the following, the variogram for the random function Y is spherical or is a combination of spherical and nugget components (which can be considered as a spherical component with a very short range). A Gaussian random function with a spherical variogram can be built from mobile averages (Chilès et Delfiner, 2012) calculated on a set of independent random variables assigned to a fine mesh. The spherical variogram with range a (m) is equal to, up to a multiplicative coefficient, the random function $k * B$ where k refers to the indicator of a sphere with a diameter equal to a ; B an orthogonal random measure and $*$ the convolution product (Matheron, 1970). In the case of a discrete mesh, B is a nugget effect. In simple terms, a spherical random function with a range equal to a and a sill of 1 can be calculated with Equation 2-5 in which the index number j denotes the fine grid points of B .

$$Y(u) = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{r(u_j, u) < a/2} B(u_j) \quad \text{Equation 2-5}$$

Where N refers to the number of grid points on the fine grid located within a distance $r(u_j, u) = \sqrt{(u_{1j} - u_1)^2 + (u_{2j} - u_2)^2 + (u_{3j} - u_3)^2}$ lower than $\frac{a}{2}$ from point u .

For practical purposes, the nugget effect B is simulated over a finer mesh than the mesh of Y in order to reduce the discretization impact on the variogram of Y . To avoid an edge effect, the side (L) of the fine grid is greater than the side (l) of the Y grid according to Equation 2-6:

$$L = 1 + a_{max} \quad \text{Equation 2-6}$$

Where a_{max} refers to the maximum range (m) of the tested Gaussian Random Functions.

For the reference case, the side of the final cube is 1.08 m, with a mesh size of 0.06 m, corresponding to the diameter of a borehole as in (Bugai et al., 2005), and the side of the fine grid cube is 4.08 m with a fine 0.02 m mesh. For the sensitivity runs the maximum tested range a_{max} is set to 1.20 m.

In order to avoid comparing results introducing an additional variability from a random sampling, the sensitivity analysis is performed by maintaining a constant hazard as far as possible. For instance, the

impact of the range is tested only by changing the diameter a of the sphere through which the moving average is calculated, and keeping the set of initial independent random variables B assigned to the fine grid in Equation 2-5.

Figure 2-4 (a) displays the two nested meshes, the fine grid B and the final Y grid. Figure 2-4 (b) and (c) show two realizations of $A(u)$ on one horizontal section at fixed x_3 of the same geostatistical model, with range equal to 5 times the mesh size.

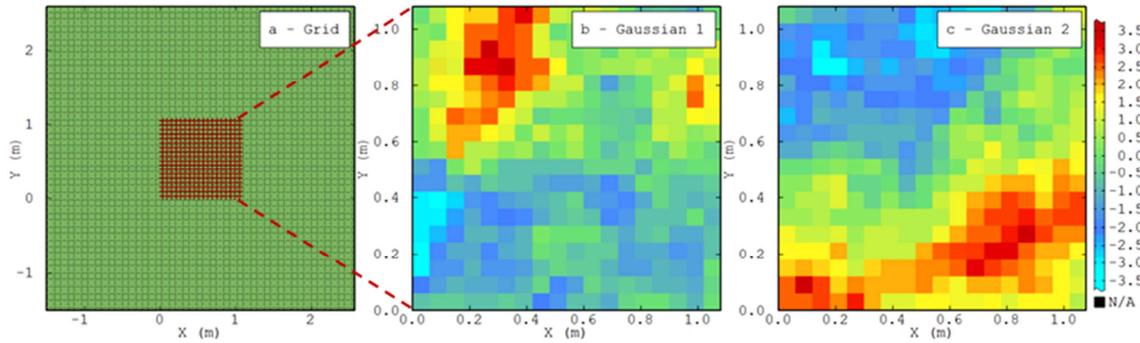


Figure 2-4 : (a) 2D plots along the x_1 and x_2 axes of the two nested meshes used for computing geostatistical simulations of the gamma-emitter activity field and (b and c) example of two realizations along the x_1 and x_2 directions of a Gaussian whose variogram range is equal to 5 times the size of the mesh (p : range/mesh = 5). The scale color represents the activity logarithm.

2.2.2 Parameterization of the sensitivity runs

For the sensitivity analysis the geostatistical models are derived from the reference case. First the range is changed considering isotropic and anisotropic cases. Then the impact of nested structures is evaluated by combining respectively an isotropic spherical variogram or a nugget effect with an anisotropic spherical variogram using Equation 2-7.

$$Y = \alpha X_1 + \beta X_2 \quad \text{Equation 2-7}$$

Where X_1 and X_2 are two independent Gaussian random functions, and where the two parameters α and β verifying Equation 2-8 give the proportion of the short range structure and the large range structure to the total sill

$$\alpha^2 + \beta^2 = 1 \quad \text{Equation 2-8}$$

Finally, because single radionuclide pollution almost never happens in the real world, we consider a scenario with ^{137}Cs and ^{60}Co distributions according to Equation 2-9.

$$Y_{Co} = \alpha Y_{Cs} + \beta R_{Co} \quad \text{Equation 2-9}$$

Where Y_{Co} is the cobalt Gaussian; Y_{Cs} is the cesium Gaussian and R_{Co} is the cobalt residue, independent from Y_{Cs} . As previously, α and β verify Equation 2-8 and α is the statistical correlation coefficient between Y_{Co} and Y_{Cs} .

If $\gamma_{Cs}(h)$ denotes the variogram of Y_{Cs} and $\gamma_R(h)$ that of R ., the variogram of Y_{Co} is then $\gamma_{Co} = \alpha^2 \gamma_{Cs} + \beta^2 \gamma_R$ and the cross-variogram $\gamma_{Cs,Co}$ between Y_{Cs} and Y_{Co} , is $\alpha \gamma_{Cs}$. The coefficient α is first changed whereas the range of variograms γ_{Cs} and γ_R is held constant. Then the range of R_{Co} variogram is changed whereas α is kept constant. The impact of Co mean is also studied in a final step.

2.3 Assessment of the correlation strength

In this section v_1 and v_2 denote the two variables, respectively the in situ count rate and the sample activity concentration, simulated with the same fixed parameters. In order to assess whether v_1 and v_2 are correlated, their scatter diagram and that of their logarithm are plotted.

The link between the two variables is described using (i) equally sized class means for v_2 , equal classes of v_1 count rate, (ii) the standard deviation associated to each class mean and (iii) the regression line of the ACR correlation. For quantifying the strength of the link, different coefficients are calculated (see e.g. Saporta (2006)): (i) the square of the linear coefficient of correlation of "determination coefficient" ρ^2 characterizing the goodness-of-fit of the linear regression between v_1 and v_2 , (ii) the determination coefficient R^2 discretized by classes of v_1 (Equation 2-11) and (iii) the correlation ratio $\eta^2 = \eta_{v_2|v_1}^2$ (Sobol indice) which quantifies the variance part of v_2 explained by v_1 (Equation 2-12).

n is the total number of couples (v_1, v_2) i.e. the number of simulations, \bar{v}_1 the count rate mean, \bar{v}_2 the activity concentration mean, s_{v_1} and s_{v_2} the standard deviation of v_1 and v_2 , respectively.

The coefficients R^2 and η^2 use a discretization of v_1 in J classes. They are created in order to have the same number of data in each class ($n_j = n/J$) and J is set to 5.

Let us denote $\bar{v}_1^j = \bar{v}_1^j$ the count rate mean of the class j , containing n_j data, to which v_1^i belongs and $s_{v_1^j}$ the standard deviation of (discretized) \bar{v}_1^j given by Equation 2-10:

$$s_{v_1^j} = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^n (\bar{v}_1^i - \bar{v}_1)^2}{n}} = \sqrt{\sum_{j=1}^J \frac{n_j}{n} (\bar{v}_1^j - \bar{v}_1)^2} \quad \text{Equation 2-10}$$

Then

$$R^2 = \frac{\frac{1}{n} \sum_{i=1}^n (\bar{v}_{1j} - \bar{v}_1)(v_2^i - \bar{v}_2)}{s_{v_1j} s_{v_2}} \quad \text{Equation 2-11}$$

$$\eta^2 = \frac{\frac{1}{n} \sum_{j=1}^J n_j (\bar{v}_{2j} - \bar{v}_2)^2}{s_{v_2}^2} \quad \text{Equation 2-12}$$

Where, n is the total number of couples (v_1, v_2) i.e. the number of simulations, \bar{v}_1 the count rate mean, \bar{v}_2 the activity concentration mean, s_{v_1} and s_{v_2} the standard deviation of v_1 and v_2 , respectively, \bar{v}_2^j is the activity concentration mean of class j .

The correlation coefficient is symmetrical, unlike the correlation ratio η^2 .

Theoretically η^2 is greater or equal to the determination coefficient. This inequality is necessarily verified between η^2 and R^2 , but not between η^2 and ρ^2 , as ρ^2 is calculated without classifying the data. Comparing ρ^2 and R^2 enables to measure the classification impact whereas the ratio R^2/η^2 will be used to quantify the linearity of the empirical regression. As in practice we expect to use the in situ count rate (v_1) to deduce the sample activity concentration (v_2) (and not the contrary), the linear regression is calculated as the regression of v_2 from v_1 (according to Equation 2-13).

$$v_2^* = \bar{v}_2 + \rho \frac{s_{v_2}}{s_{v_1}} (v_1 - \bar{v}_1) \quad \text{Equation 2-13}$$

The regression line gives v_2^* , the expected value of v_2 knowing v_1 and not the exact value of v_2 : at fixed v_1 value, there is a range of possible v_2 values, all estimated by the same v_2^* .

2.4 Error assessments associated with the linear regression and the back-transformation of logarithm values

In order to compare the results of the linear regression on non-transformed value with those obtained on log-transformed values, we use the inversion of the regression line in the case of two log-transformed Gaussian variables ($\ln v_1$ and $\ln v_2$) given by Krige (1981) in (Equation 2-14).

$$\ln(v_2^*) = \overline{\ln(v_2)} + \rho \frac{s_{\ln v_1}}{s_{\ln v_2}} (\ln(v_1) - \overline{\ln(v_1)}) + \frac{1}{2} s_{\ln v_2}^2 (1 - \rho^2) \quad \text{Equation 2-14}$$

$s_{\ln v_1}$ and $s_{\ln v_2}$ denote here the standard deviation of $\ln v_1$ and $\ln v_2$ respectively. This difference has been taken into account to avoid the bias induced by a simple back-transformation of the logarithm regression line.

If sub-populations display a different variability from others in the scatterplot of v_2 versus v_1 , the data are deemed to be heteroscedastic (Saporta, 2006). This "variability" results from an increasing standard deviation with v_1 among the different sub-populations. When the values are log-normally distributed, a proportional effect is moreover expected (Chilès et Delfiner, 2012). Thus heteroscedasticity is studied here as it raises the following problem for using a linear regression in that case: the estimates are without bias but the estimation variance is not minimum anymore among the possible estimators.

3 RESULTS

3.1 Reference case

How many simulations are needed to stabilize the ACR correlation ? 800 simulations are first performed for the reference case. The linear regression of v_2 on v_1 is compared for the sample activity and the in situ count rate and for their logarithm values for an increasing number of simulations (from 50 to 800) Figure 2-5. Two simple resampling methods are tested for calculating ρ^2 and η^2 among the simulation dataset by considering either an ascending order of simulations (e.g. ρ^2 and η^2 are calculated for 50 simulations considering simulations 1 to 50, for 100 simulations considering simulation 1 to 100, and so on) or a descending order (i.e. considering simulations 800 to 750, for 100 simulations considering simulations 800 to 700, and so on). The results show a convergence of ρ^2 and η^2 for 800 simulations simply because there is only one way to compute ρ^2 and η^2 for the exhaustive simulation set. This artefact should not thus be interpreted as stability for 800 simulations. Figure 2-5 shows nevertheless that both ρ^2 and η^2 are higher and more stable for logarithm values than for arithmetic ones. For logarithm values, both resampling give similar ρ^2 and η^2 estimates from 400 simulations. On the contrary, no relevant stability was reached for arithmetic values.

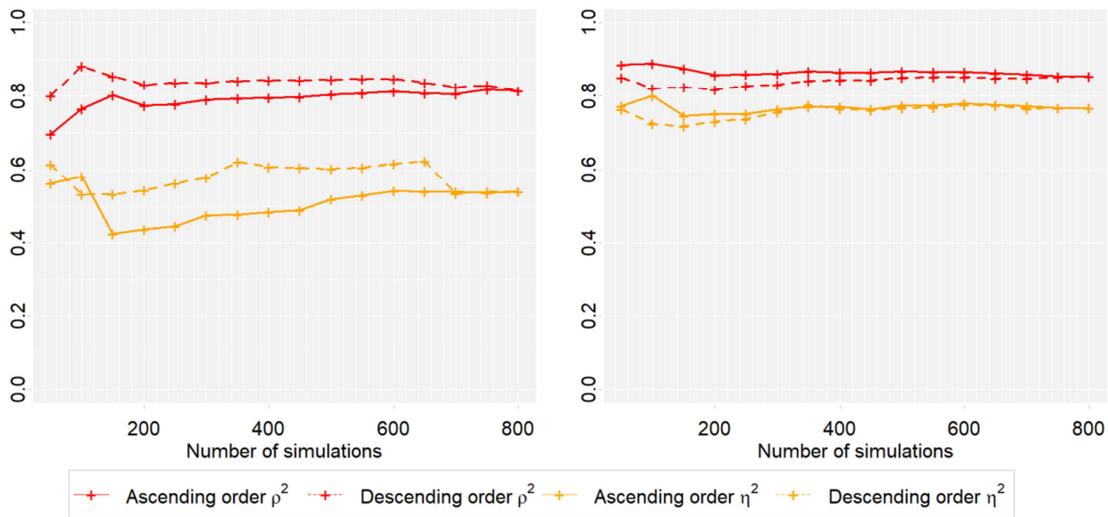


Figure 2-5: Impact of the simulation number on the stability of the correlation. On the left, on arithmetic values, on the right, on logarithm values.

This important result indicates that the ACR correlation should be studied on logarithm values, as already observed by Carlier (1964). It is indeed stronger on logarithm values than on arithmetic values. This effect is even clearer for R^2 and η^2 calculated on logarithm values: they are close to 0.8 whereas arithmetic values oscillate around 0.5 (Table 2-2). The determination coefficient, which stays close to 0.8 even for arithmetic values, is still high due to the impact of the highest values which controls the linear regression. However, high values tend to deviate from the linear regression line due to heteroscedasticity. The linear relationship becomes relatively less functional as the variance of the activity increases with the range.

Figure 2-6 presents the results for the reference case on 800 simulations and on 2 sets of 400 simulations. The parameters ρ^2, R^2, η^2 do not change significantly between the whole set of simulations or if the set is divided in 2.

From the above observations, the statistical coefficients will be computed on logarithm values or the subsequent sensitivity analysis. The number of simulations is fixed to 400, a huge dataset. Indeed, in most of the published field studies, the correlation is usually plotted from a dataset lower than 100 observations.

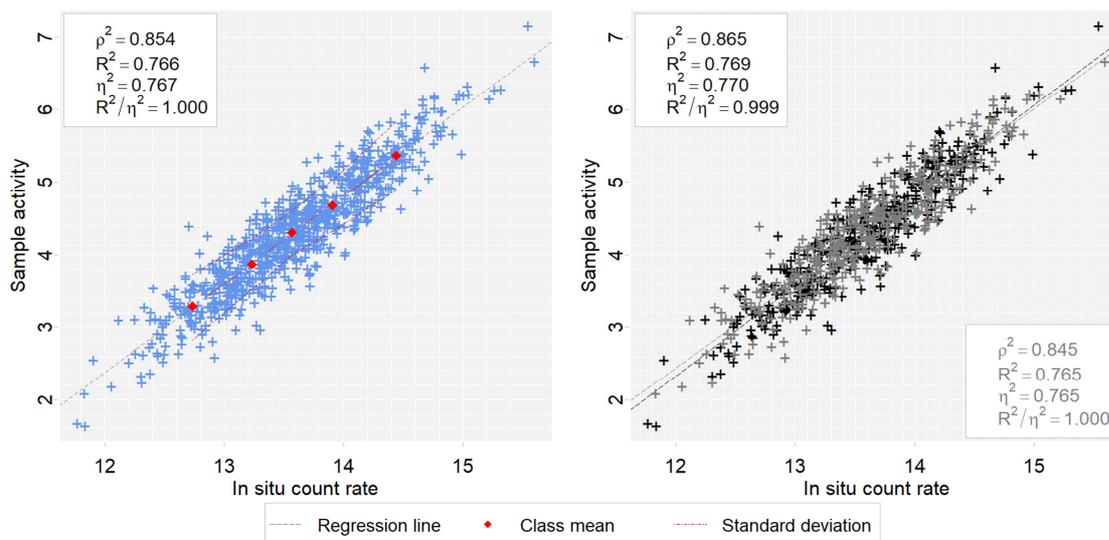


Figure 2-6: Reference case results for 800 simulations (left) and comparison of empirical regressions on 2 sets of 400 simulations (right).

3.2 Sensitivity analysis

3.2.1 Variogram range

For the isotropic case, a nugget effect (i.e. null range) and the ratio between the range and the mesh size (p ratio) are assessed. Results are presented in Figure 2-7 and Table 2-2. The data appears to be less scattered as the correlation length increases. In the nugget effect case, the correlation coefficient ρ^2 is nearly equal to zero. As the p ratio increases (or equivalently as the range increases), ρ^2 , R^2 , η^2 and R^2/η^2 increase as well meaning that the correlation is more linear and the linear regression more functional. This is easily explained by the fact that the spatial correlation is the cause of the correlation between the activity concentration of the core and the count rate emanating from the complementary surrounding soil. In the case of a nugget effect, there is indeed no spatial correlation between the activity in the core and its complementary.

The discretization effect described by the ratio R^2/ρ^2 is more significant as the range decreases and cannot be neglected. Increasing the class number would reduce this effect.

Except for the nugget effect case, the ratio R^2/η^2 is always close to 1. The correlation can therefore be considered as linear on the logarithmic values.

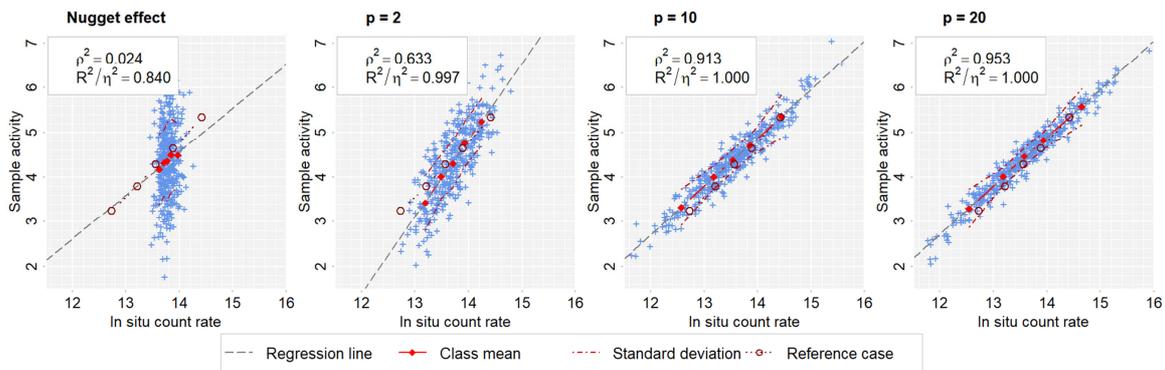


Figure 2-7: Effect of the ratio between range and mesh size

The anisotropic cases correspond to a large range in one plane, and a short range in its orthogonal direction. In the cases investigated (Figure 2-8 and Table 2-2): (i) the short range is in one horizontal direction, (ii) the short range in the vertical direction. The first case could refer to a stratified waste dump while the second one could refer to a sectorized waste dump. Here, the reference is described by an isotropic ratio $p = 10$ in order to consider a wider range of anisotropy ratio from 1 to $1/4$. In the two anisotropic directions, ρ^2 , R^2 , η^2 decrease with an increasing anisotropy. However R^2/ρ^2 increases with the anisotropy.

The results do not show a relevant difference between the tested anisotropic directions. As previously, the 3 criteria (ρ^2 , R^2 , η^2) increase when the small range increases and their values are intermediate to those obtained respectively with the high and low ranges. For instance, the results of $(pu_1, pu_2, pu_3) = (10, 10, 2)$ and $(pu_1, pu_2, pu_3) = (10, 2, 10)$ range cases are intermediate to the 2 isotropic cases of 2 and 10 m range. However, η^2 is closer to the 2 m range case and the results for $(pu_1, pu_2, pu_3) = (10, 10, 5)$ (or $(pu_1, pu_2, pu_3) = (10, 5, 10)$) are closer to that of the 10 m range isotropic case than that of the 5 m case.

In conclusion, the results established for a given contaminated medium are not directly transposable to another medium. In practice, the data are better sampled in the direction of the borehole than perpendicularly to the borehole direction. Thus, it is rarely possible to detect local changes in the spatial structure, even when they are relevant.

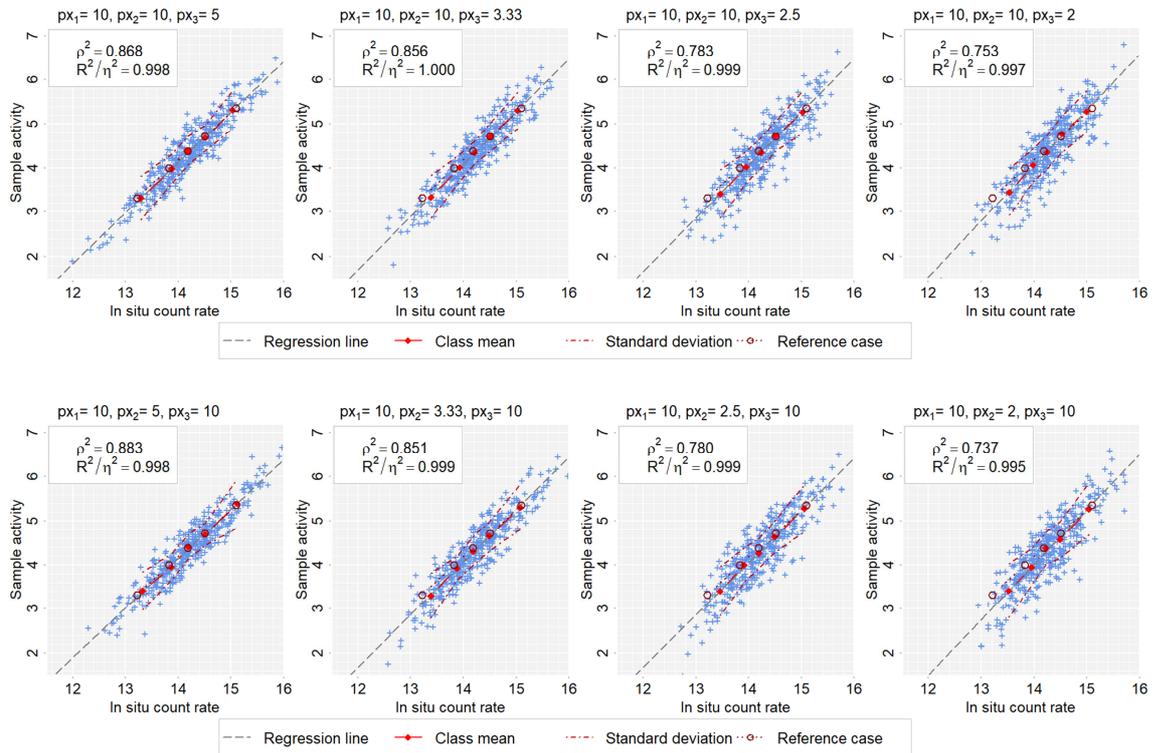


Figure 2-8 : Effect of the anisotropy: (top) the short range is in the vertical direction (bottom) the short range in one of the horizontal directions

3.2.2 Nested structures

Two types of nested structures are tested: (i) a combination of one anisotropic structure with a small scale isotropic spherical structure and (ii) a combination of the same anisotropic structure as above with an additional nugget effect. The nugget effect can be related to the measurement error, or a smaller scale spatial structure that cannot be identified because of the sampling plan. In reality, most measured phenomena present nested structures. Adding a small structure is like adding variability to the simulated values which means, adding scattering. As the sill of the nugget effect or the small scale structure increases, ρ^2 , R^2 and η^2 decrease.

However, for the same proportion of the total sill, the nugget effect has more impact than the small isotropic structure (Figure 2-9 and Table 2-2). The criteria ρ^2 , R^2 and η^2 decrease when a nugget effect is added, and the decrease is attenuated for the isotropic small structure.

Adding a nugget effect tends therefore to destroy the spatial structure: as it grows, the correlation coefficient between the sample activity and the counting rate gets smaller. When the sill of the small structure (or of the nugget) increases, the linearity of the regression tends to decrease.

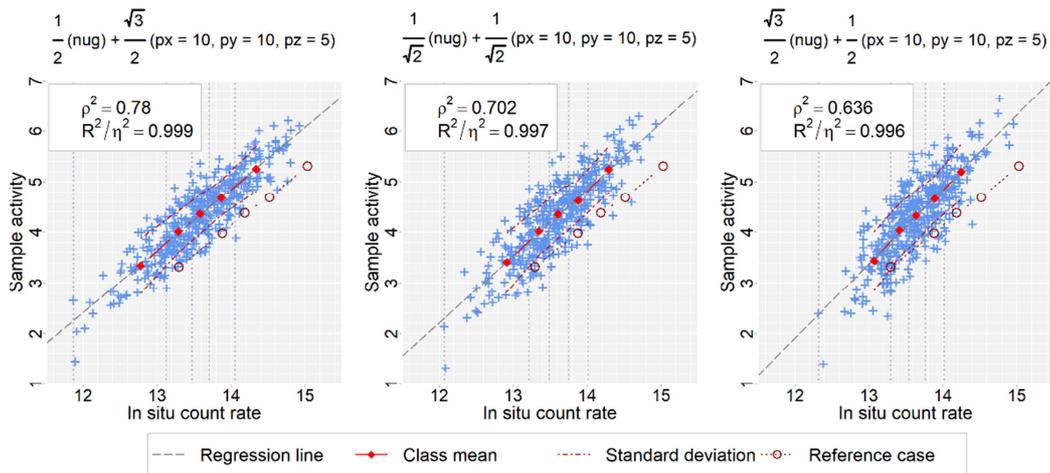


Figure 2-9: Effect of a nested structure combining a nugget effect and a spherical component

3.2.3 Standard deviation of activity

This case can be analogous to a different contamination setup. Larger standard deviation means larger variability of the simulated activity. The tested logarithmic standard deviation ranges from 0.5 to 1.5 (0.8 for the reference case). On logarithmic values, the criteria are decreasing when the logarithmic standard deviation is increasing. This effect is even more noticeable on arithmetic values.

The variability of the in situ count rate and the sample activity increases considerably along with the standard deviation: the results become more and more scattered with an increasing standard deviation (Figure 2-10 and Table 2-2). As η^2 decreases, R^2 decreases as well and their ratio still approaches the value 1, but the overall correlation coefficient decreases. This result reflects the heteroscedasticity effect on arithmetic values as discussed in Saporta (2006).

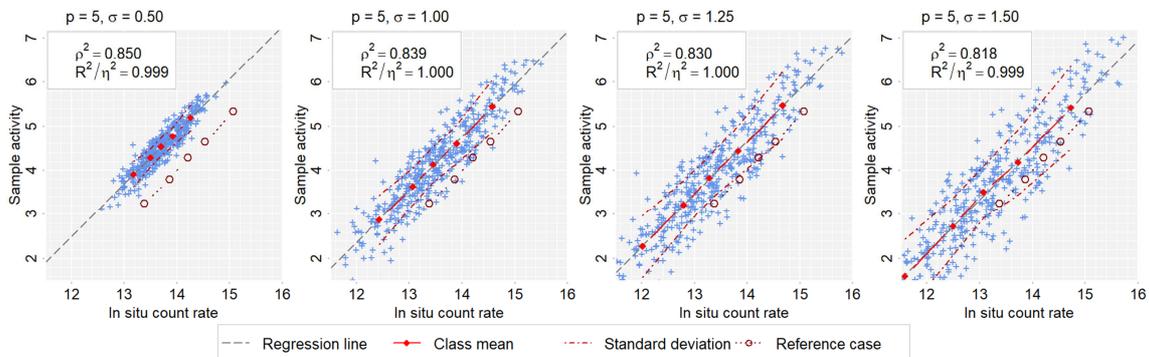


Figure 2-10: Effect of the standard deviation

3.2.4 Core length

Sampling methods can change from one laboratory to another. On a drilling core, all the samples do not have the same length. Usually, the core sample is first homogenized and a sub-sample is taken for the laboratory analysis. For mimicking the homogenization, the mean of 3 to 10 meshes taken vertically from the reference case sample is calculated.

The detector is placed at the center of the sample and the homogenized measurement is compared to the theoretical probe measurement which remains unchanged. What can be clearly seen in Table 2-2 and Figure 2-11 is that, the bigger the sample is, the better the linear correlation becomes. However, above a certain sample size, the correlation coefficient decreases. The optimum is reached for a sample size equal to 5

times the mesh size which is also the range of the reference case. This increase of the correlation coefficient can be explained by the support effect that lowers the sample activity variability: the correlation becomes more linear with an increasing sample size. The subsequent decrease is due to the fact that the core sample size becomes larger than the variogram range: the values above this length have no correlation with the measurement point. This adds variability to the measurement so that the coefficient correlation definitely decreases.

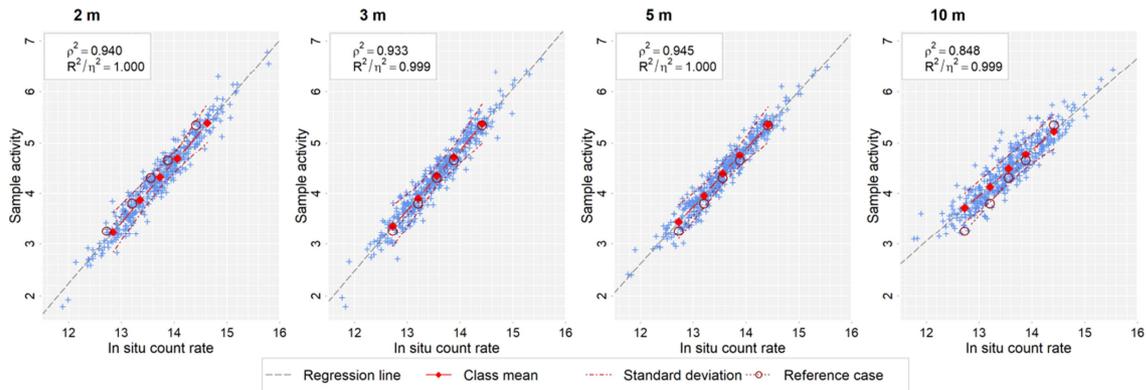


Figure 2-11: Effect of the core length

3.2.5 Water content

Three different cases are examined (Figure 2-12): (i) the saturated case - the probe is located in a completely saturated zone, (ii) the non-saturated / saturated case - the probe is located at the interface of the two environments, (iii) the non-saturated / half-saturated / saturated case - the probe is located in the half-saturated zone. Values of the attenuation coefficients are available in Table 2-1.

Values of ρ^2 in a saturated environment ($\rho^2 = 0.87$) are higher than in an unsaturated environment ($\rho^2 = 0.84$) (Table 2-2). The variability is lowered as the attenuation coefficient is higher in a saturated environment. Indeed, the gamma count rate measured by the probe decreases with the environment saturation. The probe measurement is then more correlated to the immediate environment and ρ^2 is higher. The regression line is also translated as the variability is lowered due to the attenuation coefficient change. If the cube is sliced into 2 or 3 layers with a different attenuation coefficient, the scattering of the points is not affected: ρ^2 stays constant. In the non-saturated / saturated case, the regression shift is more marked than in the non-saturated / half-saturated / saturated case because of the detector position. In the scenario (ii), the detector is at the interface of the two environments whereas in scenario (iii), the detector is in a homogeneous half-saturated environment. In case (iii), the attenuation coefficient is higher than in the reference case, therefore the measurement support is smaller and the in situ count rate measured and is more correlated to the sample activity, which leads to a better correlation. However the in situ measurement is less representative of the block measurement. This conclusion is underlined in scenario (i).

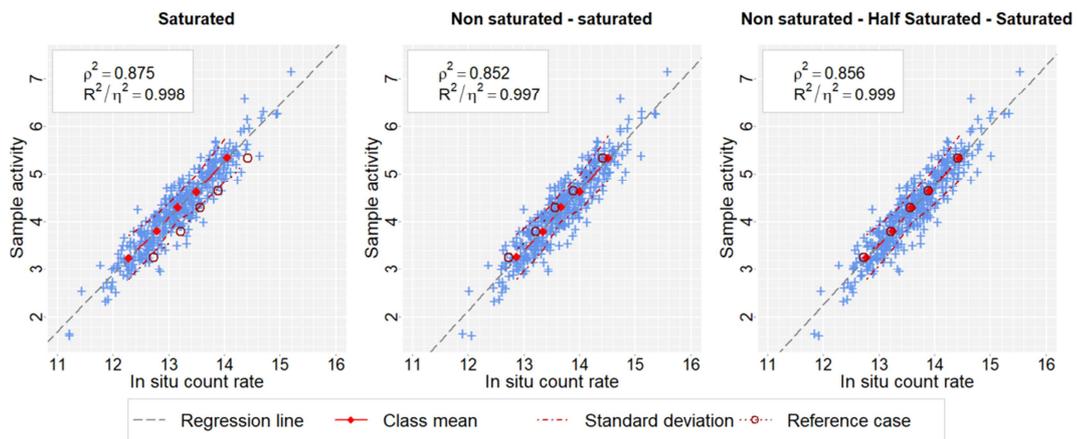


Figure 2-12: Effect of stratified moisture content zonation considered for the spatially-variable attenuation case

3.2.6 Multiple radionuclide pollution

In order to simulate a contamination by two different gamma-emitting radionuclides (^{60}Co and ^{137}Cs), several cases of ^{60}Co distribution were considered: (i) for a fixed ^{60}Co activity mean of 10, the coefficients α and β linking the distribution of the radionuclides (Equation 2-9) are changed, (ii) then, for a fixed ^{60}Co distribution, its activity mean is changed from 1 to 100 (Figure 2-13 and Table 2-2). In the scenario (i), ρ^2 becomes higher when α is higher, meaning, the correlation is better if the spatial distribution of ^{60}Co is similar to that of ^{137}Cs . On the contrary, the correlation is slightly scrambled if the two spatial distributions are greatly different: the ratio $^{137}\text{Cs}/^{60}\text{Co}$ changes over space which adds variability to the in situ measurement. Here the mean activity of ^{60}Co is fixed to 10, but one could expect that the data gets more scattered when ^{60}Co mean gets higher as explored below.

In scenario (ii), the correlation is less strong as the ^{60}Co mean activity increases: ρ^2 decreases from 0.86 to 0.69. Nevertheless, the linearity of the correlation is not affected but the regression line is translated from that of the reference case. Even though the presence of another gamma emitting radionuclide adds scattering to the correlation, the use of gamma spectrometry instead of a simple gamma counting probe could lower the interference created as it can exactly measure the counting rate of each targeted radionuclide.

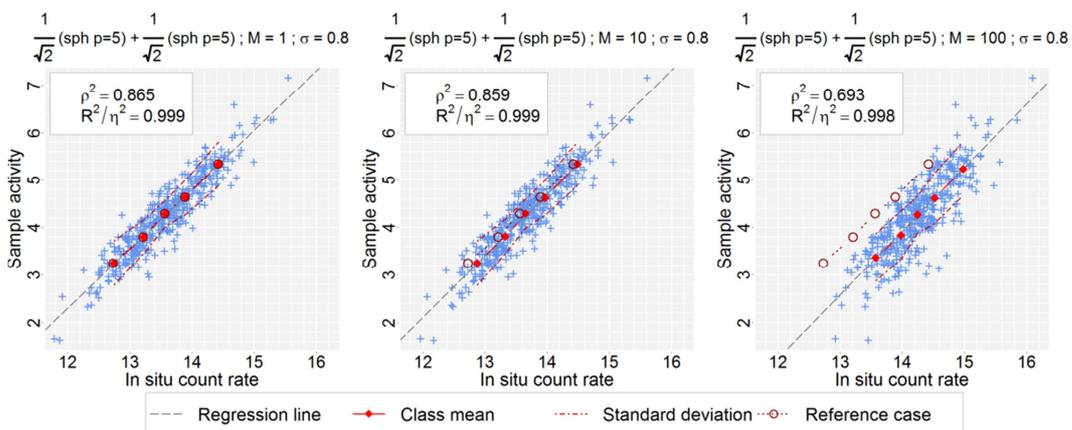


Figure 2-13: Effect of another gamma-emitting radionuclide ^{60}Co considering an increasing ^{60}Co mean from 1 to 100 and a fixed spatial structure for each radionuclide

Table 2-2: Statistical results of the correlation strength between in situ count rate and sample activity

Case	P			M	SD	μ	Sample size	α^2	β^2	ρ	ρ^2	R^2	η^2	R^2/η^2	R^2/ρ^2
	pu1	pu2	pu3												
Reference 800	5			300	0.8	Air	1			0.92	0.85	0.77	0.77	1.00	0.90
Reference 400-1				300	0.8	Air	1			0.93	0.86	0.77	0.77	1.00	0.89
Reference 400-2				300	0.8	Air	1			0.92	0.84	0.87	0.77	1.00	0.91
Isotropic	0			300	0.8	Air	1			0.15	0.02	0.02	0.02	0.84	0.77
	2			300	0.8	Air	1			0.80	0.63	0.58	0.58	1.00	0.91
	5			300	0.8	Air	1			0.92	0.84	0.87	0.77	1.00	0.91
	10			300	0.8	Air	1			0.96	0.91	0.80	0.80	1.00	0.88
	20			300	0.8	Air	1			0.98	0.95	0.86	0.86	1.00	0.91
Anisotropic	10	10	2	300	0.8	Air	1			0.87	0.75	0.67	0.67	1.00	0.89
	10	10	2.5	300	0.8	Air	1			0.88	0.78	0.69	0.69	1.00	0.88
	10	10	3.33	300	0.8	Air	1			0.92	0.86	0.77	0.77	1.00	0.90
	10	10	5	300	0.8	Air	1			0.93	0.87	0.76	0.76	1.00	0.87
	10	2	10	300	0.8	Air	1			0.86	0.74	0.62	0.62	1.00	0.84
	10	2.5	10	300	0.8	Air	1			0.88	0.78	0.67	0.67	1.00	0.86
	10	3.33	10	300	0.8	Air	1			0.92	0.85	0.74	0.74	1.00	0.87
	10	5	10	300	0.8	Air	1			0.94	0.88	0.76	0.76	1.00	0.86
Nested structures : short range spherical component	5			300	0.8	Air	1	1/4	3/4	0.88	0.78	0.69	0.69	1.00	0.89
				300	0.8	Air	1	1/2	1/2	0.84	0.70	0.62	0.62	1.00	0.88
				300	0.8	Air	1	3/4	1/4	0.80	0.64	0.56	0.56	1.00	0.88
Nested structures : nugget effect				300	0.8	Air	1	1/4	3/4	0.82	0.67	0.59	0.60	0.98	0.88
				300	0.8	Air	1	1/2	1/2	0.68	0.46	0.40	0.42	0.97	0.88
				300	0.8	Air	1	3/4	1/4	0.50	0.25	0.23	0.24	0.95	0.91
Core length	5			300	0.8	Air	3			0.97	0.93	0.84	0.84	1.00	0.90
				300	0.8	Air	5			0.97	0.94	0.86	0.86	1.00	0.91
				300	0.8	Air	10			0.92	0.85	0.76	0.76	1.00	0.89

Chapitre 2 - Incertitudes de l'inventaire de la tranchée T22 liées à l'exploitation d'une corrélation entre comptage gamma et activité

Standard deviation	5			300	0.5	Air	1			0.92	0.85	0.76	0.76	1.00	0.90	
				300	1	Air	1			0.92	0.84	0.76	0.76	1.00	0.91	
				300	1.25	Air	1			0.91	0.83	0.75	0.75	1.00	0.91	
				300	1.5	Air	1			0.90	0.82	0.75	0.75	1.00	0.91	
Attenuation factor	5			300	0.8	Saturated	1			0.94	0.87	0.77	0.78	1.00	0.88	
				300	0.8	Non saturated - Saturated	1			0.92	0.85	0.76	0.76	1.00	0.89	
				300	0.8	Non saturated - Half saturated - Saturated	1			0.93	0.86	0.76	0.76	1.00	0.89	
Case	rCs	rCo		MCs	MCo	SD	μ	Sample size	α^2	β^2	ρ	ρ^2	R ²	η^2	R ² / η^2	R ² / ρ^2
Cs+Co Range	5	2.5		300	10	0.8	Air	1	3/4	1/4	0.93	0.86	0.77	0.77	1.00	0.89
	5	5		300	10	0.8	Air	1	3/4	1/4	0.93	0.86	0.76	0.76	1.00	0.89
	5	10		300	10	0.8	Air	1	3/4	1/4	0.93	0.86	0.77	0.77	1.00	0.90
Cs+Co Mean	5	5		300	1	0.8	Air	1	1/2	1/2	0.93	0.86	0.76	0.76	1.00	0.89
	5	5		300	10	0.8	Air	1	1/2	1/2	0.93	0.86	0.77	0.77	1.00	0.89
	5	5		300	100	0.8	Air	1	1/2	1/2	0.83	0.69	0.62	0.62	1.00	0.90

In the next section, the ACR correlation is explored on data from Chernobyl Exclusion Zone.

4 APPLICATION TO THE EPIC SITE

4.1 Experimental dataset from Chernobyl Exclusion Zone

The EPIC site was established by a joint French-Ukrainian scientist team for waste dump characterization, monitoring and modeling studies in Chernobyl Exclusion Zone (Figure 2-14). A shallow radioactive waste disposal called "Trench T22" has been selected for characterizing the evolution of the radioactive contamination in soils and groundwater due to emergency waste disposals (Bugai et al., 2005). From 1999 to 2003 gamma-logging work was carried out into 138 boreholes drilled on a regular grid through the trench body down to the ground water level (up to 3 m deep). Radiometric measurements were made in each 0.06 m-wide borehole using a beta-gamma radiometer probe. Bugai et al. (2005) and Kashparov et al. (2012, 2004) detail the specifications of the radiometer used for these field measurements. The probe allowed measurements of ^{137}Cs gamma emission by filtering beta emission with a shield. In-situ borehole measurements were done with a counting time of 10 s per measurement, every 0.10 m along depth. For estimating the correlation coefficient between the count rate and activity concentration, a set of waste samples was collected during the drilling of boreholes for laboratory gamma-spectrometry analyses. Bugai et al. (2005) found the gamma-count rate into the boreholes to be well correlated with the ^{137}Cs activity concentration on soil samples at the same measurement point and used this correlation for estimating the ^{137}Cs inventory in Trench T22.

To update the radionuclide inventory, a similar field work was undertaken on the EPIC site from September 21st to September 25th 2015. The survey was organized within the same collaborative framework but with a lighter set-up: 15 boreholes were drilled by hand auger down to 4 m (to reach the bottom of the trench) and a beta-gamma radiometer probe was lowered into each borehole (Figure 2-14). The count rate was measured every 0.25 m above the water table into the soil vadose zone. Samples were taken at a depth interval of 0.50 m in each borehole. Laboratory measurements were carried out on a homogenized dry sample of 120 g, representing a 10 cm-long core sample. Gamma-spectrometry was performed using a low-background gamma-spectrometer with multichannel analyzer ASPEC-927 (software GammaVision 32) equipped with a passive shield and a semi-conducting detector of pure germanium GEM-30185 (EG&G ORTEC, USA). ^{137}Cs activity measurements performed on dry samples were corrected for taking into account the water content measured by gravimetric method on soil samples. A new correlation study was made to estimate the activity concentration of ^{137}Cs (on bulk samples) from the count rate.

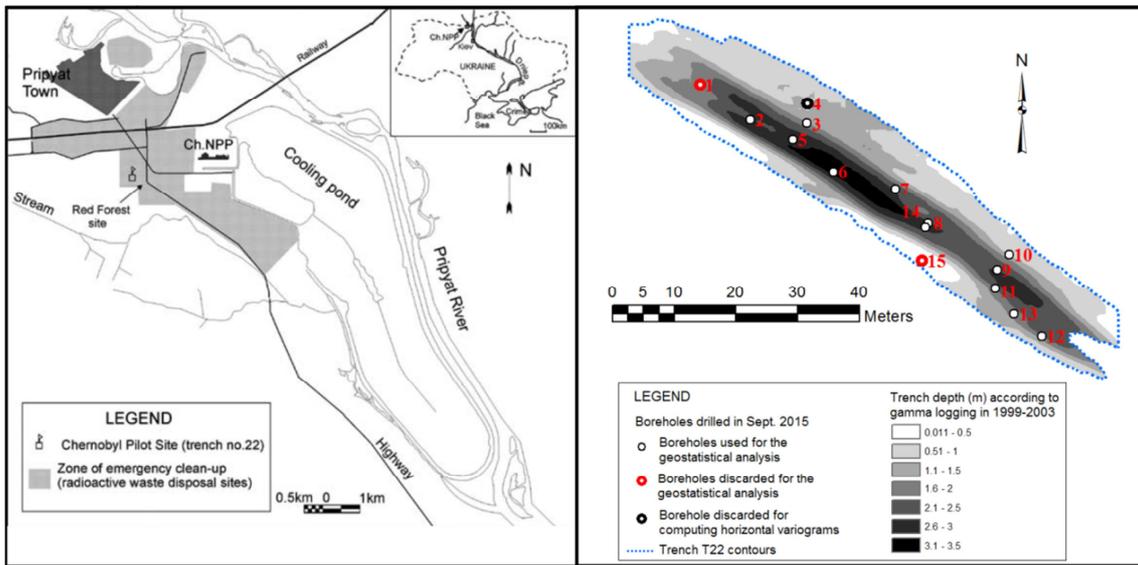


Figure 2-14 : Location of boreholes drilled in Trench T22 in Chernobyl Exclusion Zone in September 2015

4.2 Study of the ACR correlation

Statistics of the data acquired in September 2015 in Chernobyl exclusion zone are presented in Table 2-3. On the same data points, the variation coefficient is larger for the activity. This can reflect the convolution of the gamma count rate. Calculated on the whole data sets or only on common data points, the mean and standard deviation show a substantial relative variation. On non-transformed values (Figure 2-15) the regression shows a determination coefficient with $\rho^2 = 0.610$ whereas the log-transformed values present better correlation results with $\rho^2 = 0.80$. Surprisingly, though the correlation coefficient shows a moderate relationship between in situ count rates and sample activity, the discretization effect decreases R^2 but η^2 as well. Their ratio is thus nearly equal to 1, meaning that a linear regression is a good approximation to estimate the sample activity from in situ count rates.

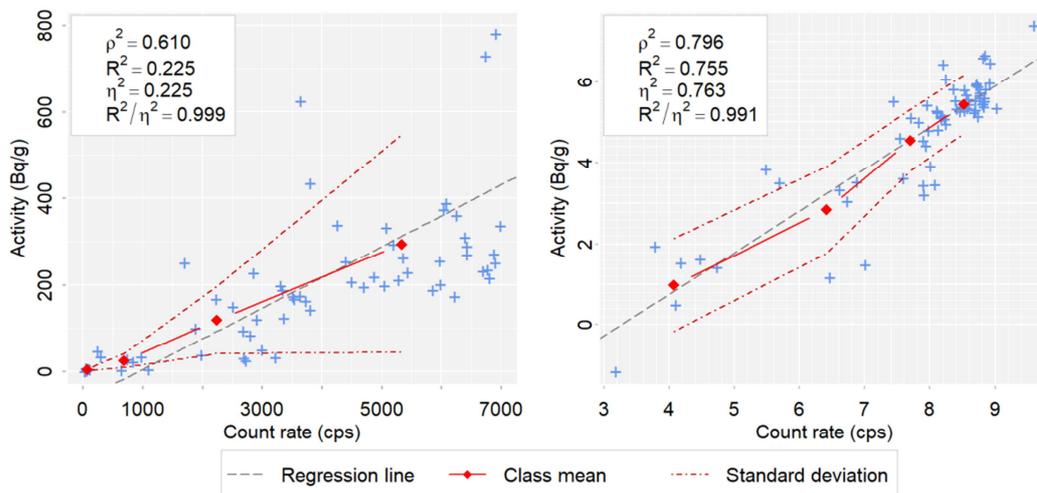


Figure 2-15: Linear regression (left) and lognormal regression (right) on data acquired in the Chernobyl Zone in September 2015

Table 2-3: Basic statistics of ¹³⁷Cs activity and gamma count rate data for Trench T22 soils of Chernobyl Exclusion Zone in Sept. 2015. (*without data from boreholes n° 1, 4 and 15)

Parameters	Monovariable		Bivariable			
	Activity	Gamma count rate	Activity	Gamma count rate	Activity*	Gamma count rate*
Number of points	90	155	69	69	56	56
Minimum	0.31	11	0.31	24	3.22	65
Maximum	1636	14660	1636	14660	1636	14660
Mean	192	3807	224	4094	259	4761
Standard deviation	224	2436	240	2640	249	2408
Variation coefficient	1.17	0.64	1.07	0.64	0.96	0.51
Determination coefficient	-	-	0.61		0.58	

Linear and lognormal regressions do not depend on the data localization and only consider the common measurements to build the correlation. Co-kriging enables to take into account the localization of the data and the additional gamma count rate measurements. This geostatistical method needs the calculation of simple and cross variograms and gives access to the estimation variance associated to the localization of the data. The statistics in Table 2-3 are given for different data sets as the data points are not identical for the two variables.

4.3 Geostatistical study of gamma count rates and laboratory measurements of 2015 ¹³⁷Cs data

The following geostatistical study is undertaken using the software ISATIS (Geovariances, 2017).

Let us now examine the spatial correlation between ¹³⁷Cs activity measurements and gamma logging in trench T22. Two boreholes among 15 are discarded for this analysis as one located along the trench South border displays very low ¹³⁷Cs activities and the coordinated of the other one are uncertain. The vertical variogram is computed from 13 remaining boreholes located in Figure 2-14. Only 8 boreholes are used for calculating the horizontal variogram crosswise from the main trench direction and 12 lengthwise.

For ¹³⁷Cs inventory assessment through the whole trench body by co-kriging of ¹³⁷Cs sample activity with gamma logging measurements, a 3D bivariate variogram model has to be built by combining variogram models for each space direction fitted to these different sets of borehole data. Contrary to the geostatistical bivariate correlation, the statistical comparison between ¹³⁷Cs sample activity and gamma logging measurements is performed over 13 boreholes corresponding to 56 data. The basic statistics of this dataset is reported in Table 2-3.

