

UNIVERSITE DE FRANCHE-COMTE

U.F.R DES SCIENCES ET TECHNIQUES

Ecole doctorale Homme, Environnement, Santé

Laboratoire de Chrono-Environnement (UMR 6249
UFC/CNRS UsC INRA)

THESE

Présentée en vue de l'obtention du grade de

DOCTEUR DE L'UNIVERSITE DE FRANCHE-COMTE

Spécialité: Sciences de la Vie et de l'Environnement

*Etude de la distribution spatiale du radiocésium (^{137}Cs) à
l'échelle d'un bassin versant: exemple du bassin versant du
Doubs supérieur à l'amont du lac Saint-Point*

Par

PIMOU HEUMOU GUY ISIDORE

Soutenue le 15 décembre 2010 devant la commission d'examen :

Directeur de thèse: P.-M. BADOT, Professeur, Université de
Franche-Comté

Rapporteurs: D. LAFFRAY, Professeur, Université Paris XII Val
de Marne

L. POURCELOT, HDR, Institut de Radioprotection
et de Sureté Nucléaire

Examineur: F. DEGIORGI, PAST, Université de Franche-Comté

Remerciements

Je tiens tout particulièrement à remercier le Professeur P-M. BADOT, directeur de cette thèse pour son accueil au sein du laboratoire ainsi qu'au Docteur E. LUCOT. Leur disponibilité, conseils et expérience dans divers domaines ont eu une grande importance dans la réalisation de ce travail, malgré leur emploi du temps respectif hyper chargé.

Je remercie très fortement le Docteur Marc BRIOT dont l'aide m'a été indispensable dans le domaine de la cartographie avec l'utilisation du logiciel Mapinfo dont j'ignorais jusqu'à l'existence avant le début de la thèse. Il a su se montrer très compréhensif et très patient devant mes multiples sollicitations. Merci à Jean-Claude MONNET avec qui j'ai partagé le bureau pendant toutes ces années pour son écoute et ses conseils. Merci également à Samuel MAAS pour ses coups de main.

Je remercie également Nadia CRINI pour sa patience, sa compréhension et sa gentillesse et qui m'a fait bénéficier de ses compétences techniques

(dosage des échantillons au spectromètre gamma). Je remercie également les secrétaires du laboratoire, Brigitte JOLIBOIS et Françoise GUALDI pour leur aide. Je n'oublie pas tous les thésards, anciens et nouveaux que j'ai côtoyé tout au long de cette thèse.

Je tiens à dire un grand et énorme MERCI à ma compagne, la nommée Carole AJAVON qui malgré l'éloignement à su me soutenir et me supporter pendant toutes ces années de thèse. Merci encore à toi Carole d'avoir fait de moi l'heureux papa de la petite Guy-Catiana PIMOU-AJAVON à qui je dédie ma thèse.

Résumé

Au cours du siècle précédent, de nombreuses activités anthropiques nucléaires, militaires et civiles ont introduit de quantités importantes des radioéléments artificiels dont le césium 137 dans l'environnement au niveau de l'atmosphère mais surtout au niveau du sol qui est un réservoir important du césium. Tout ceci a provoqué la contamination en éléments radioactifs de grandes surfaces à l'échelle de la planète, aucun continent n'a été épargné. Du fait de son analogie chimique avec le potassium, le césium est facilement transporté et transféré dans les écosystèmes et les propriétés physico-chimiques des sols modulent la forme et la distribution du césium dans les différents compartiments du sol.

L'objectif du présent travail est d'estimer et de décrire à l'échelle d'un bassin versant de petite taille, l'étendue de la variabilité de la contamination des sols par le ^{137}Cs dans le sol et de déterminer si un ou plusieurs facteurs environnementaux (altitude, teneur en matière organique du sol, mode d'occupation des sols) sont susceptibles d'expliquer tout ou partie de la variabilité observée.

Une des originalités de l'approche retenue pour la mise en place de la stratégie d'échantillonnage est d'avoir défini une stratégie basée sur le fonctionnement écologique du milieu à l'échelle du bassin versant (environ 300 km²). Cette stratégie s'appuie sur les caractéristiques fonctionnelles du milieu dont le substratum géologique, la topographie et le type d'occupation du sol. La stratégie d'échantillonnage développée dans le présent travail permet de tenir compte de l'hétérogénéité de la distribution spatiale du césium et de la variété écologique du bassin versant. Cette approche repose sur l'identification *a priori* d'unités fonctionnelles homogènes : 275 unités homogènes ont été ainsi déterminées.

L'analyse statistique des résultats de contamination a permis de mettre en évidence de très fortes hétérogénéités dans la contamination en césium des sols à 0-5 cm de profondeur sur l'ensemble du bassin versant. Cette hétérogénéité spatiale peut s'expliquer par l'hétérogénéité spatiale du devenir du césium après les retombées, variabilité liée au fonctionnement et aux propriétés des sols. Les sommets en tant que barrière orographique, occupés par de la végétation forestière, jouent un rôle important par leur capacité d'interception des poussières et d'aérosols. Ainsi, le mode d'occupation des sols a une importance réelle sur la distribution spatiale de la contamination et les teneurs en césium-137 les plus élevées sont à rechercher dans les sols à fort taux de matière organique. Un certain nombre de zones sensibles sont localisées dans les parties Sud et Sud-est du bassin versant.

Communication et publication

G.Pimou, P.M. Badot, E. Lucot. Distribution spatiale du radiocésium (^{137}Cs) dans les sols à l'échelle d'un bassin versant: exemple du Doubs supérieur en amont du Lac Saint-Point. Forum des Jeunes Chercheurs de l'Ecole Doctorale Homme, Environnement, Santé, 12-13 Juin 2008, Besançon, France (communication affichée).

G. Pimou-Heumou, E. Lucot, N. Crini, M. Briot, P.M. Badot. Variabilité spatiale des activités en césium-137 dans les sols d'un bassin versant du massif du Jura: étendue et principales sources de variation (Publication).

Sommaire

Liste des abréviations	9
Introduction	10
Chapitre I: Synthèse bibliographique	15
I-Origines et sources des contaminations radioactives des écosystèmes	15
I.1- Caractéristiques générales des retombées radioactives	19
I-2 Origine des retombées du ¹³⁷ Cs dans le haut Doubs	21
II- Caractéristiques physico-chimiques du ¹³⁷ Cs	23
III- Transfert du césium dans le système sol - plante des écosystèmes forestiers.....	24
III-1 Relation entre sol et ¹³⁷ Cs: adsorption et rétention du radiocésium par les constituants du sol	26
III-2 Migration verticale du ¹³⁷ Cs le long du profil	39
III-3 Modélisation du comportement du radiocésium dans le sol.....	42
IV- Variabilité spatiale des contaminations en radiocésium	45
V- Distribution spatiale des contaminations par le césium 137 dans les sols au sein des différentes régions naturelles de Franche-Comté (Thèse S.Lamarque)	48
Chapitre II: Matériels et méthodes	51
I – Description des caractéristiques environnementales du bassin versant du Doubs	51
I-1 Zone d'étude: bassin versant du Doubs supérieur.....	51
I-2 Données environnementales.....	52
II- Stratégie d'échantillonnage	56
III- Techniques d'échantillonnage du sol	62
IV- Mesures d'activités en radiocésium dans les échantillons de sol	63
IV-1 Préparation des échantillons	63
IV-2 Dosage de l'activité en césium	64
V- Analyses des caractéristiques de sols.....	65
V-1 pH: NF ISO 10390 (AFNOR, 1996); (Pansu &Gautheyrou, 2003)	65
V-2 Matière organique: NF ISO 10694 (ISO, 1995)	67
Chapitre III: Etude des variations de la teneur en ¹³⁷Cs dans les sols du bassin versant	68
I - Analyse de la distribution du radiocésium dans les sols au niveau du bassin versant	68
I-1 Typologie des sols du bassin versant	68
I-2 Représentation cartographique des activités massiques en ¹³⁷ Cs et des caractéristiques des sols du bassin versant.....	71
I-3 Distribution spatiale de l'activité surfacique en ¹³⁷ Cs à travers les différents compartiments du bassin versant	78
II- Résultats	88
III- Discussion.....	101

IV- Conclusions	104
-----------------------	-----

Chapitre IV: Etude des facteurs de variation par rapport à l'origine de la variabilité spatiale des activités en ¹³⁷Cs 106

I- Influence des caractéristiques environnementales sur la distribution spatiale des teneurs en césium au niveau du bassin versant	106
II- Exploration des corrélations entre les co-variables.....	108
III- Approche cartographique.....	119
III-1 Approche cartographique par krigeage.....	119
IV- Evaluation des risques radioécologiques.....	122

Conclusion générale et Perspectives 125

Bibliographie..... 128

Liste des abréviations

ACP: analyse en composantes principales

Bq: becquerel

BRGM: Bureau de Recherche Géologiques et Minières

CEC: capacité d'échange cationique

Cs: césium

FES: frayed exchange site (site d'échange spécifique)

GLM: Generalized Linear Model

IGN: Institut National Géographique

IRSN: Institut de Radioprotection et de Sureté Nucléaire

IPSN: Institut de Protection et de Sureté Nucléaire

RIP: radiocaesium interception potential (potentiel d'interception du césium)

SIG: système informatique géographique

Introduction

Les données disponibles dans la littérature scientifique montrent que l'intérêt pour l'étude du cycle biogéochimique des radionucléides, dans les écosystèmes naturels s'est développé de manière significative à partir des années 1960.

La connaissance du devenir de ces polluants radioactifs dans les écosystèmes constitue un enjeu écologique important: la compréhension des processus par lesquels ces éléments sont accumulés, distribués, échangés dans les différents compartiments d'un écosystème est un préalable indispensable à l'évaluation des risques qu'ils engendrent pour l'Homme et les milieux naturels.

Parmi les radionucléides artificiels répandus dans l'environnement, le césium 137 est l'un des plus préoccupants s'agissant de risques sanitaire et écologique.

Le césium appartient à la famille des métaux alcalins (Li, Na, K, Rb, Cs et Fr). Il est exclusivement d'origine artificielle. Son isotope ^{137}Cs est produit en grande quantité par la fission de l'uranium 235. Sa période radioactive relativement longue (30,17 ans) et ses propriétés chimiques proches de celles du rubidium et surtout du potassium font qu'il est facilement pris en charge dans les cycles biogéochimiques, facilement assimilable dans les systèmes biologiques et il contamine durablement les milieux pollués.

Les essais atmosphériques d'armes nucléaires représentent historiquement les premières contaminations radioactives artificielles de l'atmosphère et des systèmes écologiques. Les rejets dans l'environnement ont été considérablement réduits après l'interdiction en 1963 des essais nucléaires atmosphériques. L'utilisation d'explosifs nucléaires pour des travaux de génie civil, les rejets accidentels liés à l'industrie nucléaire civile ou militaire, les rejets autorisés aux différentes étapes de ces procédés industriels (production de combustible, d'armes, transports, production d'énergie, traitement et stockage des déchets) sont aujourd'hui les principales sources de

radioéléments artificiels dans l'environnement. En fonctionnement normal, la quantité de radionucléides artificiels rejetés dans l'environnement par ces activités serait actuellement plus faible que celle due aux émissions naturelles et aux essais d'armes nucléaires (Alexakin et al., 1990).

D'autres évènements ont été à l'origine de contaminations ayant une extension spatiale et temporelle moindre mais constituant une source de pollution radioactive importante. Parmi les accidents historiques les plus importants, on peut citer celui de Windscale (Grande Bretagne, 1957), Three-Mile-Island (Etats-Unis, 1979), l'explosion de Kyshtym (Oural Sud, URSS, 1957) mais aussi l'explosion de la centrale nucléaire de Tchernobyl le 26 avril 1986 qui a provoqué le rejet dans l'atmosphère de particules et de gaz radioactifs qui se sont déposés sur l'ensemble du continent européen et dans une moindre mesure dans l'ensemble de l'hémisphère nord. Le dépôt de ces polluants atmosphériques a provoqué une contamination en radioéléments de l'ensemble des systèmes écologiques concernés. L'intensité des retombées a été fonction des conditions météorologiques locales, des trajectoires des masses d'air et de leur contamination en éléments radioactifs.

Du fait de sa grande mobilité dans les environnements aqueux, sa large dispersion sous forme d'aérosols et de sa grande biodisponibilité, le césium se propage assez facilement le long des réseaux alimentaires et sa présence dans l'environnement occasionne des effets importants sur les écosystèmes non sans induire un certain nombre de risques aux populations. Le principal risque pour les populations exposées est l'ingestion solide. Lors de contaminations directes par le nuage radioactif, l'inhalation, l'irradiation externe et l'irradiation par voie liquide peuvent s'avérer importantes (I.A.E.A., 1994). Si on prend en exemple ce qui s'est produit après l'accident de Tchernobyl, on note que certains écosystèmes notamment forestiers dans des zones fortement contaminées ont été soumis à des irradiations avec comme conséquences d'importants effets tels que des anomalies de croissance, de développement (Alexakhin et al., 1990).

Dans le cycle du césium 137, il est admis que le sol en tant que support de la production végétale est le réservoir le plus important du radionucléide (Strebl et al., 1999, McGee et al., 2000). Son transfert et son devenir dans les réseaux trophiques et notamment les circuits agricoles, ont été largement étudiés en radioécologie (Coughtrey et al., 1983, Nisbet et al., 2000) contrairement à son comportement dans les écosystèmes naturels et semi naturels. A la rapide décroissance de la contamination dans la plupart des agrosystèmes, s'oppose la persistance et le recyclage du césium dans les systèmes naturels et semi-naturels qui compliquent son étude au demeurant essentielle (Myttenaere et al., 1993).

Les nombreuses recherches consacrées au cours des quarante dernières années à la distribution de la contamination radioactive et notamment celles consécutives à l'accident nucléaire de Tchernobyl en avril 1986 ont été réalisées sur des sites fortement ou très fortement contaminés notamment en Europe de l'Est. Plus récemment (Thèse de doctorat S. Lamarque, 2004), on a pu constater l'intérêt pour l'étude des variations de la distribution spatiale du césium dans les écosystèmes forestiers faiblement contaminés, qui ont été très peu étudiés malgré leur surface importante (Europe de l'Ouest et une grande partie du reste du monde) : il s'agit ici des études réalisées dans la région Franche-Comté, localisée dans l'Est de la France. En raison de sa situation géographique et de son relief, le Franche-Comté est l'une des régions françaises qui a été la plus exposée aux retombées radioactives. Renaud et al. (2003) ont établi que les dépôts consécutifs à l'accident de Tchernobyl survenue en avril 1986 sont de l'ordre de 10000 Bq.m^{-2} de césium-137 dans une large partie du massif du Jura avec des valeurs supérieures à 20000 Bq.m^{-2} dans certaines zones. Badot et al. (2004) rapportent quant à eux des contaminations surfaciques comprises entre 4 et 50000 Bq.m^{-2} avec des pics de contaminations localisées au sud-est de la zone dans un secteur compris entre Saint-Claude dans le Jura et Mouthe dans le Doubs.

La Franche-Comté est constituée d'une vingtaine de régions naturelles (entités géographiques écologiquement homogènes caractérisées par leur climat et leur géomorphologie). La Franche-Comté couvre une superficie de 16202 km^2 . Les résultats obtenus au cours de cette thèse (thèse Sophie Lamarque, 2004) ont permis de mettre en évidence l'hétérogénéité de la distribution spatiale de la contamination en césium 137 des sols à l'échelle régionale. Ces raisons ont motivé notre intérêt pour l'étude des variations de la distribution spatiale du césium dans les sols (agricoles et forestiers) à l'échelle d'un bassin versant, celui du Doubs en amont du Lac-Saint-Point, localisé à l'intérieur d'une région naturelle communément appelée «deuxième plateau» et couvrant une superficie d'environ 300 km^2 .

Pour une évaluation des risques potentiels, un des préalables fondamentaux réside dans la compréhension des transferts des polluants radioactifs entre les différents compartiments des écosystèmes rencontrés sur le bassin versant. Dans le cas des écosystèmes forestiers, ce sont les horizons minéraux des sols, litière, systèmes racinaires, organes aériens des végétaux, organismes animaux, population humaine, etc. Ces transferts sont liés à la structure et au fonctionnement de l'écosystème étudié et à son hétérogénéité spatiale, paramètres qui conditionnent les flux d'éléments radioactifs.

Objectifs

La majeure partie du bassin versant du Doubs en amont du Lac-Saint-Point, objet de notre étude, est occupée par la forêt qui recouvre les sommets. Dans les vallées, où sont installées la plupart des villages, les prairies "naturelles" prédominent. Le cadre naturel de la zone d'étude montre une grande diversité de ses milieux s'exprimant en particulier au niveau de la minéralogie de la roche mère, le contexte topographique (vallée, versant...) et la position topographique (haut, mi, bas de pente), les principaux types de sols et leurs propriétés physico-chimiques, du climat (précipitations en particulier), l'altitude, de la végétation et de la faune associées. Les forêts sont des milieux très complexes, où il est très difficile, à l'inverse des agrosystèmes, de contrôler les nombreux facteurs qui influencent la distribution spatiale des polluants radioactifs. Il est à noter que le devenir des radioéléments dans les écosystèmes forestiers reste mal connu. Aussi, les processus gouvernant l'accumulation du ^{137}Cs dans la végétation forestière sont encore mal identifiés.

Dans ce contexte, l'objectif du présent travail est double: il s'agit de décrire à l'échelle d'un bassin versant de petite taille, l'étendue de la variabilité de la contamination des sols par le césium-137 et de déterminer si un ou plusieurs facteurs environnementaux (altitude, teneur en matière organique du sol, mode d'occupation des sols) sont susceptibles d'expliquer toute ou partie de la variabilité observée. Le but ultime du travail exposé ici est de pouvoir disposer d'un outil crédible de prévention, savoir où le césium 137 est le plus susceptible de s'accumuler et où il pourra exercer en cas de contamination environnementale des effets nocifs pour les populations.

Dans le cadre de cette thèse, nous avons ainsi entrepris:

- d'étudier l'activité du ^{137}Cs dans les différents types de sols (forestiers et agricoles) grâce à la mise en place d'une cartographie de la contamination en radiocésium au niveau du sol, adaptée au territoire étudié, le bassin versant du Doubs en amont du lac-Saint-Point et d'apporter des éléments d'informations sur la nature et l'importance des facteurs gouvernant le devenir du ^{137}Cs dans ces écosystèmes. Dans le bassin du Doubs en amont du lac Saint-Point, deux modes principaux de mise en valeurs des sols coexistent et sont géographiquement intriqués: la forêt et la prairie permanente.

- d'étudier la variabilité spatiale de la contamination en césium 137 dans le sol à différentes échelles (de l'échelle locale, la station, à l'échelle territoriale, le bassin versant du Doubs supérieur) en fonction des caractéristiques édaphiques locales, environnementales de l'écosystème considéré.

Dans le but d'obtenir une qualité cartographique suffisante en rapport avec la surface (300 km²), 275 stations sélectionnées sur l'ensemble du bassin versant selon les caractéristiques du milieu naturel ont été retenues pour faire l'objet d'une description écologique et de prélèvements. Dans chaque site, des descriptions précises du type d'occupation de sol, du profil topographique et du type de sol ont été effectuées et les coordonnées géographiques exactes (± 5 m) ont été déterminées par satellite (*GPS: Global Positioning System*).

La première partie de la thèse est consacrée à une synthèse bibliographique concernant les processus de contamination, de migration et de transfert du ¹³⁷Cs dans les écosystèmes. La deuxième partie s'intéresse au matériel et méthodes utilisées. La troisième partie est dédiée à l'analyse et l'interprétation des résultats obtenus en mettant en relation la variabilité spatiale de la contamination en césium 137 avec les caractéristiques de sol. La dernière partie s'est appliquée, d'une part à l'interprétation statistique des résultats obtenus, d'autre part, à l'interpolation spatiale des activités en césium 137 sur l'ensemble du bassin versant.

CHAPITRE I: SYNTHÈSE BIBLIOGRAPHIQUE

I-Origines et sources des contaminations radioactives des écosystèmes

Des quantités importantes de radioéléments artificiels ont été introduits dans l'environnement au cours du siècle précédent et ont provoqué la contamination en éléments radioactifs de grandes surfaces à l'échelle de la planète, aucun continent n'a été épargné.

Les sources de contamination de ces radioéléments dans l'environnement sont diverses mais on peut citer principalement les essais d'armes nucléaires (atmosphériques et souterrains) et les activités industrielles liées à la production d'énergie nucléaire pouvant être à l'origine de contaminations accidentelles ou de rejets légaux. Les radioéléments artificiels présents dans l'environnement sont assez divers mais le césium 137 (^{137}Cs) est l'un des plus inquiétants en termes de risques environnemental et sanitaire. Si l'on considère les explosions nucléaires atmosphériques effectuées pendant la période 1945-1980, la quantité de ^{137}Cs libérée dans l'environnement est estimée à $1,5 \cdot 10^{18}$ Becquerel* et représente ainsi la première source de contamination environnementale pour cet élément (IRSN). Plusieurs centaines d'essais nucléaires atmosphériques ont été effectués par différentes nations, essentiellement les USA et l'ex URSS. De nombreux accidents nucléaires, peu médiatisés, y ont contribué. On peut citer entre autres l'accident de Kysthym en 1957 en Russie qui a libéré environ $4,4 \cdot 10^{13}$ Bq de ^{137}Cs , l'accident de Windscale en 1959 aux Etats-Unis qui a libéré $2,2 \cdot 10^{13}$ de ^{137}Cs .

La production d'électricité par la voie nucléaire est à l'origine de la deuxième source de ^{137}Cs dans l'environnement. Le coeur d'un réacteur de 1300 MWe contient en fin de cycle (environ 40 mois) environ $3 \cdot 10^{17}$ Bq de ^{137}Cs confinés à l'intérieur du combustible. En fonctionnement

normal, une faible fraction de ce césium se retrouve dans les effluents rejetés dans l'environnement. A titre indicatif en

1999, un réacteur nucléaire de 1300 MWe rejetait annuellement environ $1,3 \cdot 10^8$ Bq de ^{137}Cs en quasi totalité dans les effluents liquides.

Dans la production d'énergie nucléaire en fonctionnement normal, une petite quantité de césium se retrouve dans les effluents rejetés dans l'environnement, conséquence du cycle du combustible.

L'augmentation de la quantité de césium rejetée dans l'environnement s'est poursuivie après l'abandon des essais nucléaires atmosphériques à la fin des années 80.

L'accident de la centrale nucléaire de Tchernobyl reste sans conteste le fait marquant de la contamination en radioéléments au cours de ces 25 dernières années. Le 26 avril 1986, une succession d'erreurs humaines a provoqué l'entrée en fusion du réacteur n°4 de la centrale nucléaire de Tchernobyl. Le rejet dans l'environnement de radioéléments a été estimé à environ $3,7 \cdot 10^{18}$ Becquerel, avec principalement de l'iode 131, du baryum 140, du cérium 144 et 141, du rubidium 103 et 106, du strontium 89 et 90, du césium 137 et 134. Le césium 137 et le strontium 90 sont potentiellement les isotopes les plus dangereux du fait de leurs périodes radioactives* qui sont respectivement de 30,2 et 28 ans. L'une des caractéristiques de cet accident est la signature isotopique à l'émission ($^{137}\text{Cs}/^{134}\text{Cs} = 2,00 \pm 0,17$) [Tchernobyl, 14 ans après, IPSN].

Les masses d'air contaminées issues de Tchernobyl ont touché de nombreux pays en Europe. L'Autriche, les parties orientale et méridionale de la Suisse, certaines régions du sud de l'Allemagne et de la Scandinavie ont été les zones les plus touchées où le passage du nuage radioactif était couplé aux précipitations. Les pays du sud de l'Europe comme l'Espagne et le Portugal ont été les pays les moins touchés ($0,02 \text{ kBq} \cdot \text{m}^{-2}$ au Portugal, UNSCEAR 1998) alors que seule la partie Est de la France a été atteinte de manière notable ($2 \text{ à } 3 \text{ kBq} \cdot \text{m}^{-2}$). Les pays de l'Europe de l'Est ont également été touchés et Zhiyanski et al. (2005) indiquent par exemple des valeurs de l'ordre de $52 \text{ à } 81 \text{ Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$ pour les 0-5 cm de sol dans le massif de Rila en Bulgarie.