The lag of the sample vertical variogram is the distance between two measurements over depth (0.50 m). The horizontal simple and cross variograms along the main trench direction (Figure 2-16) are fitted accordingly to the linear model of coregionalization (Chilès and Delfiner, 2012). In this model, the simple variograms $\gamma_{ii,1 \leq i \leq 2}$ and the cross variograms $\gamma_{ij,i \neq j}$ are linear combinations of elementary spatial structures γ^u which are included into the cross-variogram only if they are present into both simple variograms. This model is formalized by Equation 2-15 where the symmetrical matrices ω_u^{ij} for a given u elementary structure correspond to variance-covariance matrices by structure. The ratio $\rho_u = \frac{\omega_u^{12}}{\sqrt{\omega_u^{11} \omega_u^{22}}}$ represents a correlation coefficient by structure.

$$\gamma_{ij}(h) = \sum_u \omega_u^{ij} \gamma^u(h) \quad \text{Equation 2-15}$$

The linear model of coregionalization is fitted using ISATIS software and is a cross-validated procedure consisting in putting aside one data at a time and estimating it with the model. The resulting model is a combination of a nugget component (γ^0) with an anisotropic exponential component (γ^1) given by Equation 2-16:

$$\begin{bmatrix} \gamma_{Cs}(h) & \gamma_{Gamma,Cs}(h) \\ \gamma_{Cs,Gamma}(h) & \gamma_{Gamma}(h) \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 10000 & 50000 \\ 50000 & 2300000 \end{bmatrix} \gamma^0(h) + \begin{bmatrix} 35000 & 240000 \\ 240000 & 2100000 \end{bmatrix} \gamma^1(h) \quad \text{Equation 2-16}$$

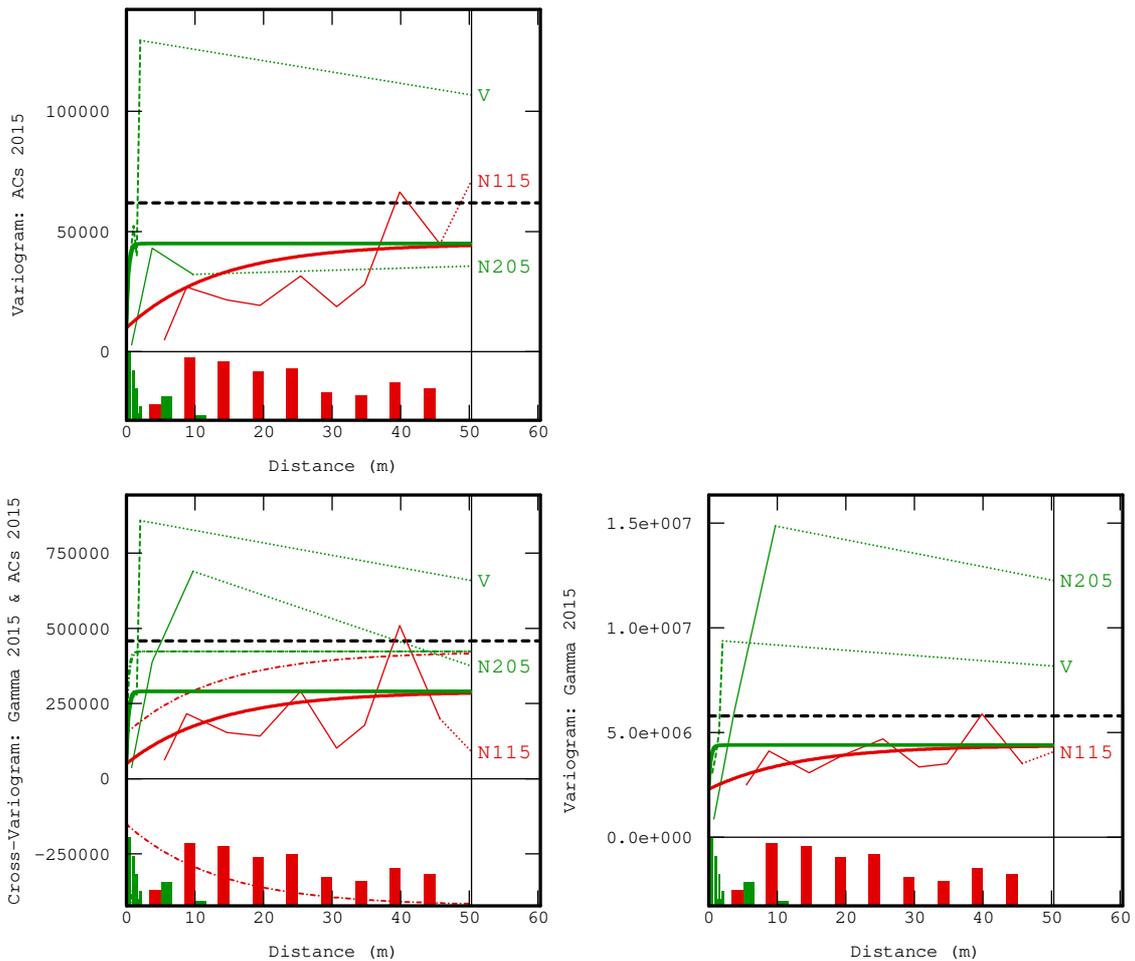


Figure 2-16: Simple and cross-variograms. The histograms represents the number of pairs used to calculate the experimental variogram.

The correlation coefficients by structure are respectively equal to 0.33 for the nugget component and 0.89 for the exponential one. The statistical correlation coefficient (0.61) lies between these two values. The correlation coefficients per structure reflect the results from the theoretical study: the correlation coefficient is low for the nugget effect and it is higher for the structural component.

The nugget component includes measurement errors and spatial variability on a scale lower than 0.5 m vertically and 7.5 m horizontally. These effects scramble the correlation between the in situ count rate and ^{137}Cs sample activity so that the correlation for the nugget component is low.

The exponential component reflects here the spatial behavior at distances which range from 0.5 to 1.5 m vertically and from 7 m to 35 m horizontally along the main direction of the trench. At large distances, it is well-known that the convolution does not modify the variogram behavior down to a multiplication factor. With its high correlation coefficient of 0.89, the fitted exponential structure for high distances shows that gamma count rates contain valuable information about the spatial variability of ^{137}Cs at such a scale.

These results validate the methodology which consists in performing many measurements by gamma logging along with analyzing radionuclide activity only on a few soil samples in order to establish a linear regression between these two variables. However the samples have to be numerous enough to allow a robust geostatistical analysis. Contrary to the statistical analysis, fitting a bivariate variogram specifies the correlation at the different scales of spatial variability. Such a bivariate model could next be used for co-kriging gamma-emitting radionuclide activity using both scarce laboratory analyses and numerous gamma logging measurements.

4.4 Comparison of different activity estimators

The estimations of the sample activity from the linear regression, the lognormal regression and the cokriging are compared. To do so, as little data is available, the data set is divided in 5 subsets according to the depth of measurement. For the linear regression and the lognormal regression, one set of data is put aside in order to fit a regression line on the remaining 4/5 of the data. Then the data put aside is estimated by the regression line. The procedure is repeated five times.

The estimated data from the lognormal regression is corrected from the bias $\frac{1}{2}s_{\ln(Cs)}^2(1-\rho^2)$. To cross validate the linear model of coregionalization, the procedure is similar but the variogram model remains the same for all subsets. Moreover, instead of the linear and lognormal regressions which only use the data that is common to both variables, co-kriging takes into account the entirety of the gamma count rate measurements. Scatter plots are presented in Figure 2-17.

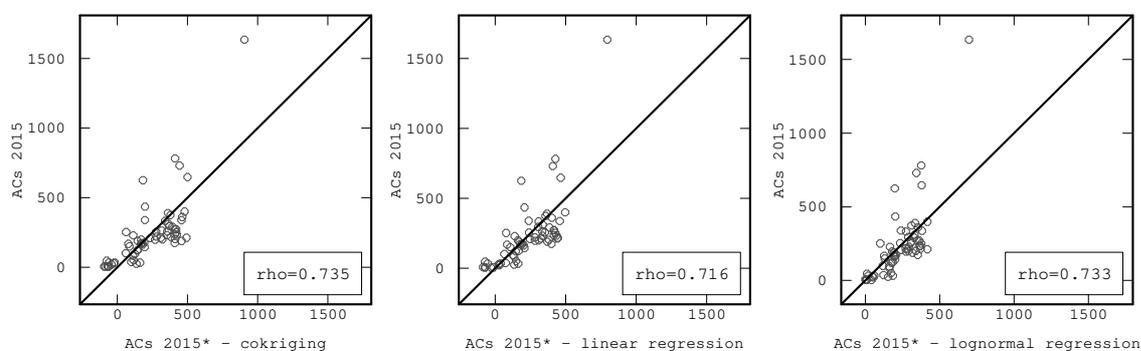


Figure 2-17: Comparison of estimated values and real values for the cokriging, the linear regression and the lognormal regression

The best results are obtained by cokriging. The mean of the estimation error, which is the difference between the real value and the estimated value, is closer to zero and its standard deviation is slightly lower than the standard deviation of the estimation error of the linear regression and the lognormal regression (Table 2-4). Then the linear regression has better results than the lognormal regression as two parameters out of three display better values: the mean of the estimation error and its standard deviation is lower. The difference is low but it is systematic.

Table 2-4: Results of the cross validation on 65 test points. The best ranking is equal to 1.

Parameters	Cokriging	Linear regression	Lognormal regression
Correlation coefficient	0.74	0.72	0.73
Mean of the estimation error	0.04	-1.81	4.17
Standard deviation of the estimation error	164	168	170
Mean ranking	1	2.3	2.7

5 SYNTHESIS AND DISCUSSION

The theoretical results confirm that the correlation observed between theoretical in situ count rates and core sample activities is due to the spatial correlation between the core material and the surrounding medium which are disjoint subsets of the same medium. It logically follows that a decreasing spatial correlation range tends to scramble the ACR correlation up to the point that this correlation no longer exists in the case of a pure nugget effect. Nevertheless, nested spatial structures show that the different scales of range variation do not have the same impact on this correlation: the short-range component which has the most significant impact on the correlation strength, compared to the long range component. Moreover, the ACR correlation often displays heteroscedasticity reflected by a higher variance associated with the highest values of count rates and sample activities. Because of this proportional effect, the linear regression should be established on log-transformed values of count rates rather than arithmetic values (Carrier, 1964) and the bias induced by the back-transformation has to be corrected (Krige, 1981).

This paper moreover demonstrates that the correlation can be scattered by several parameters including (but not restricted to): the anisotropy of the spatial structure, the presence of a small-scale spatial structure, or high standard deviation of the activity. Many other effects, not studied here, can be suspected to alter the correlation strength and reinforce its heteroscedasticity: e.g. measurement errors, defective homogenization of the core sample, Compton scattering of photons in soils, etc. In the case of complex contaminations, it appears that the data analysis should focus on studying the statistical properties of classes (i.e. low-medium-high values) rather than fitting a linear regression model. A different calibration of the probe may be required for these different classes of values encountered in the field. The size of the core sample was not found to have a systematic effect on the correlation strength in the tested cases.

The length of the core sample needs to be compared retrospectively to the range of the different spatial structures that the characterization will unveil. Generally, homogenization of the core material along the borehole is expected to increase the strength of the correlation up to the point that the homogenized sample length reaches the range of the large-scale spatial structure. However, the relationship between support and correlation is complex and the length of the core sample is defined primarily in relation with the goal of the characterization works (i.e. risk assessment, decontamination, etc.) and not just to improve the correlation strength between core measurement and gamma count rate.

The correlation was found to be much more scrambled by other gamma-emitting radionuclides in the case of multiple contaminations when the spatial pattern of the secondary radionuclides does not match that of the most abundant gamma-emitting contaminant. This effect can be avoided by using proper instruments such as a gamma spectrometer that can differentiate the perceived gamma emission energy and counting rate for each of them.

The correlation should also be drawn for measurements taken in similar environments as the measurement support can differ from one environment to another. However the climatic conditions that produce a stratified moisture content variation with depth are not expected to significantly alter the correlation so that it may remain reproducible regardless of the sampling period.

Considering the above, the ACR correlation can be used to all fields pertaining to gamma ray emission measurements and can be applied to radionuclide inventory estimation. If a relevant correlation is observed

in the field, in situ radiometric measurements can be used as a secondary variable of a co-kriging in order to estimate the radionuclide inventory in 3D from scarce and more expensive laboratory measurements. This method requires however an important amount of boreholes to be drilled through the contaminated zone in order to fit a bivariate variogram model. However, if the laboratory measurements are available only on a few (vertical) boreholes, one can try to fit the bivariate variogram in the vertical direction, and extend the model on the other ones.

Empirical solutions remain acceptable, such as considering, for the regressions, several count rate values per borehole if they are at a distance from which their support can be considered as independent. Even when precise laboratory measurements are too scarce to be used as a primary co-kriging variable, the linear regression can still be empirically used, and presents better results than lognormal regression, for roughly estimating the activity concentration in order to increase the set of available information for estimating a radionuclide inventory. This paper however highlights that the direct use of such a correlation is going to be associated with a relevant uncertainty, especially for high count rates values because of the likely correlation heteroscedasticity. And as mentioned by Carlier (1964), the regression established in a zone is not transposable to another one. In that case, only the statistical properties of count rate classes (e.g. low-medium-high values) appear to make sense. If the laboratory measurements are more numerous, an empirical simplification consists in transforming the Gamma count rate by cokriging rather than by the linear regression .

Taking into account the source-term spatial variability in contaminated environments appears to be of primary importance for better forecasting radionuclide behavior and their associated risks on ecosystems. Though initially developed for estimating ore grades in the mining industry, the cost-effective gamma logging is here promoted for environmental purposes in order to characterize gamma-emitting radionuclide contamination and dealing with its spatial variability.

CHAPITRE 3

Incertitudes sur le stock de la tranchée T22

En 1987, les tranchées de déchets radioactifs de la zone d'exclusion de Tchernobyl, creusées en urgence au bulldozer, n'ont pas été bien répertoriées. La délimitation de la tranchée T22 et la détermination de son stock en radionucléides ont ainsi fait partie des problèmes majeurs rencontrés lors de la caractérisation du site EPIC menée en 1999-2002 (Bugai et al., 2005). Pour caractériser au mieux la tranchée, des travaux d'exploration comprenant des forages, des mesures *in situ* d'émission de rayons gamma ainsi qu'une campagne de mesures géoradar ont été entrepris (cf. Chapitre 1; Bugai et al., 2005; Kashparov et al., 2004; Matoshko, 2002). Ces travaux avaient permis d'obtenir une première estimation du stock de Cs137, principal émetteur gamma présents dans les déchets de la tranchée T22 en 1999.

L'utilisation des données et l'évaluation des incertitudes qui leur sont associées peuvent néanmoins être améliorées. En effet, les données issues de l'interprétation du géoradar bien que moins précises, couvrent l'ensemble du site EPIC contrairement aux mesures radiométriques en forage. Ces deux types de mesures sont donc exploités conjointement dans ce chapitre pour délimiter la tranchée. Par ailleurs, dans l'analyse géostatistique de Bugai et Dewière (2003), des approximations sont soulevées concernant la redondance des données, la limite arbitraire de 100 kg/kBq utilisée et l'utilisation du krigeage lognormal sans prendre en compte de facteur de correction ce qui a induit un biais (Chilès et Delfiner, 2012). Cette étude géostatistique est donc reprise pour calculer le stock de ¹³⁷Cs de la tranchée et en déduire les incertitudes associées.

Cependant, n'ayant à notre disposition que l'équation de la corrélation entre mesures en laboratoire et mesures *in situ*, le stock de la tranchée est réestimé à partir des données de comptage gamma prises en 1999-2003 déjà converties en activité. De plus, la campagne de terrain étant moins dense que celle de 1999-2003, la réestimation s'effectue seulement sur les données de Bugai et Dewière (2003). Les données issues de la campagne de mesures de 2015 sont ensuite exploitées afin d'identifier l'impact d'une stratégie d'échantillonnage plus restreinte sur l'estimation du stock.

Dans ce chapitre, le calcul du volume de la tranchée T22 est tout d'abord abordé. Puis, la distribution spatiale de l'activité et le stock seront réévalués en prenant en compte ou non les nouvelles limites de la tranchée. Enfin, les données de la campagne de terrain de 2015 sont examinées. Le logiciel ISATIS commercialisé par Géovariances est utilisé pour les analyses géostatistiques.

1 EVALUATION DU VOLUME DE LA TRANCHEE T22

1.1 Les différents types de données : géoradar et radiométrie

1.1.1 Géoradar

Sur les profils géoradar, il est possible de distinguer les limites inférieure et supérieure de la tranchée. La limite inférieure serait dessinée par le bulldozer qui l'a creusé. La limite supérieure serait quant à elle associée à la couche de sols remaniés qui recouvre la tranchée. Elle n'est pas prise en compte dans la suite car les données issues du comptage gamma, converties en activité, présentent des valeurs non nulles

directement sous la surface. On admet donc que la couche de sols remaniés est contaminée et donc que la limite supérieure n'est pas une limite distincte. C'est pourquoi les contours de la tranchée seront définis par la limite inférieure et la topographie.

Les profils géoradar sont géoréférencés, les limites inférieures et la topographie sont numérisées sous ArcGIS selon l'interprétation de Matoshko (2002). Le géoréférencement des profils est vérifié en comparant les longueurs des profils présentés en coupe et sur la carte. L'erreur de numérisation ne dépasse pas 1.5%. De plus, la topographie des profils géoradar a été comparée à celle élaborée en 1999 sur une zone quadrillée d'une mesure tous les 5 m recouvrant la totalité de la tranchée. La topographie des profils géoradar est approximativement concordante à celle établie par krigeage des levés topographiques (Figure 3-1). Les données numérisées sont réparties densément le long de ceux-ci tandis qu'entre les tranchées, aucune donnée n'est disponible (Figure 3-1). La tranchée est absente du profil X1 seulement. Il est à noter que la surface du profil X11-1 semble plus accentuée que la surface du site et que certains profils ne recoupent pas ce profil transversal. Le profil X11-1 doit donc être considéré avec précaution.

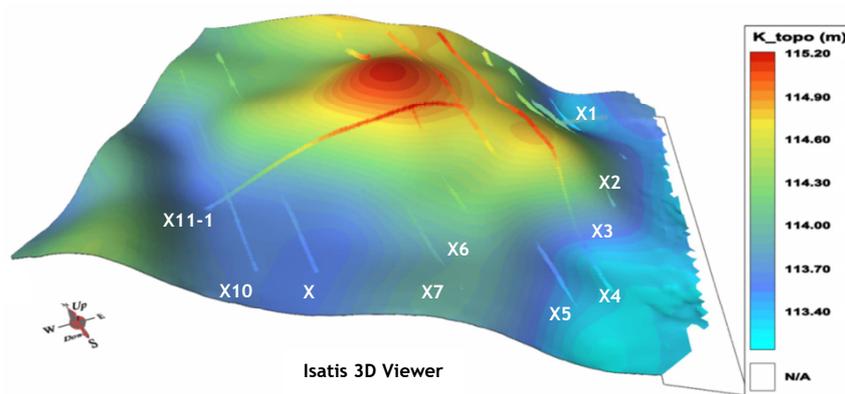


Figure 3-1 : Topographie des profils et topographie issue de la campagne topographique (échelle Z magnifiée x10)

1.1.2 Mesures radiométriques

Pour alléger la présentation, les données de comptage gamma converties en activité de ^{137}Cs dans les sols sont désignées par « données d'activité » dans ce chapitre.

Pour établir un seuil de limite de la tranchée, les données d'activité sont explorées. Si on écarte les valeurs égales à la limite de détection de 0 kBq/kg, le profil de la tranchée se dessine alors comme un « U » élargi (Figure 3-2). Cette limite n'est pas présente sur l'ensemble de la tranchée : au fond de certains forages, des activités de l'ordre de 100 kBq/kg sont mesurées. Les sondages ne dessinent pas entièrement la géométrie de la tranchée et la tranchée paraît donc plus profonde. Par ailleurs les valeurs fortes (supérieures à 800 kBq/kg) sont réparties de manière hétérogène dans la tranchée. Certaines se trouvent en bordure de la partie nord de la tranchée, et proches de valeurs nulles, indiquant qu'il est possible que la tranchée soit plus large qu'elle n'est représentée.

Sur un forage, l'activité croît de manière exponentielle sur la première dizaine de centimètres de profondeur. Cette partie pourrait correspondre à la couche remaniée déposée sur les déchets de la tranchée. Le profil est ensuite relativement régulier : une valeur forte est accompagnée de valeurs légèrement plus faibles (Figure 3-2). Cette régularité est inhérente à la méthode de mesure qui prend en compte le rayonnement environnant.

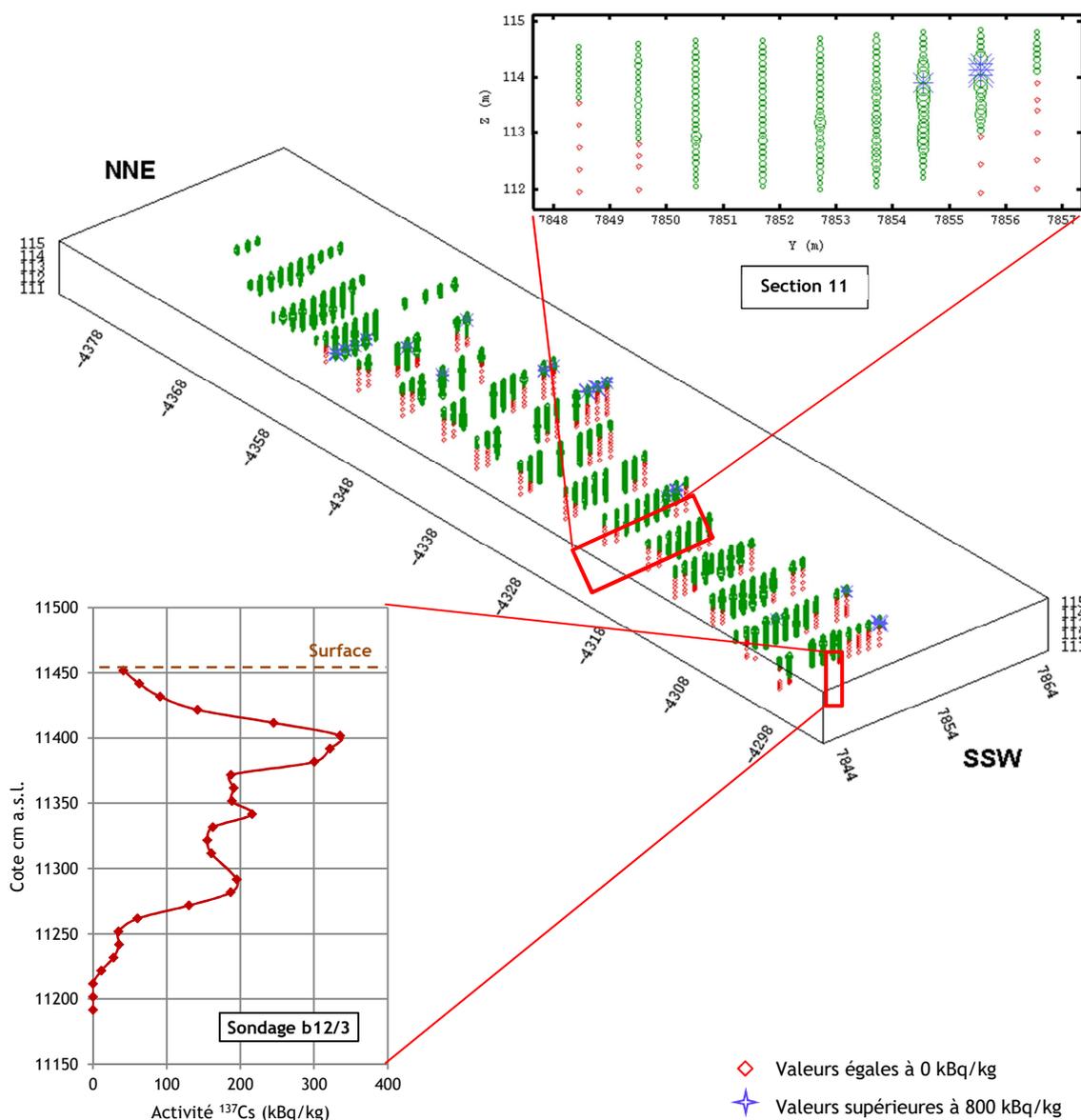


Figure 3-2 : Données d'activité en ^{137}Cs - Vue en 3D, en coupe et le long d'un profil

La représentation des données par section verticale de sondages (exemple de section sur la Figure 3-2) fait apparaître des populations de faibles activités (de 0 à 30 voire 40 kBq/kg) dans l'histogramme des données (Figure 3-3). Ces faibles activités délimitent bien la tranchée en extrémité NNW, mais ne permettent néanmoins pas d'appréhender la géométrie complète de la tranchée. La limite de 100 kBq/kg utilisée pour écarter les données à l'extérieur de la tranchée par Bugai et Dewière (2003) ne serait donc pas basée sur l'analyse des données, mais certainement sur le classement des déchets radioactifs selon leur l'activité.

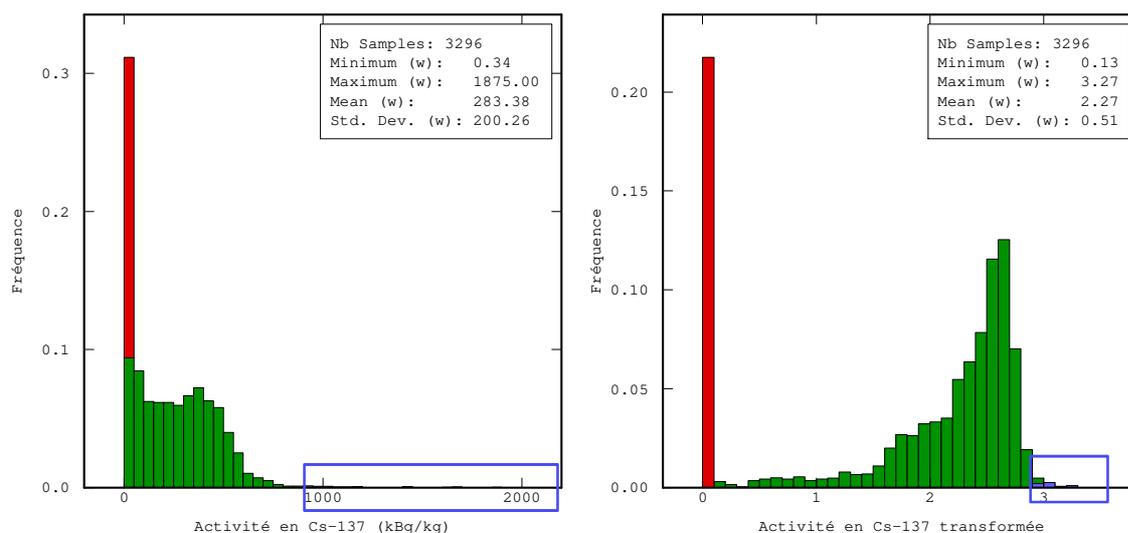


Figure 3-3 : Histogramme des données d'activité.

A gauche, les valeurs réelles, à droite les valeurs transformées en logarithme translaté.
 En rouge, les valeurs égales à 0 kBq/kg. En bleu, les valeurs supérieures à 800 kBq/kg.
 Les statistiques ne tiennent pas compte des valeurs nulles.

En effet, le bruit de fond en ^{137}Cs dans les sols autour de la tranchée varie entre de 0.5 et 1 kBq/kg (Guillou et al. 2000). Il caractérise en quelque sorte l'activité « de fond » qui permettrait de distinguer la présence ou l'absence de radioactivité, donc l'absence ou la présence de la tranchée. Toutefois, avec un seuil à 0.5 ou 1 kBq/kg, seuls 65 points peuvent être utilisés contre 100 avec un seuil de 20 kBq/kg. Ce changement de seuil revient à augmenter le volume total de la tranchée de 4% (pour des dimensions de la tranchée de 80 m de longueur, 4 m de large et 2.5 m de profondeur, en considérant que le changement de limite réduit le volume de 10 cm de hauteur sur l'ensemble de la tranchée) ce qui est négligeable.

Ainsi, pour la délimitation de la tranchée, le seuil a été fixé à 20 kBq/kg. Les cotes de la limite inférieure de la tranchée n'étant pas disponibles sur la plupart des sondages pour cette activité, elles ont été calculées par interpolation linéaire en utilisant les cotes des activités encadrant la valeur de 20 kBq/kg. Il aurait été possible de traiter ces données en proposant un encadrement de la valeur de cote lorsqu'elle n'est pas connue (Langlais, 1990).

Comme les données de sondages ne délimitent pas précisément la tranchée (certains sondages traversent de haut en bas la tranchée, tandis que d'autres s'arrêtent au sein de la tranchée), les données de géoradar sont utilisées pour fournir des informations supplémentaires car les profils recouvrent plus largement l'ensemble de la tranchée. L'analyse géostatistique des données seules de géoradar n'a pas été concluante à cause de la répartition irrégulière des profils (10 profils N-S et un seul profil E-W). Elle est donc reprise en utilisant conjointement les données de cote fournies par les mesures d'activité (plus précises mais incomplètes) et le géoradar (moins précis mais déployé plus largement).

Pour estimer les limites de la tranchée T22, deux types de données ont été utilisés conjointement dans une étude bivariable :

- les cotes où des activités significatives en ^{137}Cs de 20 kBq/kg dans les sols de la tranchée T22 ont été identifiées dans les sondages par comptage gamma, et
- les cotes déduites de la numérisation des profils géoradar interprétés.

1.2 Analyse statistique

Les cotes de la base de la tranchée obtenues par géoradar ont été restreintes autour des données de cotes déduites de l'analyse des données d'activités pour les utiliser en tant que variable auxiliaire pour le cokrigage des contours de la tranchée (Figure 3-4). Les profils géoradar ont été orientés principalement

dans la direction N-S. Seulement un profil a été fait selon la direction E-O. Du fait de la numérisation, les points sont très rapprochés sur les profils. L'irrégularité de la répartition pourrait avoir une incidence sur l'étude géostatistique.

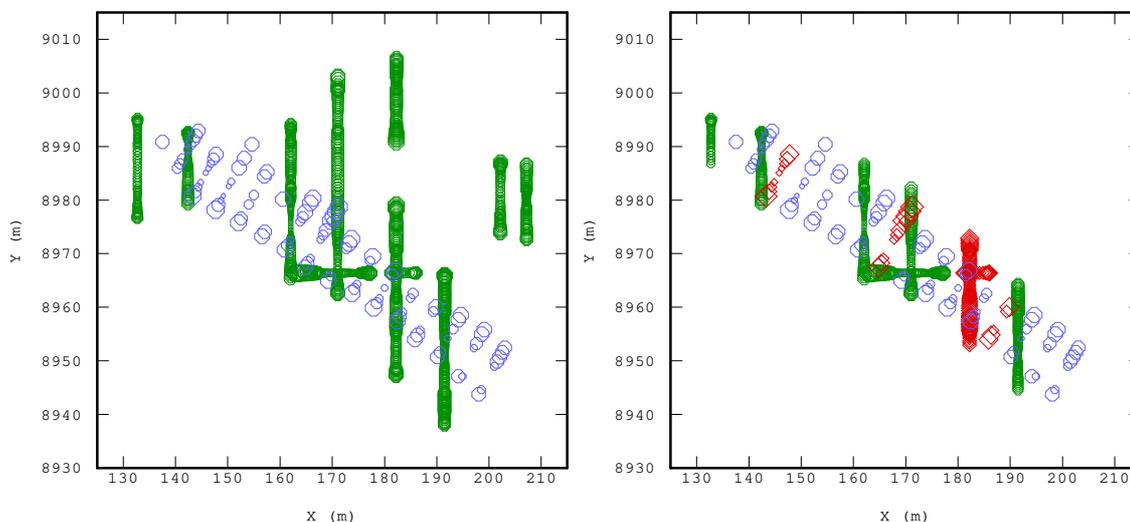


Figure 3-4 : Localisation des données utilisées pour la détermination des limites de la tranchée T22 (gauche) - Restriction des données géoradar autour des données d'activité pour le cokrigage et données utilisées pour une partie de la validation croisée en rouge (droite)

Pour valider un modèle de variogramme, les données de 3 sections de cotes d'activité (25%), et les données d'une partie des profils de géoradar ont été mises de côté (environ 20%) (en rouge sur la Figure 3-4).

Les statistiques et les histogrammes des jeux de données utilisés sont présentés au Tableau 3-1 et à la Figure 3-4. Les données ne présentent pas de distribution particulière. L'écartement de certaines valeurs pour la validation croisée réduit très légèrement la moyenne et l'écart-type des données.

Tableau 3-1 : Statistiques élémentaires des données de cotes issues de l'activité et du géoradar

Paramètres	Cote de l'activité	Cote de l'activité*	Cote du géoradar	Cote du géoradar*
Nombre de points	100	75	524	427
Minimum	111.46	111.46	110.73	110.73
Maximum	114.31	114.31	114.21	114.21
Moyenne	113.10	113.12	112.23	112.16
Ecart-type	0.75	0.71	0.62	0.64

*sans les données écartées pour la validation croisée

1.3 Analyse variographique

Pour l'analyse des données et leur traitement par géostatistique, des éléments de méthodologie sont proposés par les thèses de Jeannée (2001) et Desnoyers (2010), l'une dans le cas de pollution de sol, sur des mesures de concentration en hydrocarbures aromatiques polycycliques, et l'autre sur des mesures surfaciques de rayonnement beta-gamma issues d'une installation nucléaire en cours de démantèlement ; ou encore dans les travaux de de Fouquet (2011, 2006). Les méthodes de la géostatistique linéaire ont aussi fait l'objet de nombreux ouvrages et cours (Chauvet, 2008; Chilès et Delfiner, 2012; Emery, 2001; Rivoirard, 1995; Wackernagel, 1995) dont la suite de cette étude s'est largement inspirée.

Ici, le variogramme a été calculé à un pas de 1 m pour les cotes issues du géoradar et à un pas de 5 m pour celles de l'activité (Figure 3-5), selon le pas de numérisation et le schéma de prélèvement des échantillons

de sols de 1 m dans la direction Y de la largeur de la tranchée et de 5 m dans celle de la longueur de la tranchée (X) (cf. Chapitre 1).

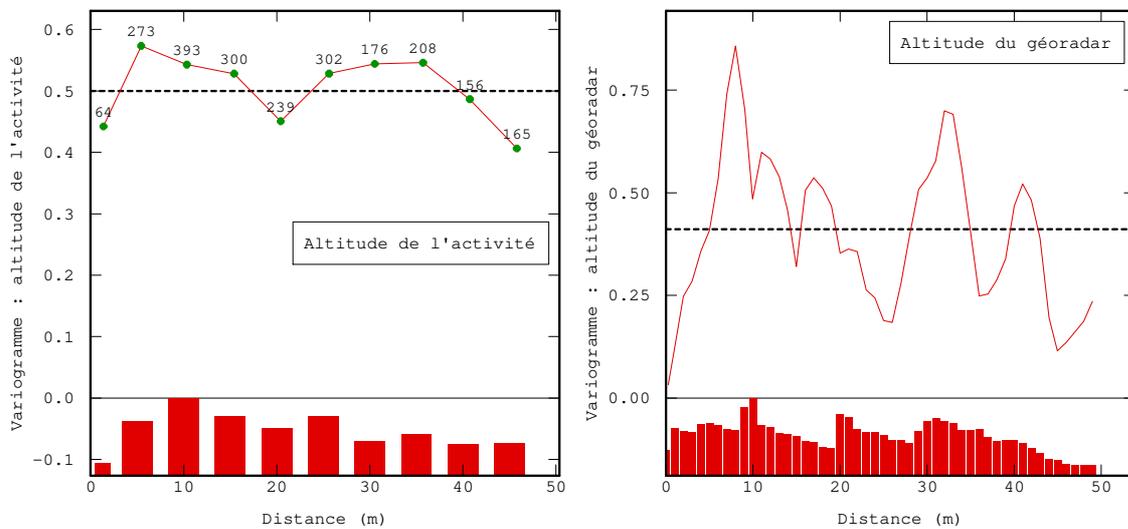


Figure 3-5 : Variogrammes omnidirectionnels des cotes issues de l'activité (gauche) et géoradar (droite) et histogrammes du nombre de couples utilisés pour construire les variogrammes

La taille du champ étant d'environ 80 m, le variogramme a été calculé jusqu'à une distance de 40 m. Le variogramme omnidirectionnel du géoradar présente une fluctuation autour d'une variance de 0.4 et une portée de 7 m. Le variogramme omnidirectionnel des données d'activité semble plus ou moins constant autour d'une variance de 0.5. La structure à petite échelle ne semble pas visible pour un pas de calcul de 5 m.

Selon les études précédentes de délimitation de la tranchée (Bugai et al., 2005; Bugai et Dewière, 2003; Matoshko, 2002), une anisotropie avec une plus grande portée parallèlement à la longueur de la tranchée (direction NNW-SSE) a été mise en évidence. Afin de vérifier si elle existe, il est nécessaire de calculer des variogrammes expérimentaux dans différentes directions (Figure 3-6). Une carte variographique peut aussi être utilisée pour la déceler.

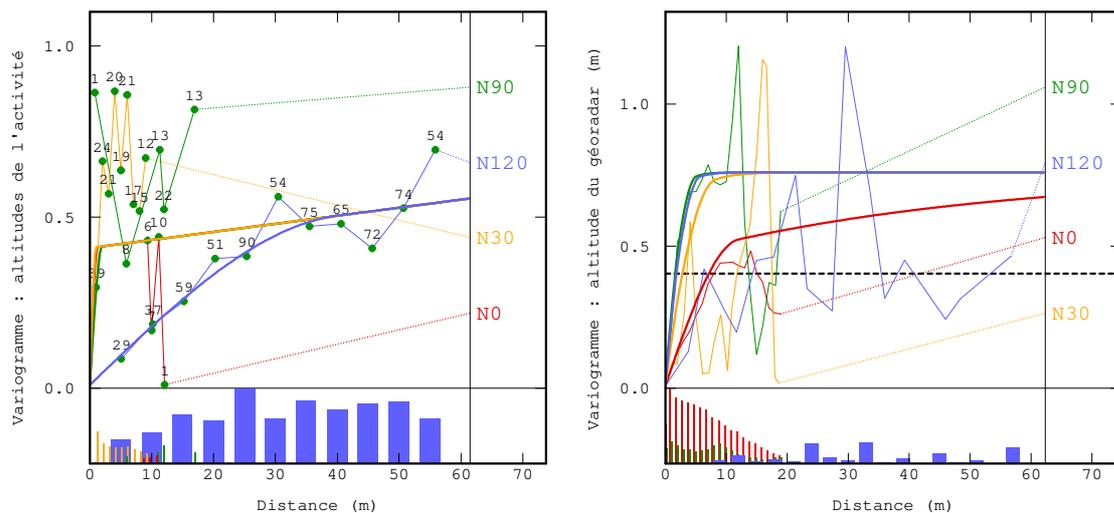


Figure 3-6 : Variogrammes expérimentaux directionnels, leur ajustement sur les données de cotes de l'activité et les histogrammes du nombre de couples utilisés pour construire les variogrammes. (gauche) et du géoradar (droite) dans le cas stationnaire monovarié

Les variogrammes ont été tracés dans les directions N0 (N-S), N30 (NNE-SSW), N90 (E-W) et N120 (NNW-SSE) selon l'orientation des données géoradar et la direction de la tranchée (Figure 3-6).

Etant donnée la répartition des données des profils géoradar, les variogrammes orientés N0 et N90 ont un poids plus important que dans les directions N30 et N120. Leur comportement diffère à petite échelle : une plus grande variabilité apparaît dans le variogramme calculé dans la direction N90. Néanmoins, à ces distances, seules les données du profil X11-1 sont prises en compte. Il convient de vérifier comment varient les données de ce profil avant d'établir l'existence d'une anisotropie (Tableau 3-2). Les données de X11-1 font partie des données les plus profondes des mesures géoradar. La moyenne des données de X11-1 est proche de celle des données des autres profils. Par ailleurs, les écarts-types entre les données avec ou sans le profil X11-1 sont relativement différents. En étudiant le variogramme avec ou sans le profil X11-1, il semblerait que seul le profil X11-1 influence le variogramme dans la direction E-W. Néanmoins, comme ce profil n'est pas fiable (cf. partie 1.1 p43), une moindre importance est accordée au variogramme dans la direction N90. Ainsi, dans les autres directions, les variogrammes paraissent isotropes à petite distance (Figure 3-6).

Tableau 3-2 : Comparaison des statistiques entre les cotes issues du géoradar des profils X11-1 et des autres profils

Paramètres	Profil X11-1	Autres profils
Nombre de données	83	826
Minimum	111.31	110.73
Maximum	114.21	113.85
Moyenne	112.56	112.36
Médiane	112.43	112.39
Ecart-type	0.85	0.55

Les variogrammes directionnels des cotes de l'activité semblent présenter une anisotropie, en lien avec la géométrie en « U » élargie de la tranchée : la portée présumée du variogramme dans la direction N30, de l'ordre de quelques mètres, est largement plus inférieure à la portée dans la direction N120. Sur ce dernier, une tendance linéaire peut être décelée. Le variogramme pourrait aussi se stabiliser à une distance d'environ 40 m.

Le variogramme théorique peut être approché par le variogramme expérimental qui mesure la dissemblance entre deux mesures en fonction de la distance. Un modèle ajusté décrit le phénomène. Le modèle sphérique, gaussien ou encore exponentiel figurent parmi les modèles les plus utilisés. Un modèle peut aussi se présenter sous la forme d'une somme de composantes (schéma gigogne) où chaque structure caractérise la variabilité à une certaine échelle.

Les variogrammes directionnels des cotes de l'activité et du géoradar ont été ajustés (Figure 3-6 et Annexe). Les modèles choisis ne sont pas uniques car l'ajustement est ici subjectif. L'ajustement du variogramme expérimental des données de géoradar est guidé par les variogrammes de direction N0 et N90, les mieux informés. Il est difficile d'ajuster le variogramme expérimental dans la direction de la tranchée (N120) tout en respectant l'ajustement des directions N0 et N90, car le comportement du variogramme N120 pour la variable d'activité laisse place à plusieurs hypothèses de stationnarité ou de non-stationnarité.

Dans le cas bivariable, l'analyse variographique examine s'il existe une structure commune aux deux ensembles de mesures. Néanmoins, en cas d'hétérotopie totale (les variables n'ont aucun point en commun), le variogramme croisé n'est pas calculable, contrairement à la covariance croisée. L'analyse variographique s'effectue donc sur les covariances simples et croisées. A la Figure 3-7, la direction N120 de la covariance simple des données d'activité s'impose sur la covariance croisée. Un modèle commun peut donc exister sous réserve de stationnarité.

L'ajustement est effectué à l'aide de l'ajustement des variogrammes simples. Ces modèles sont utilisés afin de trouver une structure conjointe aux deux variables, dans le cadre du modèle linéaire de corégionalisation. Pour ajuster un modèle linéaire de corégionalisation dans le cas bivariable, les structures de base communes des modèles de variogramme simple des deux jeux de données sont choisies. Plusieurs

structures gigognes sont possibles. Ensuite, pour chaque structure de base, une matrice de paliers vérifiant l'inégalité de Cauchy-Schwarz est calée. Dans le modèle, la variable auxiliaire ne peut qu'augmenter la précision de l'estimation de la variable principale. Ici, une structure gigogne combinant un effet de pépité et une composante exponentielle est ajustée (Figure 3-7). Les coefficients de corrélation par structure sont de 0.85 pour l'effet de pépité et de 0.45 pour la composante exponentielle et indiquent qu'une corrélation existe à grande distance. L'effet de pépité peut représenter une structure non décelable à petit échelle et l'erreur de mesure.

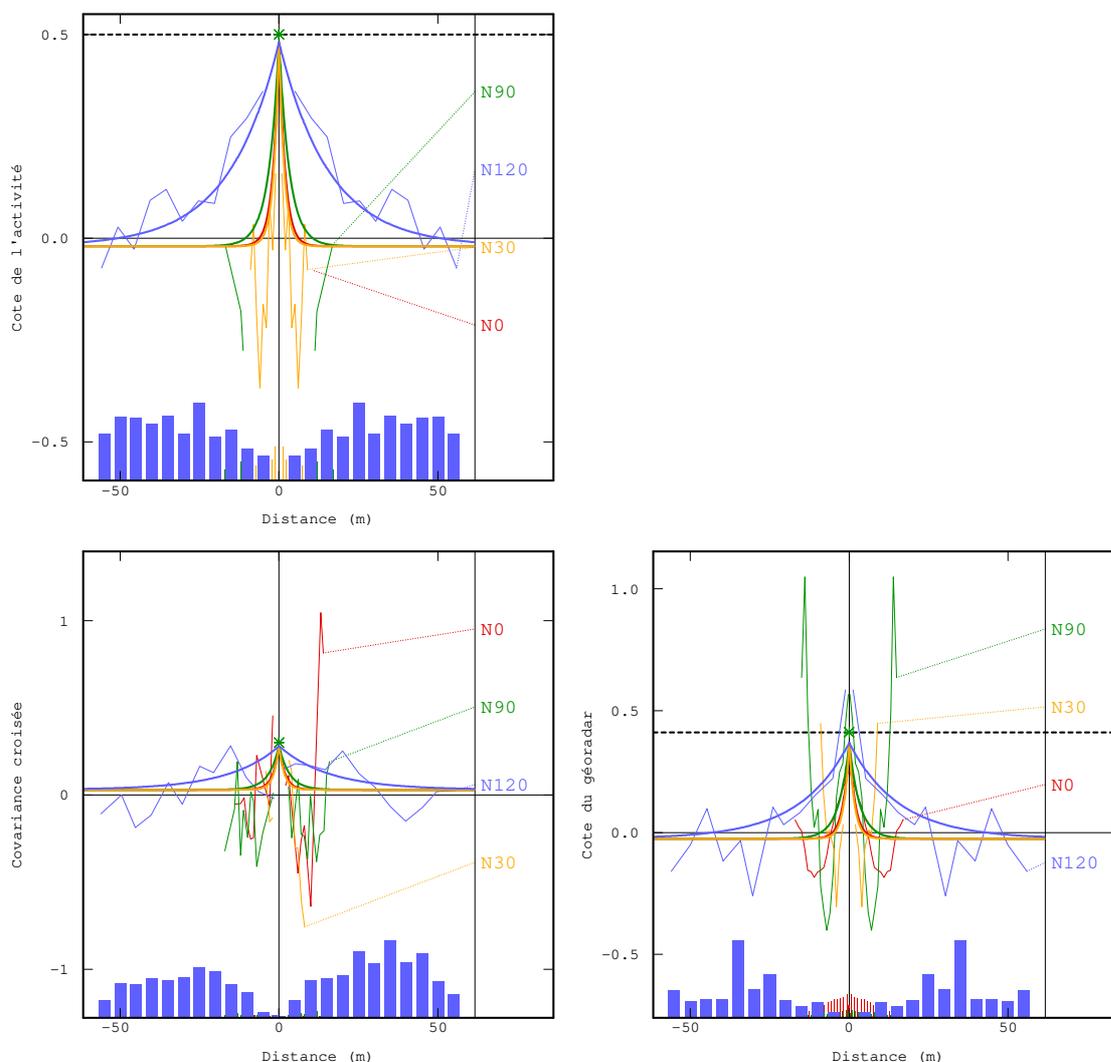


Figure 3-7 : Ajustement de la covariance croisée par une structure gigogne (combinaison d'un effet de pépité et d'un modèle exponentiel)

La tranchée ayant une forme de « cuvette », la cote de la limite inférieure de la tranchée peut être supposée non-stationnaire. Le but de cette procédure est de trouver des combinaisons linéaires pour que les données soient stationnaires. Pour ce faire, les accroissements d'ordre supérieur sont utilisés afin de filtrer ce qui pourrait composer la dérive. L'analyse variographique dans le cas non-stationnaire consiste ainsi à déterminer le degré de la dérive (la tendance polynomiale dans le voisinage envisagé qui peut être différente si on considère un voisinage unique ou glissant), puis, à ajuster la covariance généralisée. Le logiciel ISATIS permet de déterminer l'ordre de la dérive et d'ajuster le palier de la covariance croisée automatiquement. Plusieurs structures de base sont testées.

Nous avons ainsi plusieurs modèles structuraux possibles, dont les paramètres de calcul se trouvent en Annexe, pour l'estimation des limites de la tranchée. Pour déterminer le meilleur d'entre eux, nous procédons à une validation croisée.

1.4 Estimation

Les techniques classiques d'interpolation ne prennent pas en compte les structures spatiales de la variable estimée. Le krigeage, via la modélisation de la fonction de covariance ou du variogramme, permet de prendre en compte les distances entre les données, les distances entre les données et la cible, la structure spatiale et des informations complémentaires si elles sont disponibles. De plus, il quantifie la qualité des estimations via la variance d'estimation et peut gérer les redondances de données. Dans le cadre probabiliste, le krigeage fournit des pondérateurs des combinaisons linéaires des données disponibles vérifiant une variance minimale de l'erreur d'estimation et la condition de non-biais dans le modèle : il fixe systématiquement la moyenne des erreurs à zéro.

1.4.1 Validation croisée

La validation croisée permet de comparer les valeurs vraies aux valeurs estimées, et ainsi de valider ou non le modèle structural choisi. Dans cette procédure, chaque point où la variable régionalisée est définie est estimé. Cette donnée est temporairement mise de côté et la variable à ce point est estimée par krigeage en utilisant les informations avoisinant le point. L'erreur d'estimation ε qui est la différence entre la valeur vraie Z et la valeur estimée Z^* , est calculée en chaque point de donnée. Elle est ensuite comparée à l'écart-type d'estimation σ_K pour quantifier la précision de l'estimation. Si on procède à une validation croisée classique en ôtant une à une les données et en les ré-estimant par leurs voisins, le résultat peut apparaître probant car de nombreux points sont disponibles dans le voisinage. C'est pourquoi les données ont été mises de côté par section ou par paquet (dans le cas des données de géoradar) (Figure 3-4).

A chaque validation croisée, toutes les combinaisons possibles de voisinage et de modèle structural sont testées. Le krigeage s'effectue dans un voisinage unique (toutes les données sont utilisées pour l'estimation d'un point), ou glissant (les données prises en compte pendant le krigeage sont définies par le voisinage, c'est-à-dire, un cercle ou une ellipse autour du point à estimer). Il est défini par son étendue maximale autour de la cible, le nombre maximal de valeurs, la répartition spatiale des valeurs sélectionnées. Son étendue doit rester en cohérence avec le domaine de validité du variogramme et est généralement supérieure à la portée maximale des variogrammes.

Plusieurs voisinages sont étudiés pour l'estimation des limites. La validation croisée présentant de meilleurs résultats pour un voisinage de 30 m en X et 5 m en Y, ce voisinage sera utilisé lors de la validation des modèles structuraux. Par ailleurs, les doublons ont été enlevés lors du krigeage dans le cas où deux points se trouvent à une distance inférieure à 0.1 m (c'est le cas pour les données de géoradar). Il aurait été possible d'insérer un effet de pépite sur les données, qui serait associé à une erreur de mesure, pour dissocier les données entre elles afin d'éviter que certains coefficients de la matrice d'inversion deviennent nuls lors du krigeage (car le variogramme est nul à la distance nulle).

La validation croisée a été appliquée pour tous les modèles dans les trois cas étudiés : stationnaire, bivariable et non-stationnaire. Les modèles ont été ajustés en mettant de côté 20% des données. Comme les points pour la validation croisée sont peu nombreux (25 points), les données d'activité sont divisées en cinq lots de données pour procéder à une validation « complète ». Chaque lot a été mis de côté pour obtenir 5 ensembles de données utilisés pour les estimations. Les données écartées sont ré-estimées à partir des données restantes et du modèle de variogramme ou de covariance à valider, puis elles sont stockées sous une même variable pour comparaison aux valeurs réelles. Cette méthode de validation croisée n'est pas complètement correcte car les données mises de côté sont réutilisées pour l'estimation des autres ensembles de données (il n'y a pas à proprement parler de valeurs écartées), mais elle permet d'obtenir d'avantages de points de comparaison pour la validation croisée.

Dans le cas monovariable stationnaire, le modèle présentant le meilleur coefficient de corrélation entre valeurs réelles et valeurs estimées est un modèle composé d'un effet de pépite, d'une composante

sphérique anisotrope et d'une composante linéaire isotrope à grande distance. Dans le cas bivariable, c'est le modèle composé d'un effet de pépite et d'une composante exponentielle anisotrope qui est retenu. Tous deux sont retenus ici car ils présentent les meilleurs coefficients de corrélation pour les données de cotes de l'activité (0.82 et 0.87 respectivement, ces valeurs sont relativement similaires) (Figure 3-8). Nous allons comparer par la suite les résultats de l'estimation.

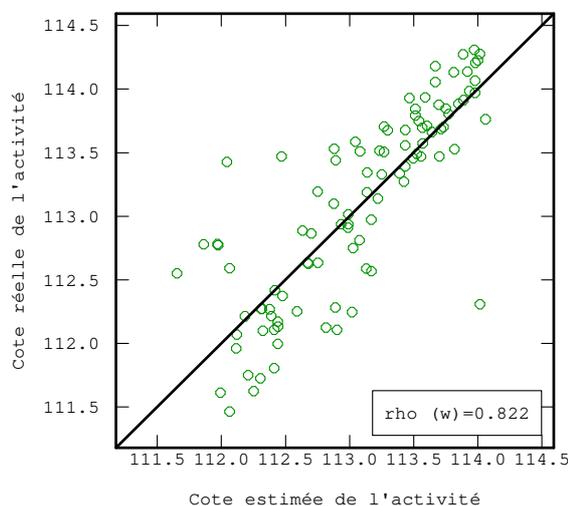


Figure 3-8 : Nuage de corrélation des valeurs estimées (abscisse) et réelles (ordonnées) de la validation dans le cas bivariable

1.4.2 Cartographie des limites

Par la suite, les limites sont estimées par krigeage ordinaire sur une grille de dimension 80 x 80 m. La maille mesure 0.25 x 0.25 m pour une visualisation plus fine, et la maille de l'autre grille mesure 1 x 0.50 m afin de pouvoir recouper les limites estimées au stock de l'activité en ^{137}Cs .