Les conditions climatiques prévalant les jours et les semaines après l'accident ont profondément conditionné la distribution spatiale des dépôts. Les événements pluvieux ont ainsi contribué à l'hétérogénéité des dépôts du radiocésium (Fowler et al., 1987).

Le dépôt à proximité du site de Tchernobyl a pu atteindre plusieurs $\text{MBq} \cdot \text{m}^{-2}$, alors qu'en Europe de l'ouest, le dépôt a été de quelque $\text{kBq} \cdot \text{m}^{-2}$. En France, la trajectoire du nuage, les conditions atmosphériques et le couvert végétal sont corrélés aux dépôts surfaciques qui s'étendent selon un gradient est-ouest. Selon l'IRSN (2003), les dépôts totaux moyens en césium sur les

surfaces agricoles vont de 120 Bq.m^{-2} dans l'ouest du pays à 3560 Bq.m^{-2} dans l'est où des valeurs peuvent dépasser localement 6000 Bq.m^{-2} . Les travaux de Badot et al. (2004) sur les activités du césium ont montré que les valeurs observées en Franche-Comté semblent en moyenne plus élevées (6 à 16 kBq.m^{-2}) que celles publiées par la Commission des Communautés Européennes ($2,4 \text{ kBq.m}^{-2}$, 1998).

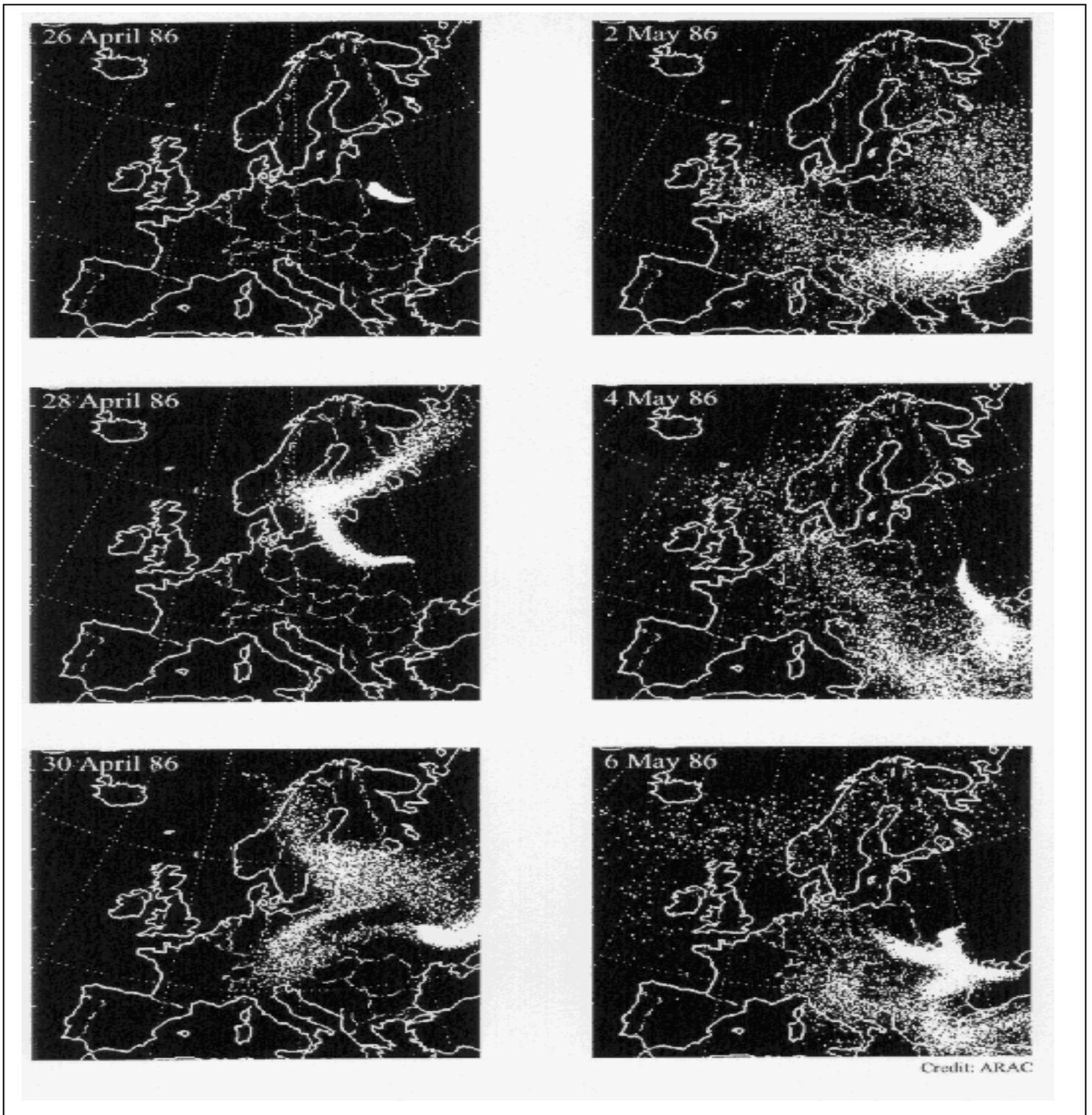


Figure I-1: Evolution du panache et distribution des masses d'air contaminées sur l'Europe dans les jours qui ont suivi l'accident de Tchernobyl d'après l'IRSN (OCDE, 1996).

I.1- Caractéristiques générales des retombées radioactives

L'accident nucléaire du central n° 4 de Tchernobyl a provoqué la libération de deux types de rejets, les formes condensées et les particules de combustible. Cette dualité d'aspect rend difficile l'interprétation du devenir de ces éléments radioactifs dans l'environnement.

Les éléments tels que le césium, le baryum ou encore le strontium se sont condensés sur des matrices inertes : carbone, poussières et matériaux de construction. Ces radioéléments et ces aérosols se sont ensuite déposés au sol soit par dépôt sec (gravité, transfert turbulent) soit par dépôt humide (pluies, neige), (Wiley et al., 1993).

Les caractéristiques physico-chimiques du dépôt du ^{137}Cs varient en fonction de la distance à la source (Oughton et al., 1992). A proximité de la centrale nucléaire de Tchernobyl, le radiocésium est souvent associé à des particules chaudes, à savoir des particules issues de produits d'activation ou de fission et de matériaux constituant le cœur du réacteur, essentiellement constituées d'oxydes d'uranium (Al Rayyes et al., 1993). La disponibilité du radiocésium sous cette forme complexée est faible (Fesenko et al., 1997). Au fil du temps, ces particules chaudes subissent une altération qui rendra ce radioélément plus mobile dans l'environnement (Konoplev, 1992; Bunzl et al., 1995).

Par contre, pour les dépôts éloignés comme ceux observés en Europe de l'Ouest, le radiocésium a été déposé sous forme d'aérosols (Auerbach, 1986), forme très soluble. Il devient ainsi très difficile de comparer le comportement du radiocésium dans ces contextes géographiques : région proche de la centrale nucléaire et région éloignée.

Les précipitations peuvent agir comme des mécanismes de concentration dans le cas d'un accident. Au sud de l'Allemagne, on a pu constater que le dépôt humide peut accélérer la pénétration des radioéléments dans le sol à la suite de fortes précipitations enregistrées pendant le passage du nuage radioactif (Schimmack et al., 1989). Le degré de pénétration dépend de l'intensité des pluies. L'essentiel de l'activité est d'abord retenue par la litière si les contaminations sont peu intenses (Schimmack et al., 1994).

Le dépôt des éléments radioactifs dans l'espace est très hétérogène, il peut se concentrer dans certaines zones plus que dans d'autres. On a pu observer que les pays de l'hémisphère Nord étaient beaucoup plus contaminés que ceux de l'hémisphère Sud.

Deux principaux phénomènes peuvent expliquer le fait que l'activité déposée au moment des rejets soit différente de celle mesurée de nos jours :

- *la décroissance physique du radioélément*: il s'agit de la décroissance de l'élément liée à la demi-vie radioactive (28 ans pour le strontium 90 et 30,2 ans pour le césium 137); l'activité au moment de la mesure est ainsi inférieure de l'activité au moment du dépôt. Les mesures de contamination étant souvent effectuées plusieurs années après le dépôt font que le différentiel entre contamination au moment du dépôt et contamination actuelle peut être considérable. La comparaison entre les données est souvent assurée par le choix d'une date de référence (en général, le 1^{er} mai 1986).

- *Les processus écologiques*: ce sont les processus naturels de l'environnement qui conduisent soit à une diminution soit à une accumulation des radioéléments dans le sol. Ces processus écologiques regroupent l'accumulation des eaux de pluie contaminées dans des dépressions locales, le flux de masse, le ruissellement, la migration avec l'eau de gravité ou l'érosion de surface mais également le transfert vers les milieux physiques, vers les organismes. L'augmentation ou au contraire la diminution de la contamination d'un système sont très influencées par la structure et le fonctionnement de l'écosystème.

I-2 Origine des retombées du ^{137}Cs dans le haut Doubs

Une grande partie de la France a été affectée par les retombées radioactives à la suite de l'accident de la centrale nucléaire de Tchernobyl. De part sa position géographique, le haut Doubs (figure I.2), territoire situé dans la région Franche-Comté a été une des zones françaises les plus contaminées en raison des grandes pluies qui ont affecté le secteur immédiatement après la catastrophe. L'IRSN (Institut de Radioprotection et de Sécurité Nucléaire) indique pour des mesures effectuées en 2003 que les activités surfaciques pour la région sont comprises entre 4000 et 20000 Bq.m⁻². Le haut Doubs présente des valeurs de contamination relativement plus élevées que celles du reste de la région. Notons tout de même que les valeurs d'activités enregistrées restent modérées et ne représentent pas *a priori* une source de danger immédiat pour la santé publique. Des études réalisées par Badot et al., 2004 et Lamarque, 2004 montrent que la contamination de la région Franche-Comté est hétérogène et que l'activité du césium 137 est plus forte en altitude (haut Doubs par exemple).

RECAPITULATIF

- **Les essais atmosphériques d'armes nucléaires des années 1945-1980 et l'entrée en fusion du réacteur n° 4 de la centrale nucléaire de Tchernobyl sont les principales sources de retombées radioactives en Europe.**
- **Le dépôt des radioéléments s'est fait sous forme d'aérosols.**
 - **Le haut Doubs et la Franche-Comté en général ont été beaucoup plus affectés que les autres régions françaises.**
- **Les valeurs d'activité enregistrées restent modestes et ne semblent pas poser de problèmes majeurs de santé publique.**

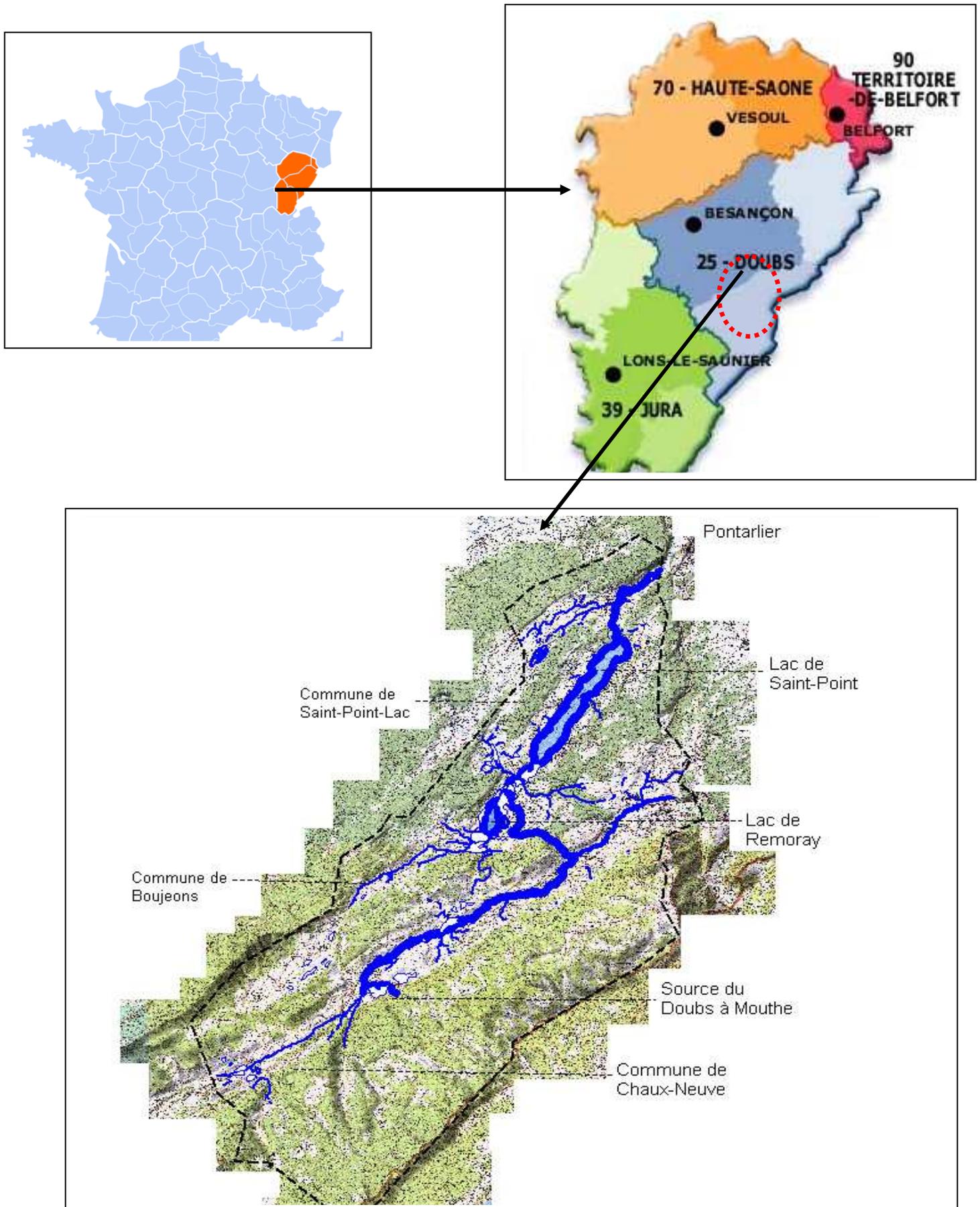


Figure I.2: Situation géographique de la Franche-Comté en France, du Doubs en Franche-Comté et carte du bassin versant du Doubs en amont du Lac-Saint-Point

II- Caractéristiques physico-chimiques du ^{137}Cs

On ne saurait aborder les caractéristiques de ce métal alcalin radioactif sans définir la notion même de radioactivité. La radioactivité est la transformation spontanée d'un noyau instable vers un autre état dit stable avec l'émission de rayonnements ionisants (α , β , γ ou X selon l'élément). Elle peut être naturelle ou artificielle. Le césium 137 est un radioélément artificiel c'est-à-dire d'origine anthropique qui n'existe pas naturellement dans l'environnement.

L'un des principaux radionucléides produits lors de la fission de l'uranium est le ^{137}Cs ; 12 autres de ses isotopes sont formés au cours de cette fission. Le césium 137 se forme avec une efficacité d'environ 6,2 %. Sa demi-vie radioactive est relativement longue ($T_{1/2} = 30,2$ années) alors que les autres isotopes ont une demi-vie très courte à l'exception du ^{133}Cs qui est un élément stable et le ^{135}Cs qui a une demi-vie très longue ($T_{1/2} = 2,9 \cdot 10^6$ ans).

L'obtention du césium 137 est le résultat d'une chaîne de réactions en cascade. Son précurseur est le ^{137}Xe qui est un gaz inerte très volatil, ce qui explique la grande diffusibilité du ^{137}Cs au cours des accidents nucléaires et lors des essais souterrains d'armes atomiques via les fissures dans le sol (Marey et al., 1974). 92% du ^{137}Cs se désintègre avec émission de particules β dont l'énergie maximale est 0,52 MeV*, puis il se transforme en ^{137m}Ba , élément métastable ($T_{1/2} = 26$ min), qui à son tour se stabilise pour donner le ^{137}Ba stable, en émettant un rayonnement (γ) de 0,662 MeV (figure I.2). On détecte ainsi le césium 137 par spectrométrie gamma à partir de la raie d'émission γ de son fils ^{137}Ba .

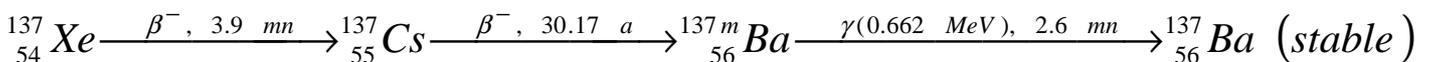


Figure I-3: Chaîne de désintégration du radiocésium

Le césium 137 fait partie de la classe des métaux alcalins, analogue physico-chimique du potassium et du rubidium. Les sels de césium sont solubles dans l'eau et la grande particularité du ^{137}Cs est sa grande mobilité biologique.

Les radiations ionisantes (γ) émises par le ^{137}Cs au cours de sa désintégration sont très dangereuses car elles sont très pénétrantes (dizaines de centimètres). Outre leurs effets énergétiques liés à leur interaction avec la matière, elles sont dangereuses pour les êtres vivants car elles perturbent les bases du fonctionnement cellulaire en agissant entre autres sur la réplication de l'ADN et les divisions cellulaires. Ces radiations ionisantes sont potentiellement cancérogènes et mutagènes pour les organismes.

III- Transfert du césium dans le système sol - plante des écosystèmes forestiers

Les écosystèmes forestiers représentent le tiers des surfaces contaminées à la suite du passage du nuage de Tchernobyl d'où l'intérêt qu'on peut porter aux contaminations en radiocésium pour ce genre d'occupation de sol. Les forêts montrent des taux d'interception du radiocésium élevés de l'ordre de 60 à 100% contre 20 à 25% dans les agrosystèmes (Linkov, 1995). La végétation forestière est assimilable à un filtre pour l'absorption des aérosols car elle est caractérisée par des surfaces très importantes et très divisées (aiguilles, feuilles et branches) induisant ainsi à une grande efficacité de filtration (Adriano et al., 1981).

Les agrosystèmes qui ont particulièrement fait l'objet de nombreuses études montrent des taux de contamination 20 à 30% inférieures aux écosystèmes forestiers (Tikhomirov et al., 1994).

Un certain nombre de processus gouvernent le devenir du césium à moyen ou à long terme dans les écosystèmes naturels ou semi - naturels:

- la rétention du radiocésium par les colloïdes du sol : nature et propriétés des composés du sol,
- l'absorption racinaire par la végétation qui dépend de la nature et du stade de développement de la végétation,

- le prélèvement et la séquestration par d'autres organismes du sol,
- la migration de l'élément dans le sol

Les sols forestiers contaminés concentrent le radiocésium dans les couches superficielles (Brunner et al., 1996) et ceci favorise son transfert au réseau trophique

III-1 Relation entre sol et ^{137}Cs : adsorption et rétention du radiocésium par les constituants du sol

Dans le sol, le césium se trouve essentiellement sous forme de cation (Cs^+). Sa répartition entre le compartiment abiotique (sol, sédiment, eau) et le compartiment biotique de l'écosystème terrestre est complexe et dépend de deux facteurs principaux à savoir le contenu en minéraux inorganiques du substrat solide et l'abondance des cations monovalents (Ca^{2+} , Mg^{2+} par exemple). Le ^{137}Cs a un haut degré de mobilité et de biodisponibilité (Avery, 1996).

Le sol est constitué de deux fractions principales constituant son ossature solide : la fraction organique (êtres vivants ou morts, matières organiques humifiées) et la fraction minérale (issue de l'altération physique ou chimique de la roche mère). Une autre partie à savoir la fraction liquide ou solution du sol peut être distinguée et représente le vecteur privilégié des substances dissoutes dans le profil.

L'ensemble des processus qui se produisent dans le sol conditionne de beaucoup la biodisponibilité des radioéléments et leurs mouvements verticaux le long des chaînes alimentaires. Dans le cycle du césium, le sol constitue le réservoir le plus important du polluant (Strebl et al., 1999). Morgan en 1990 dénombre un certain nombre de processus élémentaires pouvant être associés à la migration du césium dans le sol :

- la sorption - désorption sur des particules,
- la lixiviation (migration des substances dissoutes à partir de la solution),
 - la chélation (mise en solution des complexes métalliques par des anions d'origine biologique ou des colloïdes),
 - le lessivage (phénomène d'appauvrissement gravitaire des horizons superficiels du sol au bénéfice des horizons profonds),
- la fixation irréversible,
- le transport biologique.

L'intensification de ces processus est conditionnée par les propriétés physico – chimiques des radioéléments et les caractéristiques des sols: quantité et nature de la matière organique, pH, granulométrie, caractéristiques hydriques, composition de la solution du sol, composition et capacité du complexe absorbant du sol, activité microbologique, absence ou présence de la litière.

Le sol, par la complexité de sa structure et de son fonctionnement, joue un rôle de premier plan dans la vitesse de migration des radioéléments dans les écosystèmes.

III-1-1 Rôle de la litière dans la migration des radioéléments

La litière forestière peut aussi bien recevoir directement les retombées radioactives au cours du passage des masses d'air contaminées qu'indirectement au cours de la chute de feuilles ou aiguilles contaminées. Cette dualité d'aspect fait que la migration d'éléments radioactifs dans les écosystèmes forestiers présente certaines spécificités qu'on ne rencontre pas dans d'autres systèmes, les agrosystèmes en occurrence. La litière est le premier accumulateur de radioéléments dans les écosystèmes forestiers (Auerbach et al., 1967).

Communément appelée horizon A_0 , la litière forestière est constituée exclusivement de matière organique (appelée humus) qu'on peut subdiviser en trois compartiments selon l'état d'avancement de la dégradation de la matière organique: A_0L , horizon des retombées fraîches, A_0F , horizon de fragmentation et A_0H , horizon d'humification.

La décomposition des substances organiques présentes dans la litière forestière enrichit le sol en éléments nutritifs. La litière définit ainsi la composition quantitative et qualitative des substances organiques dissoutes pénétrant plus en profondeur dans les horizons minéraux du sol. Le transfert vertical ou horizontal des radionucléides est très fortement ralenti par la présence de la litière qu'on peut assimiler à une barrière géochimique. L'importance du rôle de la litière vis-à-vis des processus d'accumulation des radioéléments varie en fonction de son épaisseur, de sa composition et de sa structure morphologique (Shcheglov et al., 1992). Dans le système litière - sol minéral par exemple, la non-homogénéité spatiale de l'épaisseur entraîne la non-homogénéité des processus migratoires.

Deux phénomènes d'inégale importance ont lieu au moment de la chute des feuilles, un lessivage rapide du ^{137}Cs a lieu au niveau du sol, puis, ce sont des processus de décomposition qui jouent le rôle principal dans la libération du césium contenu dans les feuilles tombées vers la solution du sol.

Les mécanismes permettant d'expliquer le devenir du radiocésium au niveau de la litière sont aujourd'hui mal connus. Le rôle des micro-organismes semble être crucial (Gadd, 1996). La microflore du sol (champignons et bactéries), localisée essentiellement dans la litière et les horizons organiques superficiels du sol, peut retenir 10 à 50% du césium 137 (Olsen et al., 1990; Guillage et al., 1994). Les champignons sont connus pour leur capacité à enrichir les horizons superficiels de la

litière avec le ^{137}Cs qu'ils absorbent dans les horizons plus profonds (Rafferty et al., 1997). Ainsi, la microflore intervient de manière conséquente sur le ralentissement de la migration du ^{137}Cs hors des horizons organiques (Wirth et al., 1994; Rafferty et al., 1997).