Dans les cas monovariables stationnaire et non-stationnaire, la tranchée paraît excessivement allongée dans la direction N120 (Figure 3-9). Dans le cas stationnaire, ceci est dû à la grande portée du modèle choisi. La variance de krigeage est relativement faible au niveau des sondages et paraît élevée en bordure de la tranchée dans le cas non-stationnaire. La tranchée est moins bien délimitée sur les côtés. Les résultats de la cartographie des limites de la tranchée ne semblent pas satisfaisants dans le cas monovariante. Cet aspect est dû à la grande anisotropie entre les directions N120 (longueur de la tranchée) et N30. Une étude de sensibilité au choix du variogramme est effectuée sur le variogramme des cotes de l'activité. La portée dans le sens N120 a été réduite et un modèle stationnaire a été ajusté à la place de la composante linéaire. L'effet de pépite est augmenté 0.05 voire 0.1. Les résultats de la validation croisée sont néanmoins légèrement moins bons.

Les résultats de l'estimation indiquent que le cokrigeage, qui emploie conjointement les données d'activité et géoradar en tant que variable auxiliaire, semble plus satisfaisant qualitativement : les limites de la tranchée sont mieux dessinées et plus continues. La méthode multivariable est donc privilégiée. Les incertitudes sur les limites sont définies conventionnellement en additionnant ou en soustrayant le double de l'écart-type d'estimation σ_K à l'estimation par krigeage Z_K^* .

Finalement, l'étude variographique s'est révélée délicate à cause de la répartition des données disponibles. Pour faciliter l'analyse géostatistique, les profils géoradar seraient à refaire : le secteur devrait être mieux quadrillé dans la direction E-W (un seul profil E-W présent dans la campagne présentée par Matoshko (2002)). Une campagne de mesures dans le sens de la tranchée serait intéressante afin de vérifier si la portée mesurée des données des sondages est la même que la portée du géoradar. Si une telle campagne est à refaire, elle est à entreprendre avant celle des mesures d'activité dans les sondages.

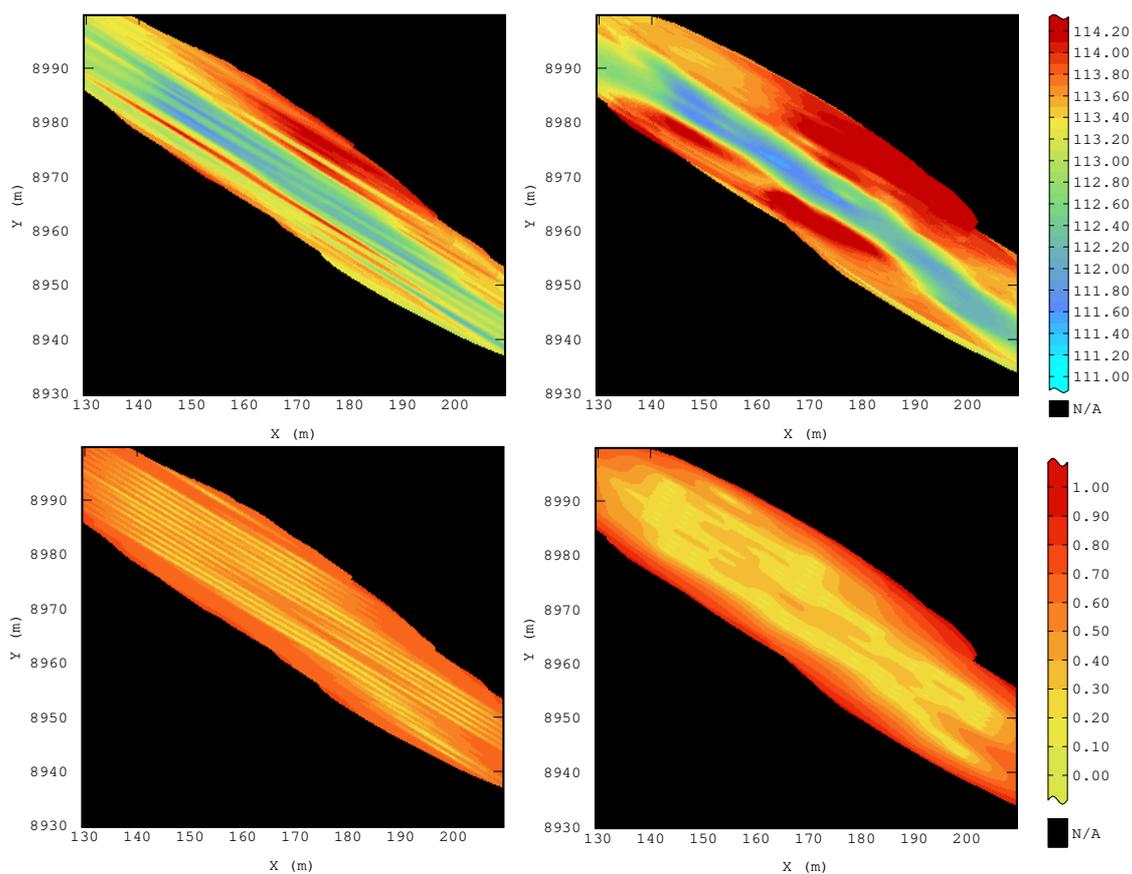


Figure 3-9 : Comparaison des résultats du krigeage monovarié (gauche) et bivarié (droite) et de leur écart-type d'estimation (bas). L'échelle de couleur représente la cote du fond de la tranchée.

1.5 Calcul du volume de la tranchée

Pour calculer le volume de la tranchée, les cellules dont l'écart-type de krigeage est supérieur à 0.5 m ont été écartées (Figure 3-10). Les cellules restantes comprises entre les limites inférieures de la tranchée et la topographie ont été comptabilisées et multipliées par le volume de la cellule. Le volume est ainsi égal à 2015 m³ et est compris entre 1290 m³ et 2811 m³, soit une différence de -36 % et 39%, si l'on tient compte conventionnellement des incertitudes sur l'implantation des données, cette incertitude est très grande.

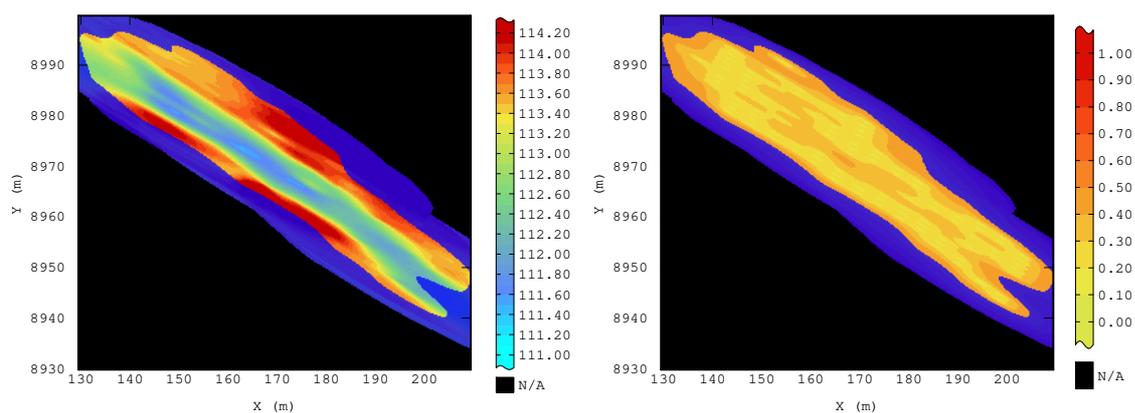


Figure 3-10 : Résultats du cokrigage

En bleu les valeurs estimées dont l'écart-type de krigage est supérieur à 0.5 m. Ces valeurs ont été écartées pour obtenir l'estimation des limites de la tranchée. L'échelle de couleur représente l'activité en ^{137}Cs .

Le calcul a ensuite été repris pour étudier l'effet de l'application d'un seuil à partir des simulations conditionnelles de l'activité dans la tranchée (cf. section 2.6 p61) et du recoupement ou non avec l'estimation des limites. Plus le seuil utilisé est grand, plus le volume de la tranchée diminue. Pour un seuil donné, le volume change relativement peu (de moins de 80 m^3 en tenant compte de l'estimation des limites, de moins de 115 m^3 si la borne supérieure de l'estimation des limites est prise en compte et de moins de 30 m^3 si la borne inférieure est prise en compte).

Si les limites ne sont pas prises en compte, l'effet de seuil est beaucoup plus marqué : sans seuil, le volume de la tranchée serait de 7601 m^3 . L'application d'un seuil à 1 kBq/kg en diminue le volume d'environ 40%. Ces différences s'expliquent par la non stationnarité des données non prises en compte dans les simulations.

Si le seuil est de 100 kBq/kg , comme dans (Bugai et Dewière, 2003), le volume serait d'environ 2030 m^3 et compris entre 1897 et 2182 m^3 soit une différence d'environ 7% du volume. La comparaison n'est pas possible avec l'estimation de 2003 car les données ne sont pas disponibles.

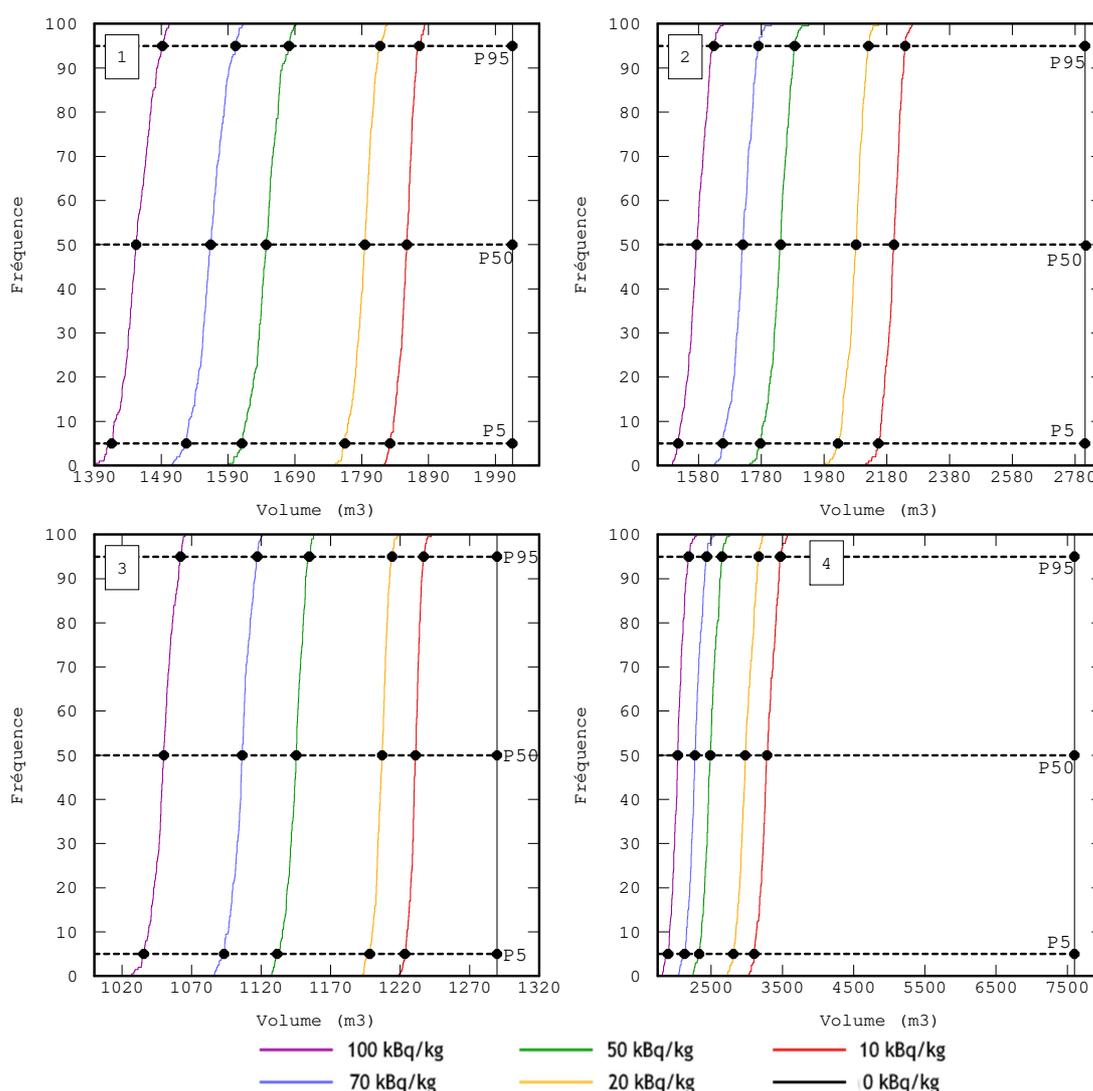


Figure 3-11 : Evaluation du volume de la tranchée et effet de seuil sur les simulations conditionnelles
 Recouvrement avec les limites de la tranchée : estimation (1), estimation + $2\sigma_K$ (2), estimation - $2\sigma_K$ (3), sans recouvrement avec les limites de la tranchée (4)

2 EVALUATION DU STOCK

2.1 Les données d'activité convertie

L'analyse géostatistique des activités en ^{137}Cs (A_{Cs}) de 1999 a été reprise. Comme pour l'étude de Bugai et Dewièrè (2003), les coordonnées des points ont été transformées (rotation de -30° des données) pour que l'axe des X et celui des Y soient positionnés parallèlement à la longueur et à la largeur de la tranchée, respectivement. L'axe des Z suit la profondeur. Les mesures hors du sol (présentant des profondeurs négatives) ont été écartées. Le jeu de données n'est pas décimé pour ne pas réduire le nombre de mesures : on ne prend pas en compte le recouvrement de certaines mesures ni leur support fixé à 50 cm dans Bugai et Dewièrè (2003). Les données supplémentaires acquises en 2002 et 2003 ont été intégrées à la variable principale. Comme aucune transformation sur celles-ci n'a été mentionnée dans les précédents rapports, il a été déduit que les données avaient été préalablement corrigées de la décroissance radioactive de façon à

obtenir des données d'activité ramenée à la même année 1999 dans l'analyse géostatistique de 2003. Dans le cas où elles n'ont pas été corrigées, la variation de l'activité serait inférieure à 10% :

$$A_{2003} = A_{1999} \exp\left(-\frac{\ln(2)}{T_{1/2}}(t_{2003} - t_{1999})\right) = A_{1999} \exp\left(-4 \times \frac{\ln(2)}{T_{1/2}}\right) \text{ soit } A_{2003} \approx 0.91 A_{1999}$$

2.2 Analyse statistique

Le coefficient de variation $\frac{\sigma}{m} = 0.63$ étant inférieur à 1, les données ne sont pas transformées en logarithme contrairement à Bgari et Dewière (2003) pour éviter le problème de retour aux grandeurs réelles. Nous verrons dans l'étude variographique qu'il n'est effectivement pas nécessaire de les transformer pour observer la structure spatiale. Environ 20% des données sont mises de côté pour la validation croisée. Dans un premier temps, des sections entières de forages ont été mises de côté, mais comme leur estimation s'appuie peu sur le variogramme, il a été décidé d'enlever plutôt un ou deux sondages par section (Figure 3-12).

Les statistiques élémentaires des données d'activité en ^{137}Cs sont présentées au Tableau 3-3.

Tableau 3-3 : Statistiques élémentaires des données utilisées pour l'analyse géostatistique

Paramètre	Données initiales (A_{Cs})	Données transformées $\ln(1+A_{Cs})$	Données $A_{Cs} > 0$ kBq/kg	Données $A_{Cs} > 0$ kBq/kg*
Nombre de données	4212	4212	3296	2633
Minimum	0	0.00	0.34	0.34
Maximum	1875	7.54	1875	1875
Moyenne	222	4.09	283	285
Ecart-type	212	2.40	200	198
Asymétrie	1.08	-0.88	1.08	0.95

* données d'activité supérieure à 0 kBq/kg \equiv 0 Bq/g, sans les données utilisées pour la validation croisée

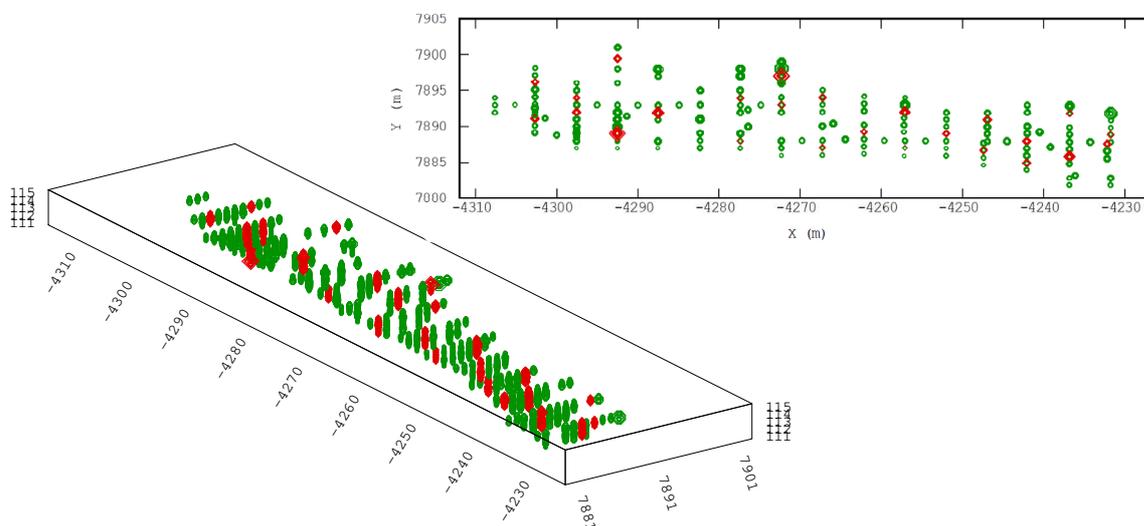


Figure 3-12 : Données utilisées pour la validation croisée (en rouge)

2.3 Analyse variographique

Seules les activités supérieures à 0 sont prises en compte car les données nulles sont considérées comme extérieures à la tranchée comme elles se trouvent toutes soit en fond de forage et/ou en bordure de tranchée (Figure 3-2). De plus, l'écart permet de ne pas atténuer la variabilité. Les valeurs nulles

donnant tout de même des informations quant à la répartition de l'activité dans la tranchée, elles sont prises en compte lors de l'estimation.

Les variogrammes expérimentaux sont calculés dans 9 directions pour prendre en compte l'implantation 3D des mesures. Leur pas de calcul et le nombre de pas sont basés sur le plan d'échantillonnage (5 m dans la direction X, 10 m en Y, 0.1 m en Z). Les paramètres de calcul des variogrammes expérimentaux sont détaillés en Annexe.

L'aspect des variogrammes dans les principales directions indique que les données d'activité sont bien structurées spatialement malgré la présence de points chauds. En comparant les variogrammes des valeurs brutes et ceux des valeurs transformées cette observation n'en est que renforcée : dans la direction X, les variogrammes ont des formes similaires, dans la direction Y, le variogramme des valeurs brutes semble mieux structuré que sur les données transformées. Dans la direction Z, les variogrammes diffèrent de manière plus significative mais présentent dans les deux cas une structure spatiale (Figure 3-13).

Sur les valeurs brutes :

- Dans la direction X, le variogramme croît jusqu'à plus ou moins se stabiliser à un palier à partir d'une distance de 25 m.
- Dans la direction Y, comme pour la direction en X, le variogramme croît jusqu'à plus ou moins se stabiliser à un palier à partir d'une distance de 4 m.
- Dans la direction Z, Le variogramme croît jusqu'à un optimum à 0.5 m, décroît puis croît à nouveau à 1 m. Ceci est dû à un artefact lié à la présence de valeurs fortes qui augmentent la variance à petite distance (autour des points de forte valeur). En effet, si les valeurs supérieures à 1000 kBq/kg sont masquées, ce phénomène disparaît. De même, si le variogramme en Z est calculé avec le logarithme translaté des données d'activité, cet artefact n'apparaît plus (Figure 3-13). Il faudra donc en tenir compte lors de l'ajustement du variogramme en Z qui s'appuiera sur le variogramme à l'origine et à petite distance (inférieure à 0.5 m). Au-delà de 0.5 m, l'ajustement s'appuiera sur les variogrammes en X et Y. On peut par ailleurs remarquer que seul le variogramme vertical permet de capter la structure à petite échelle. Une grande continuité dans les valeurs d'activité peut être observée jusqu'à 50 cm, certainement due au caractère régularisé de la mesure. Bugai et Dewière (2003) ont ainsi eu raison de décimer le jeu de donnée en ne prenant qu'une mesure tous les 30 cm car il y a une redondance verticale. Les données étant présentes, elles ont néanmoins été conservées dans cette étude.

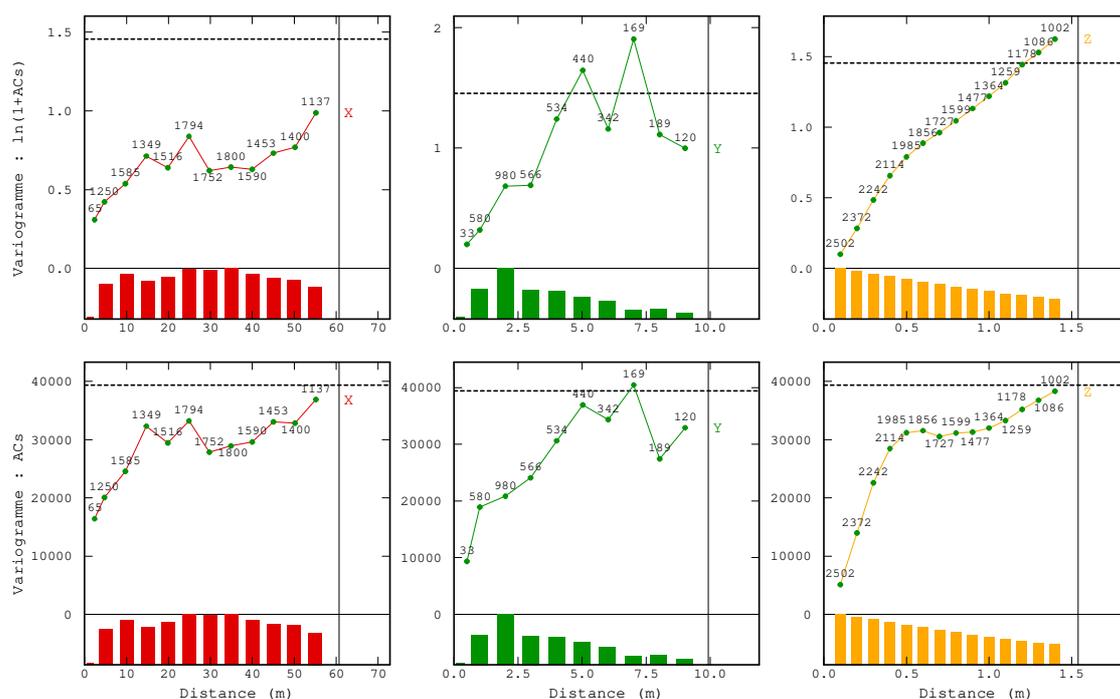


Figure 3-13 : Variogrammes directionnels en X, Y et Z de l'activité transformées (haut) et des valeurs brutes (bas)

A la Figure 3-14, un schéma gigogne anisotrope est ajusté. L'ajustement du modèle gaussien est basé sur le variogramme de la direction Z. Le comportement parabolique à 10 cm résulte de la mesure, car les données d'activité sont déduites du comptage gamma qui est une convoluée (cf. Chapitre 2). Un effet de pépité aurait pu apparaître si l'activité avait été mesurée par prélèvement d'échantillons de sol par exemple. N'ayant pas cette information à notre disposition, la convoluée est ajustée à défaut. D'autres modèles sont ajustés (Annexe). Comme dans le cas de l'estimation des limites, la validation croisée permettra de choisir le « meilleur » modèle structural au sens des critères choisis.

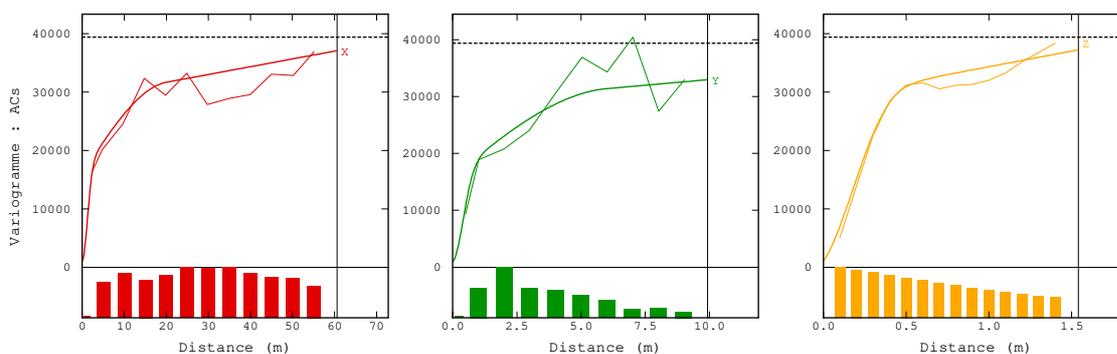


Figure 3-14 : Exemple d'ajustement des variogrammes directionnels avec un modèle structural combinant effet de pépité, composantes gaussienne, sphérique et linéaire

2.4 Estimation

Différents voisinages sont testés conjointement à différents modèles de variogramme lors de la validation croisée afin de choisir le modèle pour estimer les activités en ^{137}Cs . Les données nulles situées en dehors de la tranchée sont réintégrées aux données lors du krigeage et de la validation croisée afin d'améliorer l'estimation des faibles valeurs. Les résultats de la validation croisée sont présentés en Annexe. Ils sont relativement similaires d'un modèle à l'autre, les coefficients de corrélation entre valeurs réelles et valeurs estimées varient entre 0.68-0.69 (Figure 3-15).

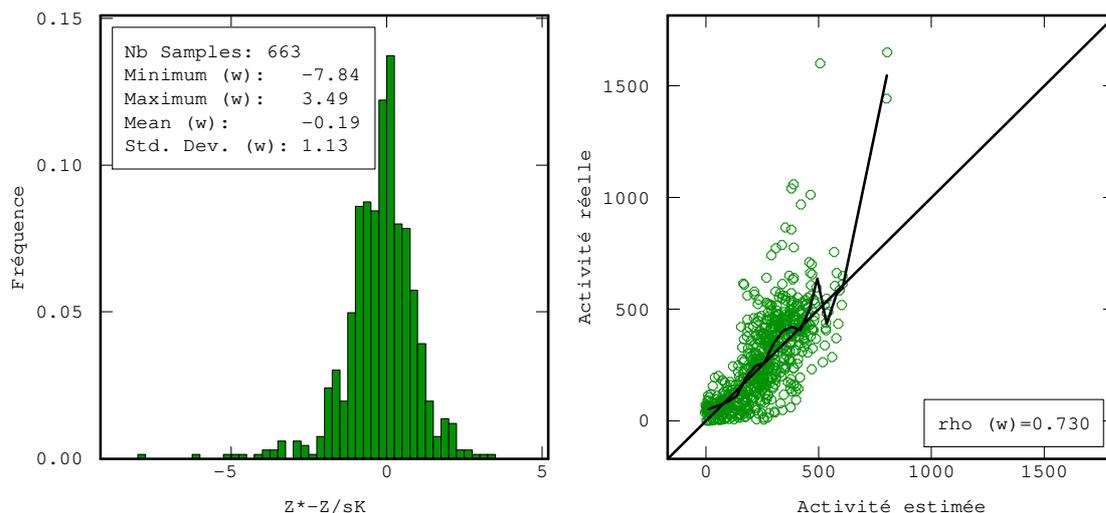


Figure 3-15 : Comparaison valeurs réelles et valeurs estimées (gauche) et erreur d'estimation standardisée (droite) pour le modèle structural et le voisinage retenus. Les valeurs nulles ont été réintégrées au jeu de données pour l'estimation.

La combinaison d'un voisinage de 40 m en X, 10 m en Y et 2 m en Z avec un modèle gigogne comportant un effet de pépite, une composante gaussienne à petite distance, une composante sphérique à moyenne distance et une autre sphérique à grande distance présente néanmoins un coefficient de corrélation légèrement supérieur de 0.69 et sera utilisée pour l'estimation de l'activité en ^{137}Cs . La comparaison entre valeurs réelles et valeurs estimées et l'histogramme de l'erreur d'estimation standardisée sont présentés à la Figure 3-15. Les valeurs supérieures à la moyenne des données (environ 300 kBq/kg) ont tendance à être sous-estimées à cause du krigeage qui lisse l'estimation, les valeurs supérieures à 700 kBq/kg sont sous-estimées de manière importante.

Intégrer les valeurs nulles à l'estimation améliore les résultats de la validation croisée (meilleure corrélation entre valeurs réelles et estimées) et diminue l'écart-type de krigeage. L'erreur standardisée paraît plus asymétrique.

La cartographie de l'estimation de l'activité en ^{137}Cs est construite sur une grille 3D de dimension 80 x 70 x 5.5 m avec un maillage de 1 x 0.5 x 0.1 m. Le krigeage de bloc a été utilisé sans discrétisation en Z. Les coordonnées des données d'activité ont été retransformées dans le système de coordonnées initial afin de pouvoir recouper le stock avec les limites de la tranchée estimées précédemment. On peut noter la présence de points chauds au fond de la tranchée (Figure 3-16) qui seront mis en regard des activités observées dans les eaux souterraines au chapitre 4.

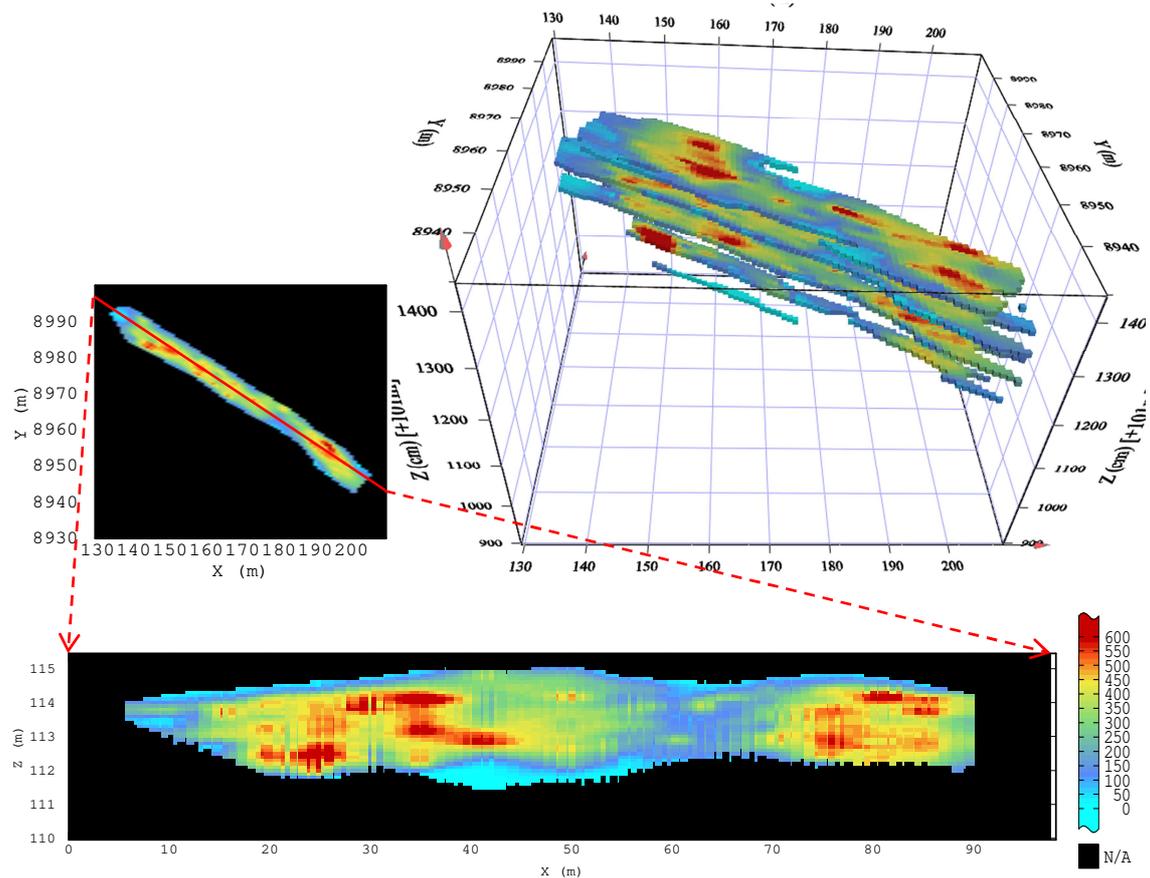


Figure 3-16 : Résultats du krigeage après recouvrement des limites de la tranchée et de la topographie : coupe verticale et vue en 3D

2.5 Effet proportionnel

Afin de calculer les incertitudes sur le stock de radionucléides dans la tranchée, il est nécessaire d'évaluer s'il y existe un effet proportionnel induit par la dépendance de la variabilité locale à la moyenne locale (Chilès et Delfiner, 2012; Matheron, 1974). Dans ce cas, le variogramme local γ_{local} sur le volume V est alors supposé proportionnel au variogramme global γ_{global} sur le champ W :

$$\gamma_{local} = B \gamma_{global}$$

où B est une fonction de la moyenne locale m_V :

$$\gamma_V(h) = b(m_V) \gamma_{local}$$

Le champ W est discrétisé en N unités V_i . La moyenne locale est approchée par la régularisée sur V_i .

$$\gamma_{local} = B_i \gamma_{global}$$

$$\text{avec } B_i = f^2(Z_i^V)$$

$$\text{et } \sum B_i = 1 \text{ dans le champ } W$$

Lorsque les données sont implantées régulièrement sur le champ, le variogramme expérimental global approche le variogramme régional sur W , mais ce n'est plus le cas lorsque les données sont implantées irrégulièrement. Les données sont ici supposées suffisamment régulières pour que l'ajustement du variogramme expérimental global puisse être considéré comme la moyenne des variogrammes locaux du domaine à estimer. On suppose donc que le variogramme global est calculé avec les seules données de la zone à estimer, à l'extension du voisinage près.

Tenir compte de l'effet proportionnel ne change pas l'estimation car les poids de krigeage restent inchangés si le variogramme est multiplié par une constante. Toutefois, la prise en compte de cet effet est nécessaire pour évaluer les incertitudes associées à l'interpolation par krigeage des activités en ^{137}Cs dans l'espace.

En pratique, pour corriger l'effet proportionnel, une méthode simplifiée consiste à effectuer le krigeage avec le modèle global, puis à corriger la variance estimée des blocs par un facteur correctif par nœud de grille (ou sa régularisée sur quelques nœuds de grille dans le cas d'une estimation ponctuelle). Cette correction n'est pas exacte mais permet d'identifier les zones de plus grande incertitude. Soit :

$$\sigma_{K_{EP}}^2(v_i) = B_i \sigma_K^2(v_i)$$

$$B_i = \frac{f^2(Z_{V_i}^K)}{\frac{1}{n} \sum f^2(Z_{V_j}^K)}$$

Avec B_i le facteur correctif

$\sigma_{K_{EP}}^2$ la variance de krigeage corrigée de l'effet proportionnel

σ_K^2 la variance de krigeage

Ainsi, à configuration de krigeage fixée, hors effet de bordure, la moyenne des variances de krigeage est égale à la moyenne des variances de krigeage calculée avec le variogramme global.

Le nuage de corrélation entre la moyenne et la variance locales met en évidence un effet proportionnel dans le cas d'une sélection de points sur un forage ou deux forages. Les calculs statistiques ont été effectués sur 58 points dans le premier cas et sur 49 points dans le deuxième. Une corrélation entre moyenne et variance est bien présente dans les deux cas (Figure 3-17), bien qu'elle soit plus visible sur un voisinage ne prenant en compte qu'un seul forage.

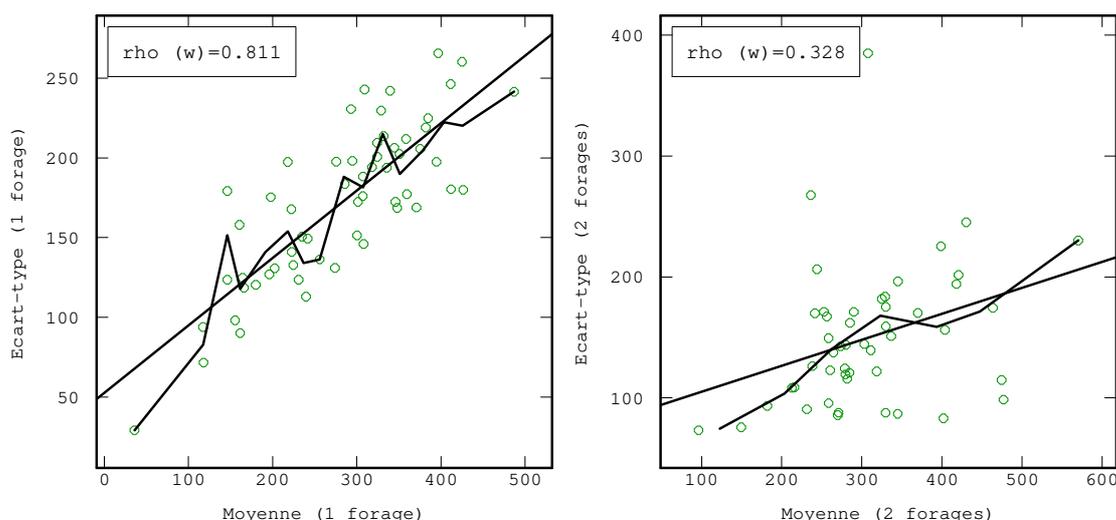


Figure 3-17 : Mise en évidence de l'effet proportionnel dans le cas d'une sélection de points (29 points) sur un forage (gauche) ou deux forages (droite)

La correction de l'effet proportionnel est effectuée là où la variance d'estimation est faible. Après correction, des zones de plus grande incertitude sont mises en évidence là où la densité d'implantation des forages est plus faible (Figure 3-18).

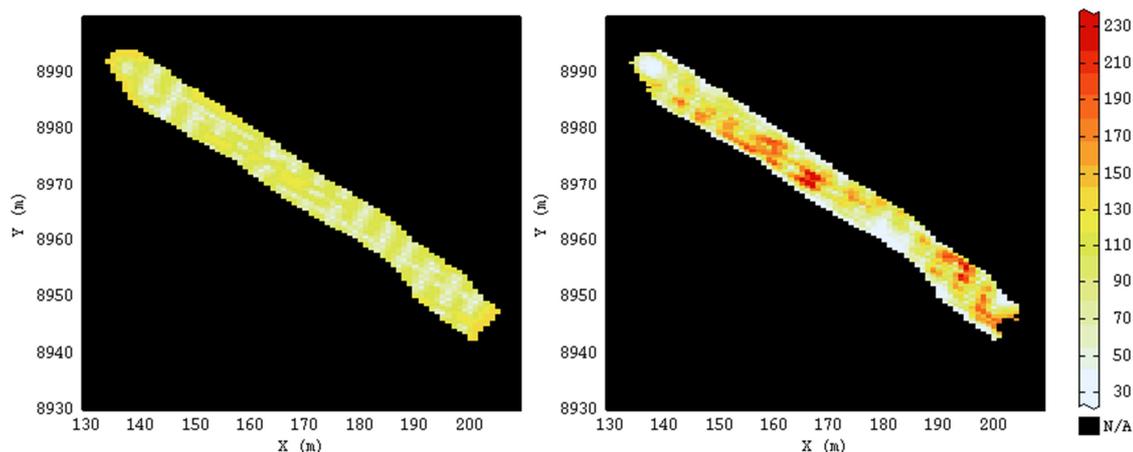


Figure 3-18 : Ecart-type d'estimation avant et après correction de l'effet proportionnel
Vue sur de la tranchée à une cote de 113.5 m a.s.l.

Néanmoins, l'erreur d'estimation n'est pas accessible car la variance d'estimation corrigée n'est qu'une approximation. Les incertitudes seront donc calculées de manière conventionnelle lors de l'estimation du stock en ^{137}Cs dans la tranchée (cf. section 2.7 p64).

2.6 Simulations conditionnelles

La cartographie d'une variable régionalisée que l'on peut obtenir par exemple par krigeage n'est pas la réalité. De plus, le critère d'optimalité du krigeage conduit à un lissage des valeurs estimées (Rivoirard, 1995). Pour évaluer les incertitudes du stock de radionucléides, on a donc recours aux simulations conditionnelles qui permettent de générer de nombreuses réalisations d'une fonction aléatoire qui respectent les valeurs mesurées aux points de données, la distribution statistique de la variable et les caractéristiques structurales de la variable régionalisée d'activité modélisée. Il existe d'autres estimateurs pour calculer les incertitudes relatives au stock en radionucléides, mais les simulations conditionnelles sont

ici utilisées car les cartes produites seront utilisées à nouveau lors de la modélisation hydrogéologique au Chapitre 4.

Pour remonter au stock de radionucléides et aux incertitudes sur cette estimation, 200 simulations sont générées par la méthode des bandes tournantes (Matheron, 1973). Les quantiles ne fluctuent pas sur ces 200 simulations. Les techniques de simulations obtenues par sommation, comme celle des bandes tournantes, à partir d'un grand nombre de droites, génèrent des distributions gaussiennes. C'est pourquoi on simule le plus souvent, non pas directement la variable brute, mais sa transformée gaussienne avant de repasser à la grandeur étudiée (Rivoirard, 1995). Pour ce faire, une anamorphose est modélisée pour calculer la gaussienne des valeurs transformées (Figure 3-19). Elle lie la fonction aléatoire Z à Y par la relation :

$$Z(x) = \phi(Y(x))$$

ϕ étant une fonction croissante. Elle permet de passer de la variable gaussienne à la variable initiale.

Pour calculer la transformée, les valeurs nulles sont écartées. La valeur minimale brute est associée à la valeur minimale de la transformée. Les valeurs nulles sont par la suite réintégrées à la transformée gaussienne par krigeage lors du conditionnement.

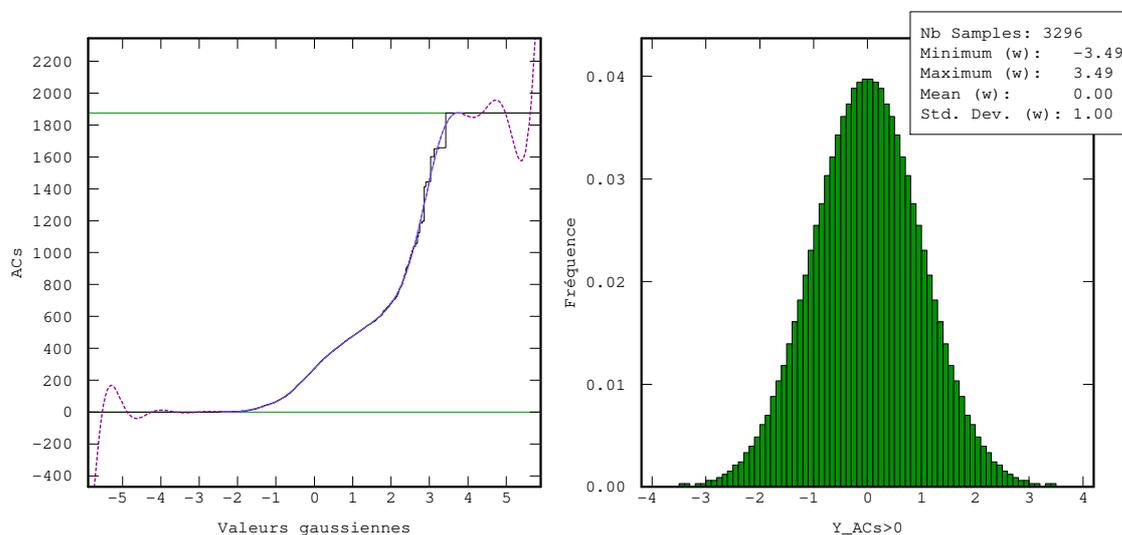


Figure 3-19 : Anamorphose calculée à partir des valeurs d'activité supérieures à 0 kBq/kg et histogramme de la transformée gaussienne

Le variogramme de la transformée gaussienne est calculé et ajusté (Figure 3-20). Le modèle de variogramme de la gaussienne est régularisé sur le support de bloc (de taille 1 m x 0.5 m x 0.1 m) et le variogramme de la gaussienne régularisée est ajusté (Figure 3-20). On calcule ensuite le coefficient de changement de support pour corriger le support de la transformée gaussienne. Ici, ce coefficient vaut 0.94, la variance sera donc faiblement réduite.

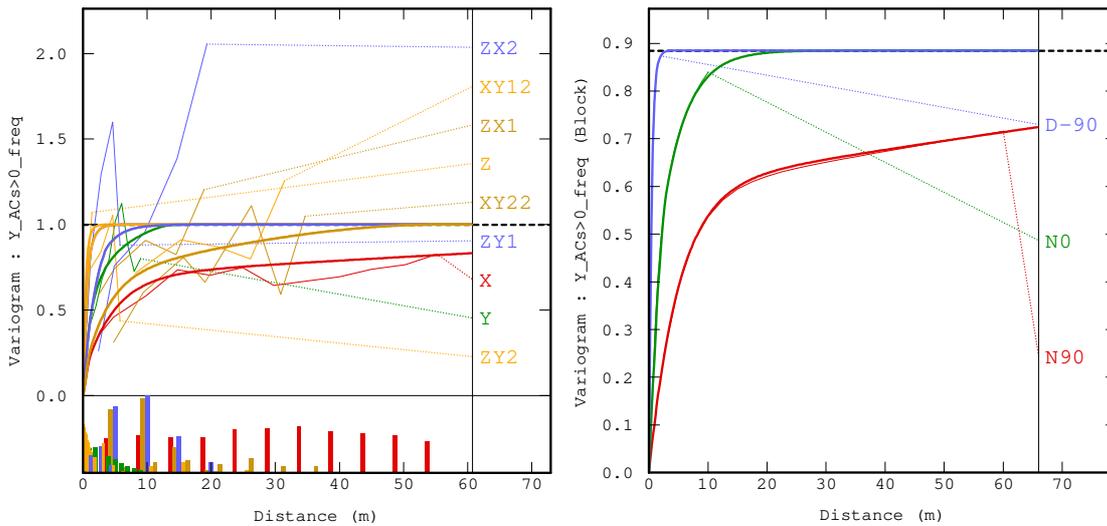


Figure 3-20 : Ajustements des variogrammes directionnels de la transformée gaussienne ponctuelle (gauche) et des variogrammes directionnels de la transformée gaussienne de bloc (droite)

Les simulations non conditionnelles sont ensuite générées en utilisant l'anamorphose et le variogramme de bloc corrigé avec le coefficient de support. Pour conditionner les simulations aux points de mesure, le résidu du krigeage de la simulation non conditionnelle à ces points est calculé et substitué au résidu du krigeage des valeurs réelles lorsque ce résidu simulé a la même structure que celui du krigeage (Rivoirard, 1995).

La Figure 3-21 présente deux simulations géostatistiques de l'activité en ^{137}Cs pour une cote à 113.5 m a.s.l..

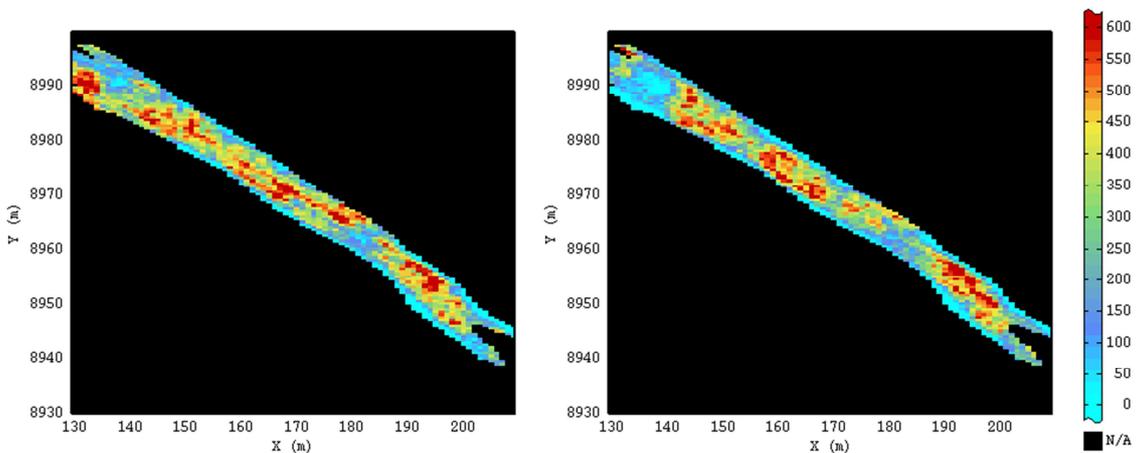


Figure 3-21 : Exemple de simulations conditionnelles de l'activité en ^{137}Cs
Plan horizontal XY à la cote 113.5 m a.s.l.

L'utilisation des simulations conditionnelles sous-entend le caractère multi-gaussien de la variable. Comme il est impossible à vérifier, le caractère bi-gaussien de la variable est testé en regardant la distribution des couples de valeurs $((Y(x), Y(x+h)))$ ou en calculant le madogramme (le variogramme d'ordre 1). Sous l'hypothèse bi-gaussienne, le ratio entre la racine carrée du variogramme et le madogramme est indépendant de la distance h et vaut $\sqrt{\pi}$. Ici, ce n'est pas le cas aux petites distances et sur les directions Y et Z (Figure 3-22). Ainsi, des méthodes d'estimation qui impliquent des hypothèses moins fortes pourraient être utilisées, comme le krigeage disjonctif ou encore le modèle d'écrtage qui pourrait faire le pont entre méthodes linéaire et non-linéaire (Rivoirard et al., 2013).

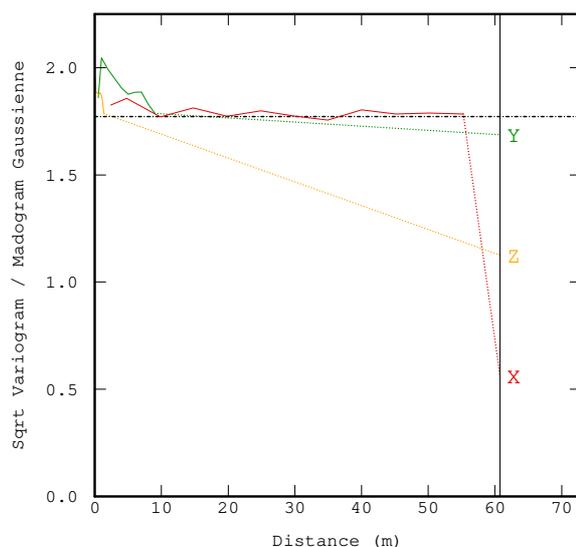


Figure 3-22 : Ratio entre la racine carrée du variogramme directionnel et le madogramme pour tester le caractère bi-gaussien de la variable

Malgré l'approximation induite par l'utilisation de l'hypothèse de loi spatiale gaussienne, de nombreuses simulations permettent de mieux approcher les incertitudes par rapport au calcul conventionnel par krigeage comme nous le verrons par la suite.

2.7 Calcul du stock de radionucléides et incertitudes associées

Le calcul du stock en ^{137}Cs dans les déchets de la tranchée T22 a été remis à jour, d'une part, sur la base de la nouvelle estimation de l'activité et d'autre part, à partir des 200 réalisations construites par simulation conditionnelle.

Le stock de la tranchée est calculé en sommant les activités de chaque cellule, selon différents seuils, et multipliant cette somme par le volume d'une cellule et la densité du sol, prise égale à 1600 kg/m^3 (Kashparov et al., 2004) pour que les résultats soient comparables à l'ancienne évaluation. L'estimation des limites de la tranchée est prise en compte ou non et l'effet de seuil est évalué, comme pour le calcul du volume de la tranchée précédemment.

Dans le cas de l'estimation par krigeage, les incertitudes sont obtenues en additionnant ou en soustrayant conventionnellement $2 \times \sigma_K$ l'écart-type de krigeage à l'estimation de l'activité. Seules les cellules présentant un écart-type de krigeage inférieur à 150 Bq/kg ont été prises en compte. Dans le cas des simulations, le stock est calculé pour chaque simulation. Une analyse statistique est effectuée sur l'ensemble des 200 calculs. Les différents histogrammes sont présentés à la Figure 3-23. Les incertitudes sur le stock de la tranchée encadrent la valeur moyenne (P50) et sont obtenues en calculant les centiles à 5 (P5) et 95% (P95). Les résultats sont compilés en Annexe.