Les microorganismes peuvent également jouer un rôle important sur la mobilité des radioéléments notamment par un transport physique des radionucléides en les incorporant ou en les adsorbant à leur surface ou bien en modifiant les conditions d'oxydoréduction et de pH du système pouvant ainsi affecter la spéciation chimique, la solubilité, l'adsorption et donc la mobilité de l'élément (Spor, 1994). Le rôle de la litière du sol dans la rétention à plus ou moins long terme des radioéléments est ainsi avéré.

III-1-2 Rétention du ^{137}Cs par les colloïdes du sol

Les colloïdes du sol sont des substances formées d'éléments de petite taille, les micelles, capable de flocculer (formation des agrégats) ou de se disperser dans un liquide (suspension). Ils peuvent ainsi contrôler la concentration des éléments traces dans la phase liquide et leur transfert aux plantes à travers de l'absorption racinaire. Ces colloïdes sont constitués essentiellement de minéraux et/ou de matière organique.

Le rôle des colloïdes dans la rétention des radioéléments est donc capital.

III-1-2-1 Rôle des minéraux du sol

Un certain nombre de minéraux argileux micacés sont impliqués dans la rétention spécifique du césium ^{137}Cs , on peut citer les illites, les vermiculites et les smectites-montmorillonites (Cornell, 1993). Ces minéraux argileux ont un rôle majeur dans la sorption spécifique du césium (Sawhney et al., 1972; Comans et al., 1991).

La composition minéralogique du sol joue un rôle crucial dans la rétention et la migration du ^{137}Cs (Hird et al., 1996).

La différenciation des argiles minéralogiques se fait selon le nombre de couches constituant les feuillets. Les argiles micacés sont constitués de phyllosilicates qui sont des structures en " mille feuilles" de tétraèdres accolés (couche T) dont les sommets sont occupés par des atomes d'oxygène et le centre par un atome de silicium ou aluminium et d'octaèdres (couche O) dont les sommets sont occupés par un atome d'oxygène et une molécule d'hydroxyde et le centre par de l'aluminium, plus ou moins substitué par du magnésium ou du fer. L'ensemble forme des feuillets de type TOT avec un atome d'oxygène en commun. Ce sont des phyllosilicates 2:1 constitués de deux couches T et d'une couche O comme la smectite, l'illite ou la vermiculite.

La substitution d'un atome par un autre peut engendrer des anomalies électriques au niveau des feuillets. Ces anomalies sont compensées par l'incorporation au niveau des feuillets, de charges positives, sous forme de cations et/ou de molécules d'eau si le déficit à combler est faible. Les propriétés d'adsorption des phyllosilicates sont sans doute dues à cette particularité électrique.

Lors des processus d'érosion chimique, physique et biologique, les ions K^+ se trouvant dans l'espace inter foliaire sur la lisière des micas peuvent se libérer. Ce processus est influencé par la consommation constante du K^+ de la solution du sol. Cela provoque l'élargissement de l'espace inter foliaire et ainsi, les micas sont constitués d'un cœur central comprimé et de feuillets TOT effilochés sur la lisière.

Les méthodes d'extraction et d'adsorption permettent distinguer trois types de sites de sorption sur les minéraux argileux expansibles pour les cations ayant des énergies d'hydratation assez basse (Sawhney, 1972; Cremers et al., 1988), il s'agit:

- **les planar sites:** les sites d'échanges surfaciques (présents sur la surface extérieure des minéraux argileux). Le césium peut être facilement déplacé par d'autres cations sur ces sites. Ces sites de sorption sont dits «non spécifiques»,

- **les frayed edges sites:** les sites d'échanges inter foliaires à la lisière du minéral (FES), situé dans les wedge zones (zones coins). Ils sont spécifiques au césium. Les échanges avec les cations équivalents (K^+ , Rb^+ , NH_4^+) sont assez rapides. Ils présentent une grande discrimination entre les cations,

- **Les sites inter foliaires éloignés de la lisière:** ils représentent des sites très spécifiques pour le césium. Le remplacement du césium par les autres cations est très lent et contrôlé par la diffusion.

Les sites planaires, les sites inter foliaires et les sites d'échanges des composés organiques sont regroupés dans une famille dénommée **sites d'échanges réguliers (RES)**. Ces sites adsorbent le radiocésium de façon non spécifique (Valcke et al., 1994) et présente une certaine sélectivité entre les différents cations.

Pour les FES et les RES, la séquence de sélectivité est la même à savoir $Cs^+ > Rb^+ > HK^+ > Na^+$ ns mais la différence de sélectivité est beaucoup plus marquée pour les FES que les RES.

L'adsorption sélective du césium et sa rétention par les 2-1 phyllosilicates dépendent de deux paramètres essentiels à savoir, les propriétés intrinsèques du minéral et les conditions environnementales autour des particules minérales.

Les propriétés intrinsèques du minéral sont:

- **la charge des couches:** la sorption du Cs^+ est d'autant plus forte qu'elle est forte (Tamura et al., 1960),

- **La localisation des charges négatives** dans le minéral: la sorption du Cs^+ est plus forte quand cette dernière se situe dans la couche octaédrique,

- **L'extension des zones «coins»** et donc une augmentation du nombre de sites spécifiques du Cs^+ (Cornell, 1993),

- **Le type d'occupation des zones interfoliaires:** la présence importante de K^+ dans l'espace inter foliaire des micas, réduit de façon notable le rendement de sorption de Cs^+ (Sawhney et al., 1967). De même l'aluminium inter foliaire des vermiculites diminue le capacité d'échange cationique (CEC) du minéral et donc aussi bien la fixation du K^+ que la sorption du Cs^+ (Elprince et al., 1977),

- **La taille des particules** influence la dispersion des micas: les petites particules retiennent beaucoup plus efficacement le Cs^+ que les plus grandes. Pour les grandes particules ($> 2 \text{ mm}$), la dispersion s'étend de la lisière vers le cœur du mica, ce qui entraîne une augmentation de la surface des «zones coins» et donc une réduction importante des espaces inter foliaires collapsés (Sawhney, 1972).

Les **conditions environnementales**, ou encore la composition de la solution du sol autour des sites de sorption, régulent la sorption du césium. La concentration en Cs^+ , celle des autres éléments (K^+ , Mg^{2+} par exemple) mais aussi la force ionique ont également une influence sur la composition de la solution du sol.

L'étude sur le devenir du césium dans l'interface solide/liquide se fait en considérant le coefficient de distribution entre la phase solide et la phase liquide du césium (K_d). On dispose de beaucoup d'informations sur l'impact de la concentration en césium sur le K_d (Cornell, 1993). A forte concentration en césium, le K_d diminue, induisant une non linéarité de la sorption du césium. En effet, avec une augmentation de la concentration du césium, les FES sont progressivement saturés en césium et donc les sorptions suivantes de césium sont le fait des sites d'échanges à faible sélectivité (RES) ce qui entraîne la diminution de l'affinité moyenne d'échange pour le césium et celle du K_d .

Les **RES** (*Regular Exchange Site*) contrôlent la concentration en césium dans la solution et concerne les sols riches en matière organique.

Les **FES** (*Frayed Exchange Site*) contrôlent la concentration en Cs^+ dans les sols minéraux ce qui explique le fait que le césium est fortement retenu dans les sols minéraux.

Maes et al. (1999) ont montré que la teneur en vermiculite conditionne directement la rétention du césium. Cette teneur serait fortement dépendante de l'horizon et de la profondeur considérés. L'abondance en vermiculite dans le sol conditionne directement l'abondance des FES. Ces derniers provoquent une fixation irréversible du césium par éboulement des couches inter foliaires des

minéraux micacés. Les FES représenteraient 0,001 à 6% de la capacité d'échange cationique (CEC) du sol (Delvaux et al., 2000).

Un certain nombre de facteurs connus peut expliquer les variations de la rétention du césium, à savoir, la typologie des sols et l'épaisseur des horizons en particulier dans les sols acides ayant un humus épais. En effet, le partage du césium entre les FES et les RES influence la dépendance de la mobilité du césium avec le temps (Kruyts et al., 2002).

La désorption du césium diminue progressivement avec le temps quand elle s'effectue spécifiquement sur les FES: effet âge c'est-à-dire effet du temps sur la fixation du césium sur les particules du sol alors que pour les RES elle est constante et complète. L'effet âge dépend du **RIP** (*Radiocaesium Interception Potential*) du sol et du statut ionique du complexe échangeable.

L'adsorption sur les sites FES est beaucoup plus lente que sur les sites non spécifiques (RES), la cinétique de l'adsorption sur les deux types de sites existants sur les minéraux est très différente (Poinssot et al., 1999). Ces auteurs mettent en évidence que la sorption du césium sur l'illite varie significativement avec le pH et la carence en électrolyte. Le pH peut fortement influencer le résultat de la sorption même lorsque le mécanisme de sorption dominant est l'échange cationique.

III-1-2-2 Rôle de la matière organique

La matière organique provient de la décomposition des débris végétaux et/ou animaux incorporés dans le sol. Ces substances organiques sont de nature et de propriétés différentes.

La matière organique dite «fraîche» (feuilles, tiges, racines, cellules microbiennes et animaux morts...) produit des résidus qui sont des produits d'altération dus à l'activité microbienne. Ensuite, les résidus organiques sont soumis à deux processus de dégradation que sont la minéralisation et l'humification.

La minéralisation est la transformation des composés organiques en substances minérales (sulfates, ammonium, nitrates...) et l'humification est la transformation de ces mêmes résidus en composés moléculaires appelés humus ou substances humiques. Tout comme les minéraux argileux, les substances humiques de part leur taille sont considérées comme des colloïdes et peuvent donc être floculées et dispersées dans le sol. Elles ont la capacité d'adsorber les ions et de se sorber sur

les phases minérales du sol pour former des complexes «argilo-humiques». Suivant des mécanismes d'échanges d'ions spécifiques ou non spécifiques, les acides humiques sont capables de se lier avec des cations. Le rôle des acides humiques dans l'adsorption directe du césium est relativement faible même dans le cas de sol fortement organique (Lofts et al., 2002).

La sorption du césium sur la matière organique est plus ou moins longue puisque le césium sera à nouveau disponible lors de la décomposition de la matière organique. Van Bergeijk et al. (1992) montre qu'un accroissement de la teneur en matière organique de 5 à 50% dans le sol augmentait d'un facteur 10 le transfert sol-plante du césium. Au-delà de 10% de matière organique, l'action des argiles est supplantée par celle des acides organiques qui neutralisent la charge des cations, empêchant ainsi la fixation sur les argiles: on a donc une mobilité et une biodisponibilité du Cs^+ plus élevées pour les plantes.

La migration du césium dans les horizons de surface est très lente et il est montré qu'une quinzaine d'années après le dépôt, les activités les plus importantes en ^{137}Cs se trouvent encore dans les horizons organiques ou semi-organiques (Rafferty et al., 2000). C'est par exemple le cas dans les sols forestiers contaminés, où le transfert sol-plante du radiocésium s'effectue en majeure partie à partir des horizons organiques de surface. Ces horizons possèdent de fortes teneurs en matière organique, qui ne retiennent pas spécifiquement le radionucléide. On observe ici une faible représentation des FES qui peuvent agir dans les horizons minéraux plus profonds comme des sites de liaison efficaces du césium avec les minéraux. De plus, ces horizons sont en général acides et dépourvus d'un ion compétiteur du césium, le potassium, ce qui favorise l'absorption racinaire du césium. De plus Kruyts et al. (2002) ont montré qu'une accumulation de matière organique dans l'humus de sol forestier acide, masque nettement l'effet des minéraux argileux et accroît de manière significative le transfert sol-plante du césium.

En fonction de la typologie des sols, un certain nombre de corrélations ont été établies entre l'adsorption du césium, ou le transfert sol-plante et la teneur en matière organique (Van Bergeijk et al., 1992): la présence de la matière organique diminue l'affinité des minéraux argileux pour le radiocésium, en d'autres termes, elle réduit leur capacité à immobiliser le césium dans le sol. C'est le phénomène majeur qui contribue à la faible immobilisation du radiocésium dans les sols organiques et à sa forte disponibilité pour les plantes et les autres organismes du sol. De même, Takenata et al. (1998) montrent que la distribution du radiocésium peut être caractérisée par la teneur en carbone organique dans les sols forestiers non perturbés ce qui justifierait le fait que les mouvements du césium suivraient la décomposition de la matière organique. La quantité de matière

organique présente dans le sol est aussi importante que sa nature et son interaction avec la matière minérale (Staunton et al., 2002).

- La matière organique bloque et interagit avec les couches inter foliaires des minéraux; Cette action de la matière organique est indirecte, en occurrence, l'action des acides humiques et fulviques, a été étudié soit par l'addition de composés organiques dans le sol minéraux ou argileux soit en déplaçant la matière organique du sol. L'addition de composés organiques diminue le K_d du césium (Dumat et al., 1999). Le phénomène qui se produit est le blocage par la matière organique de l'accès aux sites spécifiques du radiocésium. En plus, l'adsorption du césium est moins forte car les composés organiques possèdent des sites non spécifiques permettant une désorption facilitée du césium, la mobilité du césium s'accroît du fait de la présence des composés organiques.

De même, le déplacement des acides organiques fournit le même type de résultats : le coefficient de sélectivité NH_4^+/K^+ augmente, $K_d (Cs^+)$ augmente et la réversibilité de l'adsorption diminue lorsque le pourcentage de matière organique diminue (Rigol et al., 1998). Ce constat pourrait éventuellement expliquer la disponibilité observée à long terme du radiocésium dans les sols à forte teneur en matière organique.

- La matière organique provoque également l'expansion des couches inter foliaires des minéraux. Hird et al. (1996) montrent que la présence de la matière organique dans les sols organiques acides permettrait de maintenir les couches inter foliaires des argiles dans un état expansé et ayant pour corollaire d'empêcher la fixation du césium sur ces sites. Dans les sols organiques, la faible teneur en potassium et la présence de composés organiques empêchent l'éboulement des couches inter foliaires des argiles ce qui contribue à une augmentation de la disponibilité du césium. Kruyts et al. (2004) montre que la relation inverse entre le RIP (Radiocaesium Interception Potential) et la teneur en matière organique indiquerait que les résidus organiques additionnées aux minéraux fixant le césium est le processus clé dans la mobilité du Cs^+ . Le type d'humus pourrait être le facteur important dans la classification des sols forestiers en fonction de leur capacité à transférer le Cs^+ vers les végétaux.

Le constat qui est fait ici est que dans les sols organiques, le mécanisme de rétention du césium est différent de celui des exclusivement minéraux et ne peut être expliqué uniquement par l'immobilisation du césium dans les couches contenant des minéraux argileux (Chibowski et al., 2002).

L'équilibre entre sorption/désorption devient le facteur le plus important dans la migration du césium dans les couches profondes parce que le rôle de la flore et de la faune diminue (Harvey et

al., 1997). Ceci explique le fait que la vitesse de migration du césium est plus importante dans les couches profondes que dans les couches superficielles.

III-1-3 Rôle de la composition de la solution du sol

Dans la rhizosphère, la mobilité du radiocésium est fortement influencée par la concentration en K^+ , NH_4^+ , Cs^+ , Mg^{2+} et d'autres cations présents dans la solution du sol:

- l'adsorption du Cs^+ par les minéraux argileux est régulée par les ions échangeables entre la matrice solide et la solution du sol,

Il existe en effet une forte influence des concentrations en K^+ et NH_4^+ , ions compétiteurs du césium, à deux niveaux:

- présence d'une compétition de sorption au niveau des sites d'échanges (matière organique et minéraux argileux),

- possibilité d'induire un éboulement des couches argileuses et donc de piéger le césium : l'augmentation de la concentration de K^+ provoque dans un premier temps un échange avec le Cs^+ pour les déplacer des sites d'échanges et ensuite il cause le piégeage de ce dernier à travers le «collapsage» des couches.

Le Cs^+ est très fortement concurrencé par les ions K^+ et NH_4^+ pour l'adsorption sur les FES du sol : de fortes concentrations de ces derniers peuvent augmenter la désorption du césium à partir des minéraux micacés (Sawhney et al., 1964). L'effet du K^+ sur le devenir du césium dans la rhizosphère est double (Nisbet et al., 1990):

- à forte concentration, il augmente la désorption du Cs^+ et l'absorption racinaire est abaissée,

- à faible concentration dans la solution du sol autour des racines, on observe le réessuyage des micas à travers le relarguage du K^+ inter foliaire dans la solution du sol.

La concentration d'ions potassium dans la solution est considérée comme l'un des facteurs clés qui contrôle la disponibilité du césium au niveau du sol (Roca et al., 1995). Le NH_4^+ est adsorbé plus sélectivement que le K^+ sur les FES provoquant ainsi une mobilité plus grande pour le césium.

III-1-4 Rôle du pH

Les opinions en ce qui concerne l'influence du pH de la solution du sol sur l'adsorption des radionucléides sont assez diverses. Molchanova (1991) et Van Bergeijk et al. (1992) estiment que le pH n'a pas d'influence sur la mobilité et la biodisponibilité du radiocésium. D'autres auteurs décrivent une augmentation de la mobilité du ^{137}Cs dans les sols forestiers avec l'abaissement du pH (Fawaris et Johanson, 1995).

L'acidité du sol a un effet sur les phénomènes d'adsorption des éléments nutritifs mais le pH n'a pas d'effet direct sur la spéciation du césium en solution. A des pH très acides, l'activité des protons dans la solution externe peut inhiber le prélèvement des cations (Marschner, 1995). Le pH jouerait un rôle sur les équilibres d'échanges et plus particulièrement la libération de K^+ interfoliaire des minéraux micacés.

Le pH du sol est dépendant du taux de saturation des cations basiques dans lequel Ca^{2+} et Mg^{2+} jouent un rôle essentiel.

RECAPITULATIF

- **Les propriétés physico-chimiques des particules radioactives et les caractéristiques du sol conditionnent la migration du radiocésium.**
- **La rétention du césium en surface est assurée en grande partie par la litière des sols La circulation du césium 137 dans le sol se fait sous forme cationique Cs^+ .**
- **forestiers.**
- **La rétention du césium par les minéraux argileux du sol se fait de manière spécifique ou non.**
- **La composition de la solution du sol en minéraux a une grande influence sur l'absorption et la mobilité du radiocésium, les minéraux étant en compétition.**
- **Le pH n'a pas d'effet direct sur la spéciation du césium.**

III-2 Migration verticale du ^{137}Cs le long du profil

Pour évaluer les quantités de radiocésium en contact avec la zone racinaire et les risques de transfert aux réseaux trophiques ainsi qu'aux eaux superficielles et souterraines, la connaissance de la distribution du radioélément le long du profil se révèle fondamentale. Il est également important de connaître la migration verticale des radionucléides car la dose externe diminue avec l'enfoncement de l'élément dans le sol. Forsberg et al. (2000) observent une réduction de la dose des rayonnements gamma externes de 17 à 40% de 1986 à 1996 avec la pénétration du césium dans le sol dans les sols de Biélorussie.

La migration verticale des radioéléments peut ainsi être utilisée comme un indicateur pour la détermination à long terme de la dose externe pour l'homme consécutivement à un dépôt radioactif.

La migration verticale du radiocésium le long du profil est lente à cause de la présence de nombreux sites de rétention de cet élément dans les différents constituants du sol qu'ils soient d'origine organique ou minérale. Arapis et al. (1997) montrent que la vitesse de migration du radiocésium varie en fonction de la typologie des sols : elle est estimée selon les cas entre 0,4 et 1,2 cm.an^{-1} .

Le radiocésium issu de la catastrophe nucléaire de Tchernobyl, se retrouve, 10 ans après la contamination, à 80% dans les 15 premiers centimètres du sol (Graham et al., 1996). Il est majoritairement présent dans les horizons organiques et migre progressivement dans les horizons minéraux en fonction de l'état de minéralisation de l'humus. Les vitesses de migration sont en général plus faibles dans les horizons minéraux. Elles dépendent en grande partie du type de sol (Barisic et al., 1999) et principalement de sa texture (Forsberg et al., 2000) et de sa teneur en matière organique (Rosen et al., 1999).

La migration verticale du radiocésium est finalement le résultat d'une multitude de mécanismes tantôt limitant le transfert vertical (prélèvement par les organismes vivants, rétention par les constituants du sol, effet du temps...) et tantôt le favorisant (percolation de l'eau dans le profil, diffusion d'ions dans la solution du sol, composition de la matière organique,

bioturbation...). Elle ne peut pas être uniquement conditionnée par les caractéristiques physico-chimiques du sol et est fortement influencée par les processus biologiques.

Mamikhin et al. (1997) estiment que, la migration verticale des radioéléments dans le sol peut être soit d'origine abiotique (diffusion, sorption, désorption, composition minérale, type de sol, lessivage et flux d'eau), soit d'origine biotique (fonctionnement des racines, des champignons et de la méso faune du sol...). Ces différents facteurs varient de façon très significative dès les premiers centimètres du sol. En outre, ces variations peuvent exister, à une échelle plus locale, aussi bien verticalement que latéralement ; ceci expliquerait les fortes différences d'activité en césium relevés dans les sols (Isaksson et al., 1995).

D'après Fawaris et al. (1995), la migration du radiocésium dans les sols forestiers dépend de la concentration du césium 137 dans la solution du sol, du pH du sol, du pourcentage de la matière organique, du type du minéral contenu dans le sol et aussi du haut transfert sol-plante du césium.

L'activité biologique peut significativement modifier la migration du radiocésium. C'est le cas dans les horizons du sol contenant une grande proportion de racines des végétaux et d'autres organismes vivants. Ces effets sont d'autant plus importants que la rhizosphère est fortement peuplée en micro-organismes (bactéries et champignons). La biomasse fongique serait un puits important pour le radiocésium: elle pourrait retenir jusqu'à 32% du césium total, de même que la microflore mycélienne retient jusqu'à 40% du césium total (Steiner et al., 2002).

Les champignons interviennent dans l'immobilisation, la translocation et le recyclage du radiocésium. L'assimilation du césium par les racines ou par le mycélium retarde sa migration verticale le long du profil (Bunzl et al., 1995). Les mycorhizes jouent un rôle dans l'augmentation de la capacité d'acquisition des nutriments par la plante en augmentant la surface de prospection (hyphes externes des champignons), en modifiant la morphologie et la longévité des racines infectées et en modifiant la membrane plasmique des cellules corticales autour des hyphes intercellulaires (Ehlken et al., 2002).

Le développement bactérien provoque l'incorporation du césium dans la biomasse bactérienne et une diminution de la concentration des ions dans la solution du sol (Barber, 1968). L'importance du rôle des bactéries réside dans le fait qu'elles peuvent interférer avec la sorption/désorption des éléments et de différents contaminants, en libérant notamment les ligands chélatants (Treeby et al., 1989) ou en cassant les complexes (Barber et al., 1974) ou en dégradant les minéraux (Barber, 1968) ou en décomposant la matière organique (Tegen et al., 1991).

Les vers de terre sont un autre groupe d'organismes capables de modifier la destinée du césium dans les sols: ils peuvent d'une part, transporter les minéraux portant les FES des couches

profondes vers la surface, et d'autres part, ils participent aussi à l'homogénéisation de la distribution verticale du césium dans le sol: ils contribuent ainsi à la migration du césium dans les horizons plus profonds contenant plus de minéraux portant des FES. Ainsi, les vers de terre (Schimmack et al., 1997) et les enchytréides (Tyler et al., 2001), par leur action bioturbatrice, accélèrent le transfert du radiocésium dans les horizons plus profonds.

Les effets combinés des racines et des organismes présents dans la rhizosphère, dans un faible volume du sol, créent des biodisponibilités qui peuvent être très différentes de celles existantes dans les autres parties du sol.

De plus, certains processus géomorphologiques tels que l'érosion ou le dépôt mènent à l'enrichissement de certaines zones dans lesquelles la teneur en radiocésium peut devenir supérieure aux valeurs d'origine des dépôts (Kastenholz et al., 2001).

RECAPITULATIF

- **La vitesse de migration verticale du radiocésium dans le sol est lente et dépend du type de sol et de son fonctionnement.**
- **L'activité biologique (racines, vers, champignons, bactéries...) peut ralentir ou à l'inverse accélérer cette migration.**
- **Les processus géomorphologiques (érosion, dépôt...) peuvent participer à l'enrichissement de certaines zones en césium 137.**

III-3 Modélisation du comportement du radiocésium dans le sol

Pour rendre compte du transport des radioéléments dans les sols, des modèles mathématiques ont été développés pour les agrosystèmes et les écosystèmes.

Modèles d'Absalom et al. (1996)

Absalom et al. (1996) proposent deux modèles de fixation du radiocésium dans les sols organiques.

Le modèle I possède deux compartiments labiles: le premier représente le ^{137}Cs adsorbé non spécifiquement sur les sites d'échanges (L) et le deuxième représente le ^{137}Cs adsorbé spécifiquement sur les FES dont l'accès est fonction du temps. La fixation du ^{137}Cs est présentée comme un échange lent avec le potassium présent dans les micas collapsés. L'échange conduit à une forme non labile de ^{137}Cs adsorbé (N). Dans ce modèle, on suppose qu'il y a un partage instantané entre le pool labile et la solution.

La relation entre la solution et le ^{137}Cs est donnée par:

$$S = L/K_{dl}$$

Avec:

S = activité spécifique de la solution en ^{137}Cs ($\text{Bq}\cdot\text{cm}^{-3}$)

L = activité spécifique du ^{137}Cs adsorbé non spécifiquement ($\text{Bq}\cdot\text{g}^{-1}$) dans la phase labile

L_{sa} = activité spécifique du ^{137}Cs adsorbé spécifiquement ($\text{Bq}\cdot\text{g}^{-1}$) dans la phase labile

K_{dl} = coefficient de distribution du ^{137}Cs phase labile-solution. La valeur de ce coefficient est déterminée par des données expérimentales en fonction de la teneur en argiles et de la teneur en K^+ échangeable dans le sol.

N = activité spécifique du ^{137}Cs dans la phase non labile

Le transfert cinétique du ^{137}Cs s'écrit sous la forme :

$$dL_{sa}/dt = k_1L + k_4N - k_2L_{sa} - k_3L_{sa} \quad \text{et} \quad dN/dt = k_3L_{sa} - k_4N$$

k_1, k_2, k_3, k_4 = coefficients de vitesse évalués par des données expérimentales.

Le modèle II décrit la fixation progressive du ^{137}Cs comme étant le résultat d'un processus de diffusion vers la phase solide. Il existerait une étape cinétique initiale d'absorption non spécifique des formes labiles, ensuite cette absorption devient spécifique. La fixation est décrite comme une diffusion du césium par échange avec le potassium inter foliaire des minéraux argileux.

Les changements dans le ^{137}Cs labile adsorbé spécifiquement sont donnés par:

$$dL_{sa}/dt = -k_2L_{sa} + k_1L - (Da(L_{sa}-N_i))$$

Les changements de l'activité en Cs non labile dans le $i^{\text{ème}}$ compartiment de diffusion sont :

$$dN_i/dt = -(Da(N_i - N_{i+1})) + (Da(N_{i-1} - N_i))$$

Avec:

$$Da = DA \varphi/x \text{ (j}^{-1}\text{)}$$

$$D = \text{coefficient de diffusion (cm}^2\text{.d}^{-1}\text{)}$$

$$A = \text{aire de diffusion (cm}^2\text{.g}^{-1}\text{)}$$

$$\varphi = \text{densité apparente du sol (g.cm}^{-3}\text{)}$$

$$x = \text{profondeur du compartiment de diffusion (cm)}$$

$$N_i = \text{activité spécifique au } i^{\text{ème}} \text{ compartiment (Bq.g}^{-1}\text{)}$$

Les auteurs estiment que ces deux modèles de fixation du ^{137}Cs expliquent une part importante du changement de la disponibilité du ^{137}Cs observé sur le terrain.

Modèle de Rafferty et al., 2000

Rafferty et al., (2000) propose un modèle à trois phases pour décrire la migration du césium dans les horizons organiques des sols de forêt de conifères.

Dans la première phase, le modèle prend en compte l'infiltration du dépôt direct et l'infiltration tardive du césium lessivé à partir de la canopée et de l'horizon L du sol. Cet apport en solution constitue la plus grande contribution à la migration du césium dans le profil. Le flux de césium en solution à partir de la canopée vers les sous-étages forestiers domine la chute des aiguilles et la formation de litière dans les forêts de conifères.

Au cours de la deuxième phase qui commence cinq années après le dépôt, la vitesse de migration verticale du césium en solution est réduite. Elle est déterminée par la vitesse de la décomposition et l'accumulation de la litière. Le césium s'accumule alors dans l'horizon Oh.

Pendant la troisième phase, la migration en profondeur est lente et partiellement compensée par la translocation par le mycélium et les racines. L'épaisseur de l'horizon Oh est un élément important qui influence la durée de cette phase. La bioturbation, qui mélange Ah et Oh, accélère ce processus.

IV– Variabilité spatiale des contaminations en radiocésium

La variabilité de la contamination peut être très significative d'un point à l'autre à l'intérieur d'une même station. L'hétérogénéité des dépôts lors du passage du nuage radioactif peut être à l'origine de cette hétérogénéité de la distribution du césium. Ainsi, les précipitations bien localisées aussi bien que les obstacles physiques (massif montagneux par exemple) ont pu contribuer à la concentration des dépôts de césium dans certaines zones plus que dans d'autres.

Au vu des résultats d'une étude des niveaux d'activité du dépôt de césium et sa distribution dans les échantillons de sol agricole collectés sur 42 sites à travers un bassin versant en Turquie, Aslani et al. (2003) ont montré qu'ils existaient une grande variabilité de l'activité en césium malgré une surface d'échantillonnage faible. Pour ces auteurs, l'érosion, les précipitations et le type de pratiques culturales expliqueraient cette grande variabilité. Dans le cas des sols étudiés, le lien ne serait pas établi entre les activités en radiocésium et les caractéristiques du sol (pH, taux de matière organique, granulométrie).

Nabyvanets et al. (2000) ont montré la complexité de la compréhension du cycle de distribution du radiocésium qui n'est rien d'autre que la conséquence de l'hétérogénéité de la distribution spatiale du césium. Cette hétérogénéité spatiale s'expliquerait par le résultat de l'érosion par l'eau et par le vent qui aurait tendance à mettre en mouvement et à redistribuer les particules fines du sol.

Dans une zone contaminée de la vallée de Tahan river (Taïwan), un prélèvement d'échantillons a été effectué à fin de caractériser la distribution du radiocésium. Les plus grandes valeurs de contamination en césium enregistrées sont de l'ordre de 1000 Bq.kg^{-1} dans les sols.

Le césium a une grande hétérogénéité de distribution spatiale à cause du fait que chaque type de sol a son fonctionnement propre. Les activités et la distribution du radiocésium peuvent être modifiées significativement par le mode de culture. En effet, les cultures ont tendance à réduire la concentration en radioélément des couches supérieures et provoquent une redistribution à travers les

couches plus profondes du sol. Dans les sols non perturbés par contre, la distribution du ^{137}Cs est caractérisée par une accumulation dans les couches supérieures puisque ce dernier a une forte affinité pour les constituants du sol.

Dubois et al. (2001) présentent la méthodologie de la mise en place d'un atlas d'estimation du dépôt radioactif en Europe. Environ 400000 mesures ont été utilisées dans le cadre de ce programme de recherche sur les conséquences de l'accident de Tchernobyl. Les auteurs montrent que la plus grande incertitude du regroupement de données est la variabilité des conditions d'échantillonnage dans les différents pays. En raison de la structure spatiale très complexe de l'Europe, une forte densité de points d'échantillonnage serait nécessaire pour ne pas sous estimer les régions les plus contaminées. En effet, la qualité de l'estimation de l'activité en césium sur les sites non échantillonnés est directement liée au nombre de mesures autour de ces sites. La cartographie des contaminations obtenue dépend très fortement de la densité mais aussi du choix géographiques des sites de mesures.

Pour estimer les processus de transfert des radioéléments dans un écosystème donné, Chesnokov et al. (2000) estiment que la cartographie détaillée de la contamination de la zone est la première étape requise. La finalité ici est la mise en place de cartes qui peuvent être utilisées pour améliorer la gestion et développer les contre-mesures adaptées au type de contamination. Les études de ces auteurs se sont déroulées sur un territoire de $2,5 \text{ km}^2$ en Russie avec 5000 mesures de dépôts sur un transect le long d'une rivière. Ils ont utilisé des cartes topographiques et des photographies aériennes comme base cartographique pour choisir les points de mesure. Une triangulation de Delaunay a été utilisée pour l'interpolation des données mesurées. Les auteurs expliquent que le grand nombre de points de mesure et la localisation précise ont permis à la mise au point de carte de haute qualité. A partir de cette cartographie, Chesnokov et al. (2000) ont pu mettre en évidence des zones de transit, des zones d'accumulation et de dépôts du radiocésium. Ce zonage permet d'estimer la proportion de césium qui sera transportée après le dépôt initial.

Une autre méthode, développée par Badot et al. (2004), consiste à mettre en place des unités d'échantillonnage basée sur une approche fonctionnelle du milieu étudié. L'objectif ici est la mise en place d'unités géopédologiques *a priori* homogènes dans leur fonctionnement écologique. Pour ce faire, un certain nombre de paramètres tels que la nature du substratum géologique, la topographie et les différents modes occupations du sol sont superposés sur des cartes à fin d'identifier et de définir des unités pédologiques, qui sont généralement homogènes pour ces trois critères. Cette méthode basée sur une approche fonctionnelle du milieu est différente de celle communément utilisée en radioécologie qui consiste plutôt en un échantillonnage systématique.

Wright et al. (1997) ont fait des études sur la variabilité spatiale de différentes régions de Norvège au dépôt de césium. Les résultats montrent que l'introduction du dépôt, du transfert et de la production agricole dans un Système d'Information Géographique est une méthode rapide et efficace pour quantifier la dose collective lors d'un incident radioactif. Ces auteurs expliquent l'importance d'identifier les surfaces utilisant les différents types de productions agricoles, de prendre en considération les importations et les exportations de produits alimentaires ou aliments pour animaux et d'identifier le type de sol et les valeurs de transfert qui varient selon l'écosystème considéré.

Pour quantifier les relations entre le dépôt dans le sud de la France et les quantités de pluies enregistrées en mai 1986, Renaud et al. (2003) ont construit une carte des dépôts initiaux de ^{137}Cs à partir de mesures actuelles d'activité surfacique. Les 137 échantillons de sols utilisés proviennent de la vallée du Rhône. Les points ont été choisis ici en fonction de la présence d'une station météo à proximité mais surtout les sites ont été localisés dans les zones à faible pente et où la migration du radionucléide dans le sol est limitée.

Pour ne pas omettre des zones contaminées ou au contraire ne pas surestimer autres, il est important de prendre en compte toutes les caractéristiques d'un site. Le plan d'échantillonnage est capital et devrait être adapté à chaque région étudiée.

Van Der Perk et al. (1998) ont mis en place un modèle dénommé EDSS (Environmental Decision Support System) qui intègre à une échelle donnée des modèles spatiaux de transfert des radionucléides à partir du sol, par l'intermédiaire de différents produits alimentaires, vers les groupes de population humaine. On a également un module de géostatistiques d'interpolation à partir des points d'échantillonnage du site étudié, un module d'estimation de la dose externe et des modules spéciaux sur la dynamique d'entrée et de sortie dans la chaîne alimentaire modélisée.

Les conditions météorologiques locales au moment du dépôt peuvent jouer un rôle important sur la contamination et donc rendre très complexe l'estimation de la contamination du césium. Il en est de même de l'hétérogénéité de fonctionnement des écosystèmes étudiés. L'utilisation de la spatialisation est très pratique et efficace même si le résultat obtenu dépend beaucoup de la stratégie d'échantillonnage.

V- Distribution spatiale des contaminations par le césium 137 dans les sols au sein des différentes régions naturelles de Franche-Comté (Thèse S. Lamarque)

Sur la base de la combinaison de critères climatiques (précipitations et température), géomorphologiques (plateaux et vallées) et édaphiques (nature minéralogique et perméabilité), il a été identifié 22 régions naturelles (Bailly et Schmit, 1982) sur le territoire franc-comtois.

Ces régions sont: les Avants Monts, la Vallée de la Loue, les Premiers Plateaux du Doubs, le Deuxième Plateau, le Sundgau, les Plateaux gréseux prévosgiens, les Vosges granitiques, la Dépression périvosgienne, la Plaine Saônoise, les Plateaux de Haute Saône, le Massif de la Serre, la Plaine jurassienne, le Vignoble, les Plateaux lédoniens et la Côte de l'Heute, la Basse Vallée de l'Ognon, les Plateaux et Massifs primaires prévosgiens, les Combes de l'Ain, la Petite Montagne, les Plateaux de Champagnole et les Faisceaux d'Orgelet, le Massif de Chaux, la Montagne du Lomont et les Faisceaux de Besançon et de Quingey.

La région Franche-Comté présente ainsi une grande diversité de contextes écologiques liés à une grande hétérogénéité des substrats géologiques (calcaires, limons de plateaux, marnes, argiles, alluvions, grès, granites, arkoses...etc) et une grande hétérogénéité de la géomorphologie. Elle est constituée d'une série de vallées, plateaux et massifs montagneux.

La distribution spatiale des teneurs en césium montre des différences régionales importantes reflétant l'hétérogénéité marquée de la répartition du césium et celle du milieu étudié. Les activités en ^{137}Cs sont comprises entre 24 Bq.kg^{-1} soit 1256 Bq.m^{-2} (Massif de la Serre) et 457 Bq.kg^{-1} soit 15712 Bq.m^{-2} (Plateaux de Champagnole) Aucun des sols analysés n'est exempt de contamination en radiocésium. Les deux zones les plus contaminées sont le Sud-Est de la région à partir du second plateau du Doubs et le Nord-Est au niveau des Vosges saônoises. Les sols sont de plus en plus

contaminés de l'Ouest vers l'Est et la plupart des régions fortement contaminées sont des zones montagneuses. Les zones montagneuses combinent deux facteurs favorisant l'accumulation du césium dans les sols: l'altitude (obstacle orographique) et les zones forestières qui représentent de surfaces importantes interceptant les retombées atmosphériques. Le gradient de contamination observée d'Ouest en Est s'expliquerait vraisemblablement par la présence de massifs montagneux dans la partie Est de la Franch-Comté.

La variabilité des teneurs en ^{137}Cs de Tchernobyl dans le sol est la résultante d'une grande variabilité des dépôts initiaux de césium sur les surfaces, mais aussi par l'importance des précipitations, par la période relativement courte de la contamination (Barisic et al., 1999) et par les propriétés physico-chimiques des sols. Les dépôts de césium 137 en région Franche-Comté se trouvent dans la moyenne de ceux rencontrés en Europe pour lesquels la contamination en césium d'origine de Tchernobyl se situe autour de 6600 Bq.m^{-2} (De Cort et al., 1998).

Un certain nombre de paramètres environnementaux sont susceptibles d'expliquer tout ou partie de la variabilité observée. La répartition des précipitations, de l'altitude et des caractéristiques du sol (pH, teneurs en carbone organique, teneurs en argiles) varient plus ou moins fortement à l'intérieur des régions naturelles mais aussi entre les régions naturelles. L'hétérogénéité observée au niveau de l'altitude et des précipitations à l'intérieur d'une région s'expliquerait par l'étendue surfacique des régions naturelles. Les précipitations présentent, pour un certain nombre de régions naturelles, des variabilités intra-régionales importantes comme pour le Deuxième Plateau où les précipitations se répartissent entre 1400 et 1925 mm. D'autres régions par contre, une faible hétérogénéité des précipitations. La variabilité entre région naturelle est très importante avec le cas précis entre les Plaines saônoises (790 mm) et la Petite Montagne (1480 mm)

Certains paramètres sont corrélés avec la teneur en césium dans le sol comme les précipitations, l'altitude, le carbone organique, le pH, les limons et la capacité d'échange cationique. D'autres en revanche comme la teneur en sable, la teneur en argiles et le type de sol ne le sont pas.

La distribution spatiale de la teneur en césium à 0-5 cm de profondeur montre également une grande variabilité. Les sols de type bruns à pseudogley, bruns lessivés à pseudogley, bruns lessivés, bruns colluviaux, bruns acides présentent des teneurs en césium assez faibles alors que les sols de types humo-calcaïques, humiques à gley ont des teneurs supérieures. La grande variabilité de la teneur en césium en fonction de la typologie des sols serait due à la présence plus ou moins importante de matière organique dans les horizons superficiels du sol. Les sols dont la teneur en matière organique est la plus importante sont les sols contenant le plus de césium.

La contamination en ^{137}Cs actuelle observée en Franche-Comté serait la résultante de trois principaux processus que sont: l'hétérogénéité des retombées radioactives au moment du passage du nuage radioactif et les conditions météorologiques locales durant la contamination, les caractéristiques du sol et le fonctionnement particulier de l'écosystème, la décroissance physique du césium qui provoque une disparition avec le temps de l'activité en césium par désintégration radioactive.

RECAPITULATIF

- **La stratégie d'échantillonnage utilisée pour la spatialisation est capitale et doit être adaptée à la région étudiée.**
- **L'interpolation des mesures ponctuelles en césium est un moyen pour estimer la variabilité spatiale de la contamination en césium.**
- **La cartographie de la contamination en césium est un outil important dans l'évaluation et la gestion du risque d'exposition que peuvent courir les Hommes et les organismes.**
- **La distribution spatiale du ^{137}Cs en Franche-Comté est caractérisée par une forte hétérogénéité. Tous les types de sols rencontrés sont contaminés par le radiocésium.**
- **Les caractéristiques du sol et le fonctionnement écologique de la région étudiée sont les paramètres clés de la compréhension de la contamination en césium 137 et de son évolution dans le temps.**

CHAPITRE II: MATERIELS ET METHODES

I – Description des caractéristiques environnementales du bassin versant du Doubs

I-1 Zone d'étude: bassin versant du Doubs supérieur

Le Doubs est une rivière pouvant présenter d'importants débits, alimentée par les fortes précipitations de son bassin versant. La lame d'eau s'écoulant sur son bassin versant est de 765 millimètres annuellement, ce qui est plus de deux fois supérieur à la moyenne d'ensemble de la France tous bassins confondus.

Il prend sa source sur le territoire de la commune de Mouthe, près de la frontière suisse, à 937 mètres d'altitude.

La zone d'étude qui nous a intéressé au cours de ces travaux concerne l'ensemble du bassin versant du Doubs depuis sa source à Mouthe jusqu'au lac de Saint Point. Elle est située à proximité de Pontarlier, département du Doubs et concerne la région administrative de Franche-Comté, localisée dans l'Est de la France.

Elle couvre une surface d'environ 300 km², une trentaine de communes y sont représentées (Mouthe, Grangettes, Malpas, Chaux-Neuve, Remoray, Saint-Point- Lac, Malbuisson, Rondefontaine, Saint-Antoine, Rochejean...).

La majeure partie du bassin versant est occupée par la forêt qui recouvre les sommets et dont les essences principales forment le groupement sapin-épicéa-hêtre. Dans les vallées, où sont installées la plupart des villages, les prairies naturelles prédominent.

L'ensemble des agglomérations représente une population d'environ 5500 habitants répartis sur des localités d'inégale importance : 4 seulement comptent plus de 500 habitants permanents.

A cette population sédentaire s'ajoute une population saisonnière nombreuse liée aux activités du tourisme estival et hivernal particulièrement développé dans la vallée du Bief Rouge, la région de Mouthe et le pourtour du lac de Saint-Point.

Ainsi selon les saisons, la population passe de :

- 343 à 1200 habitants à Malbuisson
- 104 à 500 aux Grangettes
- 102 à 250 à Saint-Point-Lac
- 632 à 4500 à Métabief et les Hôpitaux.

Les activités économiques prépondérantes du secteur sont celles liées à l'hôtellerie, à l'exploitation de la forêt (scieries) et à l'élevage des bovins. Une quinzaine d'ateliers de fromagerie traditionnelle travaillent environ 111000 hL de lait par an, tandis que des dizaines de porcheries d'engraissement sont capables d'accueillir des milliers de porcs.

I-2 Données environnementales

La partie du bassin versant du Doubs qui nous intéresse est localisée dans la haute Franche-Comté (CUER, 1985), marquée par un modèle glaciaire récent. Elle appartient à la région naturelle identifiée comme étant le deuxième plateau. Les sols sont superficiels et très dépendants de la roche calcaire, ils sont monogénétiques. Les sols humo-calciques et bruns à pellicules calcaires sont dominants.

Le cadre géologique montre une certaine diversité mais est généralement calcaire. Cependant, certaines formations telles que les dépôts glaciaires (moraines de fond, moraines

d'ablation, moraines terminales) et des alluvions modernes (bords du lac et fonds des vallées) peuvent être rencontrés.

L'altitude varie beaucoup avec souvent de grandes variations sur de petites distances. Elle est comprise entre 850 et 1400 m quand on se déplace du N vers le S-SE du bassin versant. Les altitudes croissent souvent de manière régulière. On part d'environ 857 m à Oye-et-Pallet pour atteindre 1390 m au niveau de le Morond.

En ce qui concerne le relief, le Jura est organisé en plateaux de l'Ouest vers l'Est et la zone d'étude se situe au niveau du deuxième plateau. Une partie du bassin versant se trouve dans la Haute chaîne et montre un relief très contrasté avec des pentes abruptes et comprend les points les plus élevés de la région. Le rebord oriental de la Haute Chaîne s'abaisse progressivement sur la plaine suisse.

Le réseau hydrographique est très hétérogène, on y retrouve des cours d'eau temporaires et d'autres permanents (voir figure II.1). Grossi de ses deux premiers affluents que sont le Cagnard et le Bief Rouge, le Doubs pénètre dans le synclinal au niveau de Labergement-Sainte-Marie et représente la part essentielle du bassin d'alimentation du lac de Saint-Point.

Les précipitations annuelles moyennes montrent des variations sur la zone, on note jusqu'à 2100 mm pour le maximum. Les précipitations sont relativement élevées pour une région tempérée. La pluviométrie est de l'ordre de 1500-1800 mm sur le deuxième plateau et atteint plus de 2000 mm dans la haute chaîne.

La température annuelle moyenne est aussi contrastée. Elle est d'environ 7°C au niveau des plateaux supérieurs (800-900 m) et inférieurs à 6°C dans les parties élevées de la Haute Chaîne (au dessus de 1000 m). Les températures moyennes sont en hiver de 2°C à -2°C et en été de 19°C à 15°C. Le bassin versant du Doubs se trouve sous un climat continental avec une influence océanique.

Malgré les variations climatiques observées à cette échelle plus ou moins liées à l'altitude, l'étage montagnard (450-1400 m) est l'étage de végétation caractéristique du bassin versant. On distingue des hêtraies, des hêtraies à sapin, des hêtraies à épicéa, des hêtraies à sapin et épicéa et des tourbières. On remarque que cet étage de végétation est loin d'être homogène d'autant plus que les formations telles que dépôts glaciaires ou encore les calcaires durs ou plus ou moins marneux de la région ne nourrissent pas les mêmes espèces végétales.

Le processus pédogénétique le plus répandu sur le bassin versant est la brunification. En effet les sols se développant à partir des produits d'altération des calcaires sont les plus représentés. Ce sont des sols basiques ou neutres. Mais la présence de moraines glaciaires et d'alluvions

siliceuses fait qu'il est possible de trouver des sols acides. La diversité des sols rencontrés ici est la conséquence de la diversité de la perméabilité et de la nature minéralogique des roches, de la diversité géomorphologique (plateaux, versants, vallées) et les conséquences de la dernière glaciation (Würm) pour les altitudes supérieures à 700 m. Ce sont des sols superficiels. Sur des roches calcaires contenant une forte proportion d'argiles (marnes), les sols présentent en plus du phénomène de brunification, des phénomènes d'hydromorphie. On note enfin la présence de rendzines, sols carbonatés humifères peu épais se développant en altitude sur certains types de calcaires.