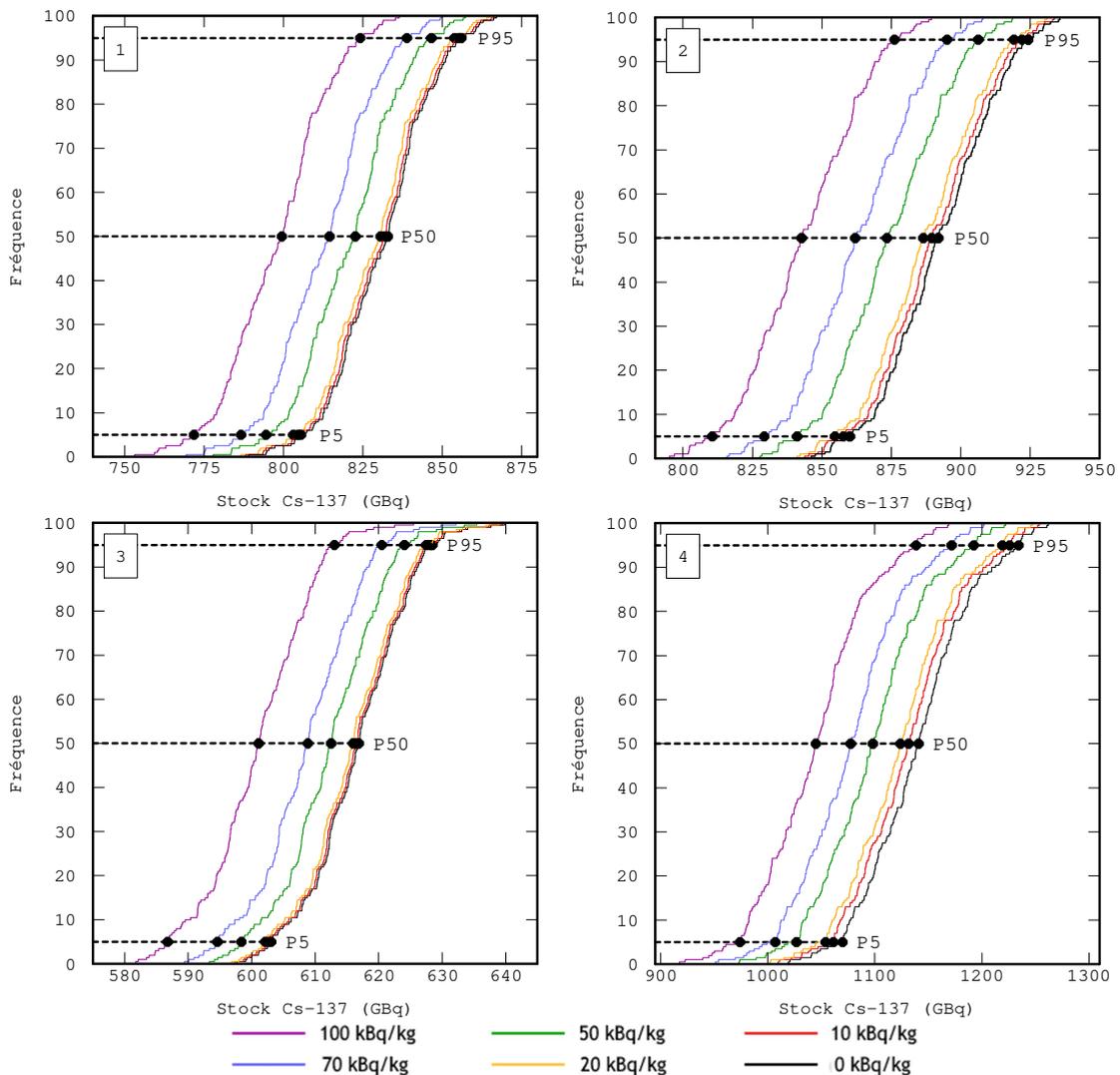


Figure 3-23 : Evaluation du stock de ^{137}Cs dans la tranchée et effet de seuil sur les simulations conditionnelles Recouvrement avec les limites de la tranchée : estimation (1), estimation + $2\sigma_K$ (2), estimation - $2\sigma_K$ (3), sans recouvrement avec les limites de la tranchée (4)

Dans le cas de l'estimation par krigeage, en prenant en compte l'estimation des limites et un seuil de 0 kBq/kg, le stock est de 801 GBq et est encadré par des incertitudes de 265 et 1359 GBq. En prenant les mêmes configurations sur les simulations, le stock calculé est de 833 GBq, ce qui reste proche du résultat du krigeage, mais les incertitudes sont beaucoup plus restreintes autour de la valeur la plus probable et sont de 806 et 856 GBq. De manière générale, quels que soient les seuils et les limites pris en compte, les simulations offrent des incertitudes beaucoup plus réduites que le krigeage. Ceci est dû au calcul conventionnel des incertitudes alors que l'erreur d'estimation standardisée ne présente pas une distribution gaussienne. L'ensemble des résultats sont présentés en Annexe.

Que ce soit par krigeage ou par simulations, le stock estimé est plus élevé que ce qui a été calculé par Kashparov et al. (2012, 2004), mais reste dans l'intervalle d'incertitudes. Néanmoins, le stock estimé par Kashparov et al. (2012, 2004) ne repose pas sur l'estimation de l'activité en ^{137}Cs , mais est un calcul direct sur l'ensemble des mesures effectuées. L'absence d'interpolation pourrait expliquer une estimation plus faible du stock.

3 VERS UNE CARACTERISATION DU STOCK EN 2015

Une campagne de mesures a été entreprise en septembre 2015 (cf. Chapitre 1). Les mesures d'activité sont ici de vraies mesures, non converties du comptage gamma qui est une mesure distincte de l'activité. Les mesures acquises ont été aussi nombreuses que possible pour établir un variogramme en raison d'un temps de mission et d'un budget limités. Mais sachant qu'il y a plus de 800 tranchées à caractériser dans la zone d'exclusion de Tchernobyl, est-il raisonnable de déployer plus d'une centaine de mesures sur une petite tranchée ? Nous allons tenter de donner des éléments de réponse.

3.1 Effet de l'échantillonnage

3.1.1 Dégradation selon le plan d'échantillonnage de 2015

L'effet de l'échantillonnage sur l'estimation du stock de radionucléides dans la tranchée a été testé sur un sous-ensemble de données d'activité mesurée en 1999 sélectionnées de manière à respecter le plan d'échantillonnage conçu pour la campagne de mesures de septembre 2015 (cf. Chapitre 1). Les variogrammes directionnels ont ensuite été calculés et comparés aux variogrammes directionnels calculés avec l'ensemble des données (Figure 3-25).

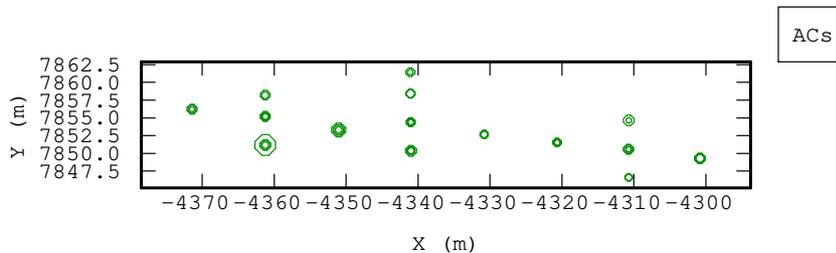


Figure 3-24 : Sélection de forages respectant le plan d'échantillonnage

La Figure 3-25 présente les variogrammes directionnels pour le plan d'échantillonnage présenté à la Figure 3-24. En comparant les variogrammes à la Figure 3-13 et à la Figure 3-25, on remarque que la structure des variogrammes change drastiquement lorsque seul un sous-ensemble est pris compte. Dans toutes les directions, la variance est nettement plus importante sur les variogrammes. Dans les directions X et Z, une structure linéaire peut néanmoins être distinguée, mais dans la direction Y, un nombre plus important de point de mesures serait nécessaire pour identifier une structure spatiale. Bien que les mesures à petite échelle ne soient pas prises en compte (car absentes du jeu de données initial), cette observation laisse penser qu'il sera difficile d'estimer de manière fiable le stock de radionucléides avec le plan d'échantillonnage mis en œuvre en septembre 2015.

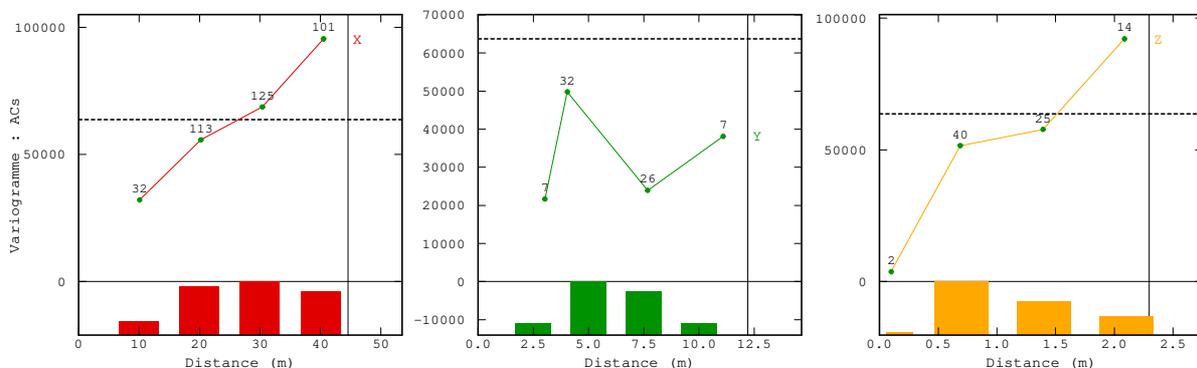


Figure 3-25 : Influence du plan d'échantillonnage sur les variogrammes directionnels

3.1.2 Dégradation aléatoire

Une autre étude de l'impact de l'échantillonnage a été entreprise, cette fois-ci, en dégradant aléatoirement le jeu de données comme Desnoyers (2010) l'a fait dans ses travaux de thèse. Les variogrammes ont été calculés pour chaque sous-ensemble de données représentant la moitié (1/2), le tiers (1/3), le quart (1/4), le cinquième (1/5) et le dixième (1/10) du jeu de données initial. Pour chaque type de dégradation, plusieurs scénarios sont possibles en fonction du type de dégradation et des sous-ensembles construits en conséquence. Les variogrammes des sous-ensembles 1/2, 1/5 et 1/10 sont présentés à la Figure 3-26.

La structure des variogrammes ne paraît pas changer pour les calculs prenant en compte la moitié des données, mais elle commence à l'être à partir de l'utilisation de 1/5^{ème} des données. La structure disparaît complètement quand seulement 1/10^{ème} des données sont conservées avec environ 350-400 données dans chaque sous-ensemble. Ce résultat vient renforcer la conclusion précédente : le stock en ^{137}Cs sera difficilement estimé de manière fiable, ce qui a été observé lors de l'analyse géostatistique des données de la campagne.

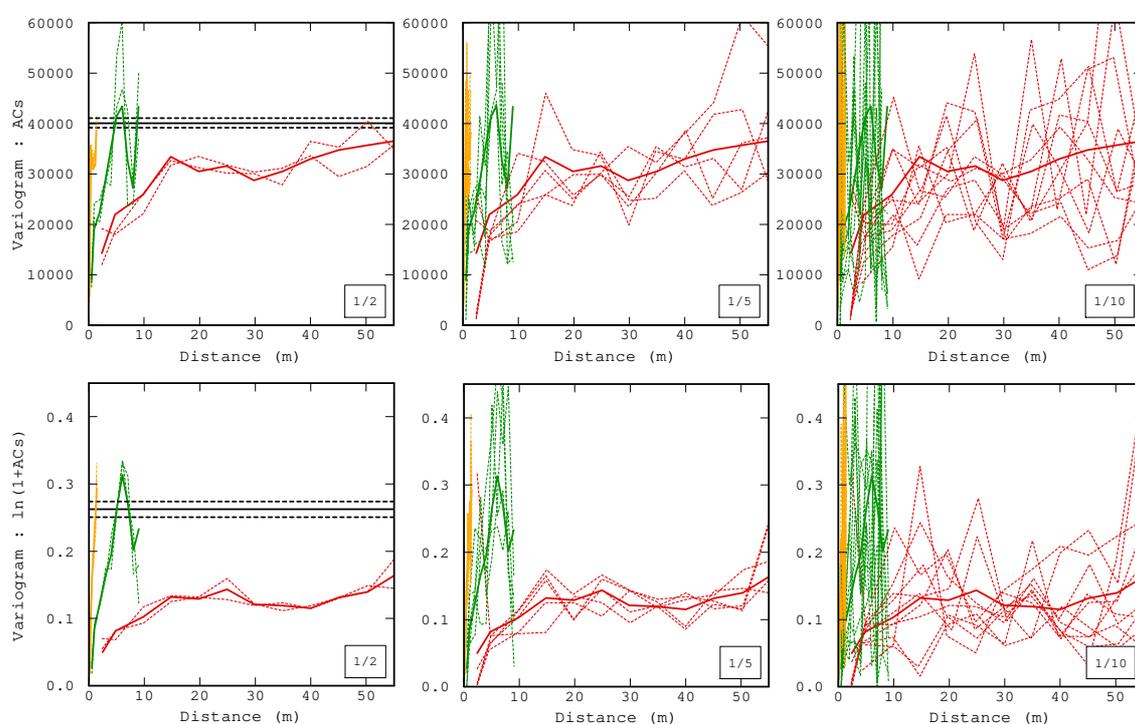


Figure 3-26 : Effet de l'échantillonnage par dégradation aléatoire

La dégradation aléatoire est plus facile à mettre en œuvre et permet une meilleure caractérisation spatiale à petite échelle (Desnoyers, 2010) sur un plan d'échantillonnage en 2D, mais pour une étude plus proche de la réalité, il aurait fallu décimer les données selon les différentes directions de la tranchée : d'abord le long des forages, en Z, puis en Y et enfin en X.

3.2 Estimation

Les données comportent deux fois plus de mesures de comptage gamma (une mesure tous les 25 cm) que de mesures de teneur (une mesure tous les 50 cm) le long des sondages. Une analyse géostatistique conjointe des données a été effectuée au Chapitre 2 p36. Le modèle bivariable ajusté permet d'établir une cartographie de l'estimation en voisinage unique. Cependant, du fait du faible nombre de données et du modèle ajusté (modèle anisotrope avec une grande portée dans le sens de la longueur de la tranchée et une petite portée perpendiculairement), l'estimation de l'activité en 2015 ne donne rien qui puisse être

exploitable pour la cartographie. Il est néanmoins possible d'estimer les données d'activité aux points où la mesure gamma existe, ce qui a été fait au Chapitre 2.

4 SYNTHÈSE

L'analyse géostatistique des données d'activité et des données issues du géoradar a permis une nouvelle estimation des limites de la tranchée. Elles sont mieux définies et les incertitudes associées sont accessibles en utilisant conventionnellement la variance d'estimation.

Par ailleurs, le calcul du stock de ^{137}Cs a été actualisé en utilisant les données d'activité de 1999. Le stock estimé est supérieur à celui déterminé en 2001 mais reste dans les intervalles d'incertitudes. Les nouvelles incertitudes sur le stock sont déterminées plus finement dans le cas d'un calcul par analyse statistique des simulations conditionnelles. Ces incertitudes seraient plus grandes si les incertitudes associées à la relation linéaire entre taux de comptage et activité étaient prises en compte.

De nouvelles mesures d'activité en ^{137}Cs ont été acquises en 2015 pour mettre à jour l'effet d'une réduction du nombre de mesures sur les incertitudes associées à l'estimation du stock de ^{137}Cs et suivre son évolution dans le temps. En testant l'impact d'une dégradation de l'échantillonnage sur les mesures de 1999, sans prendre en compte les mesures à petite échelle, il apparaît que les mesures d'activité dans les sols seules induisent de grandes incertitudes sur le stock de radionucléides dans la tranchée. Finalement, avec les données actuelles de 2015, il n'est pas possible d'établir une cartographie de la répartition spatiale de l'activité. L'activité aux points de mesures gamma peut néanmoins être estimée grâce à l'ajustement d'un modèle bivariable. Les incertitudes ont pu être évaluées vis-à-vis de l'implantation des mesures. Une estimation globale et le cokrigage des données de 1999 et de 2015 seraient intéressants à mettre en œuvre pour obtenir les incertitudes relatives au stock (Matheron, 1970).

CHAPITRE 4

Propagation des incertitudes liées à l'estimation du stock en radionucléides dans un modèle de transfert via les eaux souterraines depuis la tranchée T22

Les effets de la variabilité spatiale des paramètres hydrauliques et de la localisation initiale du panache de pollution sur son évolution et son développement ont déjà été largement étudiés. Néanmoins, seules quelques études, comme celle de Kjeldsen et al. (1995), prennent en compte l'effet de la variabilité spatiale du terme source sur la pollution dans les eaux souterraines.

La détermination de la répartition spatiale de l'activité en ^{137}Cs a mis en évidence la présence de points chauds en fond de tranchée qui pourraient expliquer les différences de concentration observées spatialement dans le panache de ^{90}Sr dans les eaux souterraines comme soulevé par Bugai et Dewière (2003). Une corrélation a en effet existé entre les activités en ^{137}Cs et en ^{90}Sr dans les sols au moment de l'accident, mais la mobilité plus grande du ^{90}Sr par rapport au ^{137}Cs ne permet plus actuellement d'établir une corrélation entre eux, le ^{90}Sr s'étant redistribué dans les sols et les eaux souterraines (Kashparov et al., 2012, 2004). Ayant à notre disposition des simulations géostatistiques du stock de ^{137}Cs , il est néanmoins possible de remonter au stock de ^{90}Sr en 1986 dans la tranchée à partir de l'activité en ^{137}Cs et des ratios $^{137}\text{Cs}/^{154}\text{Eu}$ dans la tranchée et $^{90}\text{Sr}/^{154}\text{Eu}$ dans les particules de combustible. Les cartes obtenues permettent ainsi de propager les incertitudes liées à l'implantation des mesures dans un modèle d'écoulement et de transport. Une analyse de sensibilité est par ailleurs conduite sur les paramètres hydrodynamiques et de transport ainsi que sur la répartition du stock au sein de la tranchée.

Par ailleurs, les modèles précédents de transport développés par (Bugai et al., 2012a; Bugai et Dewière, 2004b; Dewière et al., 2005, 2004; Roux, 2013) ne se sont jusqu'à présent intéressés qu'au fonctionnement du système en régime permanent du point de vue de la vitesse d'écoulement i.e. qu'au transport des radionucléides dans la zone non saturée induit par la recharge de la nappe. Or, Van Meir et al. (2007) démontrent que les fluctuations du niveau d'eau ont des répercussions sur la qualité de la nappe en aval de la tranchée donc que le comportement hydraulique transitoire du système influe possiblement sur le transport des radionucléides. Ces fluctuations sont donc reproduites ici à travers plusieurs modèles. Tout d'abord une approche couplant un modèle 1D non saturé et un modèle 3D saturé est explorée, pour simplifier au maximum le modèle non saturé. L'approche 1D non-saturée n'ayant pas été concluante, un modèle 2D non-saturé est donc par la suite construit pour essayer de représenter de manière plus réaliste les écoulements et la migration du ^{90}Sr .

Dans ce chapitre, seront d'abord décrits les paramètres d'écoulement et de transport nécessaires à la construction du modèle hydrogéologique. Puis les modèles antérieurs et les différentes approches de modélisation seront exposés pour enfin nous attarder sur le modèle final choisi pour évaluer l'effet de la variabilité du terme source dans les eaux souterraines à travers une analyse de sensibilité.

1 ETUDE BIBLIOGRAPHIQUE SUR LES PARAMETRES D'ECOULEMENT ET DE TRANSPORT DU SITE EPIC

De nombreuses études ont été menées lors de l'établissement du site EPIC pour caractériser, d'une part, les propriétés hydrodynamiques des différentes couches composant l'aquifère alluvial, et d'autre part, les propriétés de rétention des sols des radionucléides au droit de la tranchée ou sur le site analogue de Prypiat Zaton, dans les zones saturée et non saturée. Ces caractéristiques sont résumées ci-après. Le ^{137}Cs étant très peu mobile, seul le transport du ^{90}Sr est étudié dans ce chapitre.

1.1 Caractéristiques de la zone saturée

1.1.1 Propriétés hydrauliques des différents aquifères

Les différentes propriétés lithologiques, détaillées au Chapitre 1, indiquent que des dépôts éoliens et alluviaux ne possèdent pas les mêmes propriétés hydrauliques. Ceci est dû en particulier à la teneur en argiles plus élevée dans les dépôts alluviaux (Bugai et al., 2012a). Les premiers travaux visant à déterminer la conductivité hydraulique saturée des sédiments remontent à la construction de la centrale et donnent des valeurs moyennes entre 4 et 15 m/j, soit entre $4.6 \cdot 10^{-5}$ et $1.7 \cdot 10^{-4}$ m/s (Bugai et al., 2000). Ces études ont par la suite été reprises. La caractérisation des propriétés hydrauliques des sédiments du site a reposé sur l'analyse de courbes granulométriques, de tests sur colonne en laboratoire, de tests hydrauliques in situ (slug tests et pompage d'essai) et les résultats de modèles mathématiques (Bugai et al., 2001, 2000). Les valeurs de conductivité hydraulique sont présentées au Tableau 4-1.

Tableau 4-1 : Synthèse des valeurs de conductivité hydraulique du site EPIC et du site analogue Pripyat Zaton

Type de dépôts, faciès	Site	Conductivité hydraulique à saturation (K) (m/s)	Méthodes d'acquisition et références
Sables éoliens	Pripyat Zaton	$3.1 \cdot 10^{-5}$ - $9.5 \cdot 10^{-5}$	Courbes granulométriques (formule de Zunker) [2]
	Pripyat Zaton	$3.0 \cdot 10^{-5}$ - $7.5 \cdot 10^{-5}$	Essais sur colonne (formule de Hazen) [3]
	Site EPIC	$3.0 \cdot 10^{-5}$ - $8.2 \cdot 10^{-5}$	Slug tests (formule de Hvorslev) [3]
	Site EPIC	$4.2 \cdot 10^{-5}$	Essai de traçage [3]
	Pripyat Zaton	$5.8 \cdot 10^{-5}$	Analyse variographique [4]
	Forêt rousse	$3.5 \cdot 10^{-6}$ - $1.1 \cdot 10^{-4}$	Slug tests [5]
Sables alluviaux	Pripyat Zaton	$6.9 \cdot 10^{-7}$ - $1.7 \cdot 10^{-6}$	Courbes granulométriques (formule de Kruger) [2]
	Pripyat Zaton	$5.8 \cdot 10^{-7}$ - $3.5 \cdot 10^{-6}$	Essais sur colonne [2]
	Site EPIC	$6.9 \cdot 10^{-6}$ - $6.0 \cdot 10^{-5}$	Slug tests (formule de Hvorslev) [2]
	Pripyat Zaton	$2.9 \cdot 10^{-6}$	Analyse variographique [4]
	"Hydroproject" Institute	$4.6 \cdot 10^{-5}$ - $1.7 \cdot 10^{-4}$	Pompage d'essai et slug tests [3]
	Pripyat Zaton	$1.0 \cdot 10^{-5}$ - $2.2 \cdot 10^{-4}$	Analyses granulométriques [3]
faciès lit de rivière et		$5.8 \cdot 10^{-5}$ - $1.7 \cdot 10^{-4}$	Synthèse des données [1]
faciès plaine d'inondation et bras morts		$\approx 1.2 \cdot 10^{-3}$ (K_x)	Slug tests (pour K_x)
		$2.3 \cdot 10^{-7}$ - $5.8 \cdot 10^{-7}$ (K_z) (anisotrope)	Essais sur colonnes et calage du modèle d'écoulement (pour K_z) [1]
Marnes de l'Eocène		$2.5 \cdot 10^{-4}$ - 2.10^{-2}	Pompages d'essai et calage du modèle hydrodynamique [1]
Sables de l'Eocène		$2.9 \cdot 10^{-5}$ - $3.5 \cdot 10^{-5}$	[1]
[1] Bugai et Dewiere (2004)	[2] Bugai et al. (2001)	[3] Bugai et al. (2000)	
[4] Grenier et Mouche (2001)	[5] Il'ichev et al. (1992)		

La conductivité hydraulique des sables éoliens est comprise entre 2.6 et 8.2 m/j, soit entre $3.2 \cdot 10^{-5}$ et $9.5 \cdot 10^{-4}$ m/s, sur le site EPIC et le site analogue de Prypiat Zaton. Celle des sables alluviaux à faciès lit de rivière varie autour de $5.8 \cdot 10^{-5}$ m/s (5 m/j) et celle des sables alluviaux à faciès de bras morts présente une anisotropie, la conductivité hydraulique horizontale K_x étant supérieure de deux ordres de grandeur que la conductivité hydraulique verticale K_z , avec $1.2 \cdot 10^{-5}$ m/s (1 m/j) pour K_x et environ $1.2 \cdot 10^{-7}$ m/s (0.01 m/j) pour K_z . Les marnes de l'Eocène sont bien moins perméables que les sables alluviaux et éoliens et représentent la base de la nappe alluviale dans le modèle hydrogéologique conceptuel.

La plupart des valeurs de conductivité hydraulique interprétées ou calculées, sont des valeurs locales dont le support est de l'ordre du mètre. Les conductivités hydrauliques peuvent donc être différentes sur un support plus grand.

1.1.2 Fluctuations du niveau de la nappe

Le régime hydraulique de la nappe alluviale et le panache de ^{90}Sr sont suivis à travers un réseau de plus de 100 piézomètres construits entre 1994 et 2006 (Figure 4-1). La plupart sont crépinés dans les sables éoliens ou dans la zone de transition avec les sables alluviaux. Six piézomètres ont été équipés de sondes piézométriques et sont suivis depuis 1999. Les piézomètres 2-99, 2-00, 3-00, 4-00, 6-99 mesurent le niveau de la nappe dans la zone de transition entre les sables éoliens et les sables alluviaux et le piézomètre 1-01 mesure celui dans les sables alluviaux.

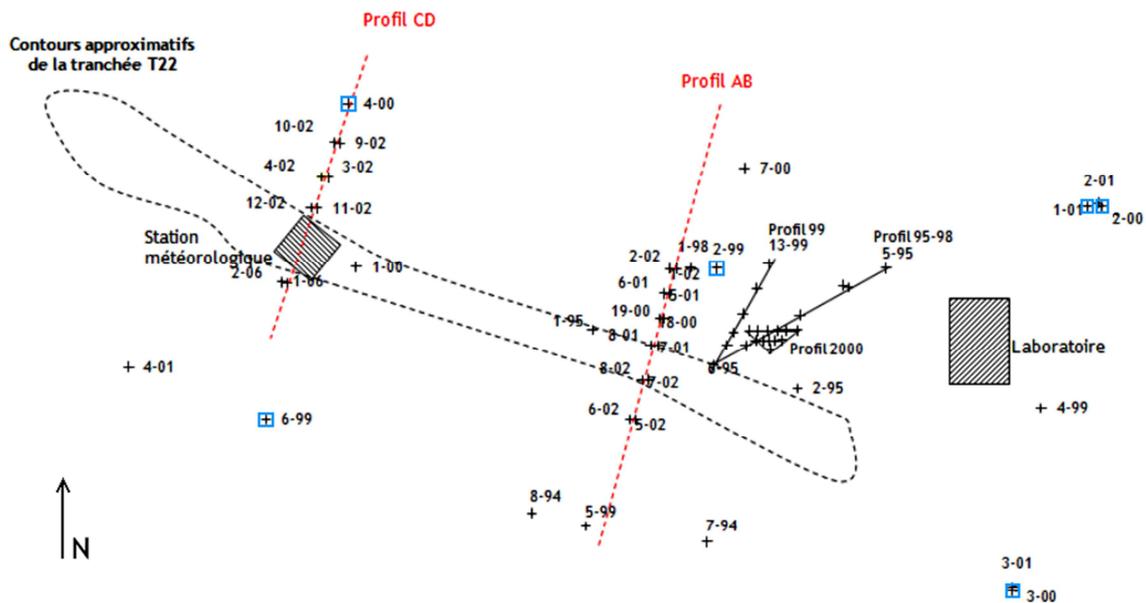


Figure 4-1 : Localisation schématique des piézomètres
Encadrés en bleu, les piézomètres équipés d'une sonde piézométrique

Le niveau de la nappe suit un cycle saisonnier. La période des hautes eaux s'échelonne de la fin de l'hiver (février) au début du printemps (mars-avril) et est caractérisée par de fortes précipitations et par la fonte des neiges. La période de basses eaux s'étend de la fin du printemps au début de l'hiver. On y observe une diminution des infiltrations, donc de la recharge car l'évapotranspiration est plus importante (Bugai et al., 2012a; Bugai et Dewière, 2004a).

Les précipitations et le niveau de la nappe sont fortement corrélés. Le niveau de la nappe augmente presque immédiatement après de fortes précipitations et atteint son maximum en 5-10 jours. La fluctuation saisonnière du niveau de la nappe est d'environ un mètre et son étendue sur la période 1999-2015 est d'environ 2 m. Les cycles du niveau de la nappe et l'influence des précipitations peuvent être observés sur le piézomètre 2-99 qui présente la chronique la plus longue sur le site EPIC (Figure 4-2).

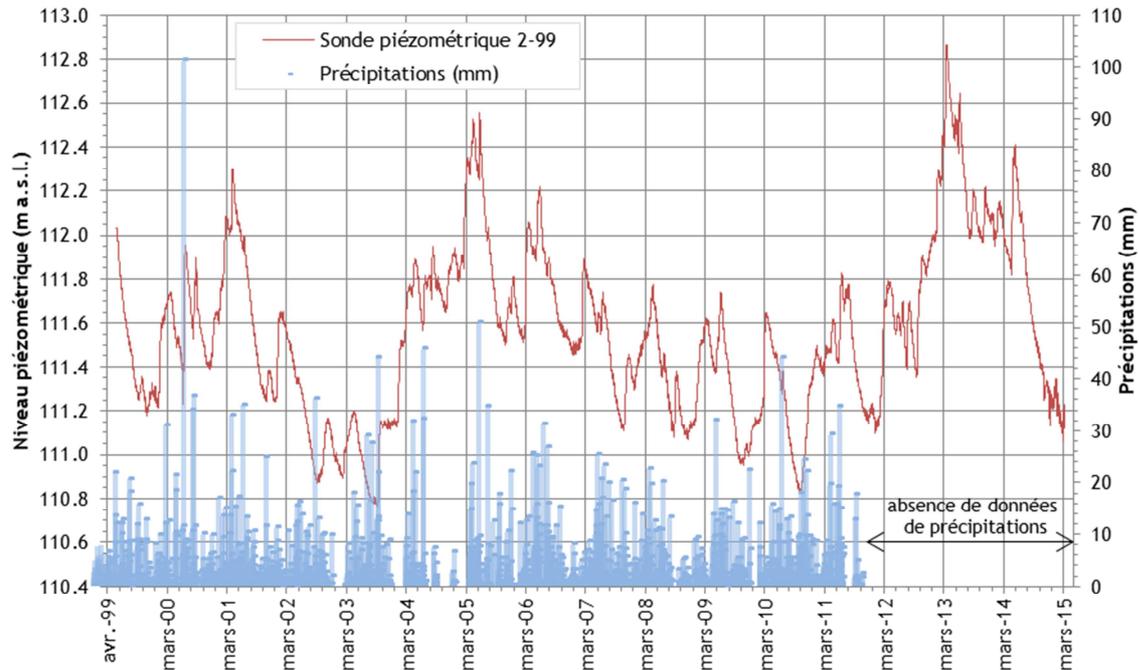


Figure 4-2 : Niveau de la nappe enregistré sur le piézomètre 2-99 entre 1999 et 2015

1.1.3 Distribution du gradient hydraulique horizontal et vertical

Selon les relevés piézométriques, durant les périodes de diminution constante du niveau de la nappe, l'eau s'écoule vers le NNE et le gradient hydraulique est de 0.001 à 0.0015 m/m. Pendant les périodes d'infiltration importante, le gradient hydraulique latéral peut augmenter jusqu'à 0.002-0.003 m/m et la direction d'écoulement de l'eau est déviée au NNW. L'écart angulaire de la direction d'écoulement est de $\pm 10-15^\circ$. A certaines périodes, le gradient hydraulique s'inverse, mais ce phénomène reste exceptionnel. Ces changements de direction sont vraisemblablement dus à la topographie du site expérimental et aux changements de quantité de la recharge et de la période de la recharge (donc fonction de l'épaisseur de la ZNS au moment présent) (Bugai et al., 2012a).

Un gradient hydraulique vertical de l'ordre de 0.02 m/m a été observé sur les groupements de piézomètres 18-00/19-00 et 2-00/1-01. L'ensemble de piézomètres 18-00 a permis l'étude de la distribution du niveau piézométrique dans les matériaux peu perméables des sables alluviaux (faciès de bras morts localisé à 105-106 m a.s.l.). Le groupement 19-00 a été utilisé pour étudier la charge hydraulique dans les sables éoliens (110-115 m a.s.l.) (Bugai et al., 2001; Bugai et Dewière, 2004a). Dans les sables alluviaux de faciès de plaine alluviale et de bras morts, le gradient hydraulique horizontal est 10 à 20 fois plus faible que le gradient vertical (de 0.02 à 0.04 m/m), tandis qu'il est pratiquement horizontal dans les sables éoliens, le gradient vertical étant de l'ordre de 10^{-4} m/m. L'anisotropie d'écoulement serait essentiellement liée à l'hétérogénéité verticale des propriétés lithologiques et hydrauliques des dépôts aquifères (Bugai et al., 2012a; Bugai et Dewière, 2004a).

Ainsi, l'écoulement (et le transport des espèces dissoutes) dans la couche des sables éoliens est pratiquement horizontal. Dans les dépôts alluviaux de faible conductivité hydraulique, l'écoulement semble vertical (Bugai et al., 2012a). Le gradient vertical est par ailleurs suivi temporellement par des sondes aux piézomètres 2-00 et 1-01 (Figure 4-3). En moyenne, sur la période 2001-2011, le gradient hydraulique vertical est de 0.08 m/m (distance entre les crépines de 2-00 et 1-01 de 3.5 m), il diminue lorsque le niveau d'eau monte, en période de recharge, et augmente lorsque le niveau d'eau baisse.

Ce gradient vertical est modélisé par une couche de conductivité hydraulique plus faible dans les sables alluviaux à faciès de bras morts (Bugai et Dewière, 2004b; Roux, 2011).

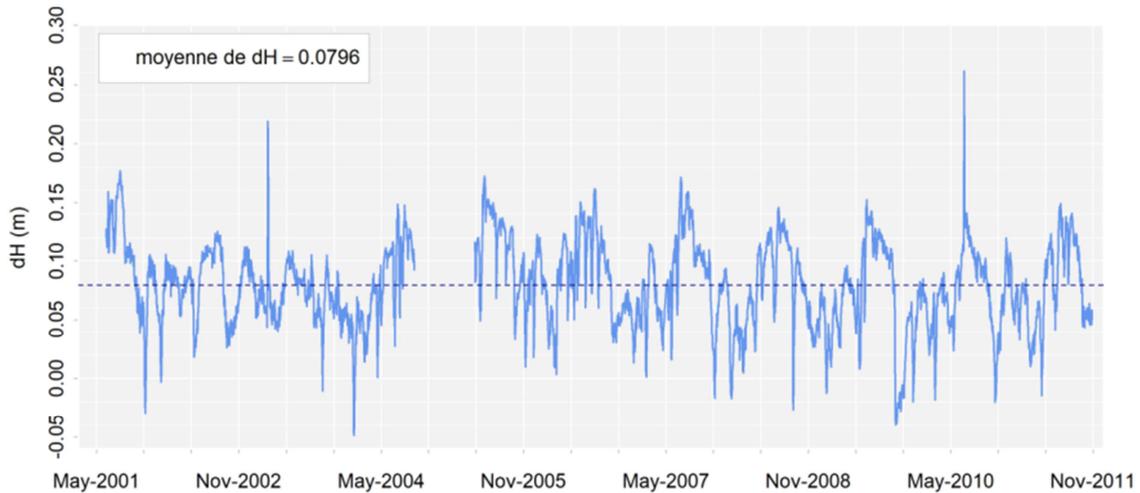


Figure 4-3: Evolution de la différence entre les charges hydrauliques mesurées sur les piézomètres 1-01 et 2-00

1.1.4 Paramètres hydrodispersifs

La vitesse et la direction d'écoulement ainsi que les paramètres hydrodispersifs des espèces dissoutes dans les eaux souterraines ont été étudiés d'une part, en analysant la distribution spatiale des conductivités hydrauliques (Grenier et Mouche, 2001, 2000) et d'autre part, en réalisant des essais de traçage.

La dispersion est une conséquence de la variabilité dans le champ d'écoulement qui provient de l'hétérogénéité du champ de conductivité hydraulique et des conditions aux limites du système. Dans le cas du site EPIC, la principale source de dispersion serait verticale et due à la présence de deux formations distinctes (les sables éoliens et les sables alluviaux). L'étude variographique de Grenier et Mouche (2001) pour un champ d'écoulement uniforme indique que la longueur de la dispersion longitudinale, due à l'hétérogénéité horizontale, serait de 0.008 m à 0.09 m, et la dispersion due à l'hétérogénéité verticale serait de 0.06 m, cette dernière valeur étant considérée comme un seuil maximal. Néanmoins, les écoulements sont loin d'être uniformes, d'autres sources de dispersion doivent être considérées (Grenier et Mouche, 2001). Ces valeurs sont donc considérées à titre indicatif.

Deux essais de traçage ont été effectués en 1999 et en 2001. Le $^{36}\text{Cl}^-$, est une espèce chimique à demi-vie longue par rapport à l'échelle temporelle des essais. N'interagissant pas avec les couches aquifères, il a donc été considéré comme conservatif et utilisé comme traceur (Bugai et al., 2012a; Bugai et Dewière, 2004a). Les deux essais de traçage se sont déroulés sur quelques mois (3 à 5 mois) et sur une échelle relativement réduite : en 1999, les piézomètres se trouvaient à 1 m en aval du puits d'injection et en 2001, les deux lignes de piézomètres utilisés étaient à 1 m et 2.5 m du puits d'injection. Les résultats des essais de traçage sont présentés au Tableau 4-2. Du fait de l'échelle très locale, ces essais n'ont pas pu être reproduits pour caler les paramètres hydrodispersifs du modèle hydrogéologique.

Tableau 4-2 : Résultats des essais de traçage dans l'aquifère des sables éoliens au niveau du site EPIC (Bugai et al., 2012a)

Paramètre	Essai de traçage de 1999	Essai de traçage de 2001
Porosité effective	0.3	-
Vitesse d'écoulement V_x (m/s)	$3.5 \cdot 10^{-7}$ (0.03 m/j)	$3.6 \cdot 10^{-7}$ (0.031 m/j)
V_z/V_x	Non déterminé	1/3
Dispersivité longitudinale (m)	0.09	0.02 - 0.03
Dispersivité transversale (m)	0.09	0.02 - 0.07

Les valeurs de dispersivité correspondent au traceur Cl^- . De plus grandes valeurs de dispersivités sont attendues pour le ^{90}Sr (Bugai et al., 2012a).

Si l'on tient compte de l'extension du panache de 10 m, la dispersivité longitudinale serait plutôt de l'ordre du mètre et la dispersivité transversale, d'un ordre de grandeur inférieure, d'environ 10 cm (Gelhar et al., 1992; Xu et Eckstein, 1995). Van Meir et al. (2009) ont augmenté les valeurs de dispersivité déduites des essais de traçage à 0.1 m dans leur modèle car ce paramètre est dépendant de l'échelle. De même, un ratio de 10 a été considéré entre les dispersivités longitudinale et transverse.

1.2 Caractéristiques de la zone non saturée

La zone non saturée (ZNS) joue un rôle majeur dans la migration des radionucléides car les sols contaminés qui la constituent représentent une source de radionucléides et les eaux qui y circulent un vecteur de cette contamination. Elle est composée de sables perméables de faible teneur en argiles, favorisant ainsi l'infiltration des eaux météoritiques vers la nappe. Son épaisseur varie de 0 à 3-4 m et mesure en moyenne 2.5 à 3 m. Pour modéliser le transfert des radionucléides de la tranchée vers la nappe, il est nécessaire de caractériser l'écoulement dans la ZNS, i.e. l'écoulement de la surface vers la nappe.

1.2.1 Paramètres de la zone non saturée

Le site expérimental a été instrumenté afin d'obtenir les principales caractéristiques de la ZNS. Parmi ces équipements, des capteurs positionnés à différentes profondeurs, des tensiomètres et une station météorologique ont été installés pour mesurer la teneur en eau, la température et la pression de succion du sol. Ils ont permis la description de la courbe de rétention des eaux dans le sol (i.e. la relation entre la pression de succion du sol Ψ et la teneur en eau du sol θ), la détermination de la conductivité hydraulique du sol $K(\theta)$ en conditions non saturée - pour une pression de succion donnée - et saturée, le calcul du bilan hydrique et la caractérisation des conditions limites pour les modèles de transport et d'écoulement de la ZNS (Bugai et Dewière, 2004a; Martin-Garin et al., 2012).

Les propriétés hydro-physiques des sables éoliens du site EPIC ont été étudiées sur des échantillons de sols prélevés à des profondeurs de 1 à 2 m en dehors et dans la tranchée T22. Des courbes de rétention ont été déduites des expériences menées en laboratoire sur ces échantillons (Bugai et Dewière, 2004a).

Les observations en laboratoire ont été comparées aux observations *in situ*. La conductivité hydraulique K en milieu non saturé mesurée par la méthode de l'infiltromètre présente une hétérogénéité spatiale des propriétés hydro-physiques des sols de la tranchée. Par ailleurs, la conductivité hydraulique K saturée estimée varie à petite échelle (d'un point à un autre espacé de quelques dizaines de cm) d'un facteur de 2. La valeur moyenne dans les sols de la tranchée est de $6.9 \cdot 10^{-6}$ m/s (0.6 m/j) soit 4 à 5 fois inférieure aux résultats des expériences en laboratoire.

Les teneurs en eau de la ZNS varient entre 0.05 et 0.2 pour des profondeurs inférieures à 0.5 m. Les essais en laboratoire sur colonne de Mazet (2008) ont mis en évidence des teneurs en eau comprises entre 0.25 et 0.28 tandis que la teneur en eau saturée atteint une valeur maximale de 0.32 dans Bugai et Dewière (2004b).

Le Tableau 4-3 synthétise les caractéristiques de la ZNS.

Tableau 4-3 : Synthèse des paramètres de la zone non saturée du site EPIC et de son analogue Pripjat Zaton ainsi que les paramètres pour la formulation de van Genuchten - Mualem ($m=1-1/n$)

Couche	K_{sat} (10^{-5} m/s)	α (m^{-1})	n	a (10^{-2} m)	θ_r	θ_s	Porosité	Références
Tranchée	2.0	3.0	2.0	-	-	-	0.28	[1]
	2.9- 3.5	3.5	4.0	-	0.02	-	0.37	[5]
Sol	4.5	7.5	2.5	-	0.03	0.28	0.30	[1]
	4.5 - 4.9	3.9 - 6.0	2.7 - 2.8	-	-	-	-	[2]
Sables éoliens	4.2	6.5	1.8	-	-	-	0.28	[1]
	2.2 - 3.4	2.0 - 3.0	2.7 - 4.7	0.5	0.03	0.28	-	[2]
	2.1 - 3.6	2.0	4.0 - 6.0	-	0.03	0.25 - 0.31	-	[3]
(Pripjat Zaton)	3.9 - 4.4	1.7	4.5	0.5	0.02	0.25	0.30	[4]
	3.5 - 4.2	3.8	3.5	-	0.02	-	0.38	[5]
(Pripjat Zaton)	3.6 - 4.8	4.0	-	0.6	-	-	0.31	[6]
	4.4	0.046 - 0.097	1.84 - 2.14	0.13 cm- 1	0.02	0.024	-	[7]
Sables alluviaux	0.18	20	2				0.24	[1]
[1] (Roux, 2013)		[2] (Van Meir et al., 2012)		[3] (Bugai et al., 2008)		[4] (Mazet, 2008)		
[5] (Bugai et Dewière, 2004a)		[6] (Szenknect, 2003)		[7] (Saprykin et al., 2011)				

K_{sat}	la perméabilité à saturation
α	l'inverse de la pression d'entrée d'air
n	un paramètre de forme (mesure de la distribution de la taille des pores)
a	paramètre lié à la tortuosité du milieu poreux
θ_r	la teneur en eau résiduelle
θ_s	la teneur en eau à saturation

Des tests d'infiltrations locaux sont le plus utilisés pour déterminer les paramètres de la ZNS. Van Meir et al. (2012) ont effectué un test d'infiltration à plus grande échelle. Ils indiquent que la stratification des sables éoliens est à prendre en compte pour reproduire de manière satisfaisante les événements de précipitation, pour calculer la recharge de la nappe mais aussi le transport dans la ZNS. Pour les sols du site EPIC, l'hystérésis n'est pas un facteur important (Van Meir et al., 2012).

1.2.2 Estimation de la recharge

La nappe alluviale est principalement alimentée par les eaux météoriques. La recharge a été évaluée et comparée selon plusieurs méthodes dans Bugai et Dewière (2004) : la méthode Water Table Fluctuation (WTF) (Healy et Cook, 2002), la méthode de l'ion chlorure, et la méthode de « Darcy ». Ces différentes méthodes fournissent des estimations de la recharge similaires. La recharge moyenne annuelle est de 200 ± 50 mm/an soit $40 \pm 5\%$ des précipitations atmosphériques avec une infiltration journalière maximale de

5 mm/jour. La principale période de recharge est au printemps, à la fonte des neiges, selon l'étude des isotopes de l'eau (Roux, 2013). Pendant la période sèche, les infiltrations peuvent être inférieures à 0.1 mm/jour.

L'évapotranspiration a été estimée à 140 mm de janvier à mai et à 220 mm le reste de l'année (basée sur la période novembre 2000 - octobre 2001) (Bugai et Dewière, 2004a). Les processus d'évaporation sont limités (Roux, 2013).

Les méthodes WTF et de « Darcy » sont reprises ici pour calculer la recharge quotidienne et mensuelle de 1999 à 2015 et comparer les résultats à l'évaluation de la recharge de Saprykin et al. (2011) et Saprykin et al. (2015). La recharge effective calculée sera utilisée dans le modèle hydrogéologique.

Méthode Water Table Fluctuation

Cette méthode graphique permet d'estimer la recharge à partir des variations du niveau de la nappe et de la porosité de drainage. Elle est basée sur le fait que l'augmentation du niveau piézométrique dans une nappe libre est due à la percolation de l'eau qui arrive à ce niveau. La recharge est ainsi calculée selon l'Equation 4-1 (Healy et Cook, 2002) :

$$Rech - D = S_y \frac{dh}{dt} = S_y \frac{\Delta h}{\Delta t} \quad \text{Equation 4-1}$$

Avec S_y la porosité de drainage

D la décharge horizontale nette (flux horizontal net intervenant dans la fluctuation de la hauteur piézométrique)

h la hauteur piézométrique

t le temps

Pour les sables éoliens, Bugai et Dewière (2004b) ont déterminé la porosité de drainage S_y à 0.14 ± 0.01 (selon les tests sur colonnes de drainage et les résultats de pompages d'essai).

Saprykin et al. (2015) appliquent une version modifiée de la méthode WTF, appliquée ici pour calculer la recharge, en choisissant certaines périodes de récession du niveau de la nappe. Plusieurs valeurs de porosité de drainage ont été utilisées S_y allant de 0.11 à 0.15. L'estimation de la recharge semble en meilleur accord avec l'estimation de Saprykin et al. (2015) pour une porosité de drainage de 0.11. Cette différence est due à la subjectivité de la méthode notamment lors du traçage des courbes de récession.

L'application de la méthode est présentée à la Figure 4-4 et les résultats sont présentés en vert à la Figure 4-5 et au Tableau 4-4. Sur les données à notre disposition, la recharge moyenne annuelle est de 262 mm pour $S_y = 0.11$.

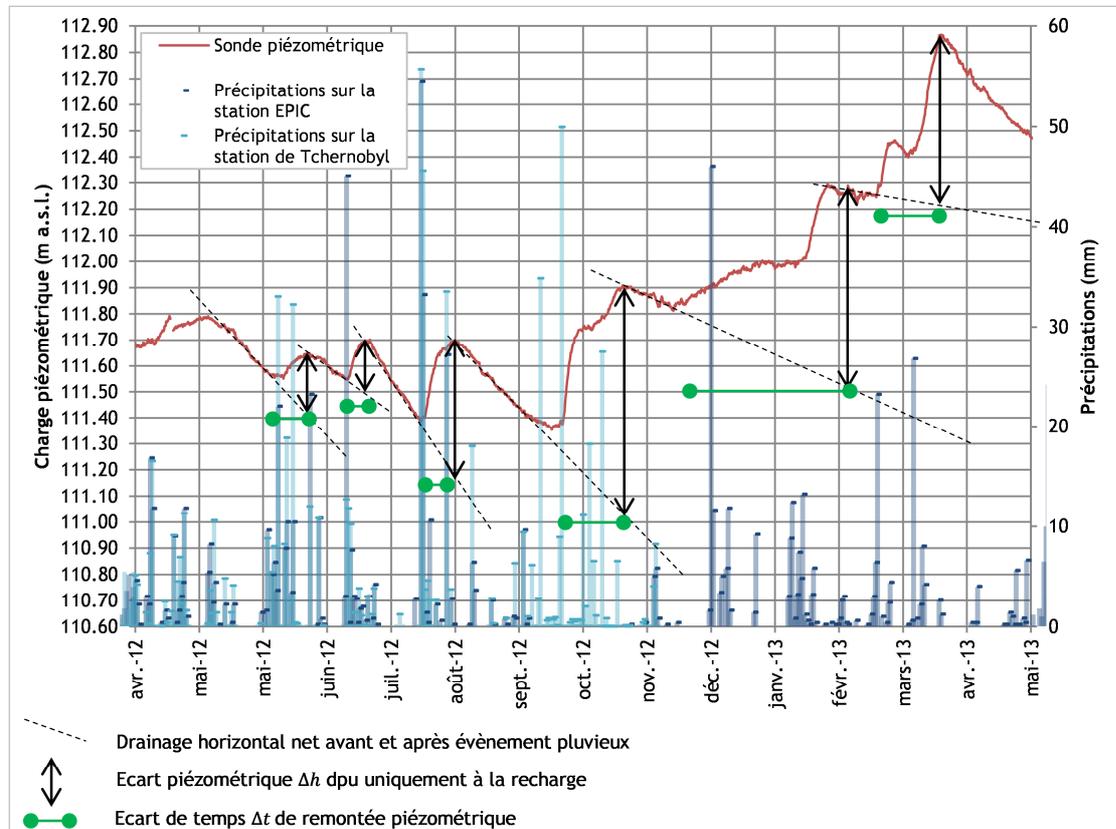


Figure 4-4 : Application de la méthode WTF au piézomètre 2-99 d'avril-2012 à mai-2013

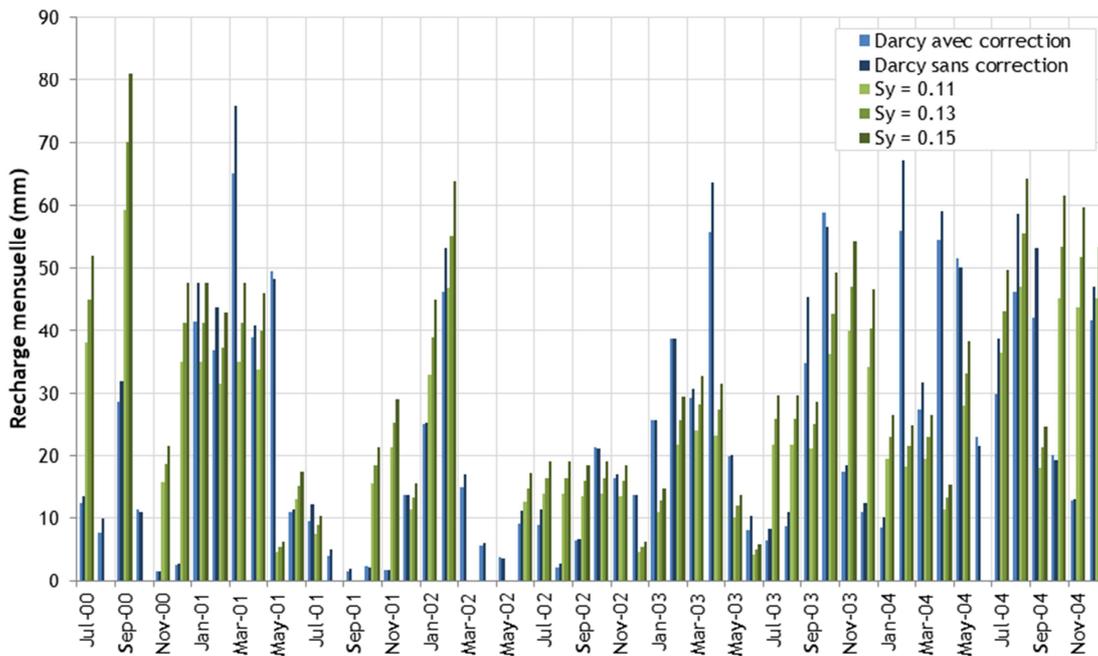


Figure 4-5 : Recharge mensuelle calculée sur la période 2000-2004 avec la méthode de hydro-physique (en bleu) et la méthode WTF (en vert)

La méthode WTF reste incertaine en partie à cause de la précision limitée de l'évaluation de la porosité de drainage et de la subjectivité dans la détermination des courbes de récession, d'où la nécessité d'utiliser plusieurs méthodes pour estimer la recharge (Bugai et Dewière, 2004a; Healy et Cook, 2002).