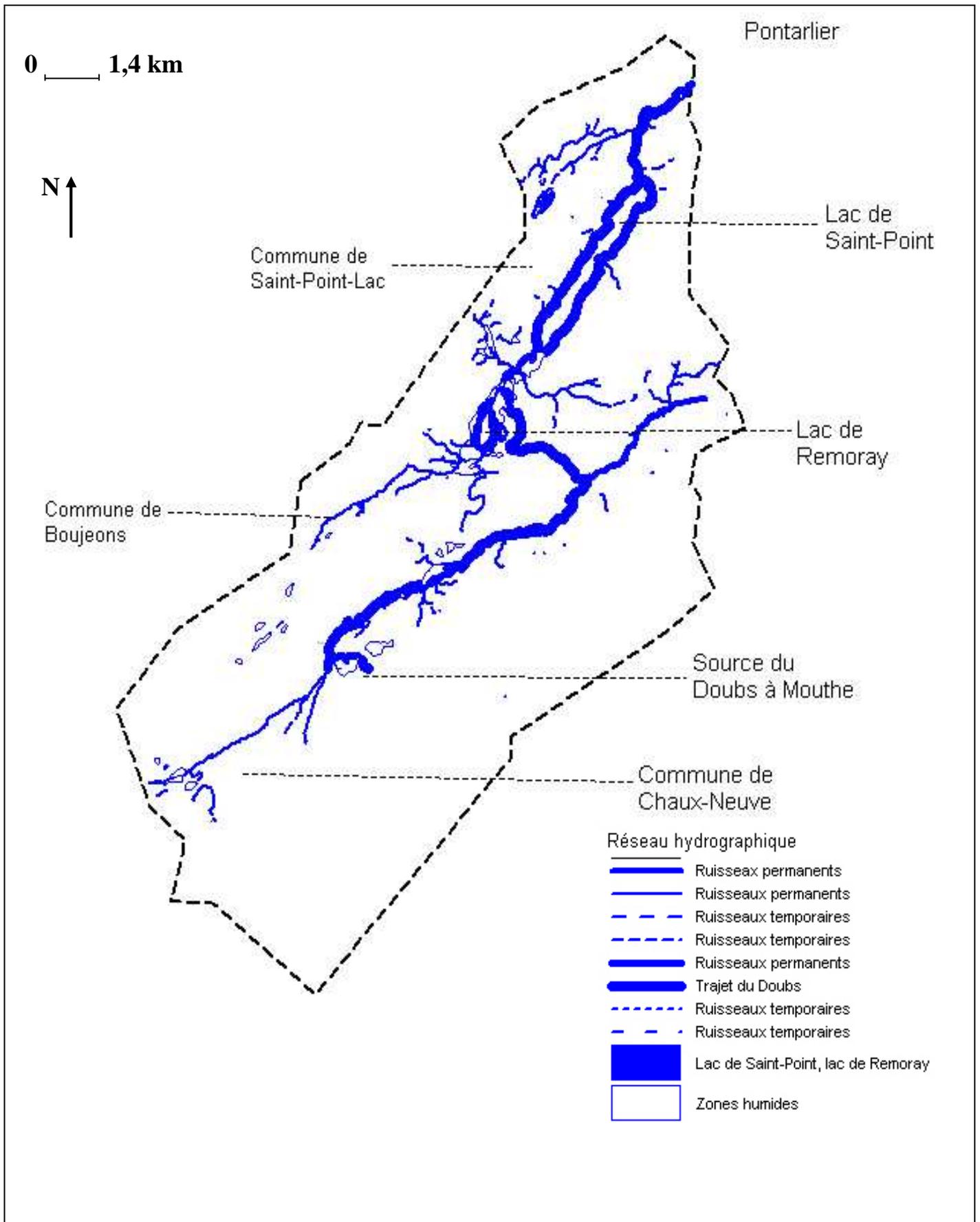


Figure II.1: Représentation cartographique du réseau hydrographique du bassin versant du Doubs en amont du Lac Saint-Point d'après le BRGM

II– Stratégie d'échantillonnage

Une des originalités de l'approche retenue pour la mise en place de la stratégie d'échantillonnage est d'avoir défini une stratégie basée sur le fonctionnement écologique du milieu étudié, contrairement à ce qui est en général utilisé en radioécologie où le plus souvent, les stratégies d'échantillonnage choisies sont la méthode systématique ou la méthode aléatoire. La stratégie d'échantillonnage développée dans le présent travail permet de tenir compte de l'hétérogénéité de la distribution spatiale du césium et de la variété écologique du bassin versant. A l'échelle de cette étude, ces unités correspondent aux unités pédologiques, telles qu'elles sont définies pour réaliser les cartes des sols. Cette démarche s'appuie sur les travaux menés sur la variabilité spatiale des sols du massif du Jura (Charles, 1991; Briot, 2009). Cette approche repose sur l'identification *a priori* d'unités fonctionnelles homogènes.

L'objectif est d'évaluer si la stratégie d'échantillonnage raisonnée utilisée permet de mieux décrire la variabilité spatiale de la contamination par rapport à un échantillonnage systématique. Un des résultats attendus consiste à développer et à valider une méthode permettant d'optimiser l'effort d'échantillonnage.

Dans une première étape, les cartes géologiques éditées par le Bureau de Recherches Géologiques et Minières (BRGM) ont été utilisées pour identifier les grandes unités géologiques différenciées par leur lithologie et leur perméabilité. Ces unités ont été numérisées et géoréférencées dans un logiciel de SIG (Système d'Information Géographique, Mapinfo). Dans ce logiciel, nous avons ainsi pu établir les cartes numérisées des grands ensembles géologiques présents dans la zone d'étude. Ces unités géologiques ont été représentées sous forme de polygones réguliers.

Onze grands ensembles géologiques influençant les propriétés et le fonctionnement du sol ont été mis en évidence (Figure II.2):

- **J₇: Séquanien:** calcaires, surmontant un petit niveau marneux à huîtres. Calcaires sublithographiques et de teinte claire.

- **J₈: Kimméridgien:** calcaires un peu cristallin de teinte beige (*Trichites* et *Alectryonia pulligera*) et, un ensemble de calcaires marneux et de marnes avec la riche faune de Ptérocérien (*Pterocera ocaeni*, *Ceromia excentrica*).

- **J₉: Portlandien:** calcaires dolomitiques, en plaquettes ou en ruban sans faune au sommet, gros banc calcaires cristallins en partie moyenne et calcaires compacts à grain très fin à la base.

- **J₅: Argovien:** marnes feuilletées alternant avec petits bancs de calcaires marneux peu fossilifères d'une part et calcaires foncés et marnes avec nombreux Spongiaires d'autre part.

- **J₆: Rauracien:** calcaires récifaux ou pisolithiques de teinte jaune ou brune renfermant une faune d'huîtres, de Brachiopodes, de Crinoïdes (carrière à mi-chemin entre Mouthe et Rondefontaine).

- **N₂: Valanginien:** Limonite de Métabief, alternance de calcaires roux et de calcaires marneux et marnes à pisolithes ferrugineux; le Marbre bâtard, calcaire de teinte claire; alternance de calcaires jaunes ou gris et de calcaires marneux.

- **N₃: Hauterivien:** calcaire oolithique, calcaire gris et galet de marne; puis alternance de marnes et de calcaires marneux très fossilifères (Bief Blanc).

- **N₄: Barrémien:** calcaires cristallins ou oolithiques très blancs ou colorés en rose violet, difficile à séparer de N₃ (Boujeons et entre Rochejean et Gellin).

- **F_Z: Alluvions modernes:** localisés au bord du lac et dans les fonds de vallées. Alluvions fins (Limons) supportant souvent des tourbières.

- **G_{XJ}: Dépôts glaciaires:** formations constituées de matériel local (glaciaire jurassien): moraines de fond riche en matrice argileuse (1300 m du massif du Risol); moraines d'ablation (Hôpitaux neufs, Métabief, Chapelle-des-Bois); moraines terminales (Sarrageois, Gellin) passant à des cailloutis fluvioglaciaires.

- Une deuxième étape a été d'étudier les cartes topographiques de l'IGN (Institut Géographique National) au 1/25000 à fin d'identifier et de délimiter les ensembles topographiques associés à la zone d'étude. Il s'agit des systèmes de haut de pente, de mi-pente et de bas de pente. Ces unités ont également été numérisées et géoréférencées dans Mapinfo.

- Enfin, les cartes topographiques et les photographies aériennes ont été utilisées pour représenter les différents modes d'occupations du sol: forêts, prairies, zones humides, pré-bois.

La superposition de ces trois groupes d'informations à savoir (1) la nature du substratum géologique, (2) les ensembles topographiques et (3) le mode d'occupation des sols a permis de définir des unités pédologiques, qui sont en règle générale homogènes pour ces trois critères.

En utilisant cette stratégie d'échantillonnage et en y associant l'ensemble du réseau hydrographique (écoulements temporaires et écoulements permanents) du bassin versant, 275 stations représentatives de tous les milieux fonctionnels de la zone d'étude, ont été sélectionnées pour l'étude de la spatialisation de la contamination et la détermination des principales voies de transfert du ^{137}Cs . (Figure II.3). Dans les unités cartographiques homogènes, un seul site de prélèvement a été défini, en générale dans la partie centrale de l'unité. Dans le cas des unités complexes, 2 à 3 sites de prélèvements ont été définis en fonction de la topographie ou de l'occupation du sol.

Dans chacun des sites, une description des sols et un prélèvement d'échantillon aux fins d'analyse ont été réalisés

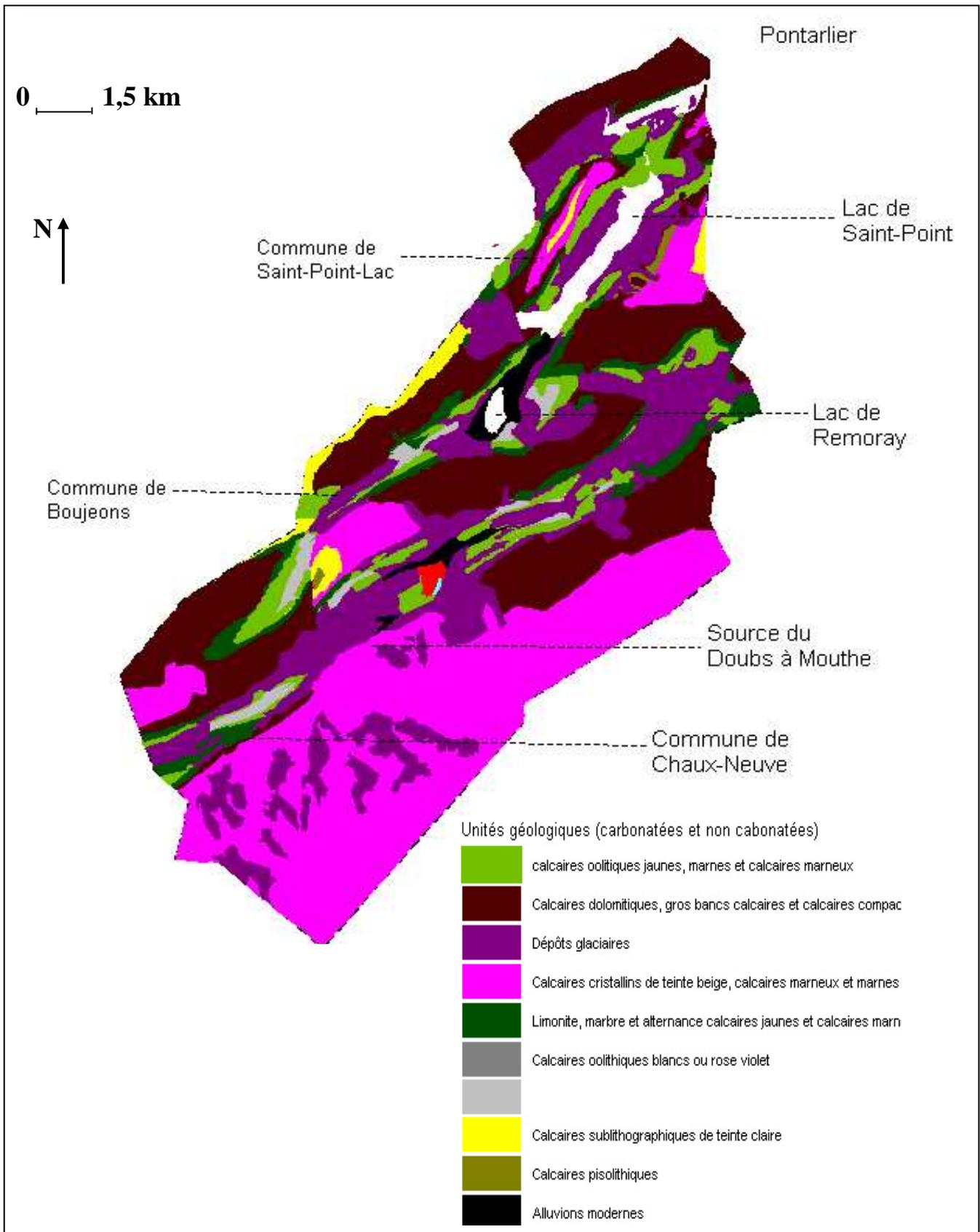


Figure II.2: Unités géologiques sur l'ensemble du bassin versant basées sur une interprétation pédologique des cartes géologiques éditées par le BRGM.

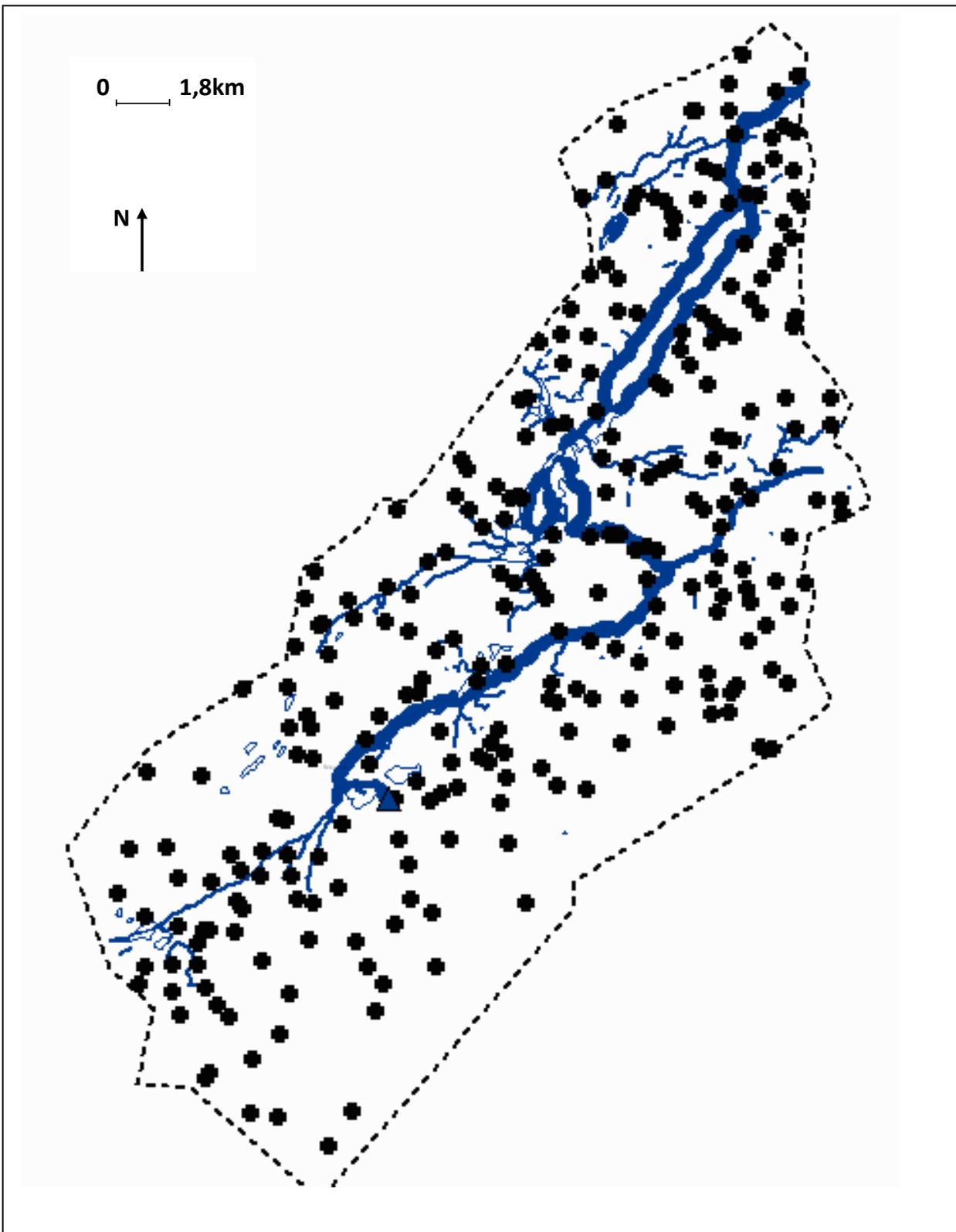


Figure II.3: Situation géographique des 275 sites sélectionnés sur l'ensemble du bassin versant du Doubs en amont du Lac Saint-Point.

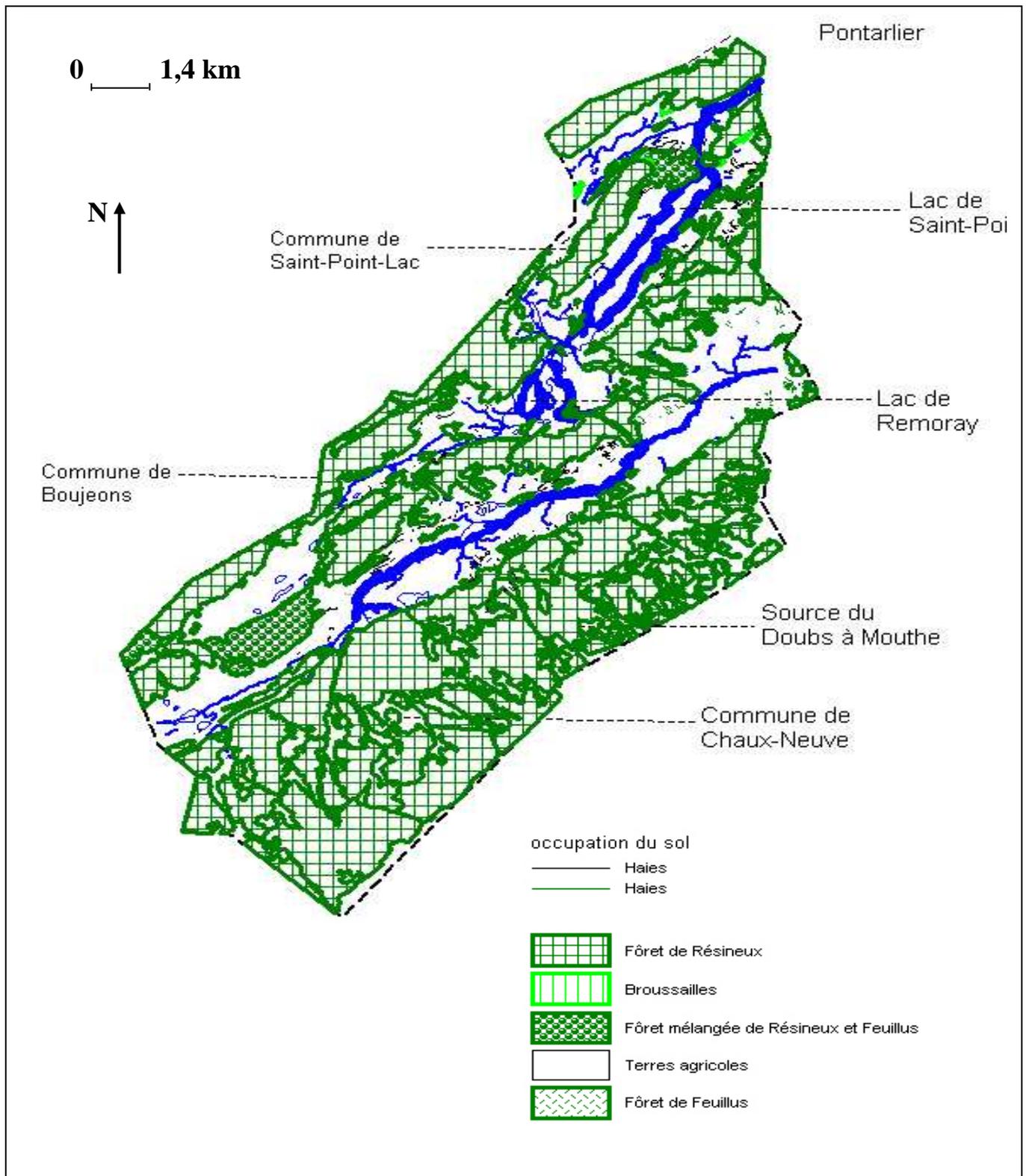


Figure II.4: Représentation cartographique des différents types d'occupation de sol sur le bassin versant d'après l'IFN (Institut Forestier National)

III– Techniques d'échantillonnage du sol

La localisation des coordonnées géographiques exactes des stations d'échantillonnage sélectionnées ont été déterminées par satellite (GPS: *Global Positioning System*). En raison de la présence de la couverture végétale et en particulier celle des résineux, la localisation de certains sols forestiers n'a pas été aisée ; dans ce cas, il a été utile de se rapporter aux coordonnées d'un passage à proximité du site à partir duquel on s'approchera de la station en s'aidant d'une boussole. Cette situation ne s'est pas appliquée aux sols agricoles. Le prélèvement des échantillons sur le terrain a été réalisé en deux phases, une première phase à l'automne 2006 et la seconde fois au printemps 2007.

Dans le cas où la station présentait une certaine hétérogénéité d'un point de vue topographique, il a été indispensable de se positionner dans la zone la plus représentative du milieu, en évitant des endroits qui auraient subi des perturbations exogènes susceptibles de modifier la structure des sols et donc le comportement de la contamination. Il s'agit en particulier des passages liés à l'exploitation, des dépôts de bois, etc.

Sur l'ensemble des 275 sites répartis sur le bassin versant, des prélèvements volumiques de sol ont été réalisés entre 0 et 5 cm de profondeur à l'aide d'une tarière munie d'un cylindre de 100 cm³. Une grande partie des sites échantillonnés dans le présent travail montrent des sols très superficiels, ce qui a conditionné le choix de la profondeur de 0-5 cm. Une étude précédente réalisée en Franche-Comté (Lamarque, 2004) a montré que, quelle que soit la profondeur considérée (0-5 cm ou 10-15 cm), les cartes de contamination en ¹³⁷Cs présentent la même distribution spatiale et que les teneurs mesurées dans le niveau superficiel sont plus élevées. En plus, le niveau superficiel est celui qui contribue le plus aux transferts de césium par érosion. Dans chaque site, les prélèvements ont été effectués selon la méthode de Walter (1990) en trois points distincts distants de 10 m chacun et identiques du point de vue de tous les facteurs du milieu, conformément aux recommandations couramment utilisées pour les prélèvements de sols (Baize, 1988). Les mesures sont effectuées à l'aide d'un décimètre et chaque point d'échantillonnage est marqué d'un piquet peint à l'aide d'une bombe aérosol pour permettre une reconnaissance ultérieure. Pour chaque station en somme, on dispose de trois paquets contenant les trois

échantillons de sol prélevés en chaque point. Le type de sol a été défini à partir de la description des différents horizons rencontrés pour chaque site.

Une description précise de la station est réalisée à l'aide de fiches de terrain types: description de la végétation, des situations géographique, topographique et du profil pédologique. La prospection du sol s'est faite à la tarière et la détermination du type de sol a été définie à partir de la description des différents horizons rencontrés pour chaque station.

Les échantillons sont ensuite acheminés au laboratoire pour y subir tous les traitements préalables aux analyses à savoir le séchage, le tamisage à 2 mm, la pesée. Les échantillons sont ensuite conservés dans des boîtes étanches jusqu'à leur analyse.

Outils indispensables au travail de terrain: GPS, boussole, truelle, marteau et cylindre, sachets, tarière, piquets, bombe, marqueurs.

IV– Mesures d'activités en radiocésium dans les échantillons de sol

IV-1 Préparation des échantillons

Tous les échantillons de sol ont été séchés à 60-70°C à l'étuve pendant 48h. Ensuite, les sols ont été broyés et tamisés à 2 mm pour éliminer les éléments grossiers. Les fractions fines obtenues sont alors introduites dans des boîtes en plastique sphériques dont le diamètre est 40 mm et l'épaisseur 18 mm et peuvent contenir jusqu'à 40 g d'échantillon selon sa densité. Ces boîtes préalablement tarées sont remplies de manière à ce que la géométrie obtenue soit la plus proche de celle du standard utilisé pour l'étalonnage du spectromètre gamma.

IV-2 Dosage de l'activité en césium

Les dosages d'échantillons de sol sont réalisés à l'aide d'un spectromètre gamma dont le dispositif est constitué d'un détecteur au germanium hautement pur (HPGe: High Purity Germanium) et d'un analyseur multicanaux géré par le logiciel *INTERWINNER40* version 4.1 en mode gamma (Eurisys Mesures, Saint Quentin en Yvelines, France). La mesure est faite sur la totalité du spectre entre 20 et 20 000 keV. L'activité du ^{137}Cs est calculée à partir du pic à 661,657 keV. La source est une source multigamma 9ML01-RGME15 de CERCA Framatome, groupe Areva.

Description du spectromètre gamma: l'outil compte le nombre de désintégrations du noyau émises par l'échantillon par unité de temps t . La désintégration du noyau du césium 137 s'accompagne de l'émission de rayonnements ionisants, un rayonnement gamma issue d'un descendant du ^{137}Cs appelé baryum137. L'unité de mesure est le Becquerel par gramme de masse sèche (Bq.g^{-1} MS) et 1 Becquerel équivaut à une désintégration par seconde. Le calibrage de l'appareil a été fait à l'aide des standards fournis par le fabricant et la date de référence choisit coïncide avec les premiers jours de l'accident du réacteur numéro 4 de la centrale nucléaire de Tchernobyl, le 1^{er} Mai 1986. Plusieurs tests ont été effectués afin de choisir d'une part, la boîte dont la géométrie était la plus proche possible de celle du standard utilisé et d'autre part, le temps d'acquisition le plus approprié et adapté à la contamination de nos échantillons de sol. Notons que les activités en césium de nos échantillons de sol sont relativement faibles.

Chaque échantillon de sol a été dosé pendant 24h (86400 secondes) dans les boîtes de même calibre que celles du standard. L'incertitude de comptage sur la mesure est au maximum de 10%.

L'activité surfacique exprimée en Bq.m^{-2} a été calculée à partir des activités en Bq.kg^{-1} en utilisant la densité apparente mesurée dans les sols au niveau de chaque station de prélèvement.

V- Analyses des caractéristiques de sols

Les mesures de pH eau distillée et pH KCl, ainsi que l'évaluation de la quantité totale de carbone contenu dans les échantillons de sol se sont effectués selon les normes AFNOR. Ces analyses permettent de déterminer les propriétés physico-chimiques des sols et mettre en évidence certains aspects de fonctionnement des stations étudiées.

V-1 pH: NF ISO 10390 (AFNOR, 1996); (Pansu &Gautheyrou, 2003)

Les pH mesurés pour l'ensemble des échantillons de sol (0-5 cm) sont le pH à l'eau distillée et le pH au chlorure de potassium (KCl). Le pH à l'eau distillée permet de connaître l'acidité «actuelle» du sol au moment du prélèvement. Un volume de sol a été utilisé pour 5 volumes d'eau distillée (10g de sol/25mL eau distillée), l'ensemble est agité pendant 5 minutes en moyenne et ensuite, l'homogénat est resté au repos pendant 12 heures. La mesure est effectuée à l'aide d'un pH-mètre étalonné en amont.

Même scénario pour le pH KCl où l'eau distillée est remplacée par une solution de KCl (74,5g de KCl dans 1000mL d'eau distillée).

La corrélation entre pH eau et pH KCl est donnée par la figure II.5. Elle atteste de la bonne méthode de mesure.

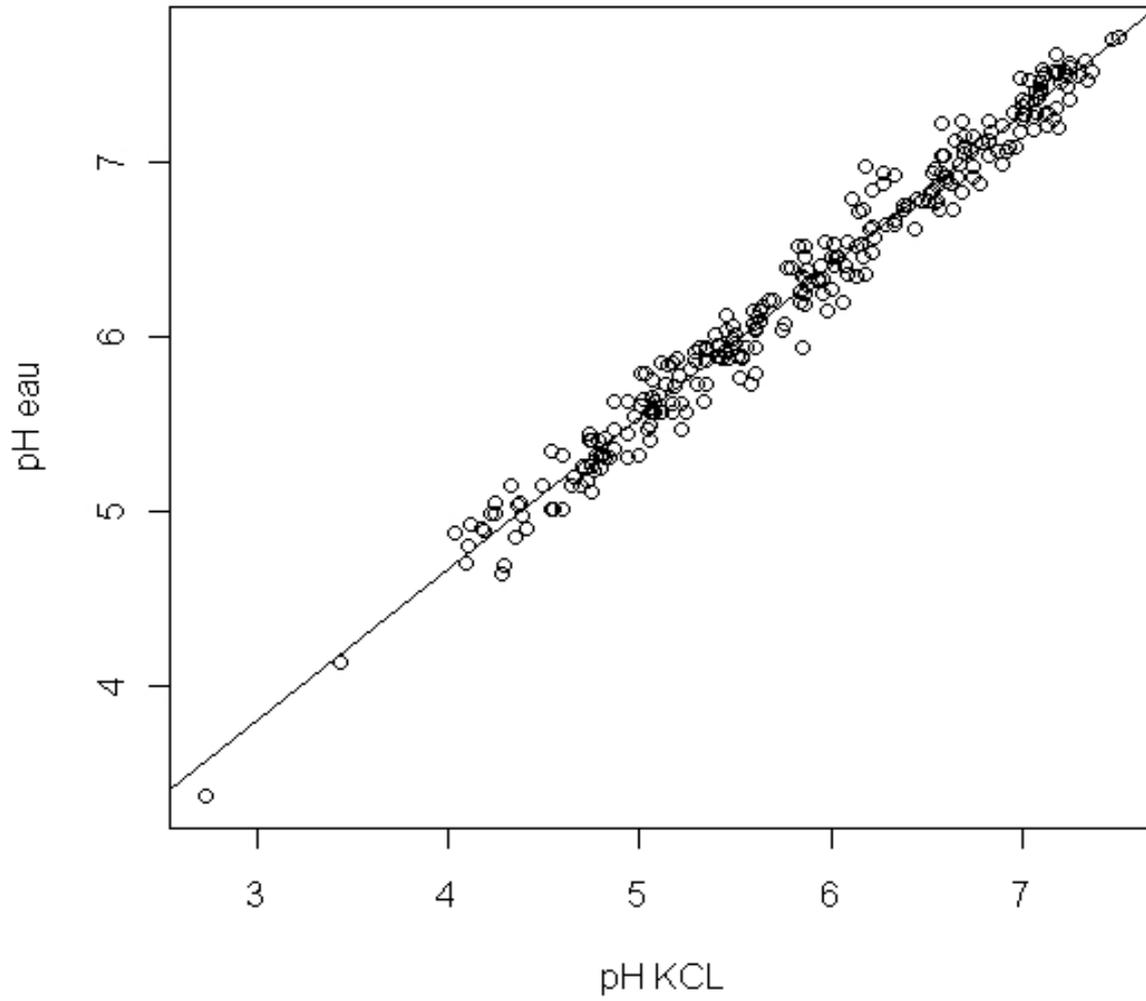


Figure II.5: corrélation entre le pH eau et le pH Kcl

V-2 Matière organique: NF ISO 10694 (ISO, 1995)

Il est question en réalité d'évaluer la quantité totale de carbone contenue dans les échantillons de sol. La matière organique est évaluée grâce à la mesure de la quantité de carbone disparu par perte au feu (Baise, 1988). La méthode a consisté à prélever 10g de sol préalablement séché et le placer pendant 12 heures dans un four à 500°C. L'échantillon de sol est à nouveau pesé et la différence de masse exprime la fraction de matière organique décarboxylée. La valeur est exprimée en pourcentage de la masse sèche initiale ou LOI («Loss On Ignition» = perte par ignition).

CHAPITRE III: ETUDE DES VARIATIONS DE LA TENEUR EN ^{137}Cs DANS LES SOLS DU BASSIN VERSANT

I - Analyse de la distribution du radiocésium dans les sols au niveau du bassin versant

Au total 275 stations ont été échantillonnées et les analyses de sol y afférentes ont été effectuées. L'objectif est de décrire si la caractérisation fonctionnelle des sols rencontrés peut expliquer la variabilité spatiale de la contamination des sols en césium au niveau du bassin versant.

I-1 Typologie des sols du bassin versant

Le bassin versant du Doubs en amont du Lac Saint-Point est localisé sur deux unités géomorphologiques, le Second Plateau et la Haute Chaîne du Jura. Localement, cette zone est marquée par un modèle glaciaire récent. L'ablation des sols a été pratiquement totale et la nouvelle phase d'altération pédogénétique s'exerce depuis 15000 ans au plus. Les sols sont monogénétiques, superficiels et formés à partir du matériau d'altération de la roche calcaire.

Les calcaires ayant réagi différemment aux altérations, on retrouve donc dans les sols, d'une part, à côté des résidus de dissolution, des cailloux très variés en nature, en taille et en abondance (ceci constituant un caractère important pour la différenciation des sols rencontrés) et d'autre part, une moraine autochtone dont la presque totalité est constituée d'éléments calcaires de toutes dimensions, de la poudre fine aux blocs. La gamme de pH est très étendue de 3,36 (station 7, sol hydromorphe à proximité du Lac Saint-Point) à 7,71 (station 112, sol agricole située dans la commune de St-Antoine) et couvre l'ensemble des pH des différents types de sols rencontrés sur le bassin versant du Doubs supérieur. Les sols observés dans la zone d'étude correspondent à six types principaux:

Les sols bruns à pellicules calcaires: ces sols présentent une teinte dominante brune, assombrie par la matière organique. Leur profondeur varie entre 10 et 30 cm environ. On les rencontre aussi bien dans les stations forestières que les stations agricoles où ils sont en général plus profonds. Le contact entre la terre fine et la roche se fait par une couche très mince d'une poudre blanc jaunâtre, qui réagit fortement à l'acide chlorhydrique. On n'observe pas d'effervescence dans la terre fine des sols rencontrés, les carbonates étant dissous aussi vite qu'ils sont libérés. Ces sols sont nombreux et représentent environ 32% des sols échantillonnés du bassin versant.

Les sols humo-calciques: ce sont des sols qui présentent une abondance des cailloux de calcaire dur, aux arrêtes vives, distribués dans toute l'épaisseur du sol. Ce type de sol n'est pas différencié en couches et ne comporte qu'un seul horizon dont l'épaisseur varie entre 12 et 18 cm avec de la terre noire très humifère. Ce sont essentiellement des sols forestiers et ils représentent approximativement 22% des sols des stations échantillonnées.

Les sols bruns lessivés: ce sont des sols de dépression (combes et dolines) ayant une forte épaisseur (allant jusqu'à 100 cm, exemple de la station 113 dans la commune de Saint-Antoine) et dépourvus de cailloux dans leur profil. Ils contiennent peu de matière organique et leur couleur est d'un brun jaunâtre assez uniforme. On décèle des caractères qui indiquent un début de lessivage. Notons la présence de sol lessivé à pseudogley et de sol lessivé podzolique. Au total, on dénombre environ 24% de ces sols.

Les sols hydromorphes (certains sols bruns calcaires et sols bruns lessivés): ce sont des tourbières dont le développement est favorisé par les dépressions glaciaires imperméables. La

stagnation d'une eau peu oxygénée et les basses températures au niveau du bassin versant inhibent la décomposition des débris végétaux, qui s'accumulent sous forme peu transformée donnant la tourbe. Ces sols représentent environ 1% des sols échantillonnés sur l'ensemble du bassin versant soit au total 4 sites sur les 275 (localisés dans les communes de Saint-Point-Lac, Chaon, Malpas et Gellin).

Les sols bruns calcaires: ce sont des sols peu épais (15-25 cm) et se subdivise en deux horizons, l'un plus humifère en surface, l'autre brun en profondeur. La transition est brutale avec la pâte calcaire emballant les cailloux; l'effervescence à l'acide chlorydrique y est généralisée. Ce sont en général des sols agricoles, mais on peut trouver marginalement quelques sols forestiers. Ils représentent environ 12% des sols sur le bassin versant.

Les sols humiques à gleys: ce sont ces sols très organiques qui se développent sur les marges des tourbières rencontrées sur le bassin versant. Sous l'humus, se trouve un horizon minéral gris verdâtre. L'épaisseur de ces sols varient beaucoup et se situent entre 20 et 40 cm avec des textures tantôt limoneuse ou encore limoneux faiblement argileuse. On les retrouve aussi bien en milieu agricole qu'en milieu forestier, en général à partir de 1000 m d'altitude. On en dénombre environ 24 stations sur 275 soit environ 9% des sols rencontrés.

Le bassin versant du Doubs en amont du lac de Saint-Point est caractérisé par une dominance des sols bruns se développant sur des substrats de nature calcaire.

I-2 Représentation cartographique des activités massiques en ^{137}Cs et des caractéristiques des sols du bassin versant

Les teneurs en césium 137 (figure III. 1) et les caractéristiques du sol (figures III. 2a, III 2b, III 2c) ont été représentées sous la forme de cartes établies à la profondeur 0-5 cm.

L'exploitation de ces cartes permet de déterminer les grandes tendances des caractéristiques édaphiques des différentes parties du bassin versant. Le bassin versant du Doubs en amont du Lac-Saint-Point présente une grande diversité des contextes écologiques liés à une grande hétérogénéité des substrats géologiques (calcaires, dépôts glacières avec entre autres les différents types de moraine, alluvions modernes) et une grande hétérogénéité de la géomorphologie. Il est constitué d'une vallée (où prédominent les prairies naturelles), plateaux et sommets montagneux dominés par des forêts.

Les cartes permettent la représentation de la distribution spatiale de la contamination en césium 137 des sols à 0-5 cm de profondeur sur l'ensemble du bassin versant. L'examen des cartes permet de mettre en évidence le fait que la distribution des teneurs en césium sur le bassin versant montre des différences importantes témoignant de l'hétérogénéité marquée de la répartition du césium137 et celle du milieu étudié. Les zones présentant les contaminations les plus élevées sont localisées dans la partie sud et sud-est du bassin versant. On n'observe pas de gradient de contamination en fonction des coordonnées spatiales. Les sols les plus fortement contaminés sont les sols forestiers.

La contamination moyenne en césium 137 est de $82,69 \text{ Bq.kg}^{-1}$ soit 3750 Bq.m^{-2} . L'activité médiane du radionucléide est de 72 Bq.kg^{-1} avec un écart-type de $50,70 \text{ Bq.kg}^{-1}$.

La plus faible activité en césium 137 est de 16 Bq.kg^{-1} soit 1063 Bq.m^{-2} enregistrée pour la station 138 (sol agricole dans la commune de Labergement-Ste-Marie) et la plus forte activité est de 360 Bq.kg^{-1} soit 15205 Bq.m^{-2} enregistrée pour la station 245 (sol forestier localisée dans la commune de Villedieu-les-Mouthe).

En résumé, pour les 5 premiers centimètres du sol:

Etude des variations de la teneur en ^{137}Cs dans les sols du bassin versant

- plus de la moitié des prélèvements (173 sur 275) du bassin versant montrent des activités inférieures ou égales à 85 Bq.kg^{-1} de masse sèche, représentant précisément la contamination de 62,90% des stations échantillonnées. Environ 60% de ces prélèvements ont été effectués sur des sols agricoles et les 40% sur des sols forestiers.

- 28,36% des prélèvements (78 sur 275) présentent une activité comprise entre 85 et 154 Bq.kg^{-1} de masse sèche. Moins de 10% de ces prélèvements ont été fait sur des sols agricoles, l'essentiel des sols ici étant des sols forestiers (71 stations).

- 15 stations et donc 5,45% des prélèvements ont une activité comprise entre 154 et 223 Bq.kg^{-1} de masse sèche. Ces prélèvements ont été effectués exclusivement sur des sols forestiers.

- Seulement 3,27% des prélèvements montrent une activité supérieure à 223 Bq.kg^{-1} mais n'excédant pas 360 Bq.kg^{-1} de masse sèche. Ceci représente l'activité obtenue pour 9 stations échantillonnées. Ici aussi les sols sont tous forestiers.

Au final, sur les 275 stations échantillonnées, 110 prélèvements ont été effectués sur des sols agricoles (prairie, cultures) qui présentent des valeurs de contamination des sols en césium 137 les plus faibles. L'activité en ^{137}Cs la plus importante pour ces sols est de 132 Bq.kg^{-1} de masse sèche (station 76 dans la commune de Malpas). Les sols forestiers représentent 165 des prélèvements effectués sur l'ensemble du bassin versant. Les niveaux de contamination de ces sols sont nettement plus élevés (360 Bq.kg^{-1} pour la station forestière possédant l'activité en césium 137 la plus élevée) que ceux relevés dans les sols agricoles.

RECAPITULATIF:

- Les teneurs en césium 137 au niveau des sols à 0-5 cm de profondeur montrent une distribution spatiale très hétérogène.

- Les sols forestiers présentent des valeurs d'activité massique en césium 137 en général plus importantes que les sols agricoles

- .

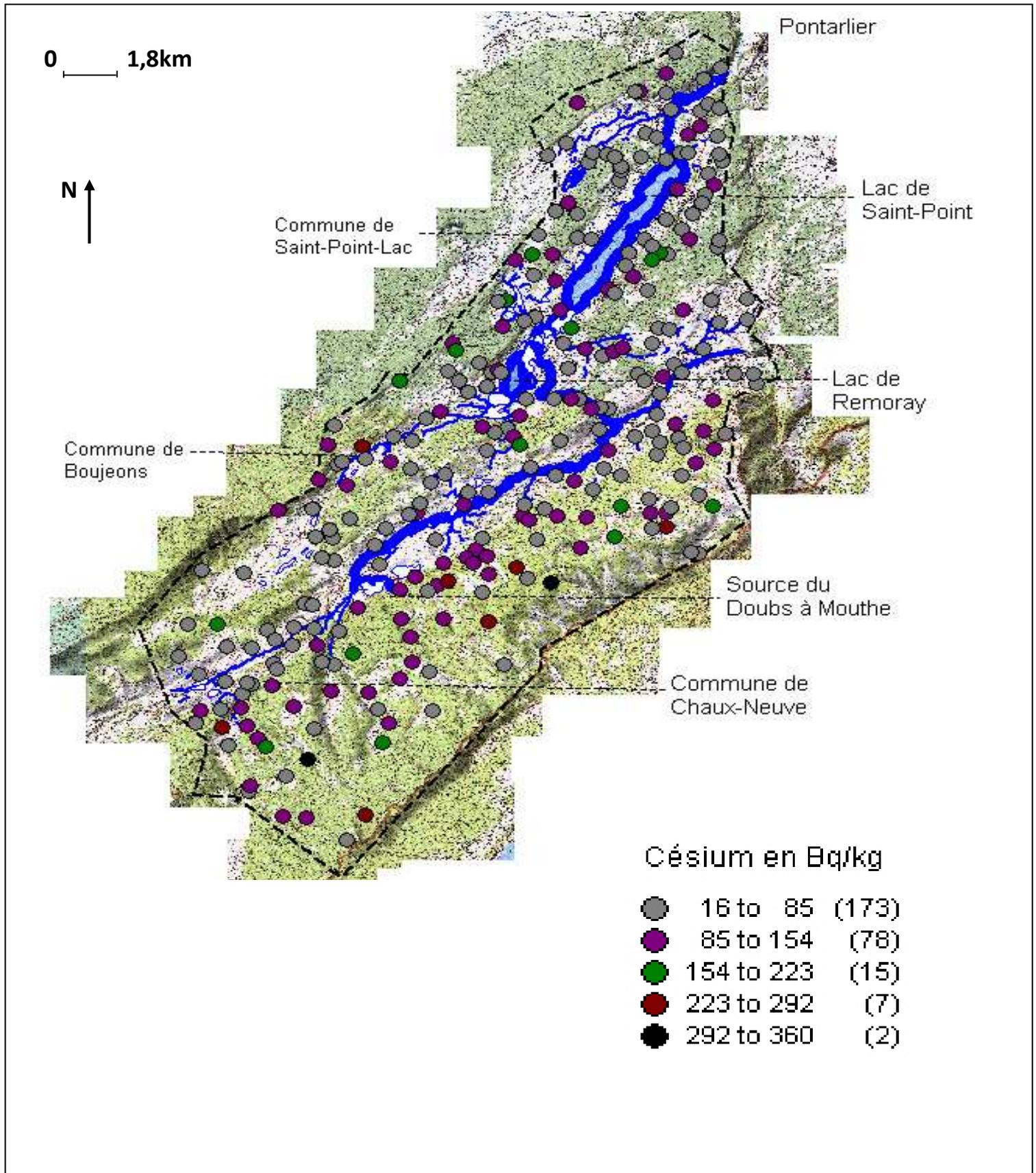


Figure III.1: Carte de la contamination en césium des sols à 0-5 cm en Bq.kg^{-1}