Méthode hydro-physique ou méthode de Darcy

La recharge est ici calculée par la méthode hydro-physique (Freeze et Banner, 1970) détaillée dans Bugai et Dewière (2004) et Saprykin et al. (2011). Elle consiste à calculer un flux entre deux profondeurs sur une période donnée à partir des mesures de pression capillaire et de la courbe de rétention dans le milieu. Les mesures directes des tensiomètres installés sur le site EPIC étant moins fiables, les mesures de teneur en eau sont privilégiées après avoir été converties en pression capillaire.

Le profil du sol peut être divisé en trois parties (Bugai et al., 2012a) :

- de la surface du sol jusqu'à 1 m de profondeur : l'écoulement dans la ZNS fluctue au cours de l'année et peut être ascendant ou descendant ;
- de 1 à 2 m de profondeur : l'écoulement est descendant et stable ;
- au-delà de 2 m de profondeur se trouve la frange capillaire (mouvement multidirectionnel inhérent à la zone de battement de la nappe).

Compte tenu des caractéristiques du mouvement de l'eau dans la ZNS, le calcul de la recharge par la méthode hydro-physique a été effectué sur les capteurs de teneur en eau situés à 1.25 m et 1.75 m (Saprykin et al., 2011). Les résultats sont corrigés de la température (Bugai et Dewière, 2004a) et les valeurs manquantes sont remplacées par la moyenne journalière (Figure 4-6 et Tableau 4-4). Après correction, la moyenne annuelle de la recharge sur les années 2001, 2003 et 2004 est de 334 mm (sans correction, elle serait de 382 mm). Les résultats obtenus sont supérieurs à ce qui a été estimé dans (Bugai et Dewière, 2004a; Saprykin et al., 2015) à cause du remplacement des valeurs manquantes de la recharge par la moyenne journalière. Si elles n'avaient pas été remplacées, les valeurs auraient été similaires (226 mm pour l'année 2003 - comparaison à 240 mm de Saprykin). Néanmoins, pour l'année 2003, le nombre non négligeable de valeurs manquantes (22 %) a conduit à les combler.

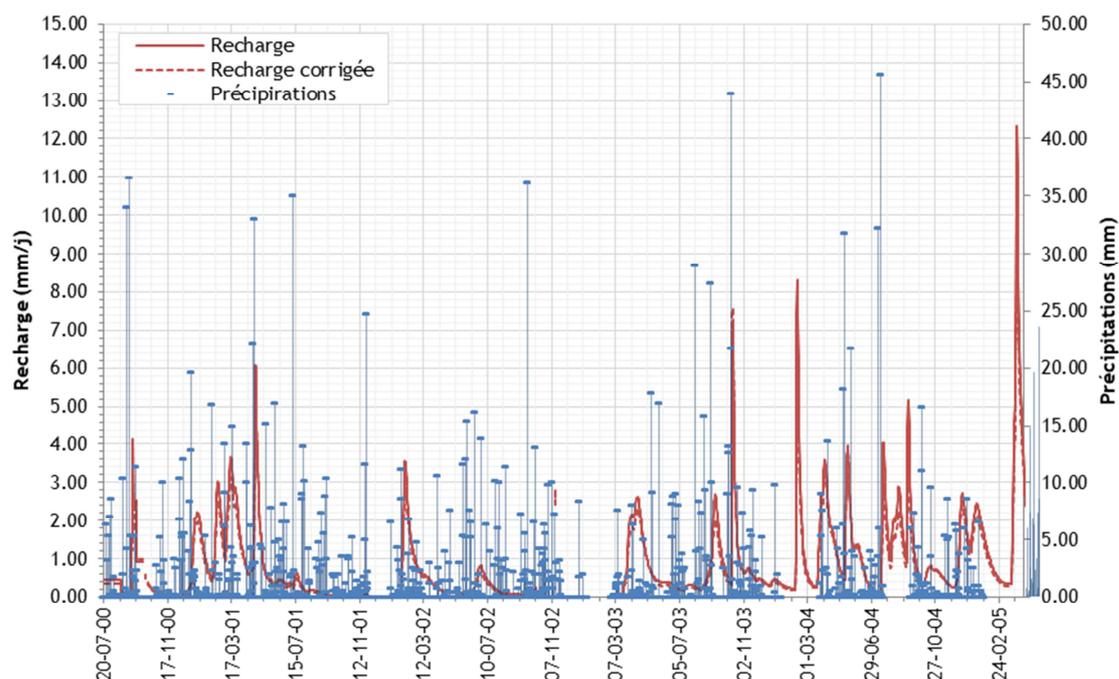


Figure 4-6 : Recharge calculée par la méthode de Darcy sur les années 2001, 2003 et 2004

Tableau 4-4 : Comparaison des résultats de l'estimation de la recharge annuelle à ceux de Saprykin et al. (2015)

Année	(Saprykin et al., 2015)			Estimation			Ecart entre les méthodes WTF	Ecart entre les méthodes hydrophysiques
	Précipitations (mm)	Méthode hydro-physique	Méthode WTF	Précipitations (mm)	Méthode hydro-physique	Méthode WTF $S_y=0.11$		
2000	624	-	329	650	-	317	3.7%	-
2001	668	265	257	597	276	259	-0.8%	-4.0%
2002	470	-	210	488	-	166	21.2%	-
2003	533	240	242	518	314	216	10.7%	-31.0%
2004	675	429	417	615	413	366	12.2%	3.8%
2005	704	-	326	592	-	294	9.9%	-
2006	635	-	234	590	-	217	7.4%	-
2007	682	-	259	558	-	248	4.2%	-
2008	603	-	298	419	-	236	20.8%	-
2009	614	-	277	523	-	297	-7.2%	-
2010	593	-	300	573	-	323	-7.8%	-
2011	610	-	245	508	-	178	27.3%	-
2012	787	-	439	-	-	466	-6.1%	-

Pour le modèle, la chronique de recharge est construite sur la base de la méthode hydro-physique qui fournit la recharge au pas de temps journalier. Lorsque les données sont manquantes et ne permettent pas d'appliquer la méthode hydro-physique, l'estimation a été complétée par la méthode WTF où la recharge est alors moyennée sur la période d'estimation correspondante.

1.3 Migration du strontium-90 dans la zone non saturée et la zone saturée

1.3.1 Distribution du strontium-90 dans la zone non saturée et la zone saturée

Deux profils de piézomètres, AB et CD (Figure 4-1), positionnés perpendiculairement à l'allongement de la tranchée et dans le sens d'écoulement des eaux souterraines permettent de suivre l'évolution temporelle et spatiale du panache de ^{90}Sr . Il s'étend à environ 10 m en aval de la tranchée T22 et plonge légèrement dans les sables alluviaux, selon la direction d'écoulement de la nappe (Figure 4-7 et Figure 4-8). Les concentrations en ^{90}Sr varient en moyenne autour de 1000-2000 Bq/L dans le panache (Bugai et al., 2012a) mais peuvent dépasser $n \times 10000$ Bq/L selon la position du piézomètre, la recharge, le niveau piézométrique (donc les conditions de saturation) et les conditions géochimiques (Figure 4-7).

Sur le profil CD, les concentrations en ^{90}Sr sont beaucoup plus élevées que sur le profil AB (Figure 4-7 et Figure 4-8). Cette observation semble en assez bon accord avec les activités observées dans les déchets car un point chaud a été mis en évidence dans le Chapitre 3 à la base de la tranchée sur le profil CD, comme déjà observé par Van Meir et al. (2009). L'extension maximale du panache sur le profil CD est du même ordre de grandeur que le long du profil AB. Les données disponibles (niveaux d'eau et concentrations) sont néanmoins moins nombreuses sur le profil CD que sur le profil AB.

Les concentrations observées dans les eaux souterraines sous la tranchée de 1999 à 2015 présentent une forte variabilité interannuelle qui semble contrôlée en premier lieu par le niveau d'eau dans les déchets : les années où la base de la tranchée est noyée, les concentrations sont nettement plus élevées que celles où le niveau d'eau ne dépasse jamais sa base (Figure 4-7 et Figure 4-8).

En dehors des périodes de hautes eaux, l'infiltration des eaux issues des précipitations ne semble pas influencer de manière significative les concentrations dans la nappe qui sont donc affectées de manière beaucoup plus conséquentes par les épisodes d'ennoiement de la tranchée au cours des années où le niveau est exceptionnellement haut. Van Meir et al. (2007) a en effet émis l'hypothèse qu'activité en ^{90}Sr et niveau de la nappe sont corrélés. Cette observation repose sur un nombre relativement faible de données d'activité en ^{90}Sr dans les eaux souterraines : mis à part en 2001 où 5 prélèvements ont pu être effectués au mieux par piézomètres, 2 prélèvements par an en moyenne ont été effectués, la chronique la plus longue comportant 25 données.

En dehors du panache, l'activité est de l'ordre de $n \times 100$ Bq/L et serait due à la migration verticale des radionucléides provenant d'une pollution résiduelle de la couche remaniée qui recouvre la tranchée (Bugai et al., 2012a). La vitesse de migration du ^{90}Sr en 2002 a été estimée environ à 9% de la vitesse d'écoulement de la nappe (Bugai et al., 2012a).

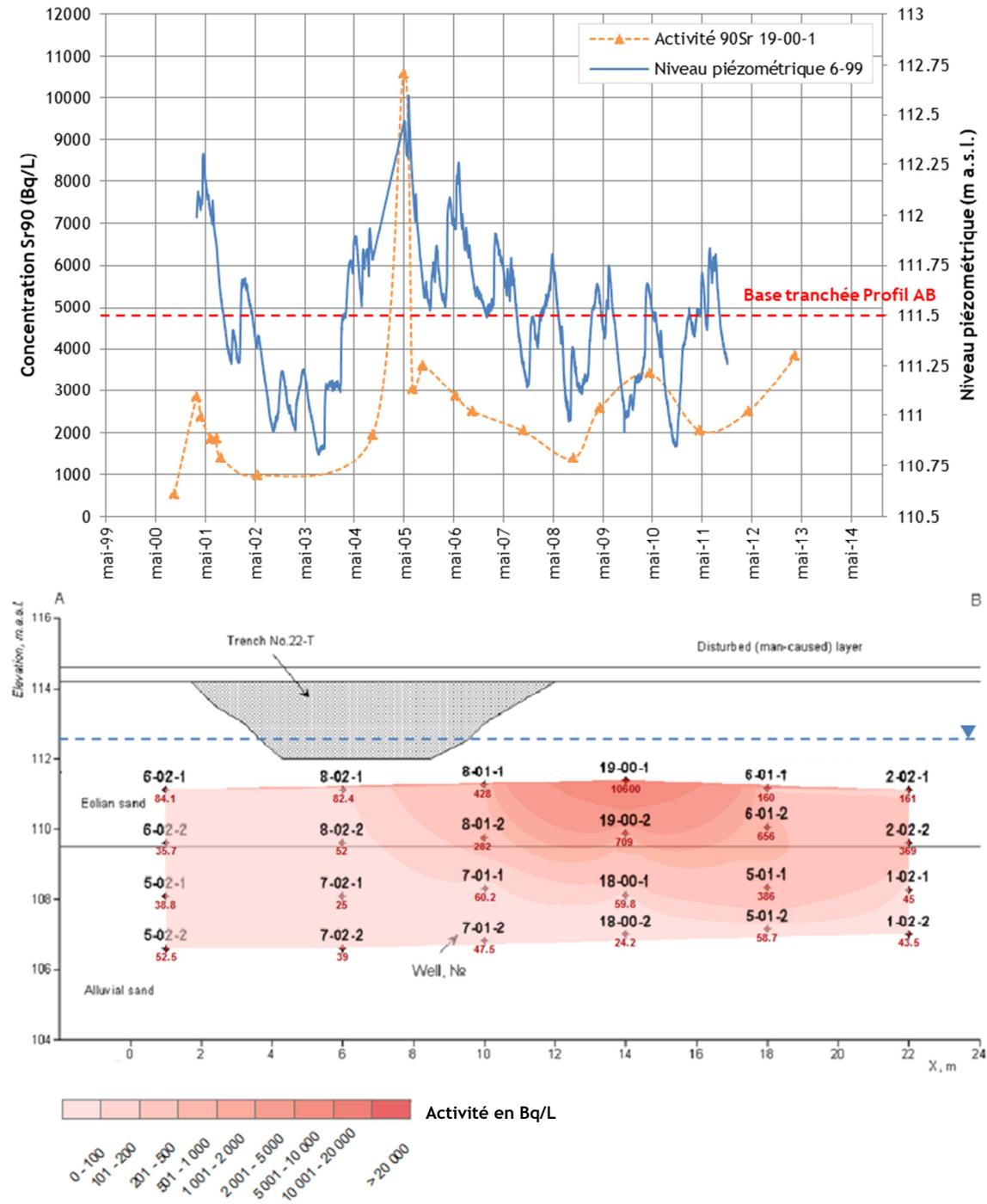


Figure 4-7 : Variation temporelle de l'activité en ^{90}Sr sur le profil AB. Haut : Suivi temporel de l'activité en ^{90}Sr sur le piézomètre 19-00-1. Bas : Activité en ^{90}Sr dans les eaux souterraines en mai 2005. Le niveau piézométrique est représenté par un trait en pointillé bleu. La position des piézomètres représente le milieu des crépines.

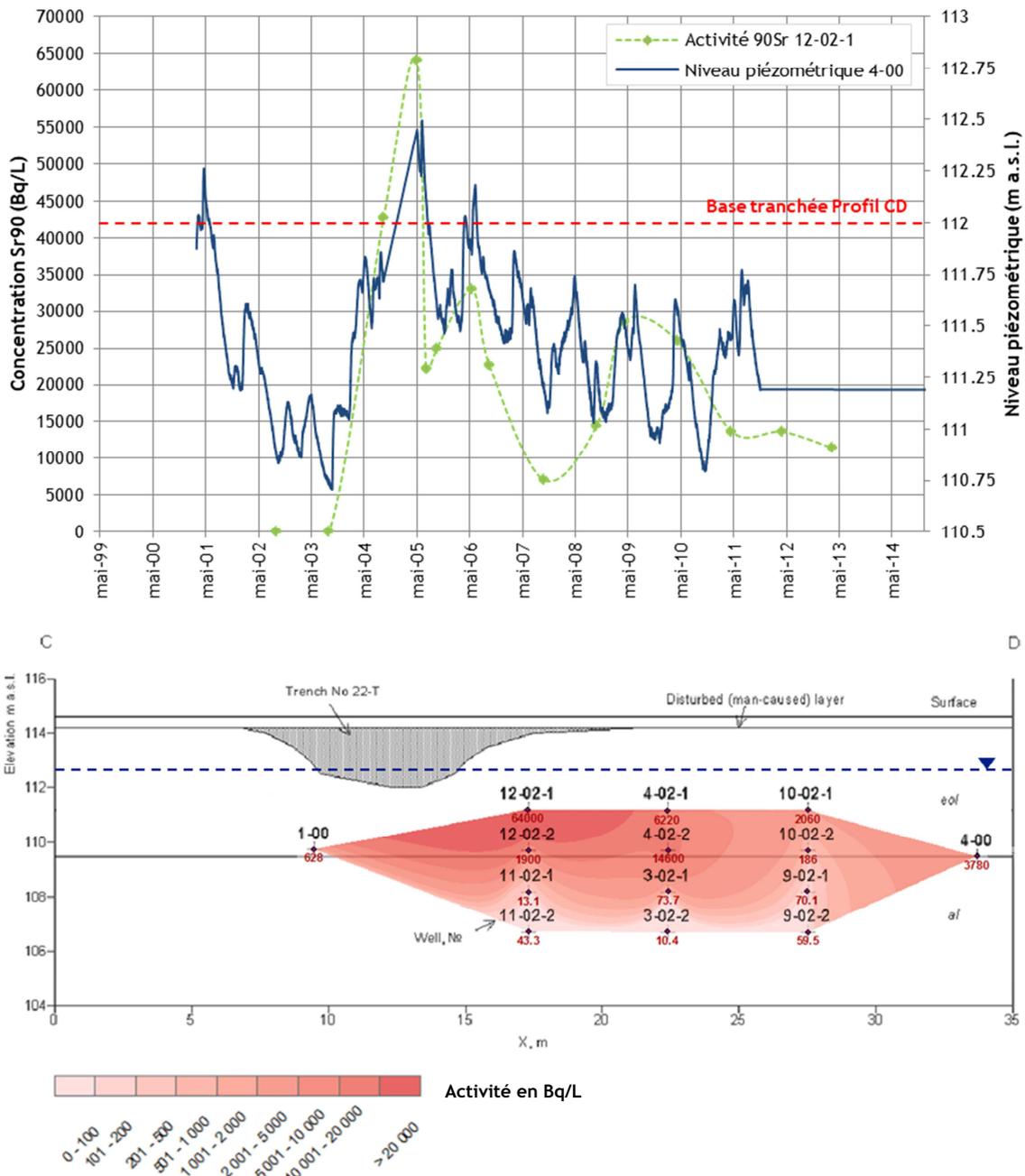


Figure 4-8 : Variation temporelle de l'activité en ^{90}Sr sur le profil CD. En haut : Suivi temporel de l'activité en ^{90}Sr sur le piézomètre 12-02-1. En bas : Activité en ^{90}Sr dans les eaux souterraines en mai 2005. Le niveau piézométrique est représenté par un trait en pointillé bleu. La position des piézomètres représente le milieu des crépines.

1.3.2 Paramètres de sorption du strontium

Les thèses de Szenknect (2003) et (Mazet, 2008) ont étudié les mécanismes de sorption du strontium en conditions statique et dynamique ainsi que sa migration dans les sables éoliens de Prypiat Zaton en conditions saturée et non saturée. Le nombre de sites d'échange accessibles au strontium dépend des conditions géochimiques et surtout de la concentration en Sr^{2+} stable et en Ca^{2+} . Le mécanisme de sorption est non linéaire, instantané et réversible dans les conditions expérimentales de Szenknect (2003). La diminution de la teneur en eau augmente la dispersivité par l'apparition d'eau immobile, donc la dispersion du panache du strontium, mais l'utilisation d'une même valeur de coefficient de distribution (Kd) du

strontium dans la zone saturée et dans la ZNS du site pilote de Tchernobyl induit une erreur négligeable, à l'échelle d'un essai sur colonne (Szenknect, 2003).

Pour modéliser le transport des radionucléides, il est ainsi possible d'utiliser une approche Kd pour décrire l'isotherme de sorption du soluté étudié si les conditions physico-chimiques dans la ZNS et dans la ZS sont identiques et stables, car la migration du strontium est bien plus influencée par le fond géochimique que par les changements de degré de saturation induits par différents cycles d'infiltrations et de drainages (Mazet, 2008; Szenknect, 2003). Les concentrations de Ca^{2+} , SO_4^{2-} , Mg^{2+} et Sr^{2+} stable sont supérieures en aval par rapport à l'amont de la tranchée et proviennent de la tranchée (Van Meir et al., 2009). Leur suivi temporel sur le réseau de piézomètres indique que ces concentrations varient dans le temps. Ainsi le Kd varie aussi bien spatialement que temporellement. Un Kd constant devrait donc être considéré comme une valeur moyenne sur la période de simulation (Van Meir et al., 2009).

L'approche Kd est plus pratique à mettre en place par rapport à une approche mécaniste qui repose sur la construction d'un modèle géochimique plus lourd et nécessite l'acquisition d'un grand nombre de paramètres, en particulier à 2D ou 3D. Le Kd est un coefficient qui définit la distribution d'un élément entre sa fraction sorbée et celle en solution. Il se calcule comme suit à partir des résultats d'une simulation géochimique (Equation 4-2) (de Windt et al., 2005) par :

$$K_d = \frac{[RN]_{eq \text{ dans la phase solide ie dans les sédiments}}}{[RN]_{eq \text{ dans la phase liquide ie dans les eaux souterraines}}}$$

$$K_d = \frac{\omega}{(1 - \omega)\rho_s} \frac{[\overline{N_p}]_{tot}}{[N_p]_{tot}} \quad \text{Equation 4-2}$$

Avec ω porosité (adimensionnelle)

ρ_s densité du solide (kg/m^3)

$[\overline{N_p}]_{tot}$ et $[N_p]_{tot}$ respectivement concentrations totales fixée et aqueuse exprimée par rapport à la solution (mol/L)

Le Kd est pris en compte dans les codes de transport par l'intermédiaire du coefficient de retard R (Equation 4-3) :

$$R = 1 + \frac{1 - \omega}{\omega} \rho_s K_d \quad \text{Equation 4-3}$$

Les valeurs de Kd peuvent varier de plus d'un ordre de grandeur au sein d'une couche selon la façon dont il a été déterminé (expérience en laboratoire, vitesse d'écoulement de l'eau, modélisation...) (Tableau 4-5). Les concentrations *in situ* en Ca^{2+} et Sr^{2+} étant supérieures aux concentrations prises en compte en laboratoire, le Kd calé est ainsi inférieur à celui déterminé expérimentalement (Van Meir et al., 2009).

Tableau 4-5 : Synthèse des valeurs de K_d déterminées dans le cadre du site EPIC

Type de dépôts, faciès	Site d'étude	K_d (ml/g)	Méthodes d'acquisition et références
Sables éoliens	Site EPIC	3	Vitesse d'écoulement du ^{90}Sr [1]
	Prypiat Zaton	2 - 3	Expérience en laboratoire [2]
		0.5	Calage modèle 1D [3]
	Prypiat Zaton	10 - 46	Essais sur colonnes - Traçage [4]
	Prypiat Zaton	0.2 - 12	Essais en réacteurs fermés type batch [4]
	Prypiat Zaton	43	Essais en réacteurs fermés type batch [4]
		25	Modélisation [5]
Site EPIC	0.5 - 5	Expériences <i>in situ</i> [6]	
Sables alluviaux	Site EPIC	3.4 - 10	Essais en réacteurs fermés type batch [6]
	Prypiat Zaton	20 - 50	Expérience en laboratoire [2]
		1-4	Calage modèle 1D [3]

[1] (Bugai et al., 2000) [2] (Bugai et al., 2001) [3] (Van Meir et al., 2009) [4] (Mazet, 2008)
 [5] (Szenknect et al., 2005) [6] (Bugai et al., 2012a)

Un K_d pour le ^{90}Sr dans la tranchée a aussi été utilisé et calé à 2-8 mL/g dans un modèle 1D et à 5 mL/g dans un modèle 2D de transport (Bugai et Dewière, 2004b). Nous verrons par la suite s'il est nécessaire de le différencier dans la tranchée ou non.

2 APPROCHE ANTERIEURE DE LA MODELISATION DU TRANSPORT DU STRONTIUM-90

La modélisation donne des clefs de compréhension et une description mathématique des processus physique et chimique de l'écoulement et du transport du ^{90}Sr dans le système tranchée-aquifère (Bugai et Dewière, 2004b). Le modèle construit a été utilisé par Bugai et al. (2012) en tant qu'outil pour la prédiction de la migration des radionucléides à long terme en vue d'évaluer les risques liés aux tranchées de déchets. Il est composé de différents modules :

- la répartition spatiale des RN dans la tranchée est déterminée en 3D via un modèle structural développé par Bugai et al. (2005),
- un modèle 1D de dissolution des particules de combustible et la redistribution du ^{90}Sr dans la tranchée et dans la ZNS (Bugai et Dewière, 2004b; Dewière et al., 2005; Kashparov et al., 2012), et
- un modèle 2D/semi-3D pour simuler en conditions saturées, sous l'effet d'un écoulement en régime permanent, le panache de ^{90}Sr au cours du temps reprenant les résultats du modèle 1D (Figure 4-9).

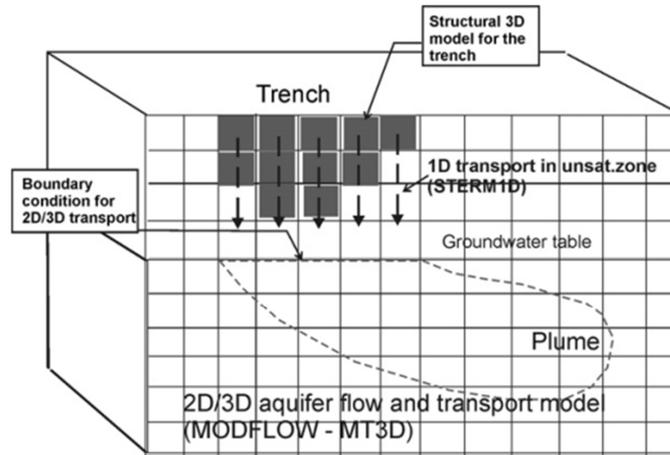


Figure 4-9 : Schématisation de la modélisation du transport du ⁹⁰Sr (Bugai et al., 2012a)

2.1 Modélisation avec STERM 1D et approche 2D

2.1.1 Principe

Le modèle développé par Bugai et Dewière (2004a) et Dewière et al. (2005) calcule les concentrations à la base de la tranchée au pas de temps annuel sur la base des cinétiques de dissolution des particules de combustibles mesurées en laboratoire. Il s'agit d'un modèle 1D vertical où toute la tranchée est considérée comme insaturée avec une teneur en eau constante dans l'espace et le temps. La date de début du relargage de ⁹⁰Sr dans l'environnement a été fixée en 1986, la dissolution des particules chaudes (PC) ayant commencé dès l'accident.

Ce modèle calcule la concentration en ⁹⁰Sr dans l'eau en résolvant l'Equation 4-4 :

$$\frac{\partial C}{\partial t} = D \frac{\partial^2 C}{\partial z^2} - \frac{I}{\theta R} \frac{\partial C}{\partial z} - \lambda C + \frac{F(t, z)}{\theta R} \quad \text{Equation 4-4}$$

- Où
- $C(t, z)$ est la concentration en ⁹⁰Sr dans l'eau porale ($\text{Bq} \cdot \text{m}^{-3}$),
 - θ la teneur en eau volumique dans la zone non saturée,
 - D le coefficient de dispersion ($\text{m}^2 \cdot \text{j}^{-1}$),
 - λ la demi-vie du ⁹⁰Sr (j^{-1}),
 - I la recharge ($\text{m} \cdot \text{j}^{-1}$),
 - $F(t, z)$ le flux d'activité en ⁹⁰Sr dû à la dissolution des particules de combustibles ($\text{Bq} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{j}^{-1}$),
 - R le coefficient de retard du ⁹⁰Sr,
 - z la profondeur (m),
 - t le temps (j).

Le coefficient de diffusion D est calculé dans le modèle sur la base de la dispersivité longitudinale (α_L , m) selon l'Equation 4-5 :

$$D = \frac{\alpha_L I}{\theta R} \quad \text{Equation 4-5}$$

Le flux d'activité $F_i(t, z)$ en ^{90}Sr émis par la dissolution des particules de combustibles est estimé par le calcul suivant pour chacune des classes i de particules (oxydes d'uranium de type UO_{2+x} , UO_2 , U-O-Zn) (Equation 4-6) :

$$F_i(t, z) = k_i E_i A_0(z) \exp(-(\lambda + k_i)t) \quad \text{Equation 4-6}$$

Où k_i est la constante cinétique de dissolution des particules de classes i (j^{-1})
 E_i la fraction d'activité associée aux particules de classe i à $t = 0$
 $A_0(z)$ l'activité en ^{90}Sr dans la maille de profondeur z pour toutes les classes de particules confondues à $t = 0$ ($\text{Bq} \cdot \text{m}^{-3}$).

Les paramètres bien caractérisés ou peu sensibles ont été considérés comme déterministes et donc fixés dans le modèle (la répartition initiale du ^{90}Sr , le taux de dissolution et la partition de particules chaudes, les paramètres décrivant l'écoulement). Une analyse de sensibilité a été conduite sur les paramètres jugés incertains, les coefficients de distribution dans la tranchée et dans la nappe, les dispersivités longitudinale et transversale, le taux d'infiltration (pluie efficace) (Bugai et Dewière, 2004b).

Les ratios $^{137}\text{Cs}/^{90}\text{Sr}$ et $^{90}\text{Sr}/^{154}\text{Eu}$ et les mesures radiométriques effectuées pour calculer l'activité en ^{137}Cs dans les sols ont été utilisés pour déterminer de manière stochastique la répartition initiale de ^{90}Sr à la date de création de la tranchée et propager les incertitudes liées au paramétrage du modèle (Bugai et Dewière, 2004b). Cette partie a été détaillée au Chapitre 1, à la partie 3.2.2., p16.

Les flux d'eau et d'activité obtenus avec le modèle 1D sont ensuite imposés en tant que conditions aux limites dans un modèle 2D vertical saturé construit sous MODFLOW-MT3D le long du profil AB (Bugai et al., 2012a; Bugai et Dewière, 2004b). La modélisation est effectuée sur 16 ans, de 1986 à 2002, en régime permanent pour les conditions hydrodynamiques et avec un coefficient de distribution du ^{90}Sr constant pour les conditions géochimiques. Le modèle de transport est calé par « essais et erreurs » en modifiant d'abord les valeurs de K_d , puis les dispersivités pour le modèle 2D. Le calage s'est appuyé sur les mesures d'activité en ^{90}Sr dans les piézomètres depuis 1995 (Bugai et al., 2012a).

2.1.2 Résultats antérieurs

Le modèle a permis d'expliquer la gamme de concentrations observée dans des bougies poreuses situées dans deux zones distinctes de la tranchée, qui s'échelonne de 5000 à 20 000 Bq/L. Le modèle indique que 4 % du stock de ^{90}Sr (valeur médiane des sorties du modèle) passent en solution au bout de 15 ans. Comme cette estimation est proche de celle obtenue en intégrant dans la nappe la quantité de ^{90}Sr observée dans l'aquifère au bout de 15 ans et également de celle obtenue en estimant la quantité de ^{90}Sr passé en solution compte tenu des rapports $^{154}\text{Eu}/^{90}\text{Sr}$ observés dans les particules de combustibles en 2001, le modèle construit a été jugé satisfaisant pour représenter le fonctionnement du terme source de cette tranchée (Bugai et Dewière, 2004b).

Il a ensuite été utilisé pour prévoir l'évolution du panache de ^{90}Sr émanant de la tranchée T22 dans les eaux souterraines afin de quantifier les risques qui y sont associés. L'activité dans les eaux porales en dessous de la tranchée atteint son maximum de 20 000 - 25 000 Bq/L 20 à 30 ans après l'accident et décroît à 1 Bq/L 240 ans après. La quantité maximale de ^{90}Sr atteinte dans l'aquifère survient environ 40 ans après l'accident et représente 18 % du stock initial dans la tranchée T22. Par la suite, la décroissance radioactive est le phénomène prédominant par rapport à l'infiltration jusqu'aux eaux souterraines (Bugai et al., 2012a). Le panache s'étend jusqu'à 200 m en aval de la tranchée (si une activité supérieure à 2 Bq/L est prise en compte) et s'engouffre jusqu'à 15 m de profondeur.

Cette étude a confirmé les résultats de Bugai et al. (1996) : les tranchées dans la zone de la forêt rousse ne représentent pas la source de risque la plus importante de la contamination de la rivière Prypiat et de l'aquifère plus profond de l'Éocène qui est utilisé comme une source d'eau potable sur le site de Tchernobyl (Bugai et al., 2012a).

2.2 Améliorations possibles de la modélisation

Les concentrations observées dans les eaux souterraines sous la tranchée de 1999 à 2015 présentent une forte variabilité interannuelle. Les modèles construits jusqu'à présent décrivent le comportement moyen du panache de ^{90}Sr sur la période de simulation du terme source et ne reproduisent pas ces variations temporelles à une échelle plus fine. Cette variabilité semble contrôlée en premier lieu par le niveau d'eau dans les déchets : les années où la base de la tranchée est ennoyée, les concentrations sont nettement plus élevées que celles où le niveau d'eau ne dépasse jamais sa base. La recharge moyenne annuelle qui se contamine au contact des déchets (200 à 400 mm/an) ne semble donc pas influencer de manière significative les concentrations dans la nappe. Elles seraient donc affectées de manière beaucoup plus conséquente par les épisodes d'ennoiement de la tranchée lorsque le niveau est exceptionnellement haut, comme Roux (2013) l'a suggéré dans sa thèse. Son modèle a néanmoins considéré un écoulement permanent et un terme source constant.

Les concentrations observées à la base de la tranchée sous le profil AB n'excèdent jamais 3000 Bq/L alors que les simulations obtenues par STERM 1D présentent des paliers de concentration minima de 4000 Bq/L au bout de 10 ans (dès 1996). Si la dispersion par diffusion et advection dans la nappe permet de reproduire de manière satisfaisante le panache en aval de la tranchée, les concentrations à la base de la tranchée sont mal reproduites car elles sont en réalité beaucoup plus faibles et présentent une forte variabilité interannuelle (concentrations exceptionnelles de 3000 Bq/L maximum les années où la nappe est haute et de quelques centaines de Bq/L la plupart du temps).

Le fait que STERM1D ne reproduise pas fidèlement les concentrations dans la nappe à la base de la tranchée et en particulier leur dynamique temporelle, peut s'expliquer par un couplage de type « concentration imposée » utilisé comme conditions aux limites du modèle d'écoulement et de transport. Ce couplage pourrait être revu ici en calculant avec STERM 1D non pas une concentration à la base de la nappe mais un flux qui pourrait varier non seulement dans le temps (sur la base des chroniques de niveaux d'eau observées) mais aussi dans l'espace (sur la base des simulations géostatistiques des activités en ^{137}Cs puis en ^{90}Sr au Chapitre 3).

La modélisation s'attardera donc à représenter de manière plus réaliste le terme source et le panache de ^{90}Sr en considérant le terme source comme un « dépôt » dont la variabilité spatiale sera présentée par des cartes d'activité de ^{137}Cs déduite de l'analyse géostatistique des chapitres précédents. Des cartes de ^{90}Sr peuvent en être déduites et utilisées dans la modélisation du transport pour évaluer l'effet de la variabilité spatiale du terme source (cf section 4.4). Toutefois, cette représentation du terme source est simplifiée par rapport au modèle STERM1D élaboré par Bugai et al. (2012a). Un régime transitoire est instauré pour intégrer de ce battement dans le modèle et évaluer l'influence du battement de la nappe sur les panaches de ^{90}Sr .

3 VERS UNE MODELISATION EN 1D NON SATURE ?

3.1 Principe et hypothèses

La première question soulevée pour reproduire la migration du ^{90}Sr dans la nappe alluviale est le nombre de dimensions de l'espace nécessaires pour représenter l'écoulement.

Pour limiter les temps de calcul, une approche simplifiée couplant un modèle 1D vertical en milieu non saturé et un modèle 3D saturé a d'abord été envisagée. Le précédent modèle développé par (Bugai et al., 2012a) ne prenant pas en compte le battement de nappe qui peut être la cause des écarts observés entre les prévisions du modèle et les données observées (Van Meir et al., 2007), ce battement est reproduit en se basant sur la chronique piézométrique la plus longue (2-99) et en prenant pour hypothèse que ces fluctuations sont uniquement dues à l'infiltration effective de l'eau météorique, les flux entrant et sortant latéralement se compensant.

L'idée est ensuite d'introduire le stock en ^{90}Sr dans le modèle 1D afin d'obtenir un flux d'activité à la base de la colonne 1D qui est réinjecté en tant que conditions aux limites dans le modèle 3D. La surface de

chaque colonne ou ensemble de colonnes 1D, à définir selon les réponses d'un ensemble de colonnes, représente le maillage du modèle 3D saturé. En bordure du domaine sont imposées des potentiels variables dans le temps, sur la base des chroniques de niveau d'eau observées. Une condition de type concentration maximale admise dans les eaux souterraines est appliquée dans le modèle saturé. Elle permet d'introduire à $t = 0$ (1986) un stock de ^{90}Sr dans le milieu. Si le bilan de masse calculé à chaque pas de temps le permet, cette condition aux limites fonctionne comme une limite à activité imposée égale à la concentration admise, dans un schéma similaire à Bugai et al. (2012), Bugai et Dewière (2004a). Si le bilan de masse ne permet pas la mise en solution d'une concentration égale à cette limite, la condition devient un flux imposé égal au rapport de la quantité d'activité restante dans les mailles où le stock a été distribué au pas de temps courant.

Un calcul de changement de support effectué avec Isatis permet d'estimer, pour chaque simulation géostatistique du terme source, le stock en Bq sur l'épaisseur de milieu saturé. La concentration admise dans les eaux souterraines est calée de manière à reproduire les concentrations observées en hautes eaux.

3.2 Code MELODIE

L'exercice de modélisation s'effectue avec MELODIE (Modèle d'Evaluation à Long terme des Déchets Irradiants Enterrés), un logiciel d'écoulement et de transport en milieu poreux saturé et non saturé en 2D et 3D. Il est développé par l'IRSN à partir du code METIS (Goblet, 2007) pour étudier les stockages de déchets radioactifs en formation géologique profonde ainsi qu'en subsurface et permet de modéliser le relâchement et la migration des RN depuis un terme source jusqu'aux exutoires (IRSN, 2009).

Un modèle 2D repris de Bugai et Dewière (2004a) a été construit par Mamadou (2007). Les résultats obtenus avec MELODIE (éléments finis) sont parfaitement comparables à ceux obtenus sous MODFLOW-MT3D (différences finies).

L'écoulement en milieu non saturé est décrit par l'Equation 4-7 de Richards :

$$\text{div}(K(h)\overrightarrow{\text{grad}} h) = (S_S S + \omega C(h)) \frac{\partial h}{\partial t} \quad \text{Equation 4-7}$$

Avec	K	la permabilité ($\text{m} \cdot \text{j}^{-1}$)
	h	la charge hydraulique (m)
	S_S	le coefficient d'emménagement spécifique (m^{-1})
	S	la saturation en eau (-)
	ω	la porosité totale (-)
	$C(h)$	la capacité de rétention spécifique (m^{-1})

La courbe de conductivité hydraulique relative et la courbe de succion sont définies par la loi de van Genuchten (Equation 4-8 et Equation 4-9) :

$$k_r = \sqrt{\theta_r} \left(1 - \left(1 - \theta_r^{\frac{1}{n}} \right)^n \right)^2 \quad \text{Equation 4-8}$$

$$\theta_r = \frac{1}{(1 + (\alpha\psi)^n)^m} \quad \text{Equation 4-9}$$

Avec	ψ	la pression de succion
	$m = 1 - \frac{1}{n}$	
	θ	la teneur en eau $\theta = S\omega$ (-)
	θ_r	la teneur en eau effective $\theta_r = \frac{S - S_r}{S_m - S_r}$ (-)
	S_r	la saturation résiduelle (-)
	S_m	la saturation maximale (-)

Dans le cas du ^{90}Sr , on considère qu'il n'y a pas de filiation radioactive, étant donné qu'il conduit à l'yttrium 90 de période radioactive courte (2,67 jours) qui lui-même décroît vers le zirconium 90 stable (IRSN, 2005a). L'équation globale du transport des radionucléides en solution est ainsi décrite par l'Equation 4-10 :

$$\text{div}[(\bar{\alpha} \times |\vec{U}| + \omega d)\overline{\text{grad}C} - \vec{U}C] = \omega R \frac{\partial C}{\partial t} - \lambda C \quad \text{Equation 4-10}$$

Avec	C	la concentration volumique (kg.m^{-3})
	\vec{U}	la vitesse de Darcy (m.an^{-1})
	$\bar{\alpha}$	le tenseur de dispersion (m)
	d	le coefficient de diffusion moléculaire ($\text{m}^2.\text{an}^{-1}$)
	ω	la porosité totale (-)
	λ	la constante de décroissance (-)
	R	le coefficient de retard (-)

3.3 Conceptualisation et paramètres du modèle 1D avec MELODIE

Le modèle 1D est une colonne discrétisée tous les cm, de surface fixée à 0.1 m^2 . Cette surface est amenée à changer en fonction des résultats du transport de radionucléides. La hauteur de colonne a d'abord été fixée égale à l'épaisseur de la ZNS (4.9 m) au piézomètre 2-99, le haut de la colonne étant la cote topographique et sa base le niveau de plus basses eaux enregistré sur le piézomètre 2-99. Le modèle 1D a été construit au niveau du piézomètre 2-99 car il présente la plus longue chronique piézométrique.

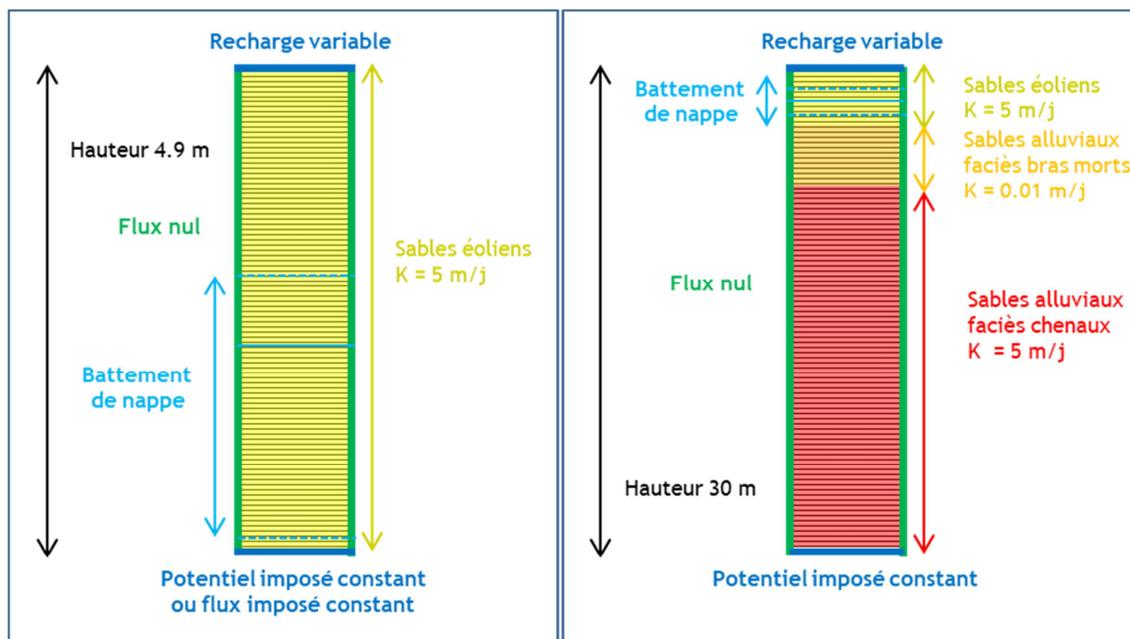


Figure 4-10 : Représentation schématique du modèle 1D non saturé

Pour reproduire le battement de nappe, un flux variable représentant la recharge est imposé en haut de colonne. Une fonction d'infiltration a donc été créée à partir des calculs de la recharge effective. Celle calculée entre le 16/03/2001 et le 25/09/2004 est utilisée car elle présente majoritairement des données issues de la méthode « hydro-physique » fournissant une recharge effective journalière plus précise que la méthode WTF.

En base de colonne, plusieurs types de condition aux limites sont testés : « charge imposée constante » et « flux imposé constant ». La position de la condition aux limites « charge imposée » est aussi étudiée. Plusieurs profils de saturation à l'équilibre hydrostatique sont testés selon les paramètres choisis. A noter qu'un flux nul n'a pas été testé du fait de l'imposition d'une recharge en haut de colonne. L'état initial est un état hydrostatique calculé à partir de la surface piézométrique à un temps donné.

Les paramètres hydrodynamiques sont calés pour reproduire au mieux le niveau de la nappe, déterminé à partir de la pression de succion :

$$\psi = h - z \quad \text{Equation 4-11}$$

où h est la charge hydraulique et z l'altitude. Là où ψ est nul, le niveau piézométrique peut être repéré.

Les caractéristiques du modèle et les paramètres ajustés sont résumés au Tableau 4-6.

Tableau 4-6 : Paramètres du modèle 1D. En jaune, les paramètres utilisés pour l'analyse de sensibilité.

Résolution spatiale		
Discrétisation verticale (m)	0.01	
Surface de la maille (m)	0.1	
Hauteur colonne (m)	3.76	
Résolution temporelle		
Pas de temps de calcul (j)	1E-12	
Pas de temps des sorties (j)	1	
Pas de temps maximal (j)	1	
Temps de calcul (j)	3650	
Conditions initiales pour obtenir l'état hydrostatique		
Potentiel initial (m a.s.l.)	111.455	
Conditions aux limites		
Haut de la colonne : recharge variable	x1	x1.5
Base de la colonne : potentiel (m a.s.l.)	110.785	
Base de la colonne : flux (m/j)	0.06	0.12
Paramètres		
Porosité	0.3	
Emmagasinement	0.001	0.3
alpha (m-1)	1.25	10
n	1.25	4
Ks (m/j)	2	10
Ks (m/s)	2.31E-06	1.16E-04
Saturation min	0.1	
Saturation max	0.93	
Dispersivité (m)	0.5	
Diffusion (m ² /j)	1.00E-06	
Diffusion (m ² /s)	1.16E-11	

3.4 Résultats et discussion

La condition aux limites « flux constant » en base de colonne ne permet pas de reproduire les « pulse » d'activité observés sur les mesures en fonction du battement de la nappe. Cette condition aux limites est donc écartée.

La distance de la condition « charge imposée constante » influence fortement la réponse du modèle. La hauteur de la colonne 1D a donc été augmentée. Cependant, parmi les hauteurs testées, aucune ne

permettait de s'affranchir de l'influence de cette condition aux limites (Figure 4-11). Il aurait été possible de reproduire toutes les observations sur une infinité de modèles avec des conditions aux limites différentes du fait de la dépendance aux conditions aux limites.

Par ailleurs, l'hypothèse sur laquelle repose le modèle est trop forte : le battement de la nappe n'est pas seulement induit par la recharge locale. Imposer un flux variable en haut de la colonne n'est pas suffisant pour reproduire l'amplitude des oscillations dans la nappe (Legout et al., 2009). Ces oscillations sont également dues aux infiltrations de la précipitation et au flux latéral dans les eaux souterraines provenant de l'aquifère (Bugai et Dewière, 2004b).

En effet, la recharge sur l'ensemble du bassin versant en amont de la tranchée est à l'origine du battement de nappe au niveau de la tranchée T22. Un flux latéral aurait donc dû être considéré.

Une possibilité pour reproduire le battement de la nappe aurait été d'imposer une charge variable basée sur les chroniques piézométriques à notre disposition (Weng, 2000). Cependant, le calage des paramètres hydrodynamiques de la zone non saturée n'aurait pas été possible en ne tenant compte que du modèle 1D. Il aurait peut-être été possible de caler les paramètres du modèle 1D selon les résultats du modèle 3D.

La modélisation 1D a donc été écartée pour laisser place à un modèle 2D non saturé afin de prendre en compte un flux latéral.

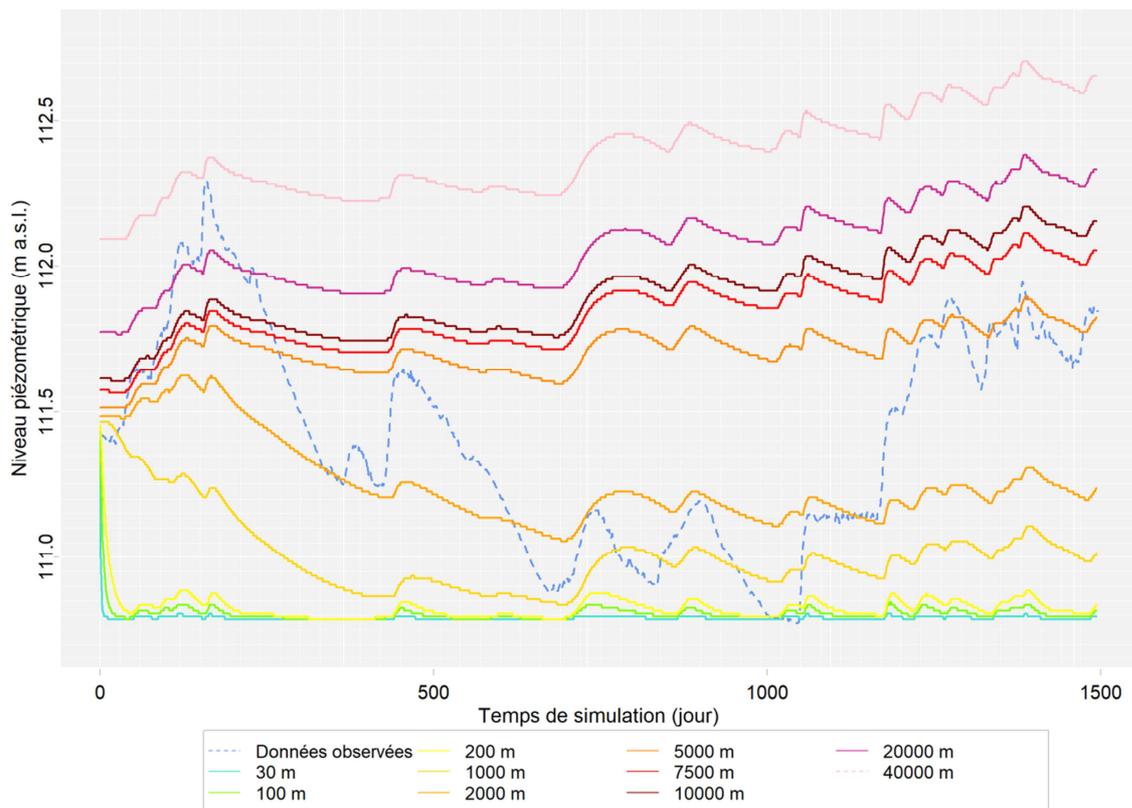


Figure 4-11 : Comparaison du niveau piézométrique observé aux niveaux piézométriques simulés pour différentes hauteurs de colonne 1D : dépendance des résultats du calage à la position de la condition aux limites

4 MODELISATION EN 2D NON SATURE AVEC MELODIE

4.1 Principe

Le modèle 2D représente toute la hauteur de l'aquifère superficiel des sables éoliens jusqu'aux marnes. Le gradient hydraulique ayant en moyenne une direction constante (SSW-NNE), le modèle 2D non saturé vise à

reproduire le battement de la nappe en imposant de part et d'autre du modèle, des charges imposées variables calculées selon les mesures issues de relevés piézométriques. Un flux nul et un flux entrant sont imposés respectivement à la base et à la surface de l'aquifère. Le stock en ^{90}Sr de la tranchée T22 est assigné à $t = 0$ aux nœuds représentant le terme source. Comme initialement pour le modèle 1D, est appliquée une « limite de solubilité » que nous appellerons ici sous un autre terme, selon les recommandations de Dmitri Bugai (communication personnelle). Le terme choisi est « activité maximale admise dans les eaux souterraines ». Elle équivaut à l'activité maximale mesurée sur le site (i.e. 65000 Bq/L).

4.2 Paramètres du modèle

Le modèle s'étend sur 55 m de largeur (distance entre les piézomètres 5-99 et 7-00 (Figure 4-1)) et 30 m de hauteur (épaisseur de la nappe alluviale) et correspond au profil AB, où les points de mesures sont plus nombreux.

Il comporte trois couches de sédiments (sables éoliens, sables alluviaux de faciès de bras morts et sables alluviaux de faciès à chenaux), et est discrétisé en 7260 mailles (4078 nœuds) de 0.50×0.50 m, seulement sur les deux premières couches, divisées en deux suivant le sens de leur diagonale. Le maillage est de plus en plus lâche vers les couches inférieures de l'aquifère (Figure 4-12). Il a été raffiné au niveau de l'emplacement du piézomètre 2-99 pour le calage de l'écoulement et du battement de la nappe. La tranchée a les mêmes propriétés que les sables éoliens car ses propriétés de transport ne semblent pas grandement influencer sur le transport du ^{90}Sr dans les configurations du modèle présent, contrairement au modèle de transport construit précédemment (Bugai et al., 2012a, 2003; Bugai et Dewière, 2004b).

En amont du modèle, la charge imposée correspond à la moyenne de la charge hydraulique des piézomètres 6-99 et 3-00 et en aval, la charge correspond à la moyenne des charges piézométriques des piézomètres 4-00 et 2-00.