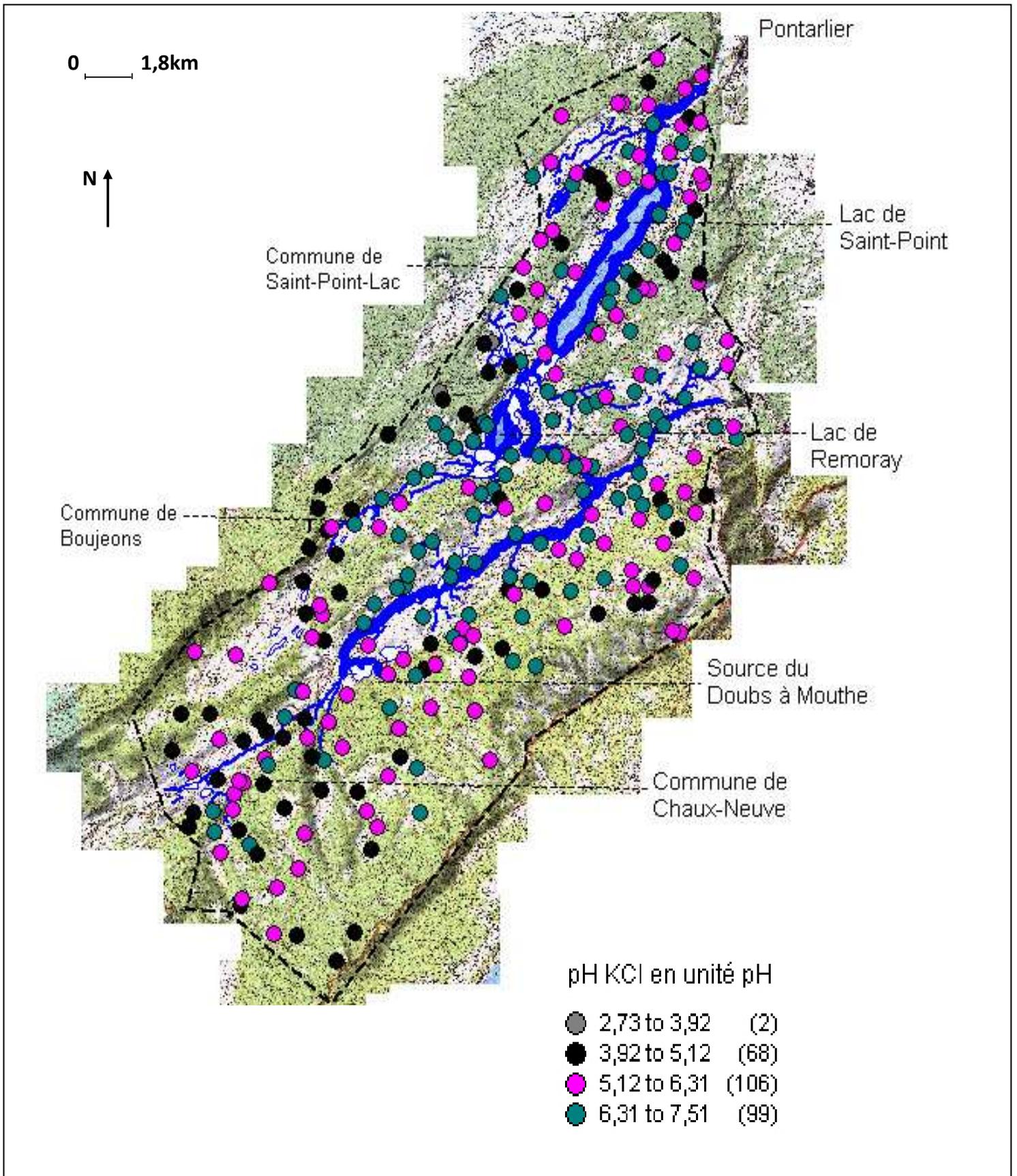


Figure III.2a: Valeurs du pH KCl des sols à 0-5 cm

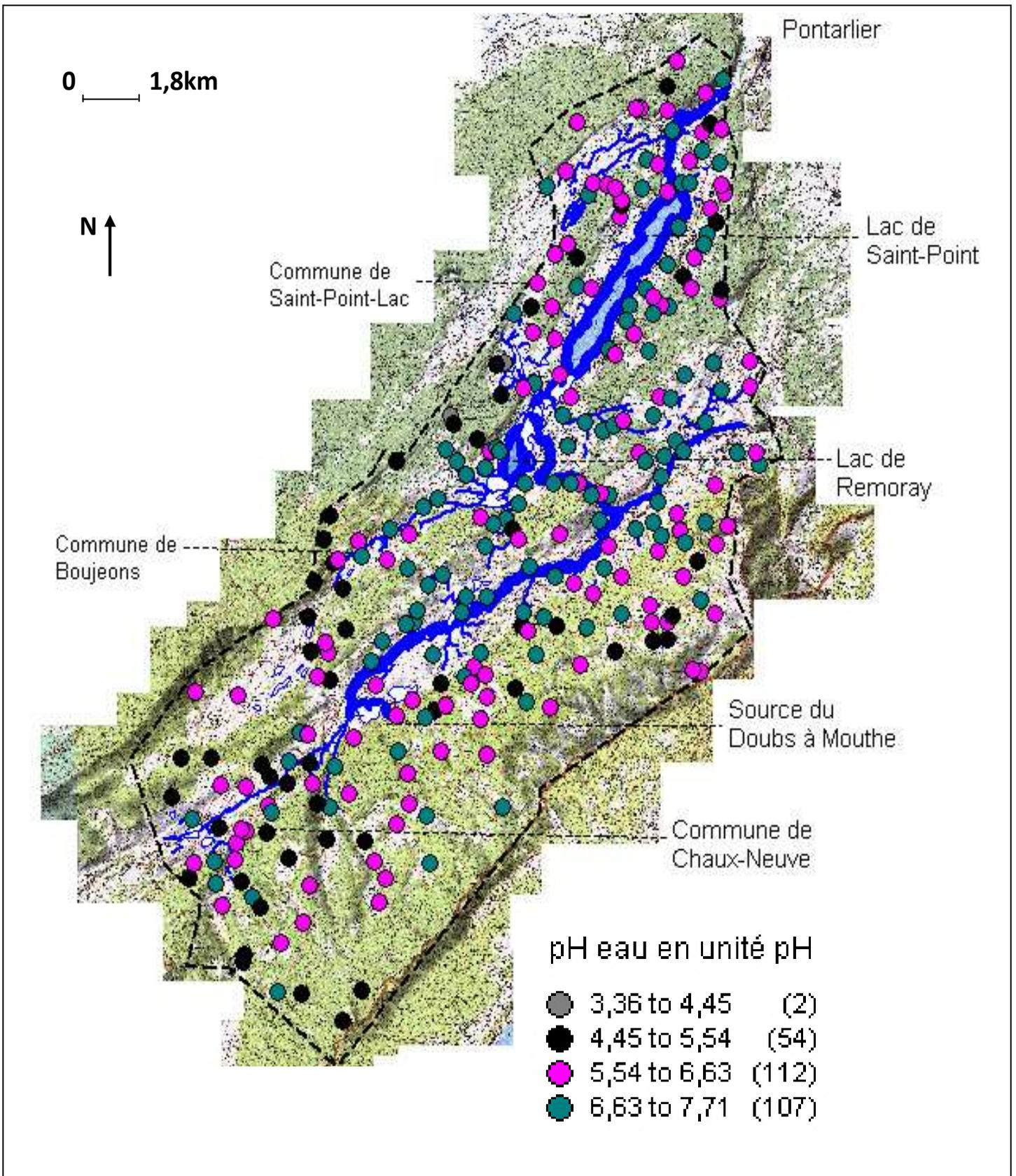


Figure III.2b: Valeurs du pH eau des sols à 0-5cm

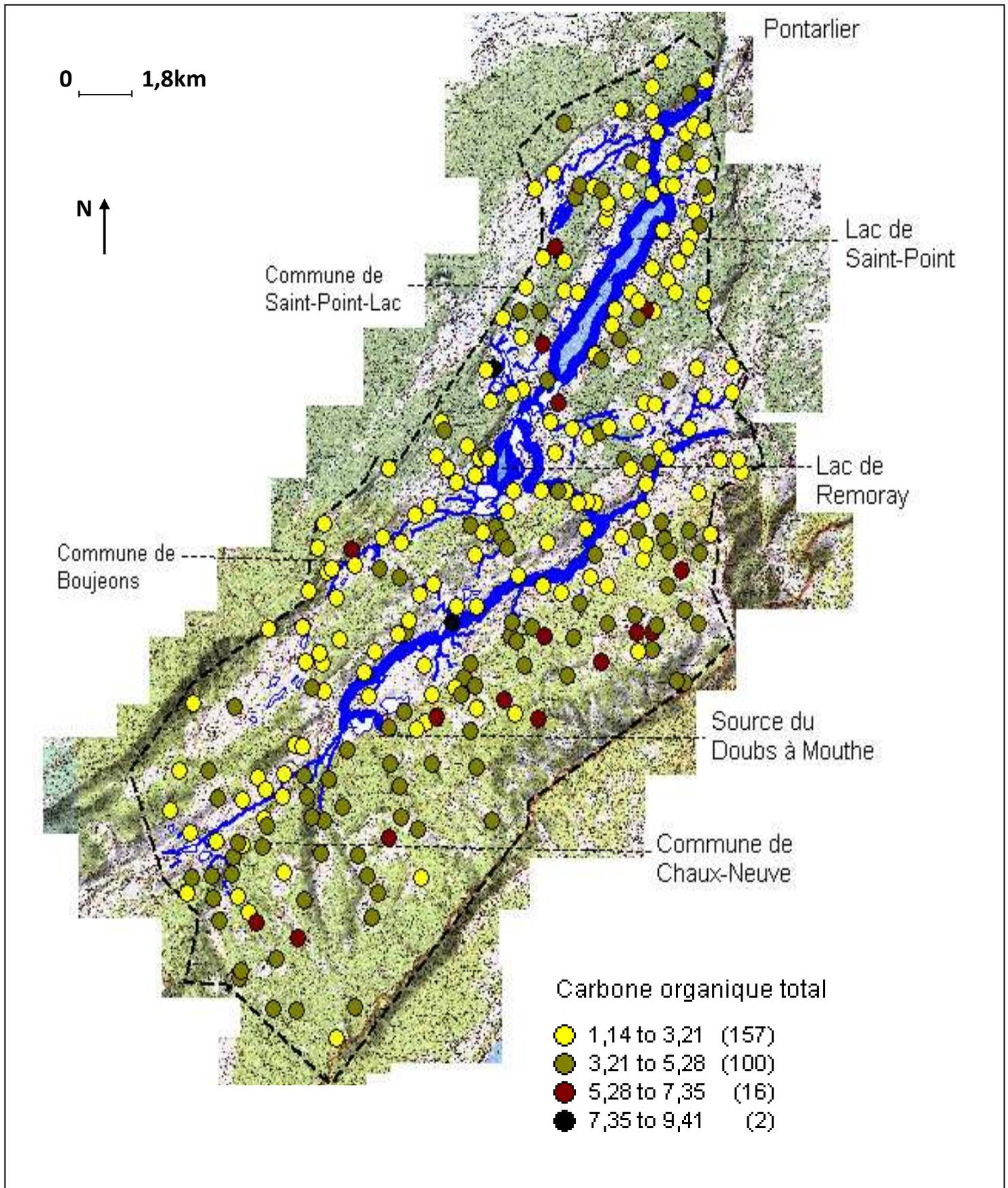


Figure III.2c: Teneur en carbone organique dans les sols à 0-5 cm

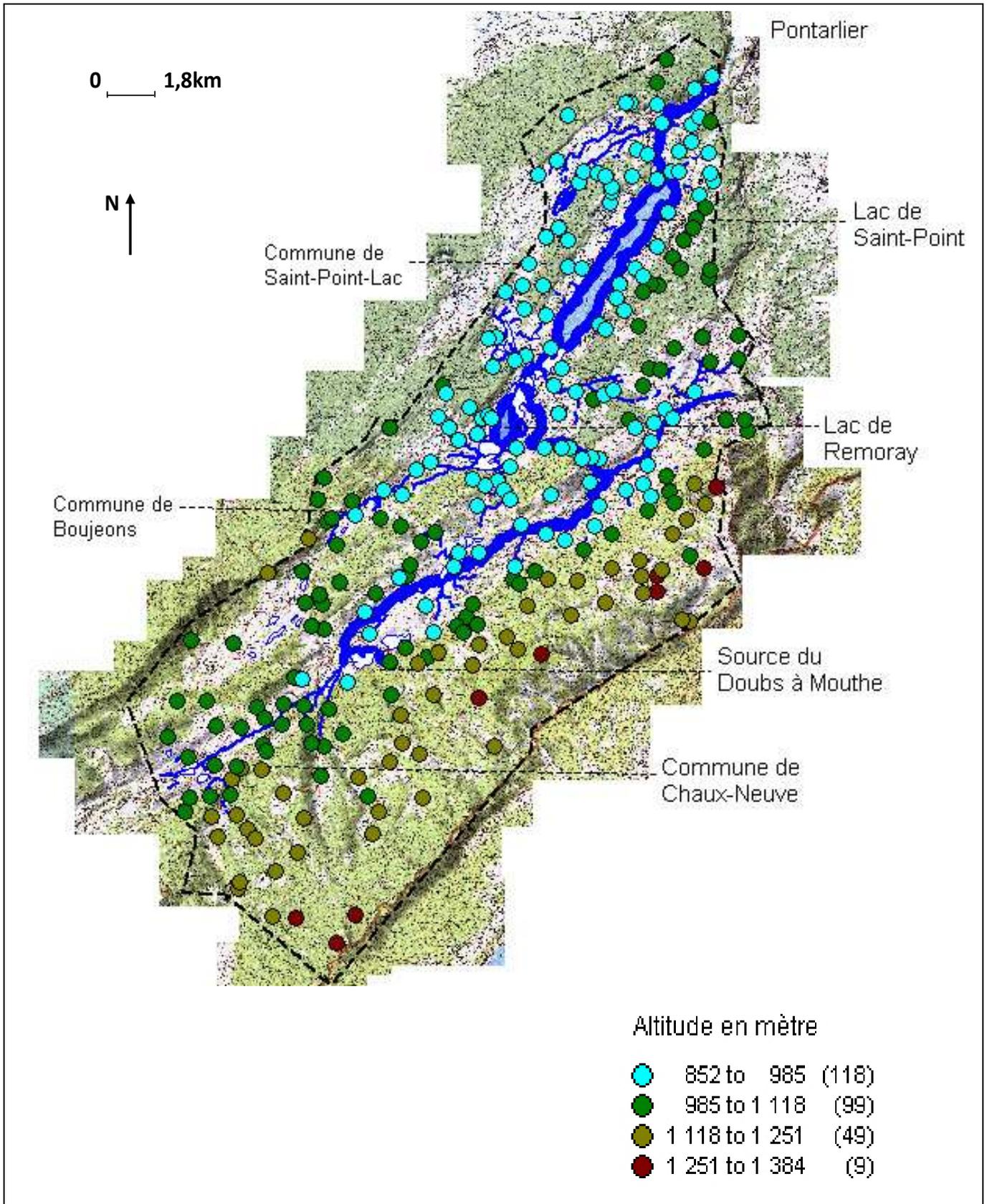


Figure III.2d: Répartition cartographiques des altitudes(m)

I-3 Distribution spatiale de l'activité surfacique en ^{137}Cs à travers les différents compartiments du bassin versant

L'activité surfacique exprimée en Bq.m^{-2} a été calculée à partir des activités en Bq.kg^{-1} . Pour transformer les activités massiques (becquerel par kg de masse sèche de sol) en activités surfaciques (becquerel par mètre carré de masse sèche de sol), nous avons considéré que la radioactivité était tout entière contenue dans les 5 premiers cm de sols que nous avons échantillonnés en utilisant la densité apparente mesurée sur les prélèvements de 100 cm^{-3} .

La relation entre les deux grandeurs (cf chapitre Matériel et Méthodes) est donnée par:

$$C_{\text{Bq.m}^{-2}} = C_{\text{Bq.kg}^{-1}} * (1000) * \text{DA} * 0,05$$

Où:

$$C_{\text{Bq.m}^{-2}} = \text{teneur en césium dans les sols en } \text{Bq.m}^{-2}$$

$$C_{\text{Bq.kg}^{-1}} = \text{teneur en césium dans les sols en } \text{Bq.kg}^{-1}$$

$$\text{DA} = \text{densité apparente en } \text{g.cm}^{-3}$$

$$0,05 = \text{épaisseur de sol considérée en m}$$

Les teneurs en césium calculées en Bq.m^{-2} et les caractéristiques du sol ont été représentées sous la forme de cartes établies à la profondeur de 0-5 cm (figure III.3). On note une grande hétérogénéité de la teneur surfacique en césium à l'échelle du bassin versant. Cette variabilité spatiale s'explique vraisemblablement par la forte hétérogénéité des retombées atmosphériques au moment du dépôt et par le fonctionnement écologique du milieu.

L'activité surfacique moyenne est de 3583 Bq.m^{-2} , mais la variabilité spatiale est très grande. L'activité la plus faible en césium 137 est de 989 Bq.m^{-2} : elle est consignée au niveau de la station 138 au niveau de la commune de Labergement-Ste-Marie) et l'activité la plus importante, 12042 Bq.m^{-2} , est observée dans la station 245, localisée sur la commune de Villedieu-les-Mouthe).

L'observation des mesures effectuées montre qu'un peu moins de la moitié des prélèvements ont des activités surfaciques inférieures ou égales à 3100 Bq.m^{-2} , ceci représente 120 sites sur 275 et donc 43% des stations échantillonnées. La plus grande partie de ces échantillons faiblement contaminés correspondent à des sols agricoles. Pour les prélèvements présentant une activité surfacique comprise entre 3100 Bq.m^{-2} et 5300 Bq.m^{-2} , tous les modes d'occupation du sol sont représentés. Ces niveaux d'activité intermédiaires sont rencontrés aussi bien sur les sols agricoles, que sur les sols forestiers ou des sols correspondant aux zones de pré-bois. Seulement 15m des prélèvements (37 prélèvements sur 275) montrent une activité supérieure à 5300 Bq.m^{-2} qui ne dépasse jamais 12100 Bq.m^{-2} . Ces prélèvements les plus fortement contaminés sont essentiellement ceux effectués sur les sols forestiers et sur les sols hydromorphes rencontrés dans les zones humides.

La stratégie d'échantillonnage développée au cours de ces travaux a permis de cartographier les données et de construire des représentations spatiales de l'activité en ^{137}Cs et d'un certain nombre de paramètres environnementaux avec en particulier, la teneur en matière organique, le pH des sols et de l'altitude. La répartition spatiale des contaminations est liée aux ensembles géomorphologiques présents dans le bassin versant. Les plateaux et sommets couverts par la forêt entourent une vallée centrale où prédominent les prairies naturelles. La zone centrale correspondant à la vallée centrale est la moins contaminée, alors que les zones présentant les contaminations les plus élevées sont localisées dans une bande située à l'est du bassin versant et orientée nord-est sud-ouest. Des valeurs d'activité élevées sont également rencontrées dans une zone située au nord et au nord-ouest. Ces zones plus fortement contaminées correspondent relativement aux massifs forestiers installés sur les plateaux et sur les sommets. Les cartes révèlent également que les variations spatiales de la teneur en matière organique des sols, du pH des sols et de l'altitude présentent globalement la même répartition. L'importance de ces informations permet de tirer un certain nombre d'enseignements sur les grandes tendances de la distribution de la contamination: la variabilité spatiale apparaît en première approche liée à plusieurs caractéristiques du milieu et notamment l'altitude, à la teneur en matière organique et au mode d'occupation du sol.

Dans la région étudiée, l'activité surfacique en césium augmente significativement avec l'altitude. Un test de Spearman réalisé permet d'analyser la liaison entre ces deux variables quantitatives. Le coefficient de corrélation équivaut à 0,35 et le test permet de rejeter l'hypothèse nulle avec un risque d'erreur inférieur à 10^{-5} : il existe ainsi une relation positive entre l'activité surfacique en césium-137 et l'altitude. L'analyse statistique du jeu de données montre que dans le bassin du Doubs à l'amont du Lac de Saint-Point, les contaminations des sols par le césium-137 varient avec l'altitude et que les stations les plus élevées sont les plus contaminées (Fig. III.4b). Ce

résultat est proche de ceux obtenus dans les Alpes autrichiennes où la contamination de la végétation augmente avec l'altitude (Lettner et al., 2006). On peut se poser la question de savoir si ce résultat est lié à des retombées quantitativement plus importantes sur les sommets ou alors à d'autres caractéristiques du bassin versant. Les données disponibles dans la littérature ne militent pas en faveur d'une contamination initiale plus importante des zones les plus élevées. De nombreux auteurs ont travaillé sur les retombées de l'accident nucléaire de Tchernobyl en mai 1986 dans ce secteur du massif jurassien (Renaud et al., 2003, Badot et al., 2004, Renaud et al., 2004) et la petite taille du bassin versant étudié est telle que l'on peut considérer que les retombées atmosphériques y ont été relativement homogènes. Les sources de la plus forte activité des prélèvements en altitude doivent en occurrence être recherchées ailleurs. L'absence de stations météorologiques (une seule en occurrence à Mouthe) qui pourraient fournir des données relatives aux cumuls de précipitations locales n'étant disponible à l'échelle l'échantillonnage réalisé, il n'a pas été possible de mettre en perspective d'éventuels liens entre les activités et les précipitations. Les sols des plateaux et sommets sont des sols superficiels, peu épais et il est vraisemblable que la plus importante quantité de matière organique qu'ils contiennent puisse en partie rendre compte de ces activités surfaciques plus élevées. Maubert et al., (1998) propose une autre hypothèse qui réside dans le fait que la capacité d'interception des poussières et aérosols par les milieux forestiers est supérieure à celle des milieux agricoles.

Dans le bassin versant du Doubs, l'activité surfacique du ^{137}Cs augmente significativement avec la teneur en matière organique du sol. Le test de Spearman réalisé montre qu'il existe une relation positive entre l'activité surfacique du césium-137 et la teneur en matière organique ($r = 0,63$) et permet de rejeter l'hypothèse nulle avec un risque d'erreur inférieur à 10^{-5} .

L'analyse statistique de notre jeu de données montre que dans le bassin versant du Doubs supérieur, les teneurs en césium 137 des sols sont liées à leur teneur en matière organique (Fig. III.4c). C'est un résultat somme toute habituel. Les sols d'altitude sont plus riches en matière organique, en raison de la présence de roches calcaires dures dont l'altération libère de nombreux cailloux dans les sols et des pentes généralement fortes. Il s'en suit un ralentissement de la minéralisation de la matière organique du fait que les éléments grossiers qui sont présents dès la surface, libèrent une quantité importante de calcium. On note également une liaison statistiquement significative (test de Spearman, $r = 0,39$, $p < 0,05$) entre l'altitude et la teneur en matière organique. Ces résultats confirment ainsi l'hypothèse émise plus haut à savoir que les sols d'altitude présentent des activités plus élevées du fait de leur plus grande richesse en matière organique.