Une recharge constante est imposée à la surface du modèle de $7.27 \cdot 10^{-4} \text{ m}\cdot\text{j}^{-1}$, qui équivaut à la moyenne de la recharge calculée sur la période utilisée initialement pour le calage de l'écoulement (entre le 16/03/2001 et le 26/09/2004), une recharge variable n'ayant que peu d'impact sur l'écoulement et le transport du ^{90}Sr contrairement au modèle 1D. Un flux nul est imposé à la base du modèle, il correspond à la couche de marnes sous-jacentes aux sables alluviaux. La topographie n'est pas prise en compte, la différence d'altitude étant faible (de 1.3 m).

L'état initial correspond à un état hydrostatique calculé à partir des conditions aux limites à $t = 0$ et obtenu jusqu'à stabilisation de la saturation et de la recharge dans le milieu.

Les paramètres du modèle 2D sont résumés au Tableau 4-7.

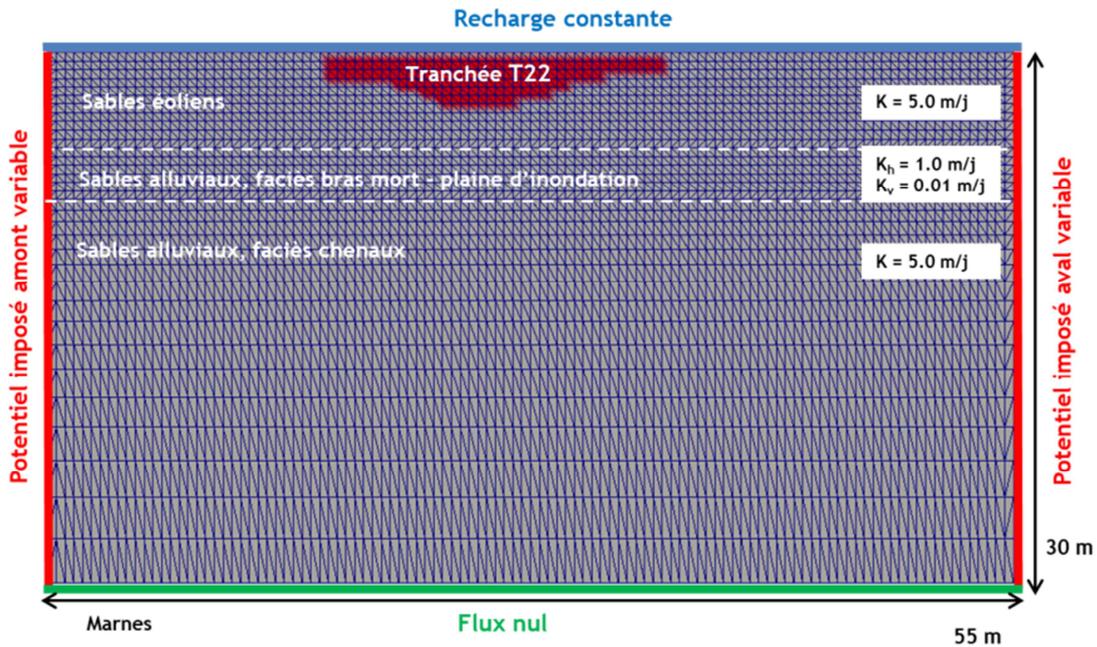


Figure 4-12 : Modèle conceptuel 2D non saturé

Tableau 4-7 : Paramètres du modèle 2D non saturé

Résolution spatiale	
Discrétisation verticale (m)	0.5
Surface de la maille (m)	0.5
Hauteur du modèle (m)	30
Résolution temporelle	
Pas de temps de calcul minimal (j)	1.00E-04
Pas de temps de calcul maximal (j)	1
Pas de temps des sorties (j)	30
Temps de calcul (j)	10740
Conditions aux limites	
Conditions initiales	Gradient de potentiel
Amont	variable
Aval	variable
Recharge (m/j)	7.27E-04
Paramètres	
Porosité	0.3
alpha	6.5
n	2
m	0.5
K1 sables éoliens (m/j)	20 (2.31E-04 m/s)
S1 sables éoliens	0.05
Kx2 sables alluviaux faciès bras mort (m/j)	1 (1.16E-05 m/s)
Kz2 sables alluviaux faciès bras mort (m/j)	0.01 (1.16E-07 m/s)
S2 sables alluviaux faciès bras mort	0.0001
K3 sables alluviaux faciès bras chenaux(m/j)	5 (5.79E-05 m/s)

S3 sables alluviaux faciès bras chenaux	0.0001
Dispersivité longitudinale (m)	5.00E-02
Dispersivité transversale (m)	5.00E-03
Diffusion (m ² /j)	1.00E-05
Activité maximale admise dans les eaux souterraines (Bq/m ³)	6.50E+07
Kd (mL/g)	3
Kd tranchée (mL/g)	3

Le nombre de Péclet permet d'évaluer d'identifier le phénomène prédominant entre l'advection et la dispersion (Equation 4-12), en règle générale, il ne doit pas dépasser la valeur de 2 pour que le schéma soit stable (Goblet, 2012) :

$$Pe = \frac{U_D \Delta_x}{D + U_D \times \alpha_L} \quad \text{Equation 4-12}$$

- Avec U_D la vitesse de Darcy (m.s⁻¹)
 Δ_x la taille de la maille (m)
 D le coefficient de diffusion (dispersion)
 α_L la dispersivité (m².s⁻¹) avec $D = \alpha_L \cdot U_D$

Le nombre de Courant-Friedrich-Levy (CFL) permet d'introduire un pas de temps de calcul maximal, il traduit le fait que le front advectif ne doit pas franchir plus d'une maille par pas de temps (Goblet, 2012) (Equation 4-13).

$$C = \left| \frac{U_x \Delta_t}{\Delta_x} \right| \leq 1 \quad \text{Equation 4-13}$$

Les nombres de Péclet et de CFL ont été calculés pour un maillage de 0.50 x 0.50 m et comparés à ceux sur un maillage de 0.25 x 0.10 m. Dans la direction X, le nombre de Péclet est inférieur à 2 dans les sables éoliens pour les deux maillages, sauf au niveau des conditions limites imposées en amont et en aval du domaine, et varie autour de 5 dans les couches sous-jacentes pour le maillage plus fin et autour de 10 pour le maillage plus grossier (Figure 4-13). Dans la direction Z, le nombre de Péclet est d'environ 2.5 dans les sables éoliens pour un maillage de 0.25 x 0.10 m mais supérieur à 10 pour un maillage de 0.50 x 0.50 m (Figure 4-14).

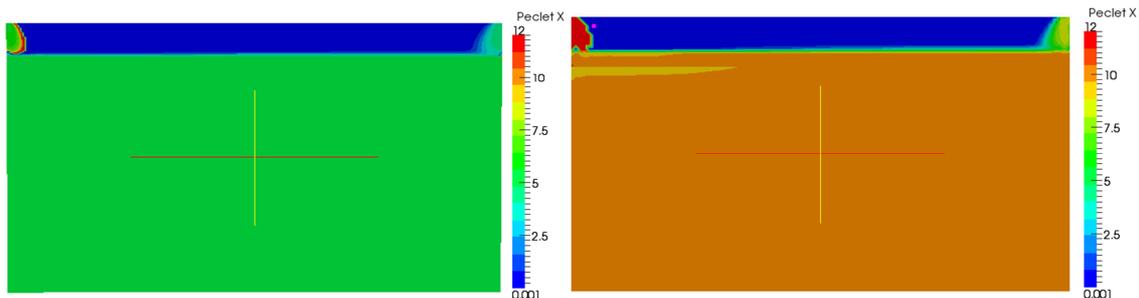


Figure 4-13 : Nombre de Péclet dans la direction X pour un maillage de 0.25 x 0.10 m (haut) et 0.50 x 0.50 m (bas) au temps de simulation t=3480 jours

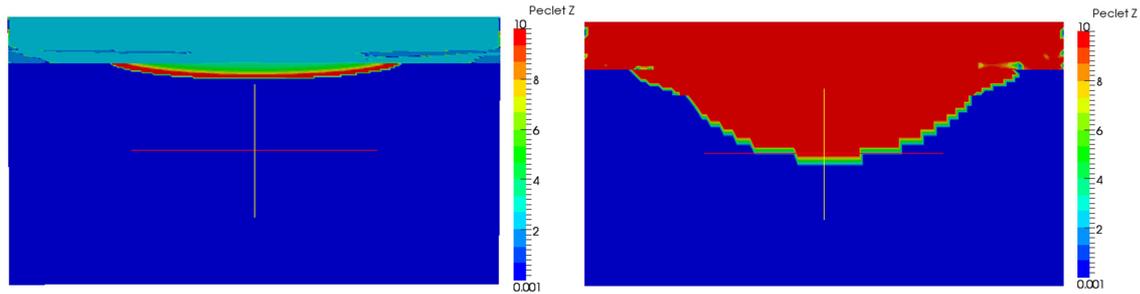


Figure 4-14 : Nombre de Péclet dans la direction Z pour un maillage de 0.25 x 0.10 m (haut) et 0.50 x 0.50 m (bas) au temps de simulation t=3480 jours

Dans les deux directions, le maillage gagnerait à être plus fin. Sur un maillage de 0.25 x 0.10 m, les temps de calcul étant au minimum deux fois plus longs que sur un maillage de 0.50 x 0.50 m, le maillage plus grossier a été privilégié. Le nombre de CFL est quant à lui toujours inférieur à 1 sur l'ensemble de la simulation même pour un maillage de 0.50 x 0.50 m (Figure 4-15).

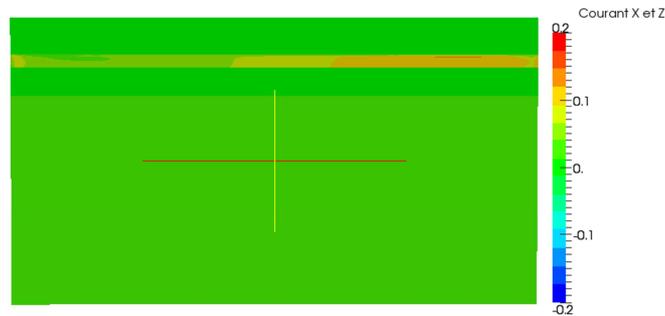


Figure 4-15 : Nombre de CFL dans la direction X et Z pour un maillage de 0.50 x 0.50 m au temps de simulation t=3480 jours

4.3 Calage des paramètres d'écoulement

L'objectif est de reproduire au mieux les oscillations du niveau de la nappe en calant un coefficient d'emménagement et une conductivité hydraulique pour chaque couche du modèle. Le calage s'effectue sur les données du piézomètre 2-99, pour la période du 16/03/2001 au 20/04/2002 pour limiter les temps de calcul. Une analyse de sensibilité aux paramètres hydrodynamiques a été conduite. Les paramètres de calcul sont résumés au Tableau 4-7 et les résultats sont présentés aux Figure 4-16 et Figure 4-17.

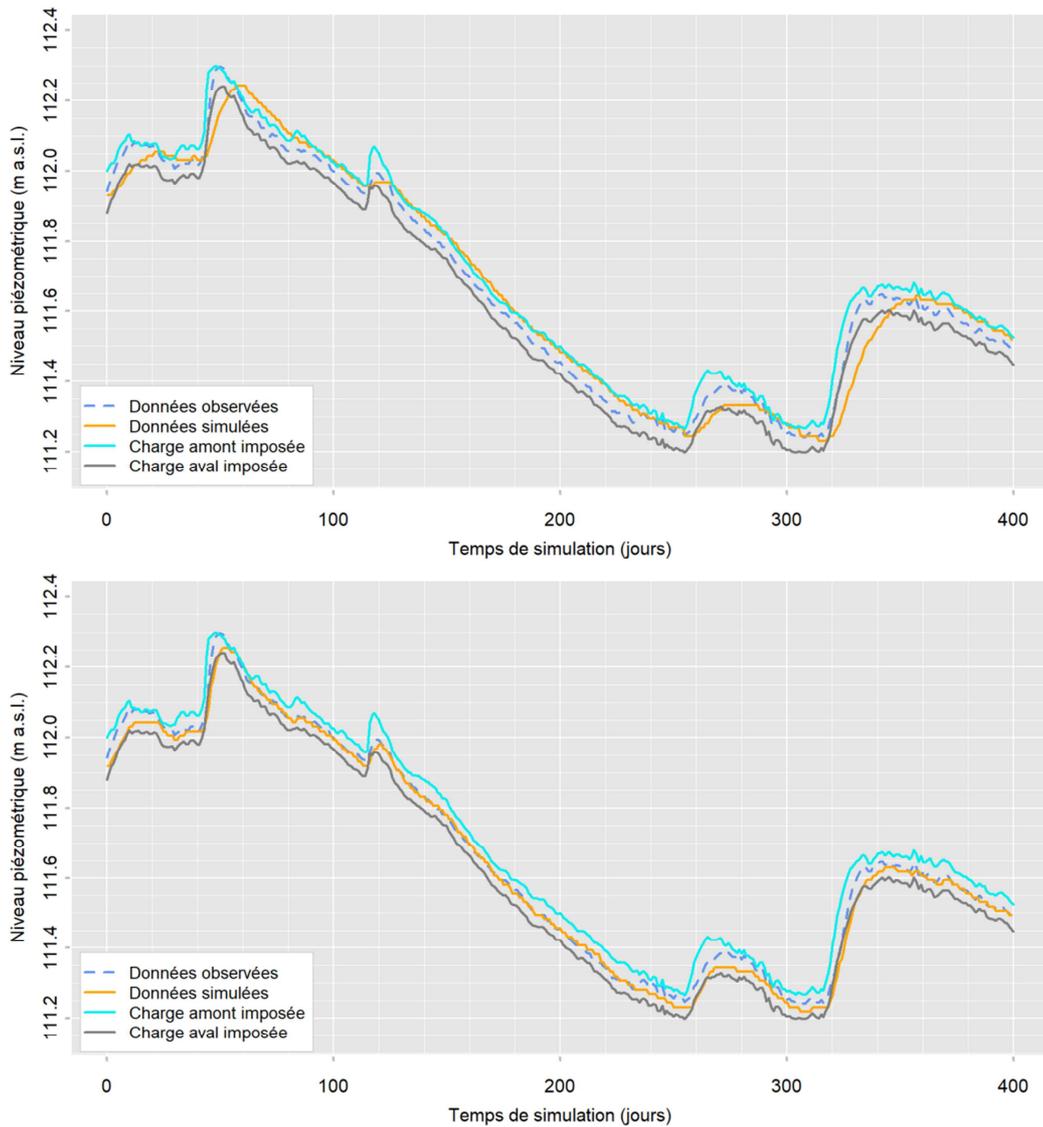


Figure 4-16 : Comparaison temporelle des niveaux d'eau simulés et observés sur le piézomètre 2-99. En haut, la conductivité hydraulique des sables éoliens est fixée à 5 m/j ($5.79 \cdot 10^{-5}$ m/s), en bas, la conductivité hydraulique des sables éoliens est de 20 m/j ($2.31 \cdot 10^{-4}$ m/s)

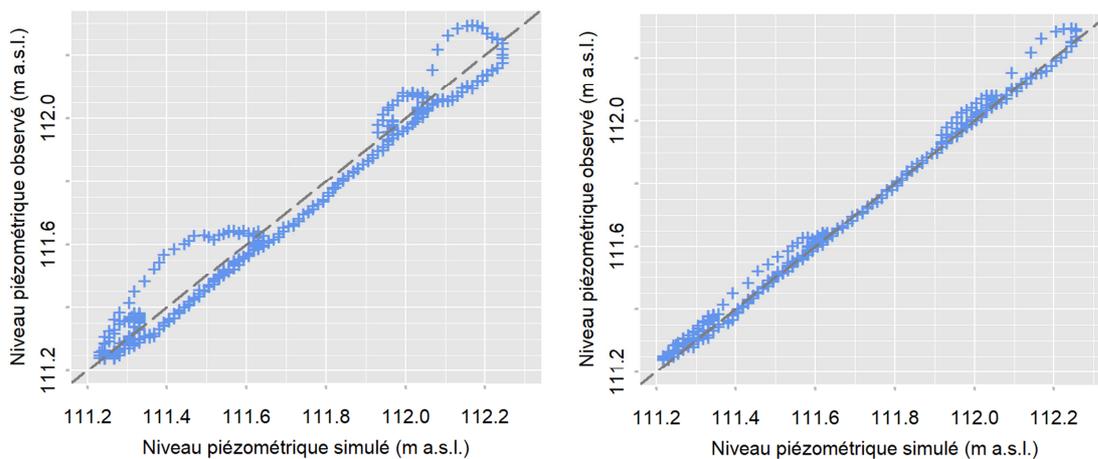


Figure 4-17 : Comparaison entre les niveaux d'eau simulés et observés au piézomètre 2-99. A gauche, la conductivité hydraulique des sables éoliens est fixée à 5 m/j ($5.79 \cdot 10^{-5}$ m/s), à droite, à 20 m/j ($2.31 \cdot 10^{-4}$ m/s).

La conductivité hydraulique et le coefficient d'emmagasinement des sables éoliens sont les paramètres influençant le plus les niveaux d'eau simulés. Dans un premier temps, la conductivité hydraulique est fixée à 20 m/j ($2.31 \cdot 10^{-4}$ m/s) et le coefficient d'emmagasinement à 0.025. La conductivité hydraulique est en moyenne 4 fois plus élevée que ce qui a été relevé dans la littérature, mais les mesures ayant été effectuées sur un support de l'ordre du mètre, elle pourrait être plus élevée dans les sables éoliens. Les autres paramètres hydrodynamiques ont été fixés selon la littérature.

Le calage paraît satisfaisant car le battement de la nappe est bien reproduit pour cette période. Cependant, il faut noter que le modèle est très contraint par les conditions aux limites imposées en amont et en aval et leur position rapprochée expliquerait ce bon calage. Eloigner les conditions aux limites du domaine par rapport à la tranchée aurait permis de limiter leur influence mais les données le permettant n'existent pas actuellement.

4.4 Représentation du terme source

Pour calculer l'activité spécifique en ^{90}Sr en 1986, le volume des sols contaminés par du ^{137}Cs et enterrés dans la tranchée est supposé identique à celui des sols contaminés par du ^{90}Sr . Par ailleurs, du fait de la très faible mobilité du ^{137}Cs , le volume contaminé au césium en 2000 est supposé être une image du volume contaminé en ^{90}Sr en 1986, le ^{137}Cs et le ^{90}Sr s'étant déposé au même endroit au moment de l'explosion (cf. Chapitre 1). Les ratios d'activité $^{137}\text{Cs}/^{154}\text{Eu}$ dans les particules et $^{90}\text{Sr}/^{154}\text{Eu}$ dans les déchets sont par la suite utilisés (cf. Chapitre 1). Le ^{154}Eu étant très peu mobile, tout comme le ^{137}Cs , le ratio $^{137}\text{Cs}/^{154}\text{Eu}$ des particules auxquelles ces radionucléides ont tendance à rester sorbés ne dépend que de la décroissance radioactive et peut être recalculé à tout moment depuis le ratio initial (i.e. les ratios du combustible du réacteur n° 4 de la centrale nucléaire de Tchernobyl au moment de l'accident) (Kashparov et al., 2004). Comme une bonne corrélation existe par ailleurs entre le ^{154}Eu et le ^{90}Sr dans les déchets, l'activité en ^{90}Sr en 2000 des déchets peut ainsi être calculée et corrigée de la décroissance radioactive entre 1986 et 2000.

Les calculs géostatistiques ont été effectués sur un maillage de taille et de direction différentes du modèle d'écoulement et de transport, le maillage du modèle géostatistique mesurant 1 m x 0.5 m x 0.1 m et étant positionné selon l'axe N-S et celui du modèle hydrogéologique mesurant 0.5 m x 0.5 m et positionné selon le profil AB. Les activités des calculs géostatistiques ont donc, d'une part, été moyennées sur une épaisseur de 3 m sur le plan XY pour prendre en compte les activités susceptibles de rentrer dans le terme source du profil AB ; d'autre part, elles ont été moyennées en Z (Figure 4-18).

Le volume du terme source a été considéré comme identique dans tous les cas testés.

Le terme source a d'abord été supposé homogène et égal à la moyenne de l'ensemble des simulations conditionnelles (cf. Chapitre 3) après transformation du ^{137}Cs en ^{90}Sr , sur le maillage de 0.5 x 0.5 m ($3.8 \cdot 10^{10}$ Bq)

Il a ensuite été divisé en trois couches de même épaisseur. Un calcul de transport a été effectué pour chaque couche de terme source et pour une combinaison de couches de termes sources pour observer si leur contribution au panache de ^{90}Sr était linéaire.

Le terme source a ensuite été supposé hétérogène. Plusieurs termes sources sont construits à partir de l'estimation de l'activité en ^{137}Cs , de la moyenne des simulations conditionnelles et des simulations conditionnelles produites pour l'année 2000 (Figure 4-18 et cf. Chapitre 3) sur le profil AB et le profil CD.

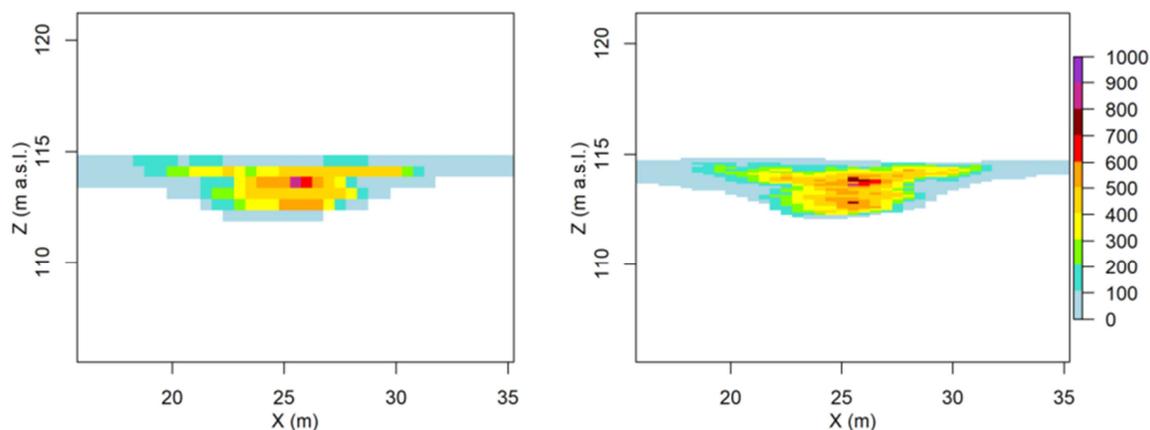


Figure 4-18 : Exemple de terme source moyenné sur un maillage de 0.5 x 0.5 m (gauche), à partir du terme source sur un maillage de 0.5 x 0.1 m (activité en ^{137}Cs en kBq/kg représentée)

4.5 Extension de la chronique piézométrique

La chronique du piézomètre 2-99 ne commençant qu'en mai 1999, il est nécessaire de reconstruire la chronique de niveau d'eau à partir du 26 avril 1986, date à laquelle le ^{90}Sr est relâché lors de l'accident. N'ayant pas de données à notre disposition pour orienter la reconstruction de la chronique, elle est reproduite à partir des données de niveau d'eau issues du piézomètre 2-99.

La chronique présentant des valeurs manquantes entre 1999 et 2015, est tout d'abord complétée par interpolation linéaire et par la chronique du piézomètre 4-00 pour les données de 2015, en prenant en compte le gradient hydraulique moyen calculé sur les données à notre disposition. Les chroniques de niveau de nappe amont et aval sont aussi calculées à partir du gradient hydraulique moyen de la chronique du piézomètre 2-99, là où le calcul du gradient hydraulique n'est pas possible.

Ensuite, la chronique entre le 26/04/2001 et le 18/05/2014 est dupliquée et utilisée pour reconstituer celle entre le 26/04/1986 et le 18/05/1999. Elles sont reliées par interpolation linéaire (Figure 4-19).

Des méthodes plus sophistiquées existent si toutefois des données supplémentaires sont à disposition (telles que des données de précipitations ou de température) comme l'ont fait Jackson et al. (2016) en utilisant des chroniques de température et de pluviométrie.

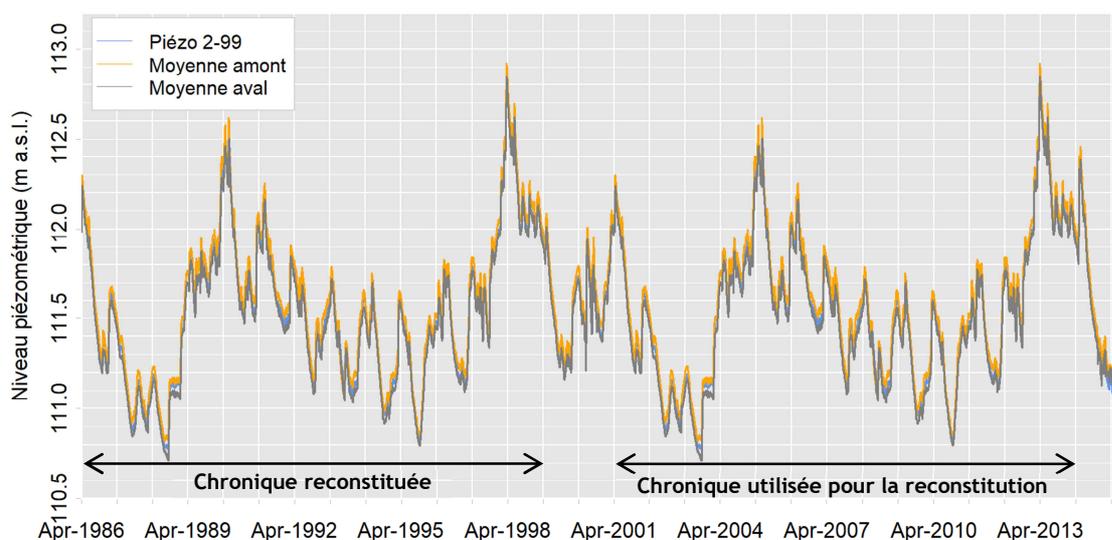


Figure 4-19 : Reconstitution de la chronique piézométrique de 1986 à 2015

4.6 Analyse de sensibilité sur les paramètres d'écoulement et de transport

4.6.1 Cas de référence

Le calage des paramètres liés au transport s'est basé sur les mesures de ^{90}Sr dans les eaux souterraines. Parmi les 24 piézomètres du profil AB, les données des piézomètres 19-00-1, 18-00-1, 2-02-2 et 6-02-2 sont utilisées pour les comparer aux résultats obtenus par le modèle. Le piézomètre 19-00-1 présente les activités en ^{90}Sr les plus élevées. Le piézomètre 18-00-1 permet d'apprécier l'étendue en Z du panache de ^{90}Sr , le piézomètre 2-02-2 son extension latérale et le piézomètre 6-02-2 mesure l'activité en ^{90}Sr dans le milieu non impacté par la tranchée T22 (assimilable à du bruit de fond). Le pas de temps de sortie étant de 30 jours, les valeurs sont comparées aux valeurs simulées à la date la plus proche avec un écart maximal de 15 jours.

Les paramètres du cas de référence sont fixés selon les données de la littérature présentées dans la partie 1 de ce chapitre. Les valeurs de conductivité hydraulique des sables éoliens se réfèrent aux résultats du calage de l'écoulement et l'activité maximale admise est fixée à l'activité maximale en ^{90}Sr mesurée dans les eaux souterraines (Tableau 4-8).

Tableau 4-8: Paramètres de l'analyse de sensibilité

Paramètres	Référence	Valeur minimale testée	Valeur maximale testée
K1 sables éoliens(m/j)	20	3	200
K1 sables éoliens(m/s)	2.31E-04	3.47E-05	2.31E-03 ³
Dispersivité longitudinale (m)	1.00E-03	1.00E-03	1.00E-01
Dispersivité transversale (m)	1.00E-04	1.00E-04	5.00E-02
Diffusion (m ² /j)	1.00E-06	1.00E-06	1.00E-04
Diffusion (m ² /s)	1.16E-11	1.16E-11	1.16E-09
Activité maximale admise (Bq/m3)	6.50E+7	1.50E+06	6.50E+07
Kd (mL/g)	3	0.5	40
Kd tranchée (mL/g)	3		5

A $t = 0$, l'activité en ^{90}Sr est délimitée par les contours de la tranchée, puis au gré de l'infiltration des eaux météoriques et du battement de la nappe, le panache de ^{90}Sr se forme sous la tranchée et à son aval. La Figure 4-20 illustre l'évolution de ce panache au cours du temps, de $t = 0$ jour (26/04/1986) à $t = 10740$ jours (-29,4 ans après l'explosion de la centrale, soit le 21/09/2015).

Les activités simulées sont de 5 à 22 fois plus élevées sur tous les piézomètres utilisés pour le calage, sauf sur le piézomètre 6-02-2 où l'activité simulée est du même ordre de grandeur que les activités observées (Figure 4-21 et Figure 4-22).

Le profil de saturation indiquerait que l'augmentation de l'activité dans la nappe serait due à des périodes où la saturation est haute voire maximale, donc aux périodes où la base de la tranchée est ennoyée (Figure 4-20).

En comparant les activités simulées entre le piézomètre 19-00-1 crépiné dans les sables éoliens et le piézomètre 18-00-1 crépiné dans les sables alluviaux, l'activité reste beaucoup plus concentrée dans les sables éoliens, que dans les sables alluviaux. Par ailleurs, sur le piézomètre 19-00-1, l'activité fluctue au cours du temps, mais ces fluctuations sont lissées sur le piézomètre 18-00-1 où seule une augmentation progressive de l'activité est simulée (Figure 4-21 et Figure 4-22). Le lissage et la différence des activités simulées s'expliquent par la faible conductivité hydraulique des sables alluviaux en Z (ratio de 10 entre K_x et K_z).

Sur le piézomètre 2-02-2, les fluctuations de l'activité suivent celles du piézomètre 19-00-1 avec un décalage d'environ 2.7 ans. On peut aussi y observer que le panache simulé sort du domaine, alors que les mesures indiquent le contraire (le panache s'étend sur environ 10 m). Ceci peut s'expliquer par l'application d'une conductivité hydraulique plus élevée de 20 m/j ($2.31 \cdot 10^{-4}$ m/s) dans les sables éoliens que celle utilisée dans les modèles précédents de 5 m/j ($5.79 \cdot 10^{-5}$ m/s) (Bugai et Dewière, 2004b). Cependant, une conductivité hydraulique de 5 m/j ($5.79 \cdot 10^{-5}$ m/s) appliquée dans la couche des sables éoliens donne des résultats de calage moins bons qu'une conductivité hydraulique de 20 m/j ($2.31 \cdot 10^{-4}$ m/s).

Une grande partie de l'activité est relâchée dans les premières années après la construction de la tranchée alors que nous ne disposons pas de données avant 1999. La reconstitution de la courbe piézométrique est un paramètre qui peut jouer selon si la tranchée est ennoyée ou non antérieurement.

Ainsi, dans les conditions du cas de référence, il n'a pas été possible de reproduire les activités en ^{90}Sr mesurées dans la nappe. Une analyse de sensibilité est donc entreprise afin d'évaluer l'influence respective des paramètres de transport et d'écoulement suivants sur les activités observées dans la nappe :

- la recharge,
- l'activité maximale admise,
- la conductivité hydraulique,
- le coefficient de partage (K_d), homogène sur l'ensemble des couches,
- et de la répartition du stock en ^{90}Sr .

La dispersivité et la diffusion ayant eu peu d'impact sur le panache de pollution, les résultats sont présentés en Annexe.

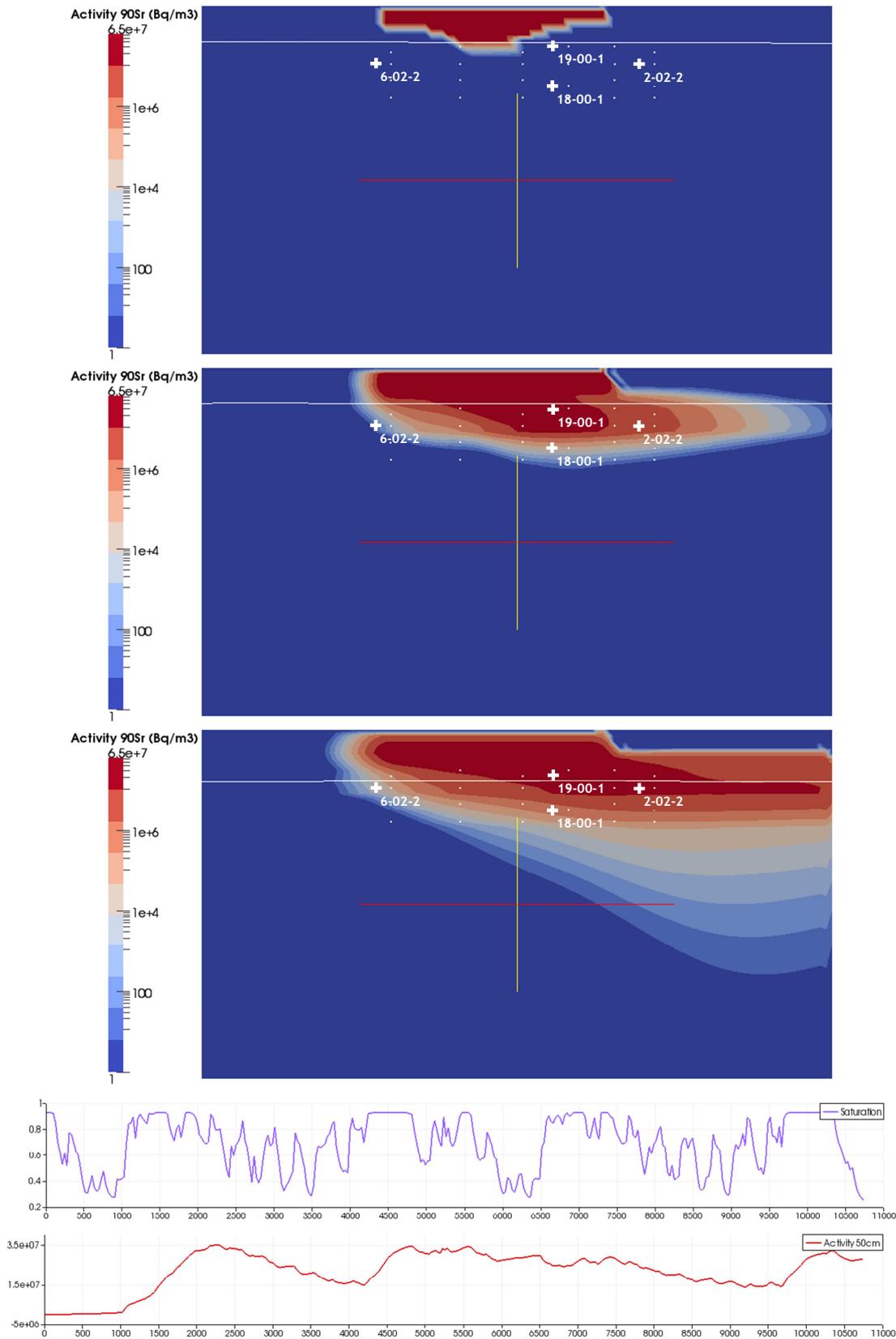


Figure 4-20 : Simulation de l'écoulement et du transport pour le cas de référence à $t = 0$ jour, $t = 1830$ jours (~5 ans) et $t = 10740$ jours (~29,4 ans). La ligne blanche représente le niveau de la nappe. La saturation et l'activité en ^{90}Sr dans la nappe au cours du temps sont présentées pour le piézomètre 19-00-1.

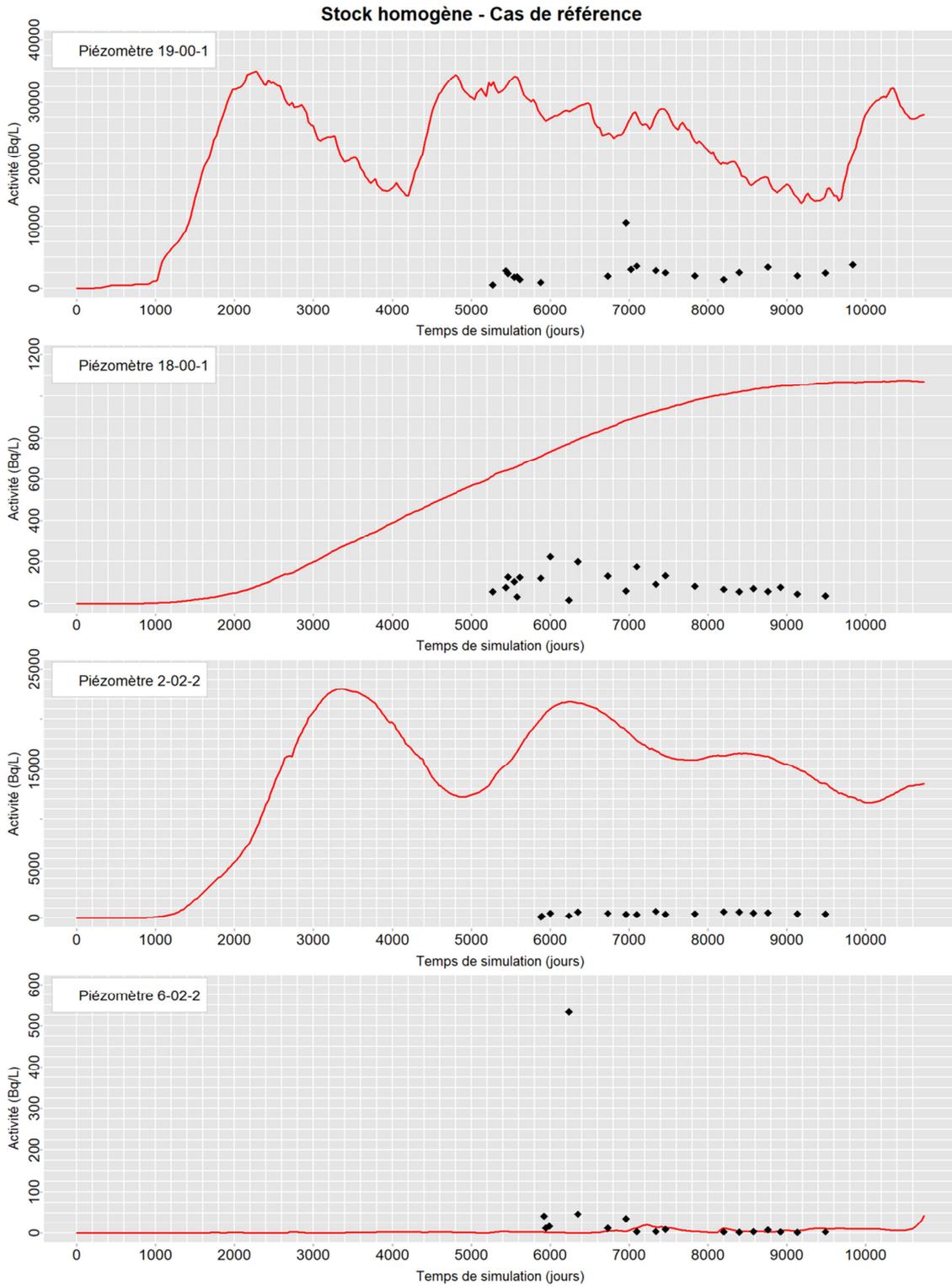


Figure 4-21 : Cas de référence - évolution temporelle de l'activité en ^{90}Sr et comparaison des valeurs simulées (en rouge) et observées (points noirs)

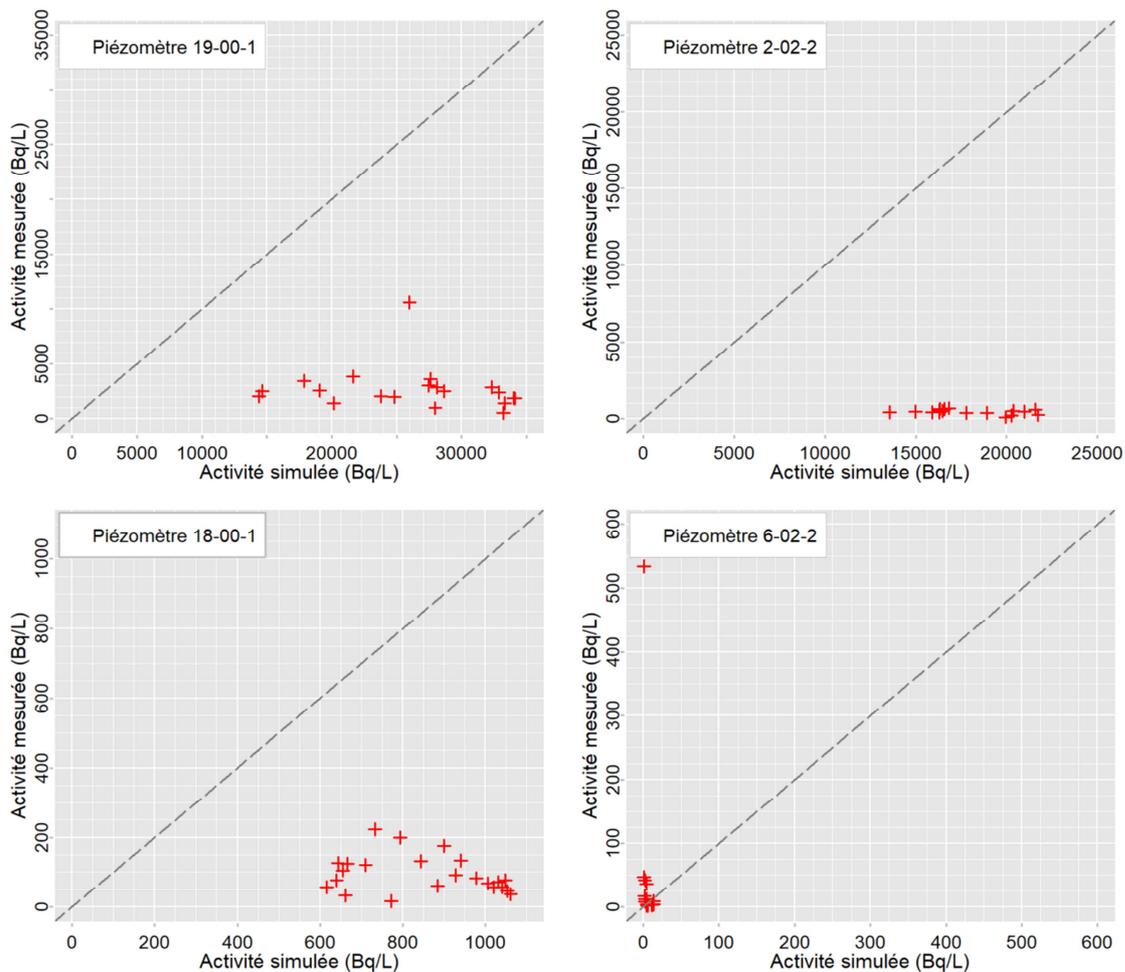


Figure 4-22 : Cas de référence - comparaison entre valeurs simulées et observées

4.6.2 Influence de l'activité maximale admise dans les eaux souterraines

Les activités simulées, très élevées dans le cas de référence, peuvent s'expliquer par une activité maximale admise trop importante de 65 000 Bq/L, valeur correspondant à l'activité maximale mesurée sur le profil CD. Ce paramètre est progressivement diminué jusqu'à 11 000 Bq/L, l'activité maximale mesurée sur le piézomètre 19-00-1 au niveau du profil AB étant de 10 600 Bq/L.

Pour une activité maximale admise de 35 000 Bq/L, l'amplitude de variation de l'activité diminue d'un facteur 1.4 en moyenne. Les périodes de diminution significative de l'activité correspondraient aux périodes d'ennoeiment de la nappe.

L'atténuation se poursuit en abaissant l'activité maximale admise, jusqu'à presque effacer les fluctuations de l'activité. L'abaissement de l'activité maximale admise ne permet donc pas de reproduire la variabilité temporelle des activités observées sur le piézomètre 19-00-1, mais permettrait de retrouver l'activité moyenne mesurée sur les piézomètres. Par ailleurs, pour obtenir le maximum d'activité sur le piézomètre 19-00-1, l'activité maximale admise devrait au moins être de 20 000 Bq/L (Figure 4-23).

Il n'existe pas de données géochimiques permettant de définir une activité maximale admise variable dans l'espace. La variabilité des paramètres hydrodynamiques, dont l'impact a déjà été largement étudié dans de nombreuses études, en particulier en contexte alluvial (Kerrou et al., 2008) devrait d'abord être étudiée.

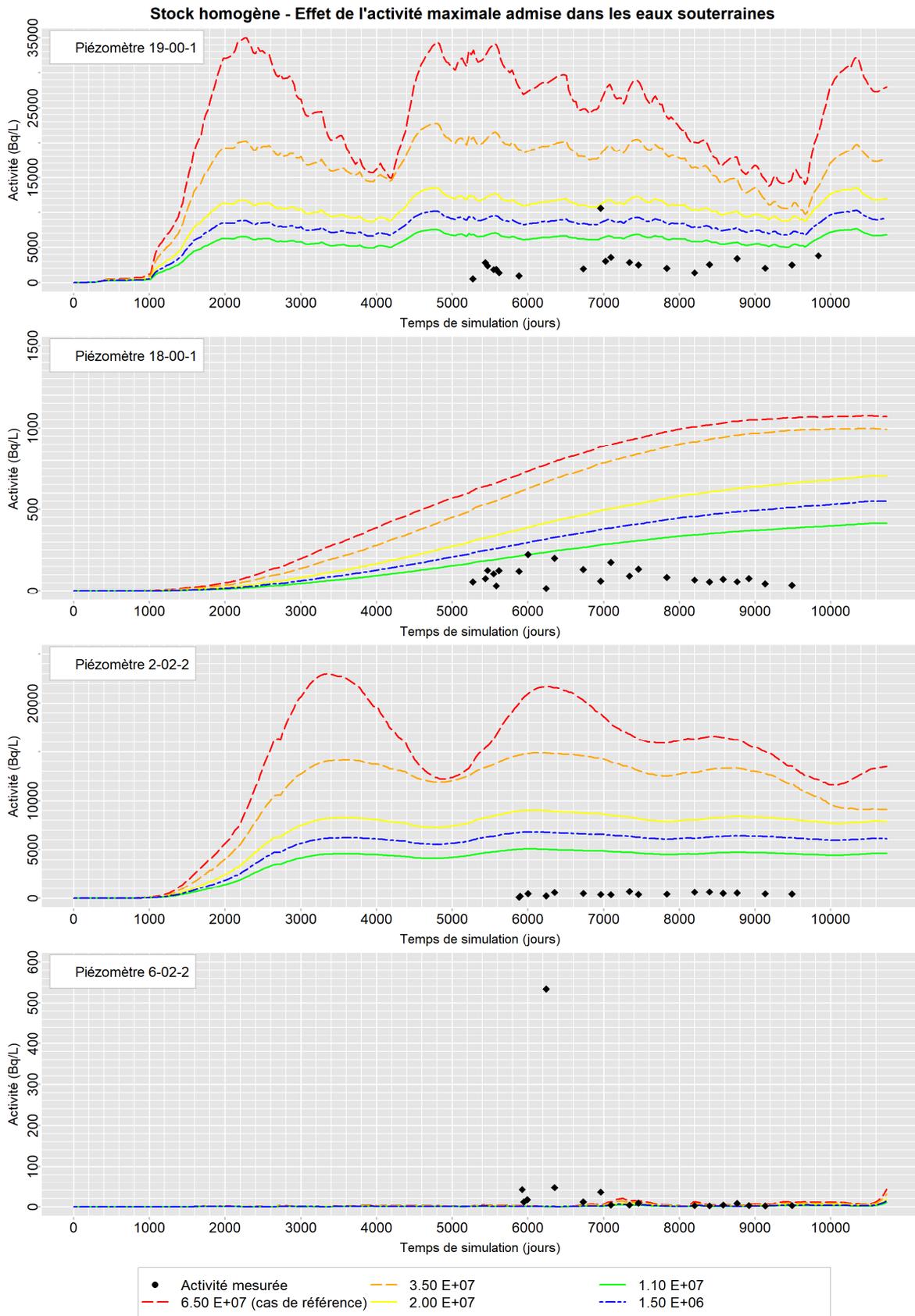


Figure 4-23 : Influence de l'activité maximale admise - évolution temporelle de l'activité en ⁹⁰Sr et comparaison des valeurs simulées avec celles observées. La légende présente les différentes activités maximales admises testées en Bq/L.

4.6.3 Influence de la recharge

Une comparaison est effectuée entre une recharge moyenne constante, une recharge variable dans le temps, et l'absence de recharge. En termes d'écoulement, une recharge variable permet d'obtenir un battement de nappe d'une plus grande amplitude et se rapproche plus du niveau d'eau mesuré mais la différence avec la recharge moyenne constante est très faible (de l'ordre de quelques centimètres). En termes de transport, aucune différence n'est notable.

Par contre, si la recharge n'est pas prise en compte, les activités relâchées par la tranchée sont diminuées d'un facteur de 2 à 3 en moyenne au cours du temps (Figure 4-24). Cette diminution n'est pas observable en début de simulation, mais s'accroît au cours du temps. L'infiltration des eaux météoriques compte donc pour une part non négligeable dans la pollution générée par la tranchée.

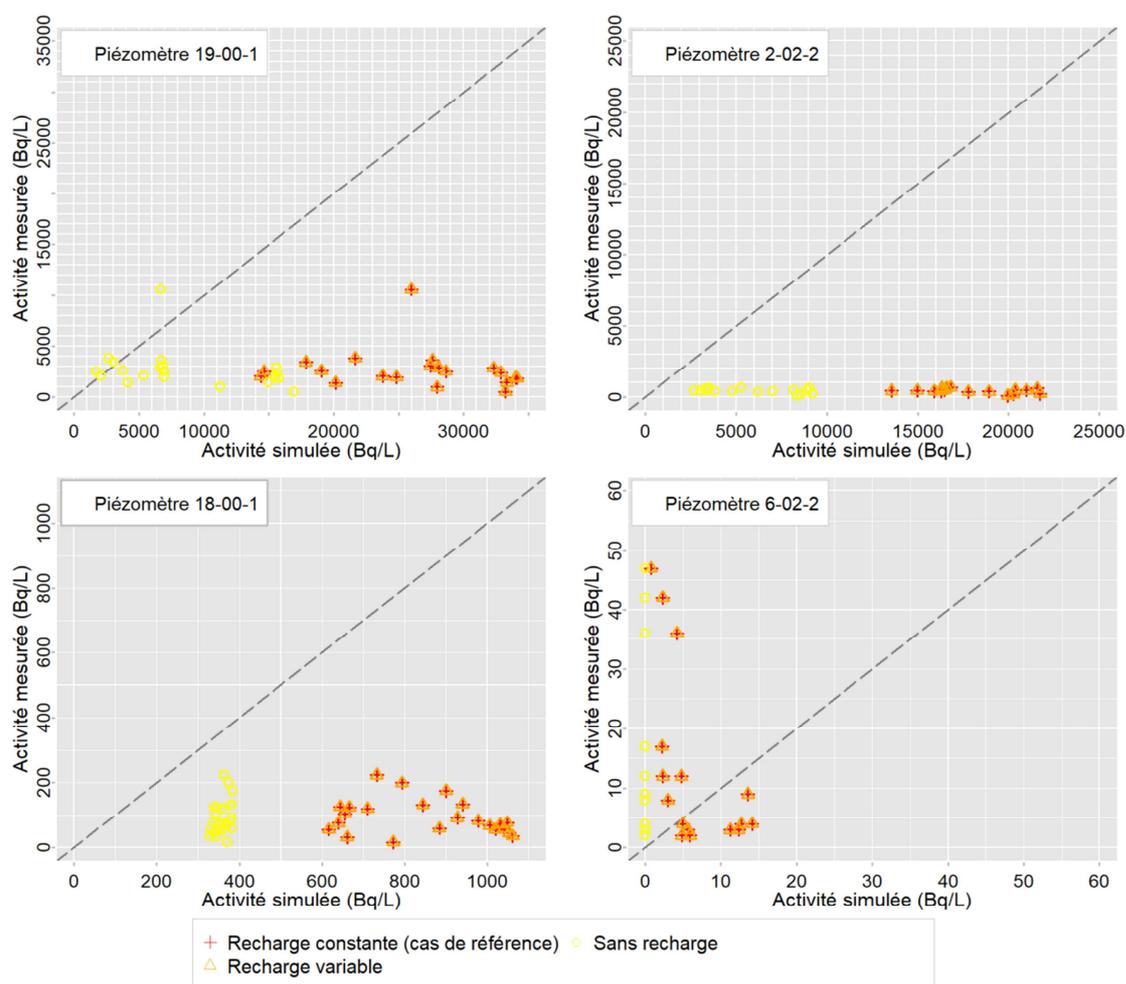


Figure 4-24 : Influence de la recharge - comparaison entre valeurs simulées et observées

4.6.4 Influence du Kd

Le Kd se traduit par un coefficient de retard dans le code MELODIE. C'est le paramètre qui contrôle le passage en solution des radionucléides sorbés sur la phase solide du sol. Le Kd du cas de référence de 3 mL/g pourrait être trop faible et être la cause d'une activité trop grande simulée dans les eaux souterraines. Des tests sont donc conduits pour augmenter ou diminuer le délai de relâchement de

l'activité dans les eaux. Des gammes de valeurs entre 0.5 mL/g et 40 mL/g sont testées. Les résultats sont présentés à la Figure 4-25 et la Figure 4-26.

L'augmentation du K_d provoque un décalage de la courbe d'activité sur tous les piézomètres, excepté sur le piézomètre 6-02-2 qui est bien moins influencé par le panache de ^{90}Sr . La variabilité temporelle est aussi atténuée jusqu'à être pratiquement gommée à partir d'un K_d supérieur à 10 mL/g. Pour un K_d égal à 10 mL/g, l'ordre de grandeur des activités simulées se rapproche de celui des activités observées. Au-delà, les valeurs simulées deviennent plus faibles que les valeurs observées. Diminuer le K_d augmente la variabilité temporelle de l'activité simulée, mais les activités sont 5 fois supérieures à celles observées.

La prise en compte de deux K_d différents dans la tranchée et dans les sables éoliens ne change pas les résultats des simulations (Annexe). Le K_d des sables éoliens semble prévaloir sur celui de la tranchée dans la configuration du modèle. Il ne semble donc pas nécessaire de différencier le K_d dans la tranchée et en dehors de la tranchée contrairement au modèle de Bugai et Dewière (2004a).

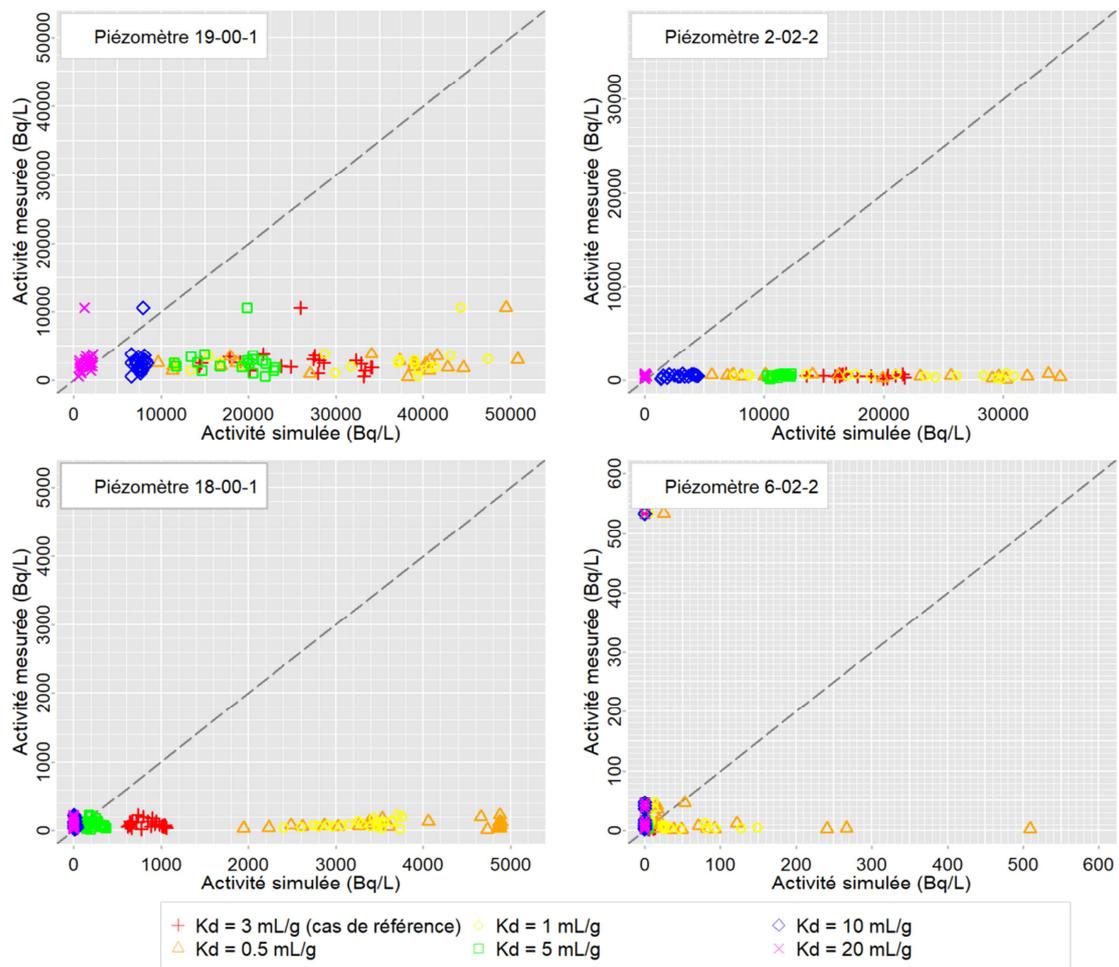


Figure 4-25 : Influence du coefficient de partage pour une conductivité hydraulique fixée à 20 m/j ($2.31 \cdot 10^{-4}$ m/s) - comparaison entre valeurs simulées et observées

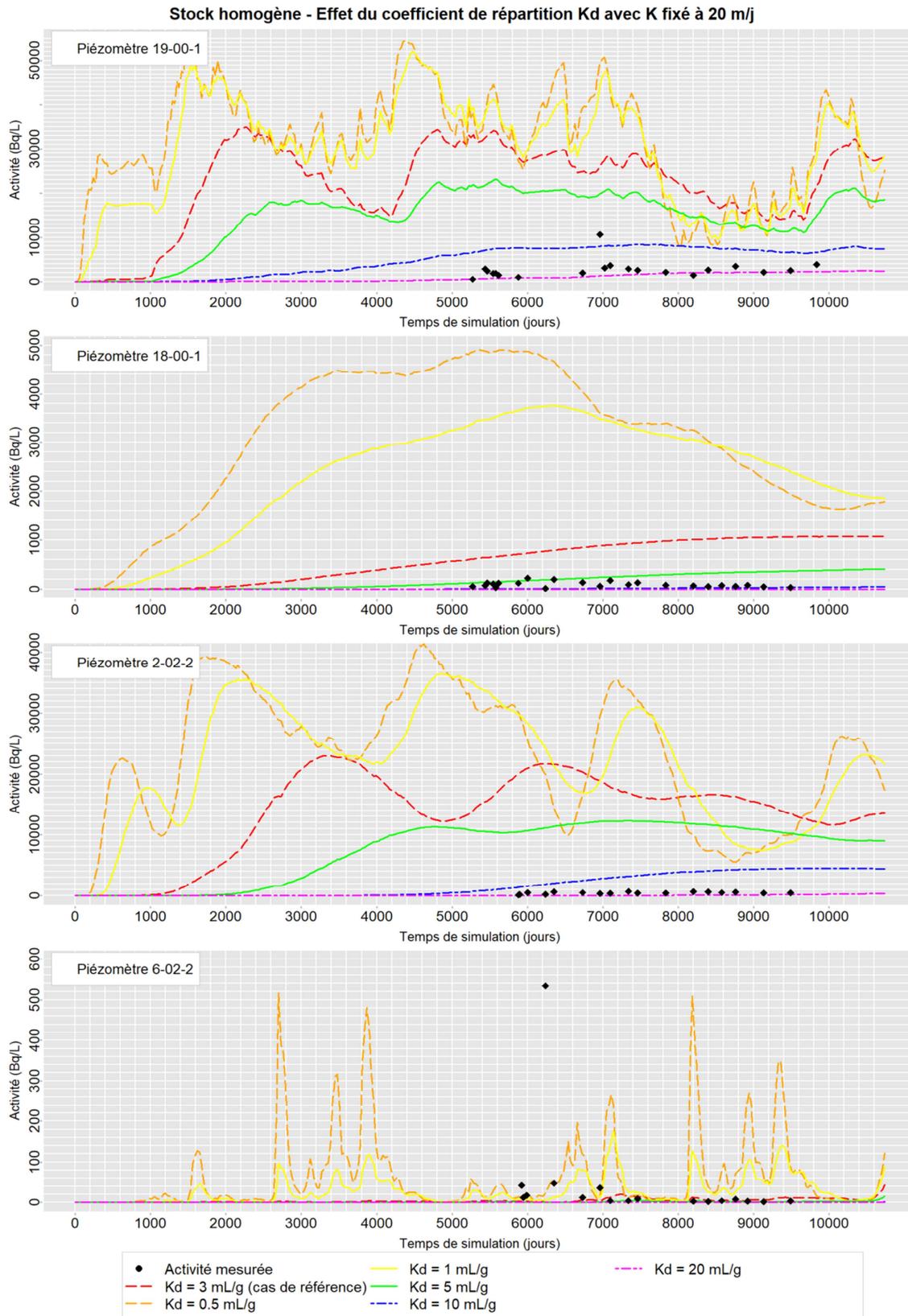


Figure 4-26 : Influence du coefficient de partage pour une conductivité hydraulique fixée à 20 m/j ($2.31 \cdot 10^{-4}$ m/s) - évolution temporelle de l'activité en ^{90}Sr et comparaison des valeurs simulées avec celles observées

4.6.5 Influence de la conductivité hydraulique

L'activité simulée du cas de référence présente deux types d'amplitude de la variation de l'activité : une faible amplitude sur une courte durée tout au long de la simulation et une grande amplitude sur une période d'environ 7.5 ans, en période de hautes eaux exceptionnelles. Pour augmenter la variabilité temporelle sur une échelle de temps plus courte, la conductivité hydraulique des sables éoliens est modifiée. Comme le panache de ⁹⁰Sr se trouve dans les sables éoliens, seule la conductivité hydraulique de cette couche est modifiée : des conductivités hydrauliques de 3 à 200 m/j ($3.47 \cdot 10^{-5}$ à $2.31 \cdot 10^{-3}$ m/s) sont testées.

La variabilité temporelle augmente avec la conductivité hydraulique et les activités simulées sont en moyenne plus importantes lorsque la conductivité hydraulique diminue. Ce niveau d'activité moyen diminue lorsque la conductivité hydraulique augmente. Néanmoins, cette valeur est 8 fois supérieure à la valeur de conductivité hydraulique mesurée dans les sables éoliens. L'activité relâchée est en fait rapidement lessivée par nappe, comme on peut le voir sur le piézomètre 2-02-2, où l'activité observée fluctue peu autour d'une moyenne de 500 Bq/L alors que les valeurs simulées présentent de grandes amplitudes de fluctuations (de l'ordre de 20 000 Bq/L). Ces périodes de lessivage correspondent aux périodes où la saturation dans la nappe est élevée, voire maximale, donc aux périodes où la tranchée est ennoyée.

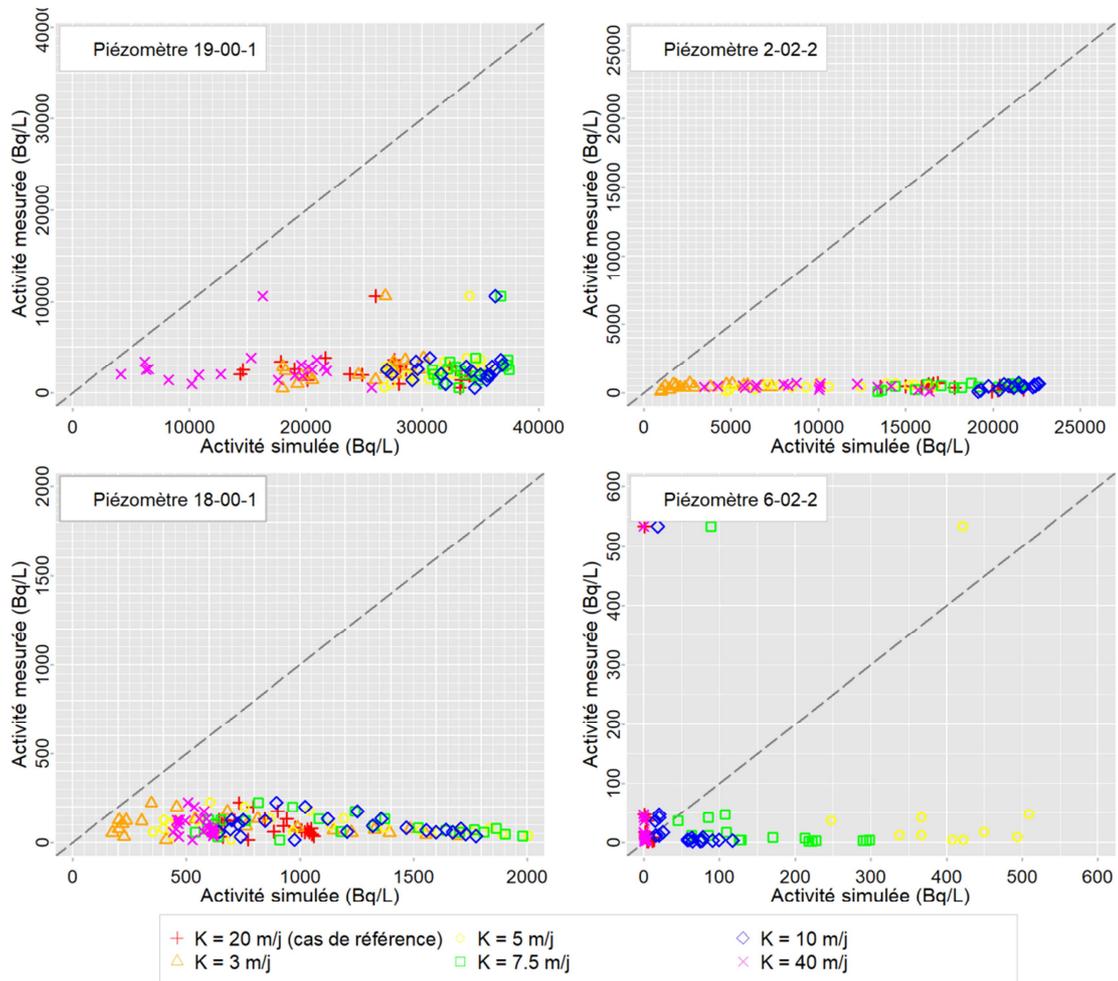


Figure 4-27 : Influence de la conductivité hydraulique pour un coefficient de partage fixé à 3 mL/g - comparaison entre valeurs simulées et observées

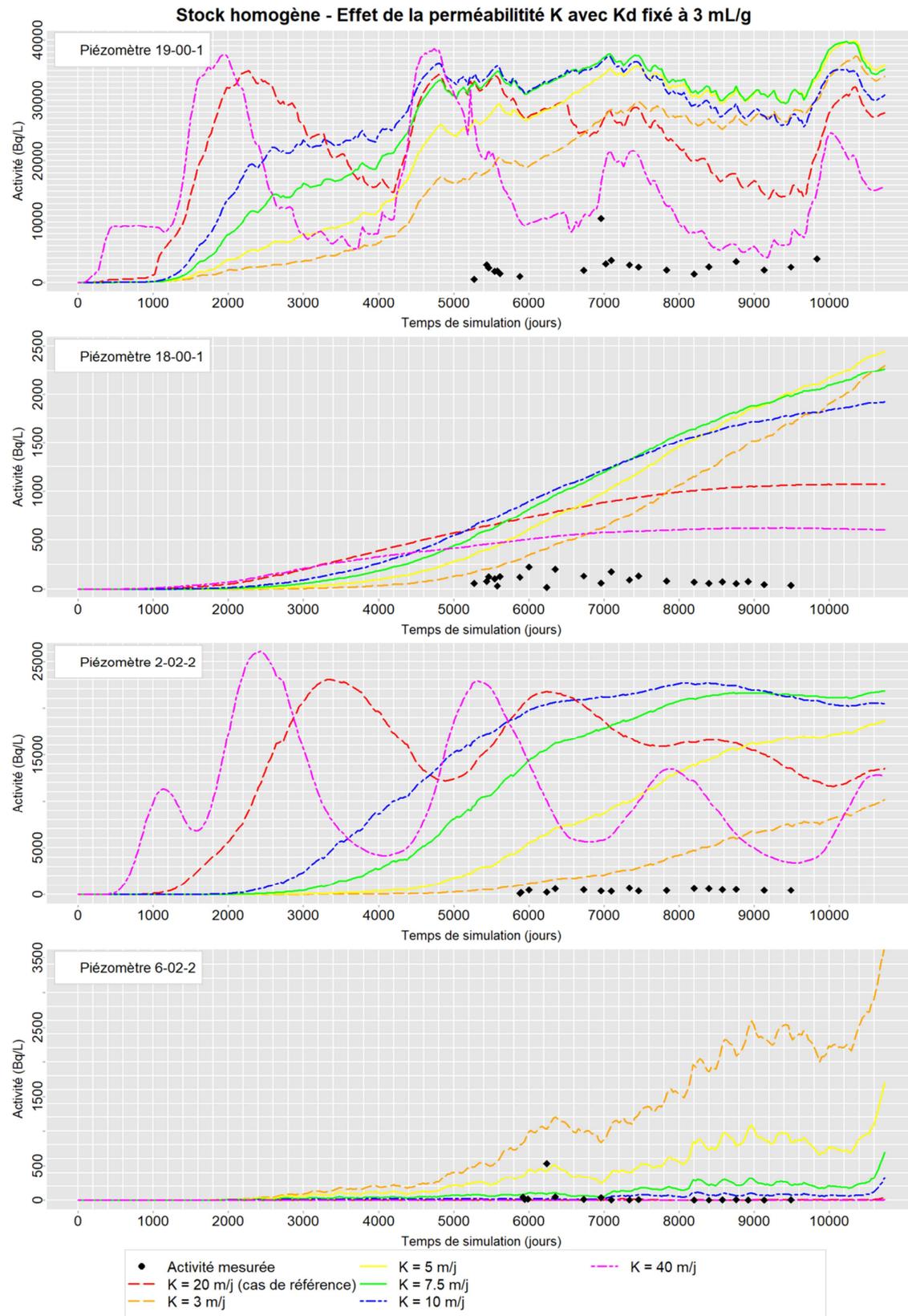


Figure 4-28 : Influence de la conductivité hydraulique pour un coefficient de partage fixé à 3 mL/g - évolution temporelle de l'activité en ^{90}Sr et comparaison des valeurs simulées avec celles observées

4.6.6 Influence du stock et de sa répartition

Tranchée divisée en couches

Dans le cas de référence, l'activité dans la tranchée a d'abord été supposée homogène. On examine ici l'influence de la répartition du stock dans la ZNS sur le panache de radionucléide. La tranchée est d'abord compartimentée en 3 couches de profondeur différente (donc de surface différente) mais de même épaisseur de 1 m. Un certain stock est ensuite assigné sur une des couches et on observe sa réponse sur le piézomètre 19-00-1, qui est le plus proche de la tranchée. On teste la réponse de chaque couche d'abord de manière indépendante, puis en multipliant le stock par 10 et 100 (Tableau 4-9).

Tableau 4-9 : Répartition du stock dans les cas testés

Cas	1	2	3	4	5	6	7	8	9
Couche haute	x1	x10	x100						
Couche du milieu				x1	x10	x100			
Couche basse							x1	x10	x100

Les paramètres hydrodynamiques et de transport sont les mêmes que pour le cas de référence (Tableau 4-7) sauf pour la conductivité hydraulique des sables éoliens, fixée à 5 m/j ($5.79 \cdot 10^{-5}$ m/s), puisque l'extension maximale du panache est plus proche des observations dans ce cas.

Les résultats (Figure 4-29) montrent que dans le cas où le terme source est situé dans la zone non saturée et n'est jamais influencé par le battement de la nappe, les activités simulées dans la nappe sont proportionnelles au stock dans les sols. Pour un stock situé en milieu de tranchée, donc la plupart du temps situé au-dessus du niveau de la nappe et rarement impacté par le battement de la nappe, la réponse est aussi proportionnelle, sauf dans le cas où le stock est multiplié par 100. Lorsque le stock est situé dans la couche basse de la tranchée, la relation n'est plus linéaire.

Selon la position du stock dans la tranchée, l'ordre de grandeur de l'activité simulée dans la tranchée peut varier de plusieurs ordres de grandeur, surtout dans le cas où le stock est situé proche du niveau d'eau (Figure 4-30). La répartition du stock dans la tranchée influence donc la réponse du panache de ^{90}Sr simulé dans les eaux souterraines.

Mais la simplification du problème en une combinaison de réponses associées à chaque couche du terme source pour simuler le panache de pollution n'est pas possible car le problème est plus complexe et un nombre trop important de paramètres est à prendre en compte pour simuler correctement le transport du ^{90}Sr .

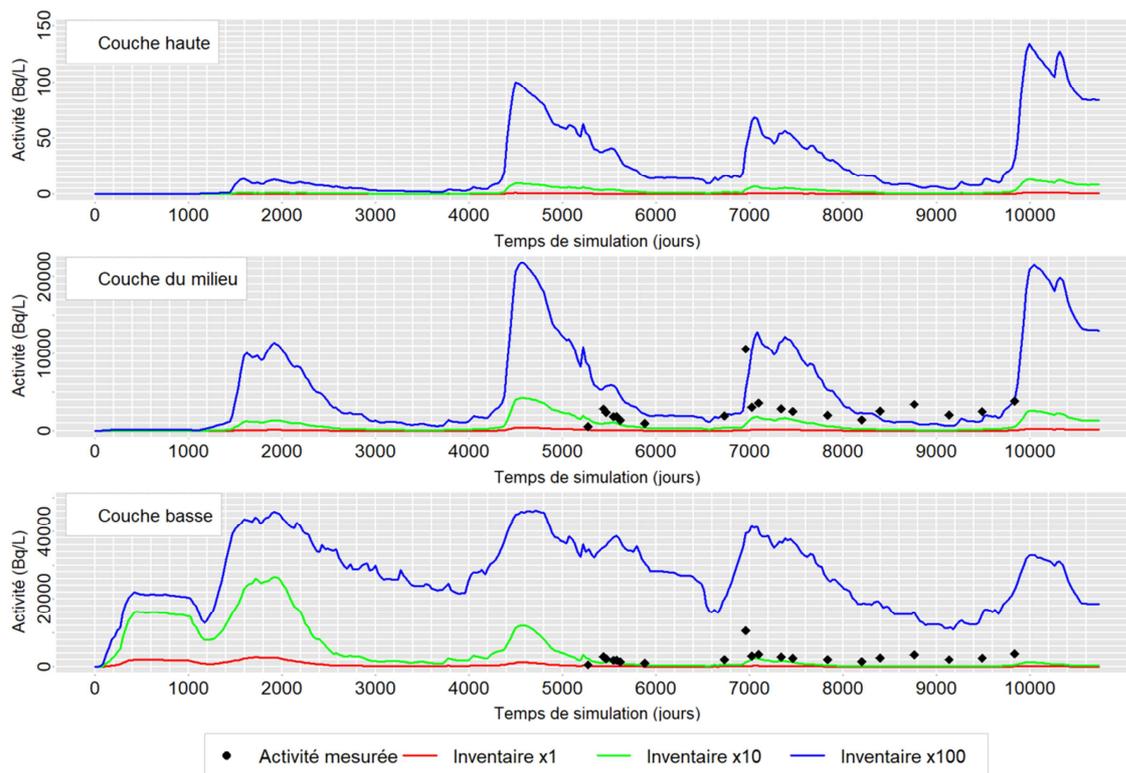


Figure 4-29 : Influence de la multiplication du stock sur une couche d'un modèle de tranchée stratifié en 3 couches horizontales d'égale épaisseur et comparaison des réponses sur le piézomètre 19-00-1

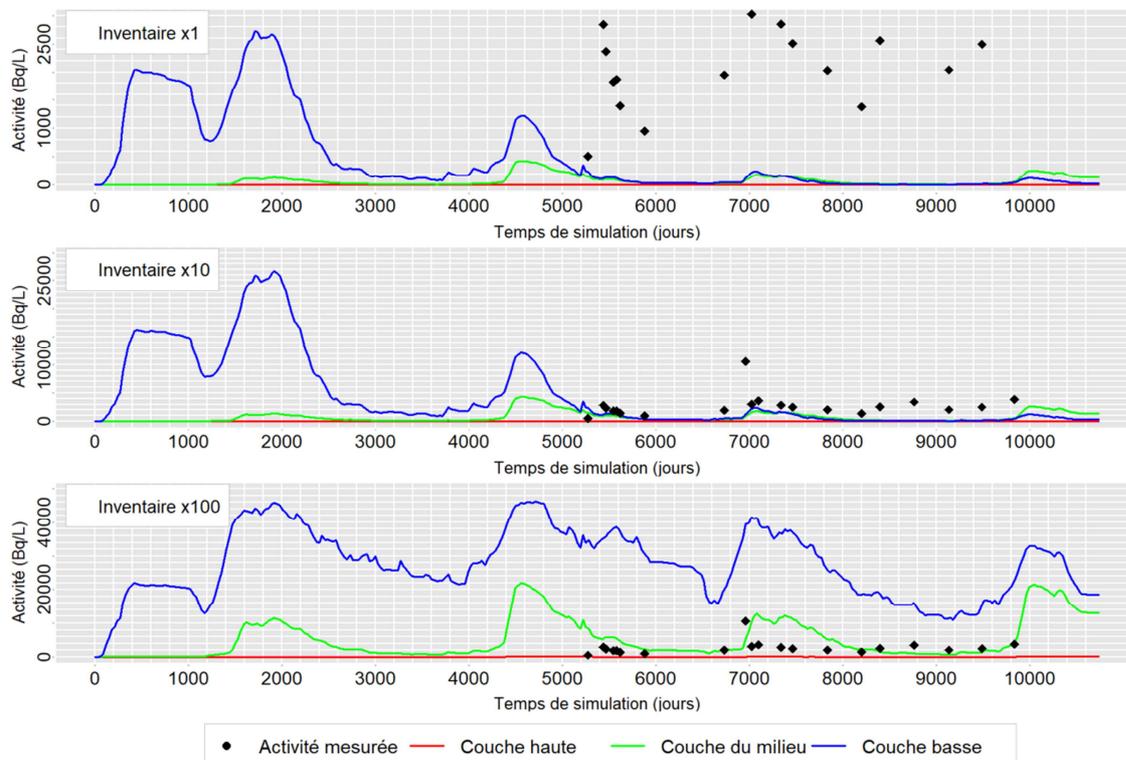


Figure 4-30 : Influence de la répartition du stock d'un modèle de tranchée stratifié en 3 couches horizontales d'égale épaisseur et comparaison des réponses sur le piézomètre 19-00-1

Stock hétérogène

L'influence d'une répartition hétérogène est ensuite étudiée. Pour ce faire, l'effet du stock au niveau du profil CD, qui est supérieur à celui du profil AB est testé. Le stock sur le profil CD est estimé à $4.57 \cdot 10^{10}$ Bq (contre $3.80 \cdot 10^{10}$ Bq sur le profil AB) et la répartition est différente, ce qui a un impact sur les activités observées : le piézomètre 12-02-1 du profil CD présente des activités en moyenne 9 fois supérieure à celles du piézomètre 19-00-1 du profil AB. Les résultats sont présentés à la Figure 4-31.

Les activités simulées sur les 2 profils présentent des variations temporelles similaires, avec des maxima légèrement supérieurs sur le profil CD à ceux sur le profil AB. Le stock plus élevé du profil CD n'explique donc pas les valeurs observées sur le piézomètre 12-02-1.

Les 200 simulations géostatistiques de l'activité de la tranchée T22 (obtenues au Chapitre 3) sont ensuite testées pour le cas présentant une chronique d'activité simulée la plus proche de celle observée pour le piézomètre 19-00-1 (les paramètres d'écoulement et ceux du transport sont identiques à ceux du cas de référence, sauf pour la conductivité hydraulique des sables éoliens qui est égale à 100 m/j ($1.16 \cdot 10^{-3}$ m/s) et le Kd qui vaut 5 ml/g). Les résultats sont présentés à la Figure 4-32.

Aux périodes de forte recharge, les différentes activités simulées dans les eaux souterraines présentent une amplitude d'au plus 5000 Bq/L. En dehors des périodes d'infiltration des eaux météoriques, les activités simulées varient peu (variations inférieures à 1000 Bq/L). Dans l'ensemble, la prise en compte de la variabilité spatiale du stock de la tranchée seule ne permet pas d'expliquer la variabilité spatiale et temporelle de l'activité dans les eaux souterraines.

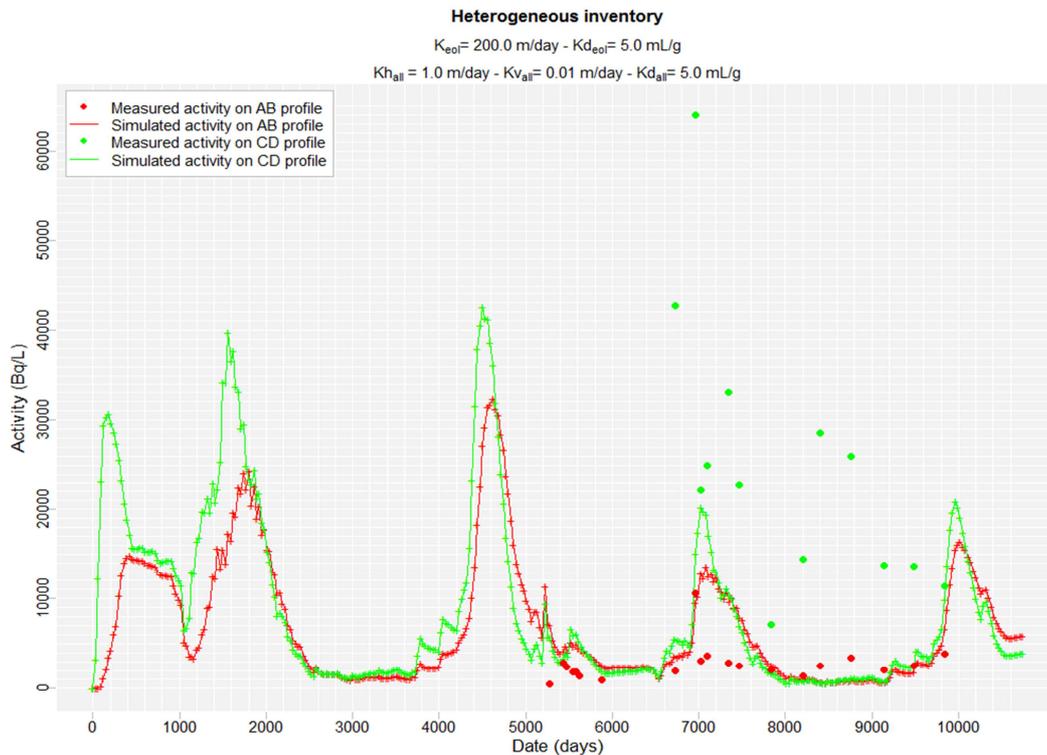


Figure 4-31 : Comparaison des réponses entre le stock des profils AB et CD

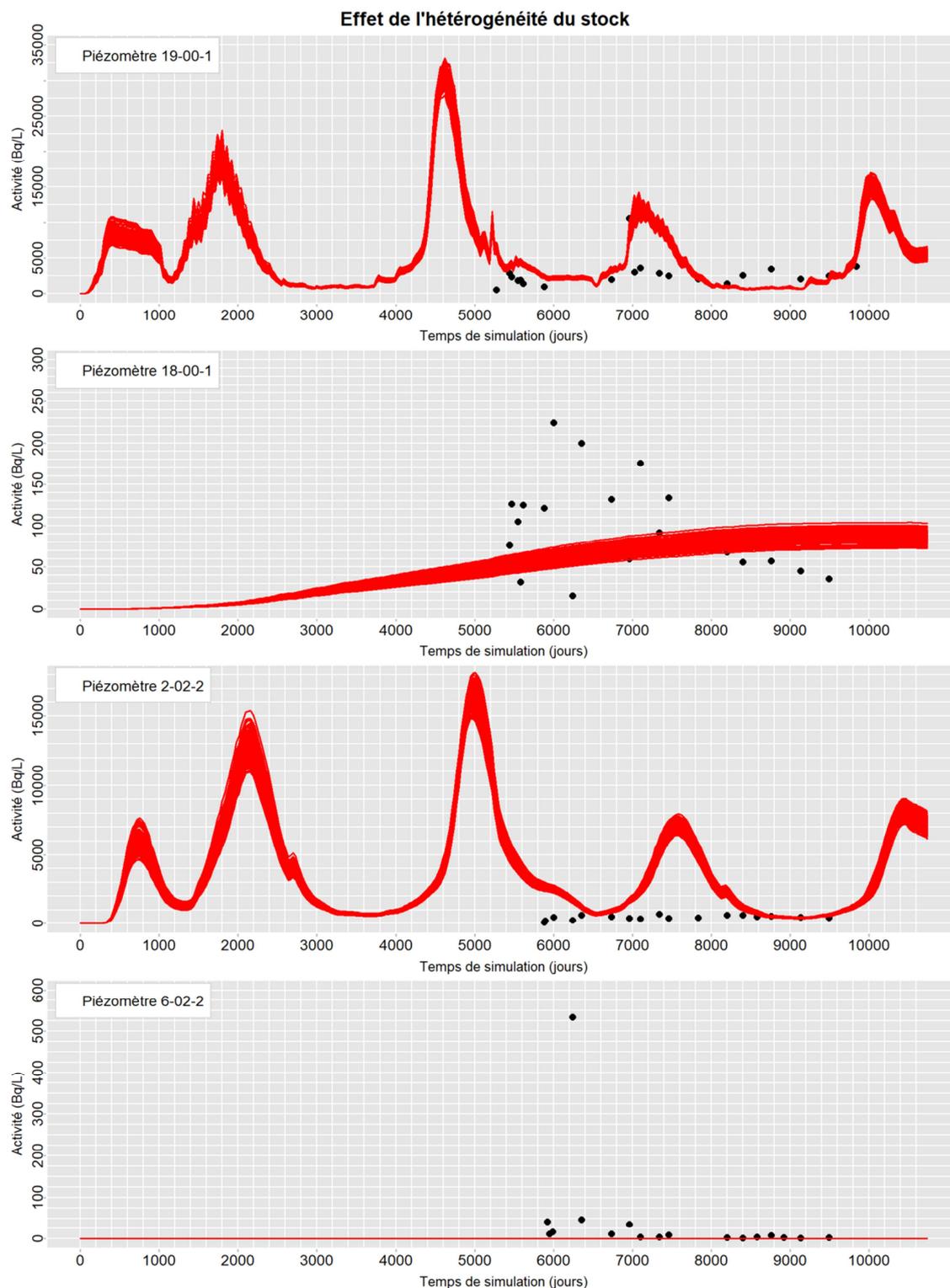


Figure 4-32 : Incertitudes liées à la variabilité du terme source - évolution temporelle de l'activité en ^{90}Sr et comparaison des valeurs simulées avec celles observées. Chaque courbe représente une simulation géostatistique du terme source.

5 DISCUSSION ET SYNTHÈSE

De nombreux paramètres influent sur le transport du ^{90}Sr , tels que l'activité maximale admise, la recharge, la conductivité hydraulique, le coefficient de partage et la répartition spatiale du terme source. Le K_d et la conductivité hydraulique semblent les paramètres les plus influents sur la variabilité temporelle et sur l'amplitude des activités dans la nappe. La combinaison d'une conductivité hydraulique élevée (de l'ordre de 100 m/j soit $1.13 \cdot 10^{-3} \text{ m/s}$) et d'un K_d modéré par rapport aux valeurs de K_d mesurées dans les sables éoliens

(5 ml/g) semble la combinaison permettant de se rapprocher le plus des observations. Cependant, la forte conductivité hydraulique lessive trop rapidement le ^{90}Sr et le panache s'étend bien au-delà du panache observé. Ainsi dans la configuration actuelle du modèle, il n'a pas été possible de trouver une combinaison de paramètres permettant de reproduire simultanément le niveau moyen et les pics d'activité en ^{90}Sr dans la nappe.

L'homogénéité des paramètres dans chaque couche du domaine peut être une des causes du problème de calage des paramètres de transport du ^{90}Sr . L'activité maximale admise initialement appliquée correspond à l'activité maximale mesurée au niveau du profil CD, mais elle semble plus faible au niveau du profil AB car l'activité maximale mesurée est 5 fois plus faible. Cependant, il n'existe pas de données géochimiques permettant l'application d'une limite de solubilité variable dans l'espace. Par ailleurs, l'application d'un K_d homogène et constant peut être remise en question du fait des fluctuations des concentrations en éléments majeurs, notamment en Ca^{2+} . Un K_d homogène et constant pourrait être considéré comme une valeur moyenne sur la période de simulation, mais en régime transitoire, un K_d fluctuant dans le temps, voire dans l'espace permettrait de mieux reproduire la variabilité temporelle de l'activité. En effet, les concentrations en ions majeurs fluctuent dans le temps et dans l'espace et indiquent que le K_d n'est peut-être donc pas constant dans le temps et homogène dans l'espace.

La variabilité spatiale apparaît aussi comme un paramètre important, selon la position du terme source dans la zone non saturée ou saturée et comme observé sur les piézomètres des profils AB et CD. Dans le cas de la tranchée T22, le problème « inverse » est néanmoins mal posé en raison d'un nombre insuffisant d'observations et s'avère beaucoup plus complexe qu'une simple combinaison linéaire de différentes strates contaminées.

La prise en compte seule de la variabilité spatiale du stock ne permet pas d'expliquer les fluctuations de l'activité dans les eaux souterraines. Mais, il est possible que les fortes activités mesurées au niveau du piézomètre 19-00-1 et 12-02-1 soient dues à de fortes conductivités hydrauliques locales. Cette hypothèse n'est pas improbable sachant que les déchets de la tranchée peuvent comporter des débris végétaux de taille importante. Une autre piste dans l'amélioration du calage serait donc de considérer une conductivité hydraulique hétérogène dans l'espace. L'existence de chemins préférentiels combinée à la présence de points chauds au niveau du profil CD pourrait expliquer de fortes activités en ^{90}Sr localement.

Il faut aussi relever que les calculs de transport reposent sur la reconstitution de la chronique piézométrique entre 1986 et 1999 et induisent le relâchement de fortes activités avant 1999 dû à des périodes d'ennoiement de la nappe. Cependant, cette chronique est fictive et aucune donnée n'est disponible pour la reconstituer de manière plus réaliste. À défaut de mesures, pour qu'elle se rapproche plus de la réalité, il serait intéressant de la reconstituer à partir de données pluviométriques antérieures à 1999 si elles sont disponibles. Il aurait par ailleurs été préférable que la répartition initiale du ^{90}Sr soit aussi connue dès la construction de la tranchée de déchets pour limiter les incertitudes, certainement grandes, liées au calcul du stock de ^{90}Sr à partir de celui du ^{137}Cs .

Le modèle 2D est aussi très influencé par les conditions imposées aux limites du fait de leur proximité. Idéalement, pour s'affranchir de leur influence, il aurait fallu de disposer de chroniques piézométriques plus éloignées du site d'étude. Un modèle en 3D non saturé nous aurait aussi permis de représenter de manière plus réaliste l'écoulement dans la tranchée, de s'affranchir de l'hypothèse d'un gradient hydraulique moyenné et de prendre en compte la totalité du terme source, et non seulement une tranche de 3 m de terme source au niveau d'un profil de piézomètres. En effet, l'épaisseur de la couche verticale de stock a certainement une influence dans le calcul du transport. Une analyse de sensibilité aurait pu être conduite pour déterminer l'épaisseur de couche à prendre en compte.

Une analyse exploratoire des données d'activité et des niveaux piézométriques plus poussée pourrait préciser le décalage observé entre niveau piézométrique et activité pour mieux ajusté le K_d . Le manque de données ne permet cependant pas de le faire actuellement car au plus, nous disposons de 25 données par piézomètre, ce qui est peu pour construire un variogramme. Continuer les prélèvements des eaux souterraines pour analyser le ^{90}Sr et des éléments majeurs dans les eaux souterraines permettrait de mieux caler le K_d aussi bien spatialement que temporellement.

CONCLUSION

Dans la perspective d'une reconquête des territoires dans la zone d'exclusion de Tchernobyl, il devient nécessaire de mieux quantifier les risques associés aux tranchées de déchets. Nos travaux se sont focalisés sur une tranchée, la T22 qui a fait l'objet de nombreuses études menées par l'IRSN depuis 1999. Elle est composée de sols contaminés mélangés à des débris organiques et des troncs d'arbres. Lors de la mise en place de la tranchée en 1987, la principale source de radioactivité au sein des déchets était très certainement associée aux particules de combustible, relâchées lors de l'explosion de la centrale nucléaire. La localisation de cette tranchée dans une formation perméable a eu pour conséquence la migration des radionucléides causée par l'infiltration de l'eau dans la tranchée et le battement de la nappe sous-jacente. La revue des mesures et des études effectuées antérieurement a permis de soulever plusieurs types d'incertitudes.

Le Chapitre 2 s'est focalisé sur celles associées à la corrélation entre activité spécifique mesurée en laboratoire et le comptage gamma mesuré *in situ* qui correspond à une mesure simple à mettre en œuvre et rapide du sol environnant. Une régression linéaire avait été établie permettant le passage d'un nombre de coups à une activité en ^{137}Cs à partir de mesures effectuées en 1999. Les travaux conduits dans ce chapitre ont investigué les facteurs contrôlant la relation entre ces deux variables. Des simulations géostatistiques sur un cas synthétique sont utilisées pour répartir spatialement l'activité selon un modèle défini. Une analyse de sensibilité est conduite sur les paramètres structuraux et ceux du milieu. Les résultats confirment l'existence d'une corrélation et précisent les conditions de son application. Du fait de l'hétéroscédasticité des données, l'utilisation du logarithme des données est préférable pour construire la régression linéaire entre les variables. Néanmoins, le biais induit reste à corriger. Les résultats démontrent que la corrélation est due à la structure spatiale de la contamination radioactive bien que les variables étudiées soient mesurées sur deux supports disjoints du même milieu. Si la corrélation peut effectivement être supposée linéaire, l'étude des données d'une campagne de terrain menée en septembre 2015 confirme qu'il est préférable de cokriquer l'activité par le comptage radiométrique plutôt que de transformer les données de comptage par la relation linéaire obtenue sur les valeurs arithmétiques. En définitive, la corrélation entre l'activité spécifique d'un émetteur gamma dans le sol et le comptage gamma en forage peut être utilisée dans tous les domaines relevant des mesures de rayonnements gamma dans le but d'estimer un stock en radionucléides. Si une telle corrélation est observée, les mesures de comptage gamma peuvent alors être utilisées en tant que variable auxiliaire pour cokriquer les données d'activité de l'émetteur gamma étudié, souvent moins nombreuses car plus coûteuses. Malgré la facilité de la mise en œuvre d'une sonde $\beta + \gamma$ cette méthode requiert néanmoins un nombre important de sondages pour ajuster un modèle variographique bivariable. Si le cokrigeage est trop lourd à mettre en œuvre, la régression linéaire reste acceptable et meilleure que la régression lognormale. Les valeurs fortes doivent cependant faire l'objet d'une attention particulière du fait de l'hétéroscédasticité des données.

Le stock en ^{137}Cs présent dans la tranchée en 1999 et les incertitudes associées sont ensuite révisés dans le Chapitre 3. La profondeur de la tranchée est interpolée en utilisant conjointement les résultats issus de profils géoradar, et les données de sondages radiométriques forés dans la tranchée, converties en activité par régression linéaire. Les résultats de cette nouvelle analyse géostatistique ont permis de quantifier les incertitudes sur le volume, qui sont relativement faibles en utilisant conventionnellement la variance d'estimation. Le calcul du stock du ^{137}Cs a été actualisé en utilisant les données d'activité de 1999. Les stocks qui découlent de l'estimation et des simulations de l'activité sont supérieurs à celui déterminé en 2001 mais restent dans les intervalles d'incertitudes calculés antérieurement. Les nouveaux intervalles d'incertitudes sur le stock sont restreints dans le cas d'un calcul par analyse statistique des simulations conditionnelles. Toutefois, ils seraient d'autant plus larges si les incertitudes associées à la relation linéaire entre taux de comptage et activité avait été prise en compte. L'effet de l'échantillonnage est par la suite

évalué en décimant les données de 1999 selon le plan d'échantillonnage de 2015. Au vue du peu de données à notre disposition pour évaluer un stock pour l'année 2015, il n'est pas possible d'établir une cartographie. Il aurait été intéressant néanmoins d'effectuer une estimation globale et d'évaluer les incertitudes sur le stock. A titre informatif, il serait possible d'évaluer par cokrigeage l'activité associée aux mesures de comptage gamma seules à partir du modèle bivariable ajusté au Chapitre 2. Ces travaux ouvrent donc la question de la stratégie d'échantillonnage à adopter pour évaluer le stock des 800 autres tranchées inconnues de la zone d'exclusion. La mise en œuvre d'une stratégie d'échantillonnage dense comme en 1999 ne paraît pas réaliste à une telle échelle pour des raisons économiques évidentes. La stratégie plus légère développée dans cette thèse en 2015 montre néanmoins que les stocks des autres tranchées seraient entachés d'une forte incertitude si l'estimation était conduite avec un tel plan d'échantillonnage.

Enfin, au Chapitre 4, un modèle hydrogéologique 2D à saturation variable est construit afin d'évaluer l'effet de la variabilité spatiale du terme source sur le panache de ^{90}Sr généré par la tranchée T22. Le battement de la nappe est reproduit et la modélisation s'effectue en régime transitoire. Une analyse de sensibilité est conduite afin d'évaluer l'influence des différents paramètres d'écoulement et de transport sur les chroniques d'activité en ^{90}Sr simulées au cours du temps. Il n'a pas été possible de caler un ensemble de paramètres homogènes dans l'espace et le temps pour reproduire de manière satisfaisante les données observées, ce modèle n'est donc pas un outil prédictif. Toutefois, il donne des clefs de compréhension sur l'influence des paramètres testés. Il apparaît que le Kd et la conductivité hydraulique sont les paramètres les plus influents sur la variabilité temporelle et sur l'amplitude des activités dans la nappe. Les pistes d'amélioration du modèle résident dans la prise en compte de l'hétérogénéité des paramètres hydrodynamiques et de transport, en particulier la conductivité hydraulique dans un premier temps, les données géochimiques étant peu nombreuses. Le Kd ne semble pas homogène non plus dans l'espace et le temps car les concentrations en éléments majeurs fluctuent dans le temps. Il serait intéressant de regarder l'impact d'un Kd variable temporellement, puis spatialement et ensuite conjointement. En compartimentant le terme source par couches, nous montrons que la position du terme source vis-à-vis de la nappe influence énormément la réponse de la simulation mais que la réponse n'est pas linéaire. La variabilité spatiale du terme source est un paramètre important pour évaluer le panache généré mais à l'échelle de la tranchée T22, elle ne permet pas d'expliquer à elle seule la variabilité de l'activité en ^{90}Sr dans les eaux souterraines.

La tranchée T22 n'est finalement qu'une tranchée parmi 800 autres. Pour élargir l'étude à d'autres tranchées, les deux problématiques que sont l'estimation d'un stock de déchets dans les sols et celle d'un panache de radionucléides en aval de tranchée, doivent être différenciées.

Dans les sols, l'étude de la tranchée T22 a permis d'évaluer un ordre de grandeur quant au nombre d'échantillons nécessaires pour évaluer un stock, qui est d'environ 100 et d'au minimum 50 mesures. La corrélation entre activité spécifique et comptage gamma peut être déployée pour optimiser les coûts. A défaut de pouvoir mettre en œuvre un cokrigeage, qui nécessite de nombreuses données, l'utilisation d'une régression linéaire est acceptable pour une estimation globale. Le cokrigeage sera privilégié pour une description plus détaillée. Sur un plus grand domaine, l'échantillonnage de zones en dehors de toute tranchée permet de ne pas sur-échantillonner les zones les plus contaminées.

Dans les eaux souterraines, à l'échelle de la tranchée T22, les résultats du transport du terme source calculé à partir de 200 simulations conditionnelles indiquent que la variabilité spatiale a une influence modérée pour améliorer la simulation des chroniques d'activité relâchée dans les eaux souterraines par rapport à un stock homogène. Une estimation globale du stock apparaît suffisante pour modéliser les activités moyennes du ^{90}Sr dans la nappe et ainsi évaluer le risque chronique associé à la présence de ce radionucléide dans les eaux souterraines. Toutefois, pour estimer globalement le stock, un nombre minimal de données est nécessaire pour restreindre le volume du terme source et pour construire un variogramme. Pour évaluer les risques aigus (i.e. l'amplitude des activités les plus fortes et la durée de leur occurrence dans la nappe), l'estimation globale ne suffirait néanmoins pas car la prise en compte des incertitudes, entre autre, sur le stock, apparaît nécessaire. Une forte variabilité spatiale des activités maximales en ^{90}Sr a en effet pu être observée et semble nécessiter la prise en compte de la variabilité spatiale du terme source dans le modèle de transport. La prise en compte de chemins préférentiels et d'une variabilité des conditions géochimiques apparaissent également essentiels à l'analyse des risques aigus.

REFERENCES

- Ahamdach, N., Stammose, D., 2000. Séparation et caractérisation microscopique des particules de combustible nucléaire présentes dans les sols contaminés de Tchernobyl. *Earth Planet. Sci. - Comptes Rendus l'Académie des Sci. - Ser. IIA* 330, 415-422. [https://doi.org/http://dx.doi.org/10.1016/S1251-8050\(00\)00147-6](https://doi.org/http://dx.doi.org/10.1016/S1251-8050(00)00147-6)
- Antropov, V.M., Bugai, D.A., Dutton, M.C., Gerchikov, M.Y., Kennett, E.J., Ledenev, A.I., Novikov, A.A., Rudko, V., Ziegenhagen, J., 2001. Review and analysis of solid long-lived and high level radioactive waste arising at Chernobyl nuclear power plant and the restricted zone.
- Asfahani, J., 2003. Phosphate prospecting using natural gamma ray well logging in the Khneifiss mine, Syria. *Explor. Min. Geol.* 11, 61-68. <https://doi.org/10.2113/11.1-4.61>
- Benke, R.R., Kearfott, K.J., 2001. An improved in situ method for determining depth distributions of gamma-ray emitting radionuclides. *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. A Accel. Spectrometers, Detect. Assoc. Equip.* 463, 393-412. [https://doi.org/http://dx.doi.org/10.1016/S0168-9002\(01\)00449-1](https://doi.org/http://dx.doi.org/10.1016/S0168-9002(01)00449-1)
- Berger, M.J., Hubbell, J.H., Seltzer, S.M., Chang, J., Coursey, J.S., Sukumar, R., Zucker, D.S., Olsen, K., 2010. XCOM: Photon Cross Sections Database, NIST Standard Reference Database 8 (XGAM) [WWW Document]. NBSIR 87-3597. URL <https://www.nist.gov/pml/xcom-photon-cross-sections-database>
- Boden, S., Rogiers, B., Jacques, D., 2013. Determination of ¹³⁷Cs contamination depth distribution in building structures using geostatistical modeling of ISOCS measurements. *Appl. Radiat. Isot.* 79, 25-36. <https://doi.org/http://dx.doi.org/10.1016/j.apradiso.2013.04.028>
- Bugai, D.A., Dzhepo, S.P., Skalsky, A., Van Meir, N., Gaudet, J.P., 2008. Estimation of hydraulic properties of unsaturated sandy soils using laboratory and field methods. *Geol. Zhurnal (Geological Journal, Kiev)* 4, 99-105.
- Bugai, D.A., Skalskij, A.S., Dzhepo, S.P., Waters, R.D., 1996. The characterization and risk assessment of the « Red Forest » radioactive waste burial site at Chernobyl Nuclear Power Plant.
- Bugai, D., Dewière, L., 2003. Geostatistical analysis of activity of ¹³⁷Cs in Trench no.22 Chernobyl Pilot Site. IRSN.
- Bugai, D., Dewière, L., 2004a. Geology structure and hydrogeology conditions of the Chernobyl Pilot Site. IRSN.
- Bugai, D., Dewière, L., 2004b. Global model for the ⁹⁰Sr transport in the aquifer at Chernobyl Pilot Site: model calibration and sensitivity analyses. IRSN.
- Bugai, D., Dewière, L., Kashparov, V., Yoschenko, V., 2003. Validation tests for the model describing strontium-90 migration source-term for the Chernobyl Pilot Site.
- Bugai, D., Kashparov, V., Dewière, L., Khomutinin, Y., Levchuk, S., Yoschenko, V., 2005. Characterization of subsurface geometry and radioactivity distribution in the trench containing Chernobyl clean-up wastes. *Environ. Geol.* 47, 869-881. <https://doi.org/10.1007/s00254-004-1218-6>
- Bugai, D., Skalsky, A., Dzhepo, S., Kubko, Y., Kashparov, V., Van Meir, N., Stammose, D., Simonucci, C., Martin-Garin, A., 2012a. Radionuclide migration at experimental polygon at Red Forest waste site in Chernobyl zone. Part 2: Hydrogeological characterization and groundwater transport modeling. *Appl. Geochemistry* 27, 1359-1374. <https://doi.org/http://dx.doi.org/10.1016/j.apgeochem.2011.09.028>
- Bugai, D., Skalsky, O., Matoshko, A., Dzhepo, S., 2000. Pilot Site Projet - 1999 Yearly Report for the CEA/IRSN project - « Validating a pilot plant in the Chernobyl exclusion area by means of experiments ». Ukrainian National Academy of Sciences; Institute of Geological Sciences.
- Bugai, D., Skalsky, O., Matoshko, A., Dzhepo, S., Olegov, D., Kubko, Y., Kurilo, S., Zvarich, S., 2001. Chernobyl Pilot Site Projet - 2000 Yearly Report for the CEA/IRSN project - « Validating a pilot plant in the Chernobyl exclusion area by means of experiments ». Ukrainian National Academy of Sciences;

- Institute of Geological Sciences.
- Bugai, D., Tkachenko, E., Van Meir, N., Simonucci, C., Martin-Garin, A., Roux, C., Le Gal La Salle, C., Kubko, Y., 2012b. Geochemical influence of waste trench no. 22T at Chernobyl Pilot Site at the aquifer: Long-term trends, governing processes, and implications for radionuclide migration. *Appl. Geochemistry* 27, 1320-1338. <https://doi.org/http://dx.doi.org/10.1016/j.apgeochem.2011.09.021>
- Bugai, D., Waters, R.D., Dzhepo, S., Skal'skij, A., 1996. Risks from radionuclide migration to groundwater in the Chernobyl 30-km zone. *Health Phys.* 71, 9-18.
- Carlier, A., 1964. Contribution to the Methods for Estimating Uranium Deposits; Contribution aux méthodes d'estimation des gisements d'uranium. Other Inf. Thesis Submitt. to Univ. Paris. Orig. Receipt Date 31-DEC-65.
- Chauvet, P., 2008. Aide-mémoire de la géostatistique linéaire. Les cours.
- Chesnokov, A. V, Govorun, A.P., Fedin, V.N., Ivanov, O.P., Liksonov, V.I., Potapov, V.N., Shcherbak, S.B., Smirnov, S. V, Urutskoev, L.I., 1999. Method and device to measure ¹³⁷Cs soil contamination in-situ. *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. A Accel. Spectrometers, Detect. Assoc. Equip.* 420, 336-344. [https://doi.org/http://dx.doi.org/10.1016/S0168-9002\(98\)00761-X](https://doi.org/http://dx.doi.org/10.1016/S0168-9002(98)00761-X)
- Chilès, J.-P., Delfiner, P., 2012. *Geostatistics: modeling spatial uncertainty*. John Wiley & Sons, Inc. <https://doi.org/10.1002/9781118136188>
- Clouvas, A., Xanthos, S., Takoudis, G., Antonopoulos-Domis, M., Zinoviadis, G., Vidmar, T., Likar, A., 2007. Twenty-year follow-up study of radiocesium migration in soil. *Radiat. Prot. Dosimetry* 124, 372-377. <https://doi.org/10.1093/rpd/ncm222>
- Cole, T., Bidoglio, G., Soupioni, M., O'Gorman, M., Gibson, N., 2000. Diffusion mechanisms of multiple strontium species in clay. *Geochim. Cosmochim. Acta* 64, 385-396. [https://doi.org/https://doi.org/10.1016/S0016-7037\(99\)00324-5](https://doi.org/https://doi.org/10.1016/S0016-7037(99)00324-5)
- de Windt, L., Lee, J. van der, Schmitt, J.-M., 2005. Modélisation en géochimie des eaux Concepts et applications en environnement. Tech. l'ingénieur Chim. des milieux complexes base docum.
- Desnoyers, Y., 2010. Approche méthodologique pour la caractérisation géostatistique des contaminations radiologiques dans les installations nucléaires.
- Dewière, L., 2001. Validating a Pilot Plan in the Chernobyl Exclusion Area by Means of Experiments - Yearly Report 1999. IRSN.
- Dewière, L., Bugai, D., Grenier, C., Kashparov, V., Ahamdach, N., 2004. ⁹⁰Sr migration to the geo-sphere from a waste burial in the Chernobyl exclusion zone. *J. Env. Radioact* 74, 139-150. <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2004.01.019>
- Dewière, L., Bugai, D., Kashparov, V., Barthes, V., 2005. Validation of the global model for ⁹⁰Sr migration from the waste burial in the Chernobyl exclusion zone. *EDP Sci.* <https://doi.org/10.1051/radiopro:2005s1-038>
- Dodd, P.H., Eschliman, D.H., 1972. Borehole Logging Techniques for Uranium Exploration and Evaluation, in: *Uranium Prospecting Handbook*. London.
- Dzhepo, S., Skalskij, A., 2002. Radioactive contamination of groundwater within the Chernobyl exclusion zone , in: Shestopalov, V. (Éd.), *Chernobyl Disaster and Groundwater*. A.A. Balkema, p. 25-69.
- Emery, X., 2001. *Géostatistique linéaire*. Centre de géostatistique, Ecole nationale supérieure des mines de Paris.
- Ferrand, E., 2011a. Bilan des actions de recherches sur le transfert des radionucléides dans les sols.
- Ferrand, E., 2011b. Bilan et perspectives des actions de recherches sur le transfert des radionucléides dans les sols et les nappes phréatiques.
- Ferrand, E., Simonucci, C., 2011. Dossier de presse Tchernobyl 25ème anniversaire. IRSN.
- Fouquet, C. De, 2006. La modélisation géostatistique des milieux anthropisés. Université Pierre et Marie Curie.
- Fouquet, C. De, 2011. From exploratory data analysis to geostatistical estimation: examples from the analysis of soil pollutants 454-466. <https://doi.org/10.1111/j.1365-2389.2011.01374.x>
- Freeze, R.A., Banner, J., 1970. The mechanism of natural ground-water recharge and discharge. *Water Resour. Res.* 6, 138-155.
- Gelhar, L.W., Welty, C., Rehfeldt, K.R., 1992. A Critical Review of Data on Field-Scale Dispersion in Aquifers. *Water Resour. Res.* 28, 1955-1974. <https://doi.org/10.1029/92WR00607>

- Goblet, P., 2007. Spécifications pour la simulation de l'écoulement en zone non saturée. Rapport final. Rapport technique.
- Goblet, P., 2012. Modélisation du transfert de masse et d'énergie en aquifère : des approches numériques aux applications. Université Pierre et Marie Curie - Paris VI.
- Grenier, C., Mouche, E., 2000. Permeability data analysis concerning the Pilot site at Tchernobyl. Preliminary results.
- Grenier, C., Mouche, E., 2001. Variographic analysis of permeability measurements from Tchernobyl Site. CEA.
- Guillou, P., Stammose, D., Dewière, L., 2000. Etude de profils d'activité de prélèvements de sols effectués dans et à proximité de la tranchée 22 sur le site pilote de Tchernobyl. IRSN.
- Healy, R.W., Cook, P.G., 2002. Using groundwater levels to estimate recharge. *Hydrogeol. J.* 10, 91-109. <https://doi.org/10.1007/s10040-001-0178-0>
- IAEA International Atomic Energy Agency, 1979. Gamma-ray surveys in uranium exploration. International Atomic Energy Agency, Vienna.
- Il'ichev, V.A., Akhunov, V.D., al., et, 1992. Study of the radioactive waste burial sites, development of the technologies and measures for their long-term localization and re-disposal, realization of radiation and hydrogeological monitoring at the burial sites and adjoining territories. Institute of Industrial Technologies, Moscow - Chernobyl.
- IRSN, 2005a. Fiche radionucléide : Strontium 90 et environnement.
- IRSN, 2005b. Fiche radionucléide : Césium 137 et environnement.
- IRSN, 2009. MELODIE Modèle d'Evaluation à Long terme des Déchets Irradiants Enterrés - Notice théorique du code de calcul MELO version 5.0.
- Jackson, C.R., Wang, L., Pachocka, M., Mackay, J.D., Bloomfield, J.P., 2016. Reconstruction of multi-decadal groundwater level time-series using a lumped conceptual model. *Hydrol. Process.* 30, 3107-3125. <https://doi.org/10.1002/hyp.10850>
- Jeannée, N., 2001. Caractérisation géostatistique de pollutions industrielles de sols : cas des hydrocarbures aromatiques polycycliques sur d'anciens sites de cokeries.
- Kashparov, V.A., Protsak, V.P., Ahamdach, N., Stammose, D., Peres, J.M., Yoschenko, V.I., Zvarich, S.I., 2000. Dissolution kinetics of particles of irradiated Chernobyl nuclear fuel: influence of pH and oxidation state on the release of radionuclides in the contaminated soil of Chernobyl. *J. Nucl. Mater.* 279, 225-233. [https://doi.org/http://dx.doi.org/10.1016/S0022-3115\(00\)00010-6](https://doi.org/http://dx.doi.org/10.1016/S0022-3115(00)00010-6)
- Kashparov, V., Ahamdach, N., Dewière, L., 2004. Trench source term characterization on the Chernobyl Pilot Site. IRSN.
- Kashparov, V., Lundin, S., Levchuk, S., Yoshchenko, V., Protsak, V., Khomutinin, Y., Zvarich, S., Kadygrib, A., Maloshtan, I., Glukhovskiy, A., 2000. Validating a Pilot plant in the Chernobyl Exclusion area by means of experiments. Kiev.
- Kashparov, V., Yoschenko, V., Levchuk, S., Bugai, D., Van Meir, N., Simonucci, C., Martin-Garin, A., 2012. Radionuclide migration in the experimental polygon of the Red Forest waste site in the Chernobyl zone - Part 1: Characterization of the waste trench, fuel particle transformation processes in soils, biogenic fluxes and effects on biota. *Appl. Geochemistry* 27, 1348-1358. <https://doi.org/http://dx.doi.org/10.1016/j.apgeochem.2011.11.004>
- Kastlander, J., Bargholtz, C., 2005. Efficient in situ method to determine radionuclide concentration in soil. *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. A Accel. Spectrometers, Detect. Assoc. Equip.* 547, 400-410. <https://doi.org/http://dx.doi.org/10.1016/j.nima.2005.03.143>
- Kastlander, J., Bargholtz, C., 2011. In situ method to determine depth distribution of buried activity. *Appl. Radiat. Isot.* 69, 773-779. <https://doi.org/http://dx.doi.org/10.1016/j.apradiso.2011.01.012>
- Kerrou, J., Renard, P., Hendricks Franssen, H.J., Lunati, I., 2008. Issues in characterizing heterogeneity and connectivity in non-multiGaussian media. *Adv. Water Resour.* 31, 147-159. <https://doi.org/10.1016/j.advwatres.2007.07.002>
- Kjeldsen, P., Bjerg, P.L., Winther, P., Rügge, K., Pedersen, J.K., Skov, B.H., Foverskov, A., Christensen, T.H., 1995. Assessment of the Spatial Variability in Leachate Migration from an Old Landfill Site. *Groundw. Qual. Remediat. Prot.* 365-373.
- Krige, D.G., 1981. Lognormal-de Wijsian geostatistics for ore evaluation / D.G. Krige, *Geostatics* ; 1. South

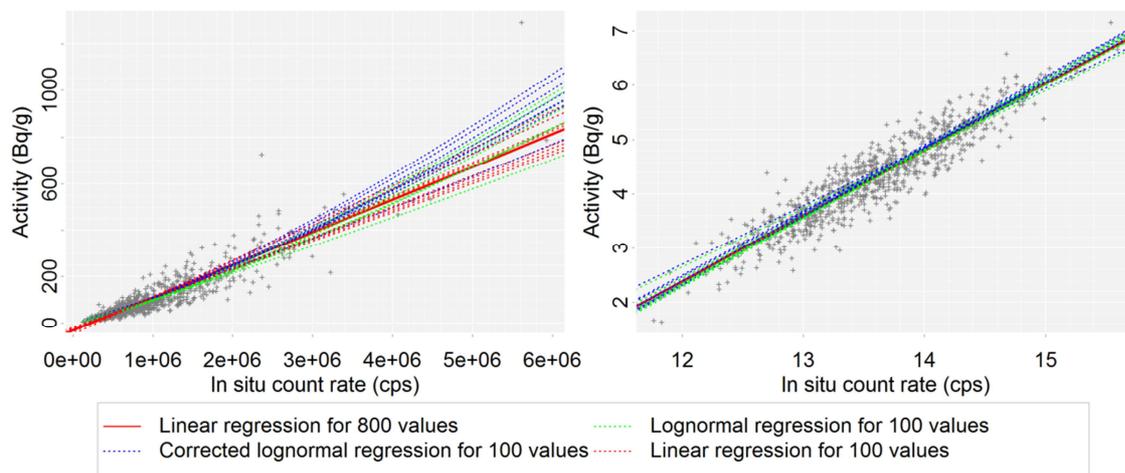
- African Institute of Mining and Metallurgy, Johannesburg [South Africa].
- Langlais, V., 1990. Estimation sous contraintes d'inégalités.
- Legout, C., Molenat, J., Hamon, Y., 2009. Experimental and Modeling Investigation of Unsaturated Solute Transport with Water-Table Fluctuation. *Vadose Zo. J.* 8, 21. <https://doi.org/10.2136/vzj2007.0182>
- Levchuk, S., Kashparov, V., Van Meir, N., Ardois, C., Bugai, D., 2007. Migration of plutonium isotopes in aquifer from a trench with Chernobyl cleanup waste, in: *Migration 2007*. München, p. 224.
- Levchuk, S., Yoschenko, V., Kashparov, V., Van Meir, N., Ardois, C., Bugai, D., 2009. Phenomenon of a Fast Migration of Plutonium Radioisotopes in Ground Water: Colloids or Soluble Form?, in: Oughton, D.H., Kashparov, V. (Éd.), *Radioactive Particles in the Environment*. Springer Netherlands, Dordrecht, p. 157-167. https://doi.org/10.1007/978-90-481-2949-2_9
- Mamadou, W., 2007. Modélisation du transport du 90Sr dans l'aquifère du Site Pilote de Tchernobyl - Rapport de stage de fin d'études de Master Professionnel Simulation Numérique en Dynamique des Fluides et des Transferts.
- Martin-Garin, A., Van Meir, N., Simonucci, C., Kashparov, V., 2012. Quantitative assessment of radionuclide migration from near-surface radioactive waste burial sites: the waste dumps in the Chernobyl exclusion zone as an example. , in: Poinssot, C., Geckeis, H. (Éd.), *Radionuclide behaviour in the natural environment: science, implications and lessons for the nuclear industry*. p. 570-600.
- Matheron, G., 1959. Le rayon équivalent de radiocarottage. Fontainebleau.
- Matheron, G., 1970. La théorie des variables régionalisées, et ses applications, Les cahier. ed. Ecole Nationale Supérieure des Mines de Paris, Fontainebleau.
- Matheron, G., 1973. The intrinsic random functions and their applications. *Adv. Appl. Probab.* 5, 439-468.
- Matheron, G., 1974. Effet proportionnel et lognormalité ou: le retour du serpent de mer. Centre de Géostatistique, Fontainebleau, France.
- Matoshko, A., 2002. Investigations of Chernobyl pilot site and Prypiat Zaton by means of ground-penetrating radar with the aim of geological and hydrogeological characterization. Institute of Geological Sciences, Kiev.
- Matoshko, A., Bugai, D., Dewière, L., Skalsky, A., 2004. Sedimentological study of the Chernobyl NPP site to schematise radionuclide migration conditions. *Environ. Geol.* 46, 820-830. <https://doi.org/10.1007/s00254-004-1067-3>
- Mazet, P., 2008. Influence des écoulements transitoires sur la mobilité du strontium dans les sols partiellement saturés en eau.
- McCain, R.G., Henwood, P.D., Pope, A.D., Pearson 2439 Robertson Drive, Richland, WA 99354 (United States)], A.W. [S M.S.C., 2013. Borehole Calibration Facilities to Support Gamma Logging for Hanford Subsurface Investigation and Contaminant Monitoring - 13516. United States.
- Mwenifumbo, C.J., Mwenifumbo, A.L., 2013. Geophysical logging methods for uranium geology and exploration Geological Survey of Canada Technical Note 4. <https://doi.org/10.4095/292248>
- OECD & NEA, 2014. R&D and Innovation Needs for Decommissioning Nuclear Facilities.
- Panza, F., 2012. Développement de la spectrométrie gamma in situ pour la cartographie de site.
- Péres, J.-M., 2006. Mémo sur la gestion des déchets en Ukraine, Biélorussie et Russie suite à l'accident de Tchernobyl. IRSN/DEI/SARG.
- Ramsey, M.H., Boon, K.A., 2012. Can in situ geochemical measurements be more fit-for-purpose than those made ex situ? *Appl. Geochemistry* 27, 969-976. <https://doi.org/https://doi.org/10.1016/j.apgeochem.2011.05.022>
- Rivoirard, J., 1995. Concepts et méthodes de la géostatistique. Centre de géostatistique, Ecole nationale supérieure des mines de Paris.
- Rivoirard, J., Demange, C., Freulon, X., Lécureuil, A., Bellot, N., 2013. A Top-Cut Model for Deposits with Heavy-Tailed Grade Distribution. *Math. Geosci.* 45, 967-982. <https://doi.org/10.1007/s11004-012-9401-x>
- Rohay, V.J., Henwood, P., McCain, R., 2009. In-Situ Assay Of Transuranic Radionuclides In The Vadose Zone Using High-Resolution Spectral Gamma Logging - A Hanford Case Study.
- Roux, C., 2011. Etude des mécanismes de transfert des radionucléides dans la nappe phréatique en aval de la fosse T22 du site expérimental de l'IRSN à Tchernobyl. Contraintes aux modèles hydrogéologiques sur des intervalles de temps compris entre l'actuel et 50 ans. *Rapp. IRSN*.

- Roux, C., 2013. Etude des mécanismes de transfert des radionucléides en aval de la fosse T22 du site expérimental de Tchernobyl.
- Sagnard, F., Rejiba, F., 2010. Géoradar Principes et applications. Tech. l'ingénieur Appl. radars base docum.
- Saporta, G., 2006. Probabilités, analyse des données et statistique. <https://doi.org/www.editionstechnip.com>
- Saprykin, V., Bugai, D.A., Skalskyi, A.S., Dzhepo, S.P., Van Meir, N., Kubko, Y., Simonucci, C., 2011. The infiltration recharge regime to groundwater at the Chernobyl « Red Forest » site, in: Збірник наукових праць інституту геологічних наук нан україни. вип. 4. 2011. p. 137-147.
- Saprykin, V.Y., Bugai, D., Skalskyi, O.S., Kubko, Y., 2015. Method for groundwater recharge and specific yield coefficient estimation for sandy soils using water table fluctuations analysis. *Geol. J.* 1, 88-98.
- Shestopalov, V., Gudzenko, V., 2002. Characterization of the Chernobyl disaster, in: Vyacheslav Shestopalov, N.A. of S.U. (Éd.), Chernobyl disaster and groundwater. A.A. Balkema Publisher .
- Shestopalov, V.M., Shestopalov, V., 2002. Chernobyl disaster and groundwater. A.A. Balkema, Lisse [Netherlands]; Abingdon; Exton, PA; Tokyo.
- Smith, J.T., Beresford, N.A., 2005. Chernobyl - Catastrophe and Consequences, Springer Praxis Books. Springer Berlin Heidelberg. <https://doi.org/10.1007/3-540-28079-0>
- Stromswold, D.C., 1994. Calibration facilities at Hanford for gamma-ray and fission-neutron well logging. United States. <https://doi.org/10.2172/10169983>
- Szenknect, S., 2003. Transfert de radioéléments en zone non saturée. Etude expérimentale et modélisation appliquées au Site Pilote de Tchernobyl.
- Szenknect, S., Ardois, C., Gaudet, J.P., Barthes, V., 2005. Reactive transport of ⁸⁵Sr in a chernobyl sand column: static and dynamic experiments and modeling. *J Contam Hydrol* 76, 139-165. <https://doi.org/10.1016/j.jconhyd.2004.08.003>
- Thiry, Y., Colle, C., Yoschenko, V., Levchuk, S., Van Hees, M., Hurtevent, P., Kashparov, V., 2009. Impact of Scots pine (*Pinus sylvestris* L.) plantings on long term ¹³⁷Cs and ⁹⁰Sr recycling from a waste burial site in the Chernobyl Red Forest. *J. Environ. Radioact.* 100, 1062-1068. <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2009.05.003>
- Thompson, S., Rodriguez, R., Billock, P., Lit, P., 2013. A Case Study Correlating Innovative Gamma Ray Scanning Detection Systems Data to Surface Soil Gamma Spectrometry Results - 13580, in: WM2013 Conference.
- Tyler, A.N., Sanderson, D.C.W., Scott, E.M., Allyson, J.D., 1996. Accounting for spatial variability and fields of view in environmental gamma ray spectrometry. *J Env. Radioact* 33, 213-235. [https://doi.org/http://dx.doi.org/10.1016/0265-931X\(95\)00097-T](https://doi.org/http://dx.doi.org/10.1016/0265-931X(95)00097-T)
- Van Meir, N., Ardois, C., Bugai, D., Kashparov, V., Levchuk, S., Yoshchenko, V.I., 2007. Water level fluctuations as a contributing factor to ⁹⁰Sr release from a shallow waste trench at the Chernobyl Pilot Site, in: Migration.
- Van Meir, N., Bugai, D., Kashparov, V., 2009. The Experimental Platform in Chernobyl: An International Research Polygon in the Exclusion Zone for Soil and Groundwater Contamination, in: Radioactive Particles in the Environment. p. 197-208. https://doi.org/10.1007/978-90-481-2949-2_13
- Van Meir, N., Gaudet, J.P., Phrommavanh, V., Laurent, J.P., Bugai, D., Biron, R., 2012. Flow in the unsaturated zone around a shallow subsurface radioactive waste trench: Interpretation of an infiltration-drainage test at the Chernobyl Pilot Site. *Appl. Geochemistry* 27, 1297-1303. <https://doi.org/http://dx.doi.org/10.1016/j.apgeochem.2011.08.009>
- Wackernagel, H., 1995. Multivariate Geostatistics: an introduction with applications. Springer, Berlin, Heidelberg, New York, Barcelona, Budapest, Hong Kong, London, Milan, Paris, Santa Clara, Singapur, Tokyo.
- Weng, P., 2000. Fonctionnement hydrologique d'une zone humide alluviale, relations avec l'aquifère sous-jacent et les rivières. Exemple de la Seine moyenne. Université de Paris 6.
- Xu, M., Eckstein, Y., 1995. Use of Weighted Least-Squares Method in Evaluation of the Relationship Between Dispersivity and Field Scale. *Groundwater*. <https://doi.org/10.1111/j.1745-6584.1995.tb00035.x>

ANNEXES

ANNEXE CHAPITRE 2

Beam of regression lines for 8 sets of 100 simulations and corrected lines according to Krige's formula :



ANNEXES CHAPITRE 3

Estimation des limites de la tranchée

Caractéristiques des variogrammes expérimentaux directionnels :

Variables	Cotes de l'activité					Cotes du géoradar				
	Toute	N0	N30	N90	N120	Toute	N0	N30	N90	N120
Pas (m)	5	1	1	5	5	1	1	1	1	3
Nombre de pas	10	20	10	20	12	50	20	20	20	20
Tolérance du pas (m)	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5
Tolérance de l'angle (°)	-	5	5	5	5	-	0.5	1	0.5	0.5

Nug : Effet de pépite - Exp : exponentiel - Sph : sphérique - Gaus : gaussien - Lin : linéaire - Pow : Puissance

Caractéristiques des modèles structuraux monovariés pour les cotes de l'activité et résultats de la validation croisée :

Modèle	Nug + Sph + Lin			Nug + Sph			Nug + Sph + Exp			Nug + Exp + Lin			Nug + Exp	
Palier	0.01	0.4	0.2	0.01	0.6	0.01	0.6	0.07	0.01	0.4	0.3	0.01	0.7	
Portée X (m)		40	85		55		65	40		70	85		110	
Portée Y (m)		1	85		2.5		2.5	10		1	85		3	
Coefficient de corrélation entre valeurs brutes et valeurs estimées	0.87			0.85			0.86			0.86			0.84	
Moyenne de l'erreur d'estimation standardisée	0.18			0.51			0.29			0.20			0.44	

Nug : Effet de pépite - Exp : exponentiel - Sph : sphérique - Gaus : gaussien - Lin : linéaire - Pow : Puissance

Caractéristiques des modèles structuraux monovariés pour les cotes du géoradar et résultats de la validation croisée :

Modèle	Nug + Sph + Lin			Nug + Sph		Nug + Sph + Exp		
Palier	0.01	0.5	0.03	0.01	0.5	0.01	0.5	0.3
Portée X (m)		11.5	10		11		12.5	150
Portée Y (m)		2.5	10		2.5		5	5
Coefficient de corrélation entre valeurs brutes et valeurs estimées	0.29			0.29		0.38		
Moyenne de l'erreur d'estimation standardisée	-0.29			-0.31		-0.25		

Caractéristiques du modèle linéaire de corégionalisation et résultats de la validation croisée pour la covariance croisée :

Modèle	Nug +	Sph	Nug +	Exp
Palier	0.01	0.3	0.025	0.2
Portée X (m)		5		5
Portée Y (m)		47		47
Coefficient de corrélation entre valeurs brutes et valeurs estimées	0.81		0.82	
Moyenne de l'erreur d'estimation standardisée	0.06		0.05	

Nug : Effet de pépite - Exp : exponentiel - Sph : sphérique - Gaus : gaussien - Lin : linéaire - Pow : Puissance

Caractéristiques des modèles structuraux non-stationnaire monovarié pour les cotes de l'activité et résultats de la validation croisée :

Voisinage	Unique FAI (1 x y x ² xy y ²)							Glissant FAI-1 (1 x y)
	Pow +	Exp +	Sph	Exp +	Exp +	Lin	Exp	
Palier	14.03	0.04	0.42	0.3	0.01	0.03	0.33	0.65
Portée U (m)	9	200	12	50	9	9	40	190
Portée V (m)	9	2	2.5	2	9	9	2	2
Coefficient de corrélation entre valeurs brutes et valeurs estimées	0.74			0.73			0.72	0.81
Moyenne de l'erreur d'estimation standardisée	0.04			0.03			0.03	0.69

Nug : Effet de pépite - Exp : exponentiel - Sph : sphérique - Gaus : gaussien - Lin : linéaire - Pow : Puissance

Estimation du stock de la tranchée

Caractéristiques des variogrammes expérimentaux des données d'activité convertie :

Caractéristiques	X	Y	Z	XY12	XY22	ZY1	ZY2	ZX1	ZX2
Azimuth (°)	90	180	0	75	105	0	0	90	90
Dip (°)	0	0	90	0	0	90	90	90	90
Pitch (°)	0	0	90	0	0	30	150	10	170
Tolérance angulaire (°)	2	2	1	1	1	1.5	1.5	2	2
Pas (m)	5	1	0.1	5	5	1.5	1.5	5	5
Nombre de pas	12	10	15	8	8	4	4	5	5
Tolérance sur la distance (m)	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5
Slicing height	0.05	0.05	-	0.05	0.05	-	-	-	-

Modèles structuraux retenus pour les données d'activité convertie et résultats de la validation croisée pour le meilleur voisinage :

Modèle	Nug +	Gaus +	Sph +	Sph	Nug +	Gaus +	Sph +	Lin
Palier	1000	11000	21500	1800	1000	15000	13000	8000
Portée X (m)		3	20	80		3	20	60
Portée Y (m)		1	8	30		1	6	20
Portée Z (m)		0.5	0.7	1		0.5	0.5	1.5
Voisinage	X:40 m ; Y:10 m ; Z:2 m				X:40 m ; Y:10 m ; Z:2 m			
Coefficient de corrélation	Sans zéro		Avec zéros		Sans zéro		Avec zéros	
	0.689		0.730		0.680		0.719	
Moyenne de l'erreur d'estimation standardisée	0.08		-0.19		0.04		-0.24	

Modèle	Nug +	Gaus +	Sph +	Exp	Nug +	Exp	Nug +	Sph
Palier	1000	18000	7000	8000	10000	29000	15000	24000
Portée X (m)		2	20	60		30		29
Portée Y (m)		1	6	20		9		7.5
Portée Z (m)		0.5	0.5	1.5		1.15		1
Voisinage	X:40 m ; Y:10 m ; Z:2 m				X:32 m ; Y:10 m ; Z:1.5 m		X:30 m ; Y:10 m ; Z:1.5 m	
Coefficient de corrélation	Sans zéro		Avec zéros		Sans zéro		Avec zéros	
	0.670		0.714		0.700		0.741	
Moyenne de l'erreur d'estimation standardisée	0.03		-0.26		0.11		-0.04	

Erreur standardisée : $(Z^*-Z)/\sigma_k$

Modèles structuraux retenus pour les données d'activité convertie et résultats de la validation croisée pour le meilleur voisinage :

Modèle	Nug +	Cub +	Sph +	Lin	Nug +	Gaus +	Sph +	Sph
Palier	1000	14000	15000	8000	1000	12500	16000	10000
Portée X (m)		3	20	60		2	25	80
Portée Y (m)		1.5	6	8		1	8	8
Portée Z (m)		0.7	0.7	1.5		0.7	0.7	0.7
Voisinage	X:25 m ; Y:10 m ; Z:1.5 m				X:40 m ; Y:10 m ; Z:1 m			
Coefficient de corrélation	Sans zéro		Avec zéros		Sans zéro		Avec zéros	
	0.693		0.727		0.726		0.726	
Moyenne de l'erreur d'estimation standardisée	0.05		-0.20		-0.25		-0.25	

Erreur standardisée : $(Z^*-Z)/\sigma_k$

Simulations

Calcul du volume en m³ de la tranchée selon différents seuils et selon différentes limites de la tranchée :

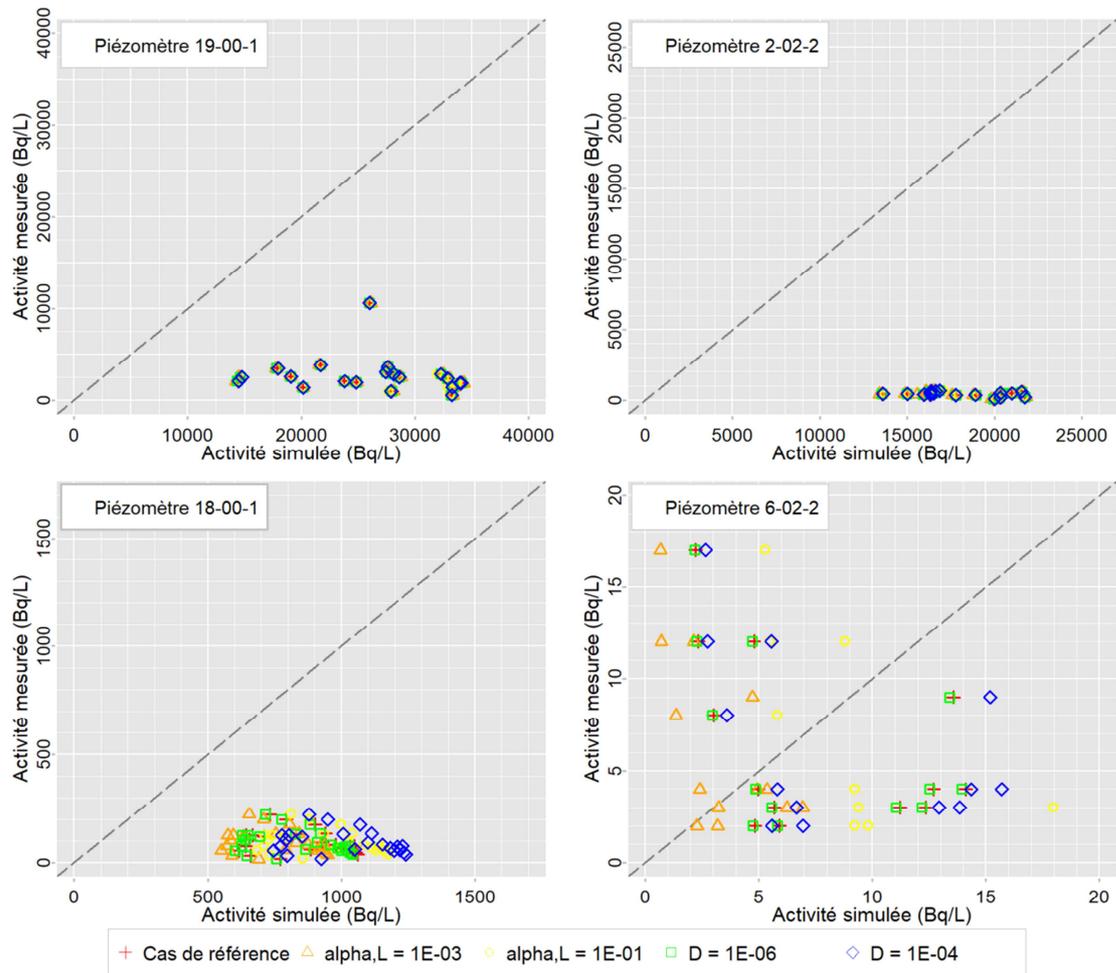
Simulations								
Limites	Seuil (kBq/kg)	0	1	10	20	50	70	100
Avec limites	P5	2015	1977	1832	1765	1611	1528	1413
	P50	2015	1986	1858	1795	1647	1564	1452
	P95	2015	1992	1875	1818	1681	1601	1492
Avec limites + 2σK	P5	2811	2510	2152	2024	1777	1657	1514
	P50	2811	2540	2202	2082	1842	1721	1574
	P95	2811	2570	2238	2121	1886	1771	1627
Avec limites - 2σK	P5	1290	1277	1223	1198	1131	1093	1036
	P50	1290	1280	1231	1207	1145	1106	1050
	P95	1290	1283	1237	1214	1154	1117	1062
Sans limite	P5	7601	4326	3103	2812	2331	2127	1897
	P50	7601	4590	3285	1124	2489	2273	2031
	P95	7601	4845	3469	1219	2653	2437	2182
Estimation								
Limites	Seuil (kBq/kg)	0	1	10	20	50	70	100
Sans limite	Estimation	4006	3966	3549	3148	2393	2156	1895
	Estimation + 2σK	4574	4574	4574	4574	4574	4574	4566
	Estimation - 2σK	1268	1264	1223	1180	1050	959	826
Avec limites	Estimation	1770	1770	1765	1757	1708	1652	1559
	Estimation + 2σK	1772	1772	1772	1772	1772	1772	1771
	Estimation - 2σK	1494	1488	1436	1369	1130	959	711
	Estimation + 2σK (effet proportionnel)	1681	1681	1650	1677	1665	1646	1609
	Estimation - 2σK (effet proportionnel)	1494	1488	1436	1369	1130	959	711
Avec limites + 2σK	Estimation	2703	2384	2343	2282	2106	1983	1797
	Estimation + 2σK	2453	2453	2453	2453	2453	2453	2452
	Estimation - 2σK	1249	1246	1207	1166	1039	952	821
Avec limites - 2σK	Estimation	1290	1290	1289	1288	1264	1233	1180
	Estimation + 2σK	1290	1290	1290	1290	1290	1290	1289
	Estimation - 2σK	957	954	932	907	825	766	668

Calcul du stock en Cs-137 en GBq de la tranchée selon différents seuils et selon différentes limites de la tranchée :

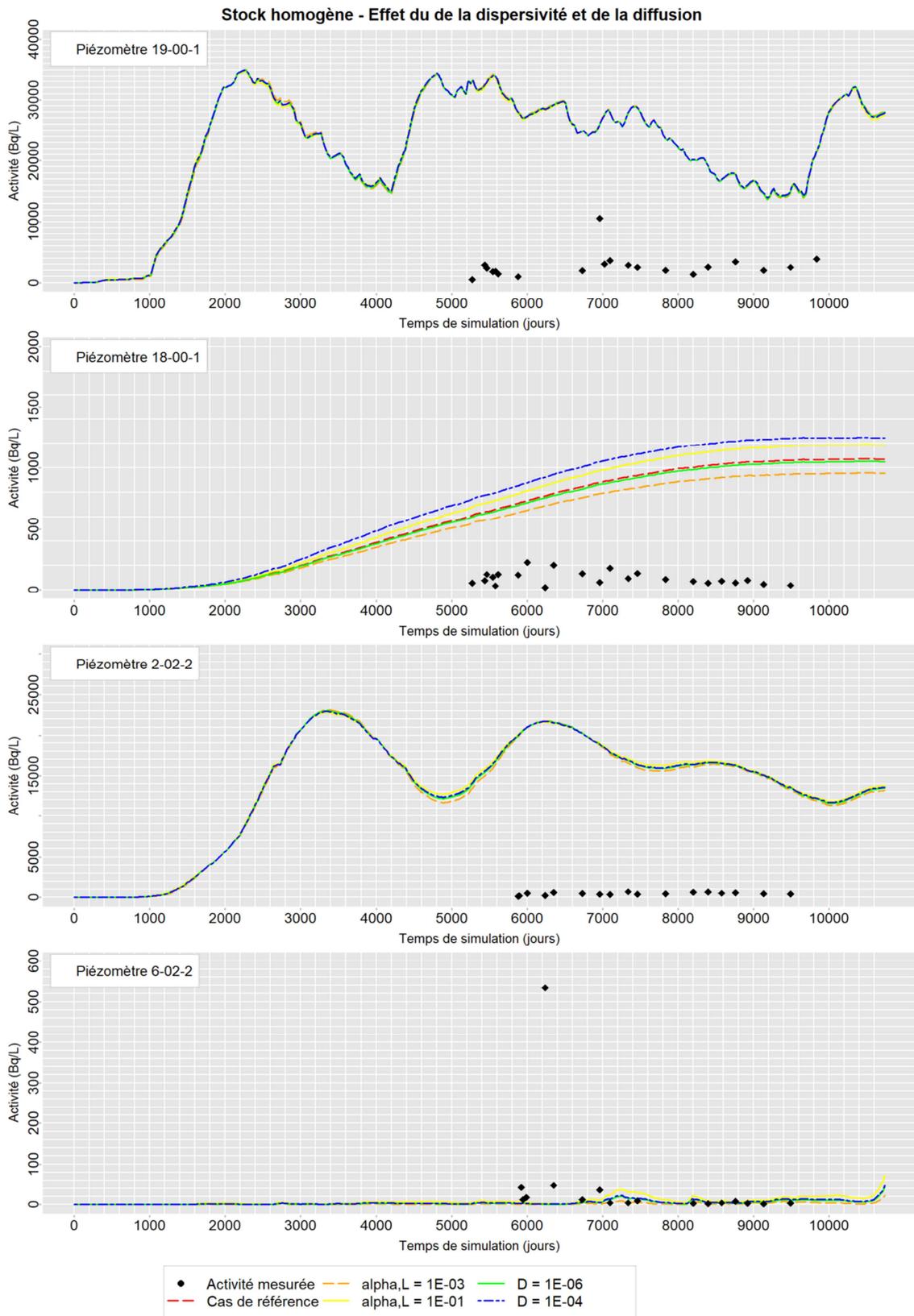
Simulations								
Limites	Seuil (kBq/kg)	0	1	10	20	50	70	100
Avec limites	P5	806	805	804	802	794	786	772
	P50	833	833	832	831	823	815	800
	P95	856	856	855	854	847	839	824
Avec limites + 2σK	P5	860	860	858	855	841	829	810
	P50	892	892	890	887	873	862	843
	P95	924	923	922	919	906	895	876
Avec limites - 2σK	P5	603	603	603	602	598	595	587
	P50	617	617	617	616	613	609	601
	P95	628	628	628	627	624	620	613
Sans limite	P5	1066	1068	1057	1049	1023	1003	972
	P50	1140	1139	1131	1124	1098	1077	1045
	P95	1234	1233	1226	1219	1192	1171	1137
Estimation								
Limites	Seuil (kBq/kg)	0	1	10	20	50	70	100
Sans limite	Estimation	996	996	992	983	944	921	886
	Estimation + 2σK	2635	2635	2635	2635	2635	2635	2634
	Estimation - 2σK	339	339	338	337	330	321	303
Avec limites	Estimation	801	801	801	801	798	792	780
	Estimation + 2σK	1359	1359	1359	1359	1359	1359	1359
	Estimation - 2σK	265	265	265	263	249	233	199
	Estimation + 2σK (effet proportionnel)	1285	1285	1285	1285	1284	1282	1277
	Estimation - 2σK (effet proportionnel)	265	265	265	263	249	233	199
Avec limites + 2σK	Estimation	906	906	905	904	894	882	857
	Estimation + 2σK	1731	1731	1731	1731	1731	1731	1731
	Estimation - 2σK	336	336	336	335	328	319	302
Avec limites - 2σK	Estimation	620	620	620	620	619	616	609
	Estimation + 2σK	1011	1011	1011	1011	1011	1011	1011
	Estimation - 2σK	270	270	270	269	264	259	245

ANNEXES CHAPITRE 4

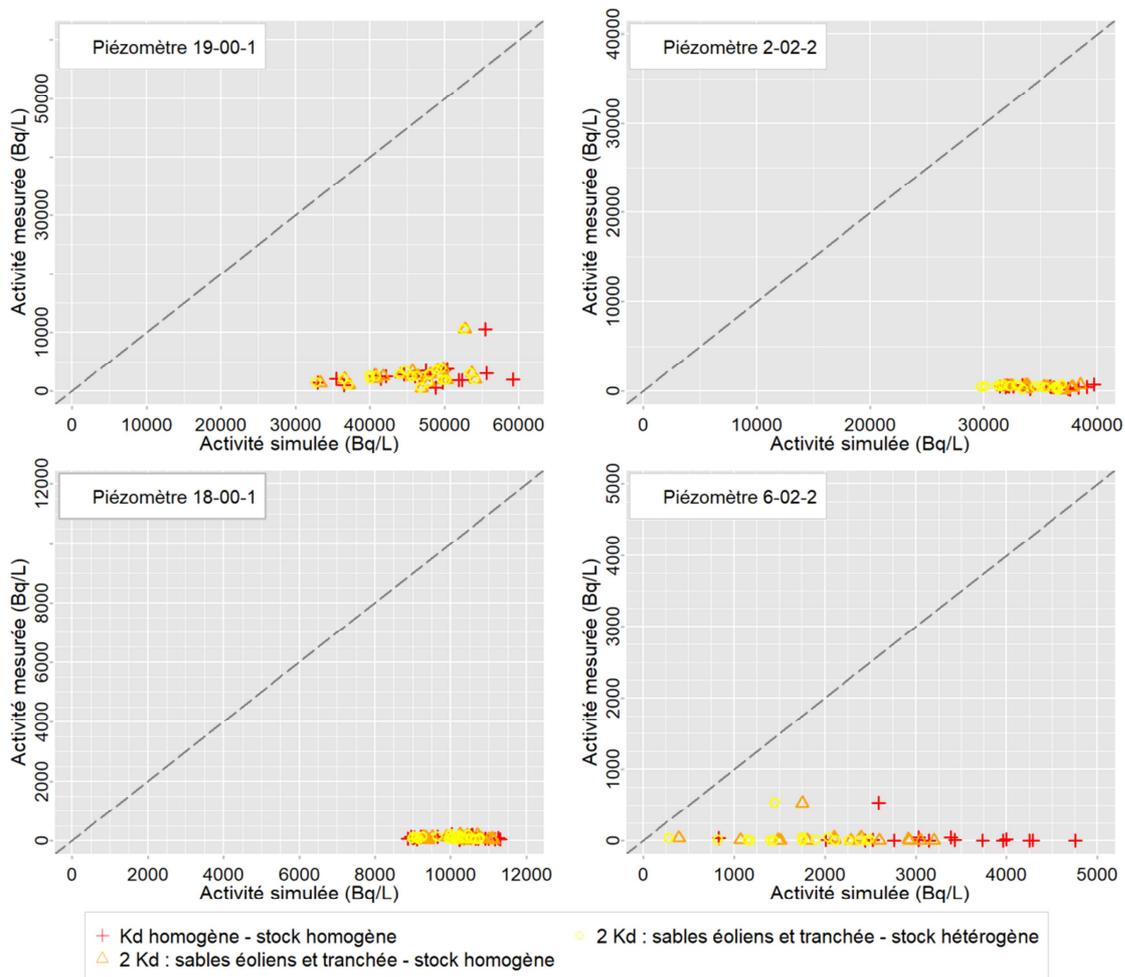
Influence de la concentration maximale admise dans les eaux souterraines - comparaison entre valeurs simulées et observées :



Influence de la dispersivité et de la diffusion - évolution temporelle de l'activité en 90Sr et comparaison entre valeurs simulées et observées :

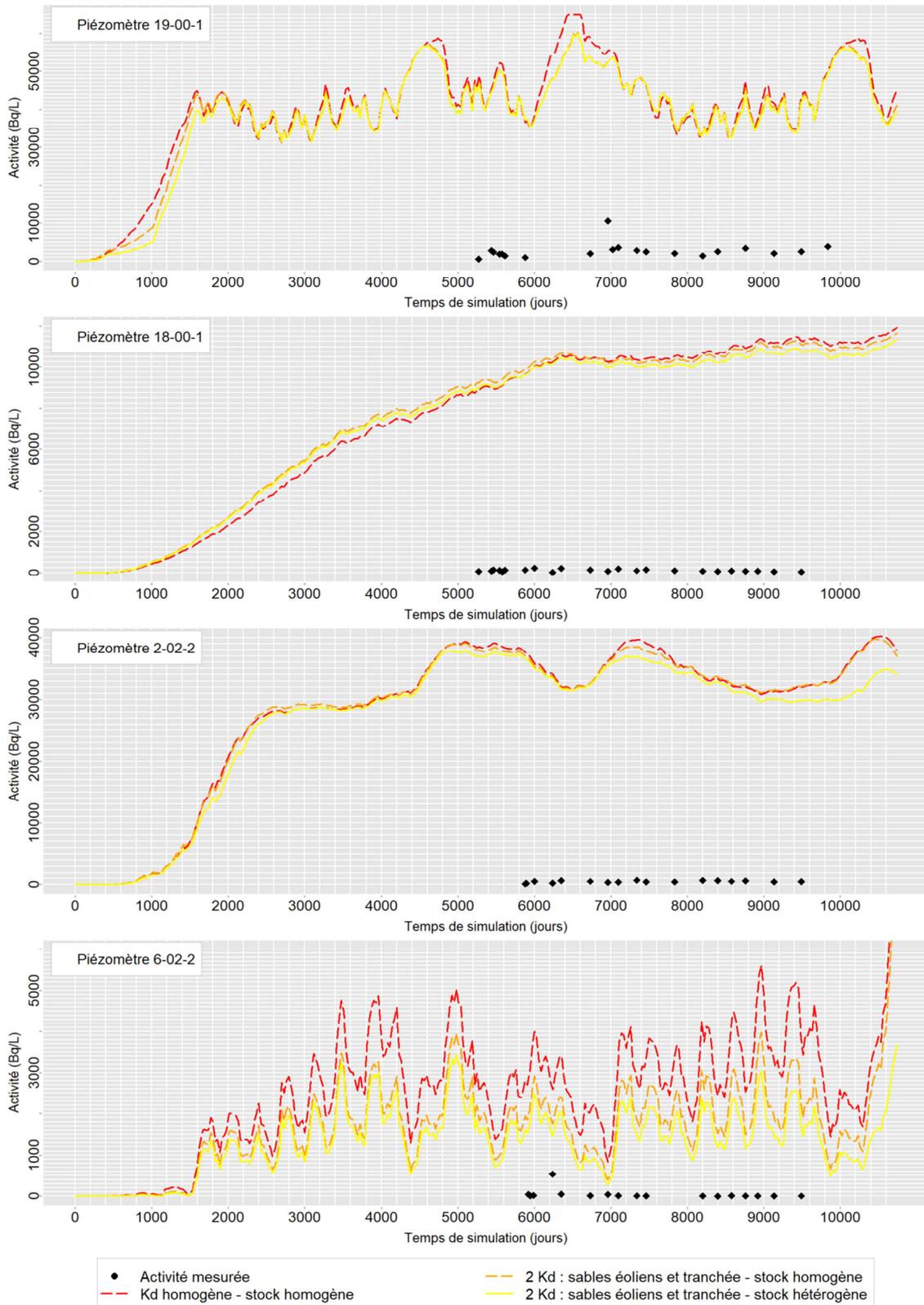


Influence d'un Kd différencié entre la tranchée et le sol - comparaison entre valeurs simulées et observées :



Influence d'un K_d différencié entre la tranchée et le sol - évolution temporelle de l'activité en ^{90}Sr et comparaison entre valeurs simulées et observées :

Stock homogène - Effet d'e la recharge'un K_d différencié dans la tranchée et le sol



Résumé

Après l'accident de la centrale de Tchernobyl, environ 800 tranchées peu profondes ont été creusées dans la zone d'exclusion afin d'y enfouir des déchets radioactifs. Cependant, ces tranchées, construites dans des sables éoliens, ne constituent pas une barrière efficace contre la migration des radionucléides dans l'aquifère superficiel. La tranchée T22 sert de support pour étudier des questions générales : quelles sont les incertitudes sur le volume et l'activité des déchets contaminés, et sur la qualité des eaux en aval ?

Les estimations antérieures de l'inventaire de la tranchée supposent linéaire la corrélation entre l'activité spécifique mesurée sur des échantillons de sol et le taux de comptage gamma in situ. Des simulations géostatistiques sont utilisées pour étudier cette corrélation, et sa sensibilité à la variabilité spatiale de l'activité ainsi qu'au milieu environnant. Si la corrélation peut effectivement être supposée linéaire, l'étude des données d'une campagne de terrain menée en septembre 2015 montre qu'il est préférable de cokriger l'activité par le comptage radiométrique plutôt que de transformer les données de comptage.

L'inventaire en ^{137}Cs présent dans la tranchée en 1999 est révisé ici puis comparé à une estimation antérieure. La profondeur de la tranchée est interpolée en utilisant conjointement les résultats de profils géoradar, et des données de sondages radiométriques forés dans la tranchée. Les résultats de cette nouvelle analyse géostatistique, complétée par des simulations, ont permis de quantifier l'incertitude sur le stock de ^{137}Cs dans la tranchée.

Enfin, un modèle hydrogéologique 2D non saturé est construit afin d'évaluer l'effet de la variabilité spatiale du terme source sur le panache de ^{90}Sr généré par la tranchée T22. Ce modèle simule par ailleurs le battement de la nappe qui pourrait expliquer les différences observées entre les modèles antérieurs et les observations. Une analyse de sensibilité est conduite en dernier lieu afin d'évaluer l'influence des différents paramètres d'écoulement et de transport sur les chroniques de concentrations en ^{90}Sr simulées au cours du temps.

Mots Clés

Incertitudes, Corrélation, Taux de comptage, Estimation, Transport, Césium Strontium

Abstract

Following the explosion at the Chernobyl nuclear power plant, about 800 shallow trenches were dug to bury radioactive waste in the exclusion zone. However, these trenches were built in permeable aeolian sand and do not prevent the migration of radionuclides in the superficial aquifer. Trench T22 allows us to explore general research problems such as the uncertainty linked to the volume and the activity of radioactive waste, and to the water quality in groundwater downstream the trench.

Previous estimations of the trench inventory assume that the correlation between activity concentration measured in soil samples and in situ count rate is linear. Geostatistical simulations are used to analyze this correlation and its sensitivity to the activity spatial variability and to its surrounding environment. If the correlation can be considered as linear, the study of field measurements undertaken in 2015 demonstrates that it is better to apply cokriging to estimate the activity by the count rate rather than transforming the count rate data.

The inventory of ^{137}Cs calculated for 1999 is then compared to a previous estimation. The trench boundaries are interpolated using the results of ground penetrating radar profiles and gamma logging carried on boreholes drilled into the trench. The new estimation is completed by geostatistical simulations and enables us to quantify the uncertainty of ^{137}Cs trench inventory.

Finally, the effect of the source term spatial variability is explored with the ^{90}Sr migration modeling. The previous ^{90}Sr transport model did not take into account the water table fluctuations which may cause some discrepancies between model predictions and field observations. They are thus reproduced in a 2D non saturated model. A sensitivity analysis on the flow and transport parameters as well as the source term variability is undertaken.

Keywords

Uncertainties, Correlation, Count rate, Estimation, Transport, Cesium Strontium