La distribution spatiale des teneurs surfaciques de césium sur l'ensemble du bassin versant est analogue à celle des teneurs massiques du césium, mais, les coefficients de corrélation avec les

Etude des variations de la teneur en ^{137}Cs dans les sols du bassin versant

caractéristiques du sol sont plus ou moins différents. Le calcul des activités surfaciques effectuées au cours de ces travaux ne prennent pas en compte la masse de cailloux présents dans certains sols, ce qui contribuerait à modifier la densité apparente des sols. La prise en compte de la masse des cailloux pour certaines stations se traduit par une augmentation des teneurs surfaciques en césium avec des coefficients de corrélation moins fortes que ceux relatifs aux activités massiques du césium, quelque soit le paramètre considéré (pH, carbone organique total et même l'altitude)

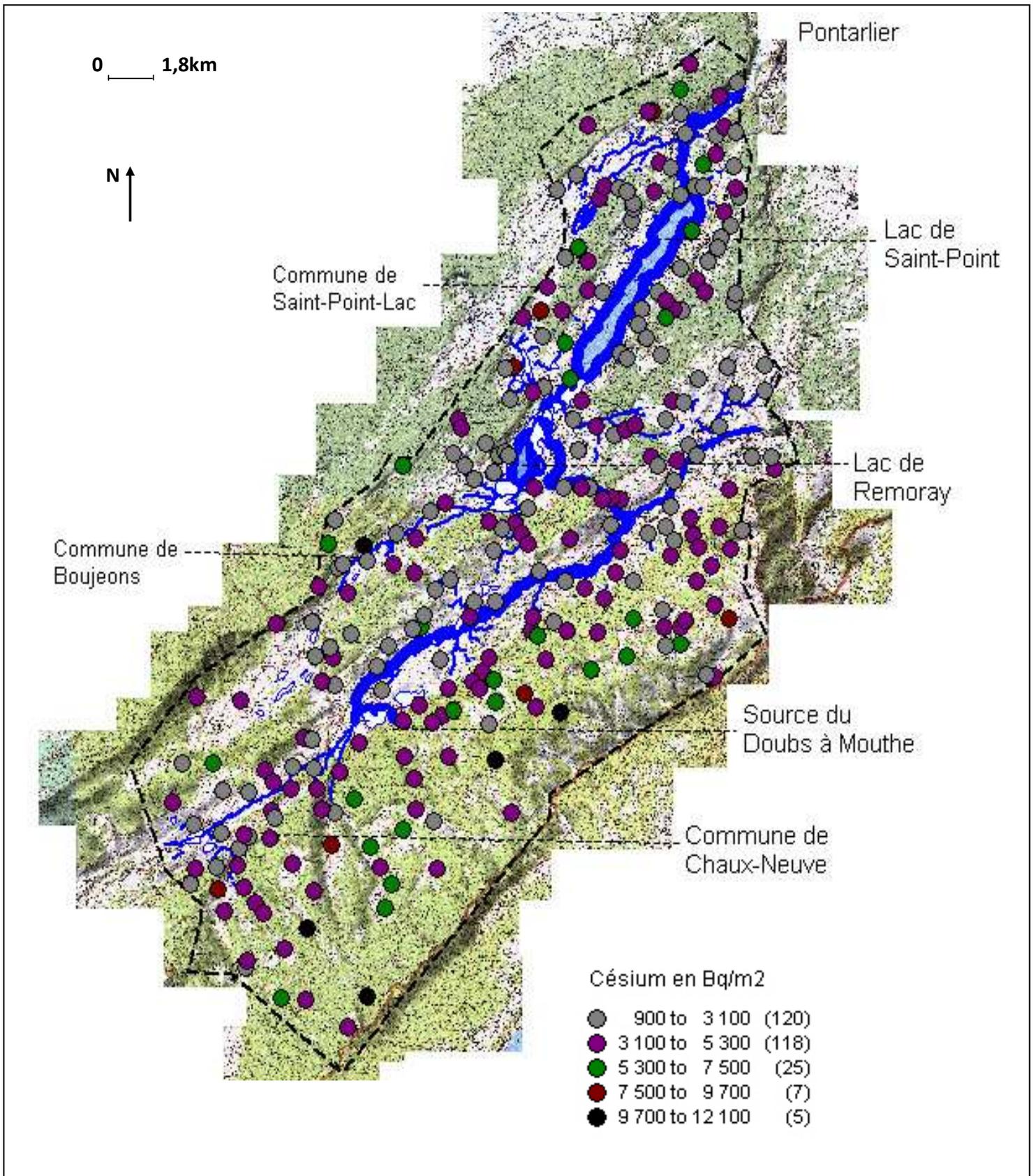


Figure III.3: Carte de la contamination en césium des sols à 0-5 cm en Bq.m⁻²

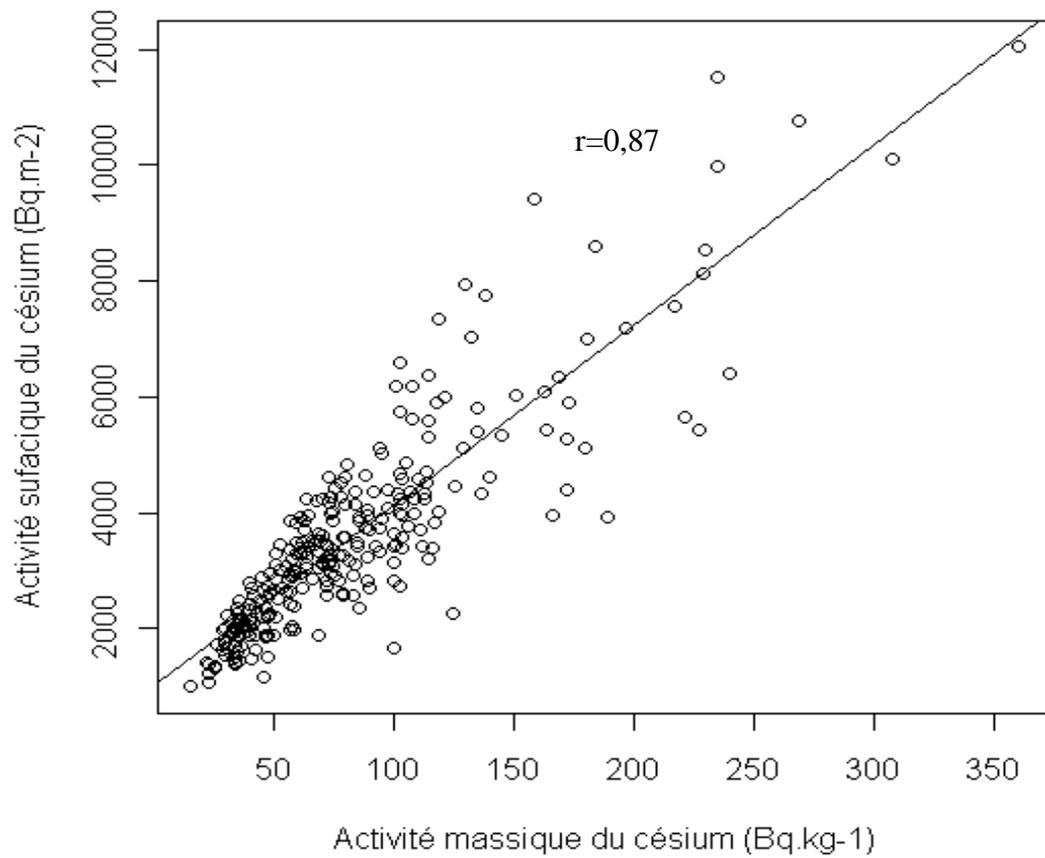


Figure III.4a: Corrélation entre activité surfacique et activité massique

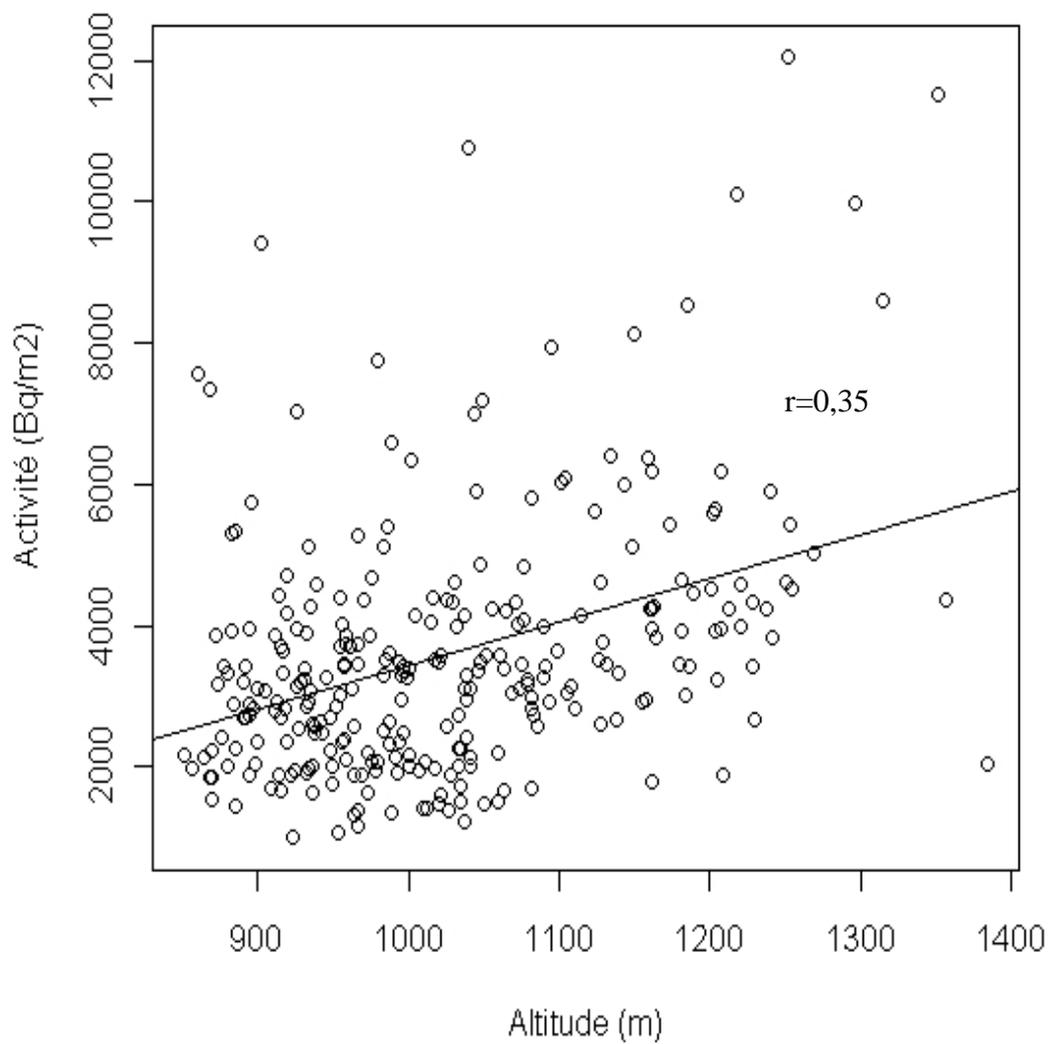


Figure III.4b: Corrélation entre activité surfacique et altitude

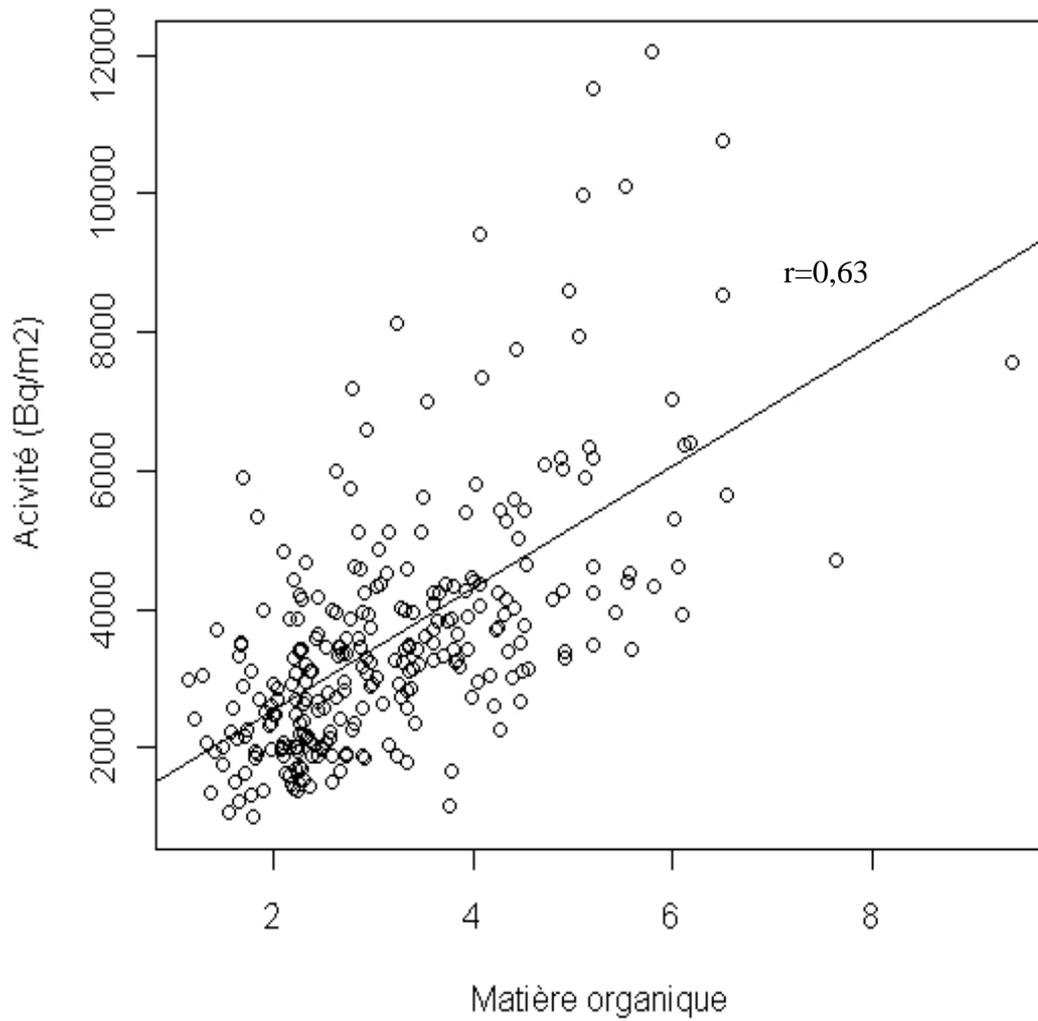


Figure III.4c: Corrélation entre activité surfacique et carbone organique total

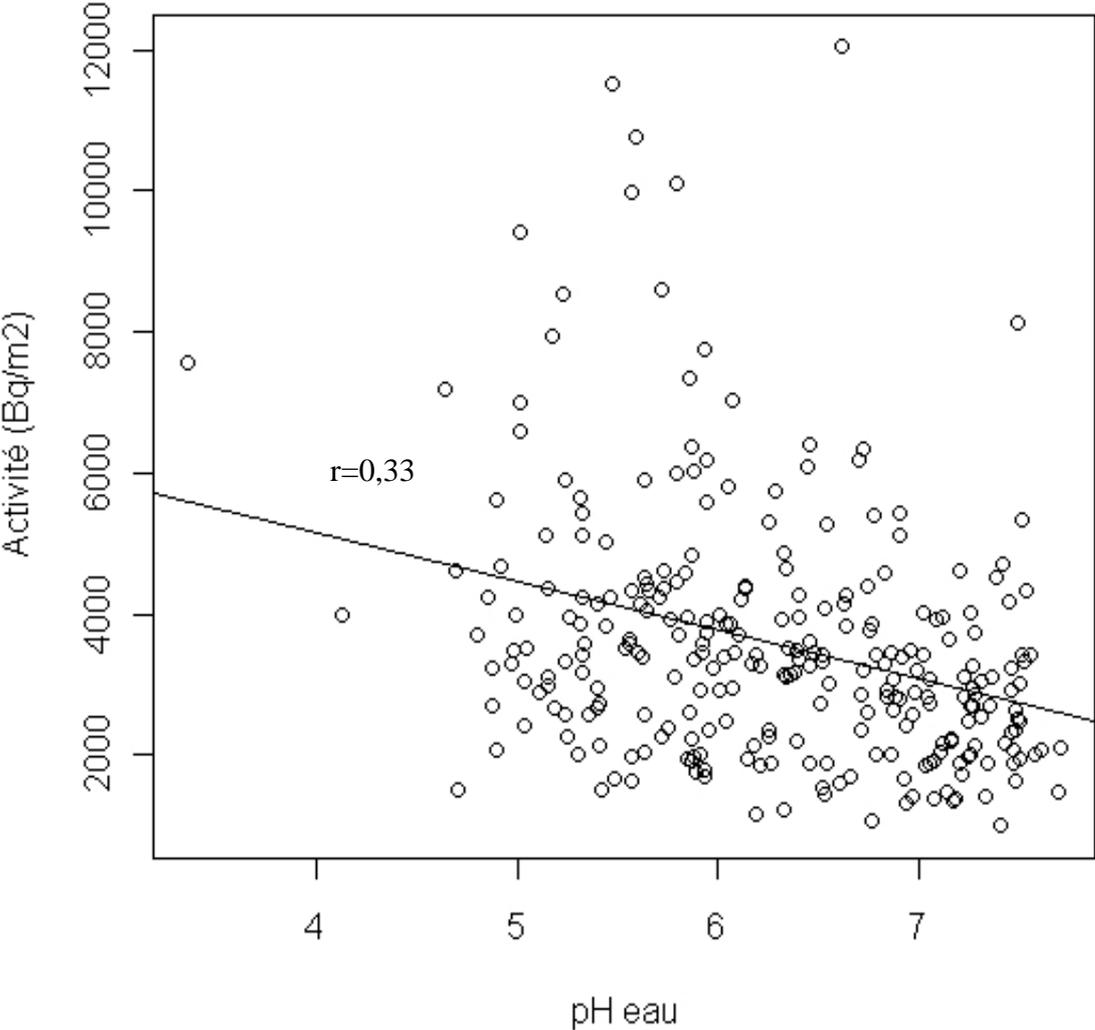


Figure III.4d: Corrélation entre activité surfacique et pH eau

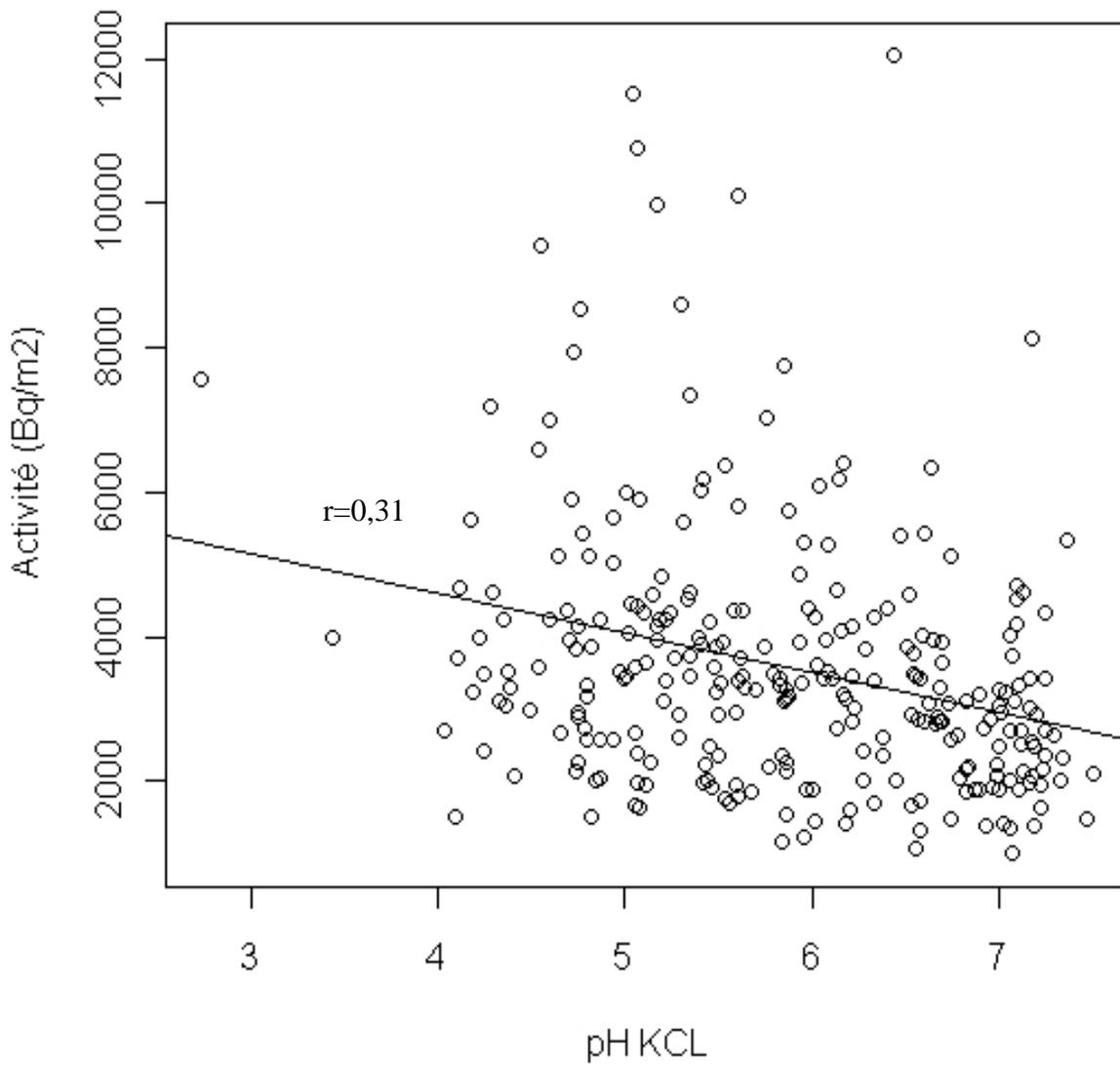


Figure III.4e: Corrélation entre activité surfacique et pH KCl

II- Résultats

Plusieurs représentations cartographiques permettent de mettre en évidence la répartition des caractéristiques écologiques des différents compartiments du bassin versant.

Au regard des résultats observés statistiquement, certaines analyses ont été effectuées pour montrer, de manière significative, la validité de constats mis en évidence au cours de l'observation qualitative des cartes. On observe une grande variabilité sur le bassin versant quelque soit le paramètre représenté.

Lorsqu'on s'intéresse au paramètre altitude, on observe une variabilité importante en ce qui concerne les stations sélectionnées sur le bassin versant. L'altitude moyenne est de 1025 m, la moins importante est de 852 m dans la vallée du Lac-Saint-Point (commune de Remoray) et la plus importante est de 1384 m près du télésiège de la citerne (commune de Le Morond).

95 stations sur les 275 échantillonnées ont des altitudes comprises entre 850 et 960 m. Ces stations sont reconnaissables dans la vallée du lac ainsi qu'au nord du bassin versant. 96 stations sont à des altitudes comprises entre 960 et 1070 m, elles se rencontrent principalement au Sud-ouest et au Nord-est de la zone d'étude. Enfin, les 84 stations restantes sont à des altitudes comprises entre 1070 et 1390 m et sont les stations que l'on retrouve dans la partie Sud, Sud-est du bassin versant .

Les caractéristiques du sol (pH, taux de carbone organique total) à 0-5 cm de profondeur montrent de très grandes variations à l'intérieur de la zone étudiée

La répartition spatiale du pH des sols à 0-5 cm de profondeur est très hétérogène. Pour le paramètre pH (eau), la gamme est très étendue avec le minimum à 3,36 au niveau de la station 7 (sol hydromorphe dans la commune de Remoray) et un maximum à 7,71 concernant la station 112 (sol agricole dans la commune de St-Antoine). Ces pH ont une valeur médiane autour de 6,29. Les sommets occupés par la végétation forestière et donc des sols forestiers présentent les pH les plus faibles alors que les sols agricoles principalement présents dans la vallée du bassin versant ont des pH élevés. Les observations présentés ci-dessus sont les mêmes que l'on observe quand à la place du pH (eau), on détermine plutôt le pH (KCl) des sols.

Etude des variations de la teneur en ^{137}Cs dans les sols du bassin versant

Les teneurs en carbone organique sont inégalement réparties sur le bassin versant. Les zones d'altitude, occupée par de la végétation forestière, affichent les plus fortes teneurs en carbone organique. C'est le cas des parties Sud, Sud-est de la zone d'étude où les sols sont très humifères

Notons la présence des tourbières où la dégradation de la matière organique est lente (stations 7, 32, 76, 304) donnant ainsi des caractéristiques édaphiques particulières.

A l'aide de ces différentes représentations, il a été possible de mettre en évidence l'existence de corrélations entre les facteurs écologiques à l'intérieur du bassin versant d'une part, et, d'autre part, entre l'activité du césium 137 et ces facteurs écologiques.

La teneur massique en césium 137 des sols a été représentée en fonction d'un certain nombre de paramètres tels que l'altitude, le pH (eau et KCl), le carbone organique totale et même des coordonnées spatiales des sites étudiés (figures 6a, 6b, 6c, 6d, 6e, 6f). La teneur massique en césium dans le sol à 0-5 cm de profondeur est nettement corrélée avec certains paramètres comme l'altitude (r^2 de 0,33), le carbone organique (r^2 de 0,70). D'autres en revanche, comme le pH eau (r^2 de 0,32) et les coordonnées spatiales (r^2 de 0,18 pour X et r^2 de 0,26 pour Y) le sont moins.

On peut observer qu'un peu plus de la moitié de la variabilité spatiale de la contamination en césium 137 des sols (r^2 de 0,70) peut s'expliquer par la teneur en carbone organique des sols. Les sols de type humo-calciques et les sols humiques à gleys présentent les valeurs de pollution en radiocésium les plus élevées. Le paramètre altitude est corrélé (r^2 de 0,33) avec la teneur en césium, la contamination en césium des sols augmenterait avec l'altitude même si on peut nuancer en disant que ce constat n'est pas général car à côté de certains sols d'altitude fortement contaminés, on peut trouver des sols faiblement contaminés.

La distribution de l'activité du césium en fonction du pH des sols ne sont significativement corrélés, il en est de même avec les coordonnées spatiales qui ne dévoile pas l'observation d'un gradient Est-ouest ou encore Nord-sud de la contamination des sols.

D'autres représentations graphiques ont permis de mettre en évidence l'existence de relations entre les différents paramètres "explicatifs". Il apparaît qu'un certain nombre de paramètres sont inter corrélés (figures III.5a, III.5b, III.5c). C'est le cas entre les paramètres «altitude» et « carbone organique total» avec un r^2 de 0,40, on observe que le taux de matière augmente avec l'altitude. C'est aussi le cas entre le paramètre «altitude» et du «pH eau» avec un r^2 de 0,32. C'est enfin le cas de la corrélation entre le taux de matière organique avec le pH eau avec un r^2 de 0,16.

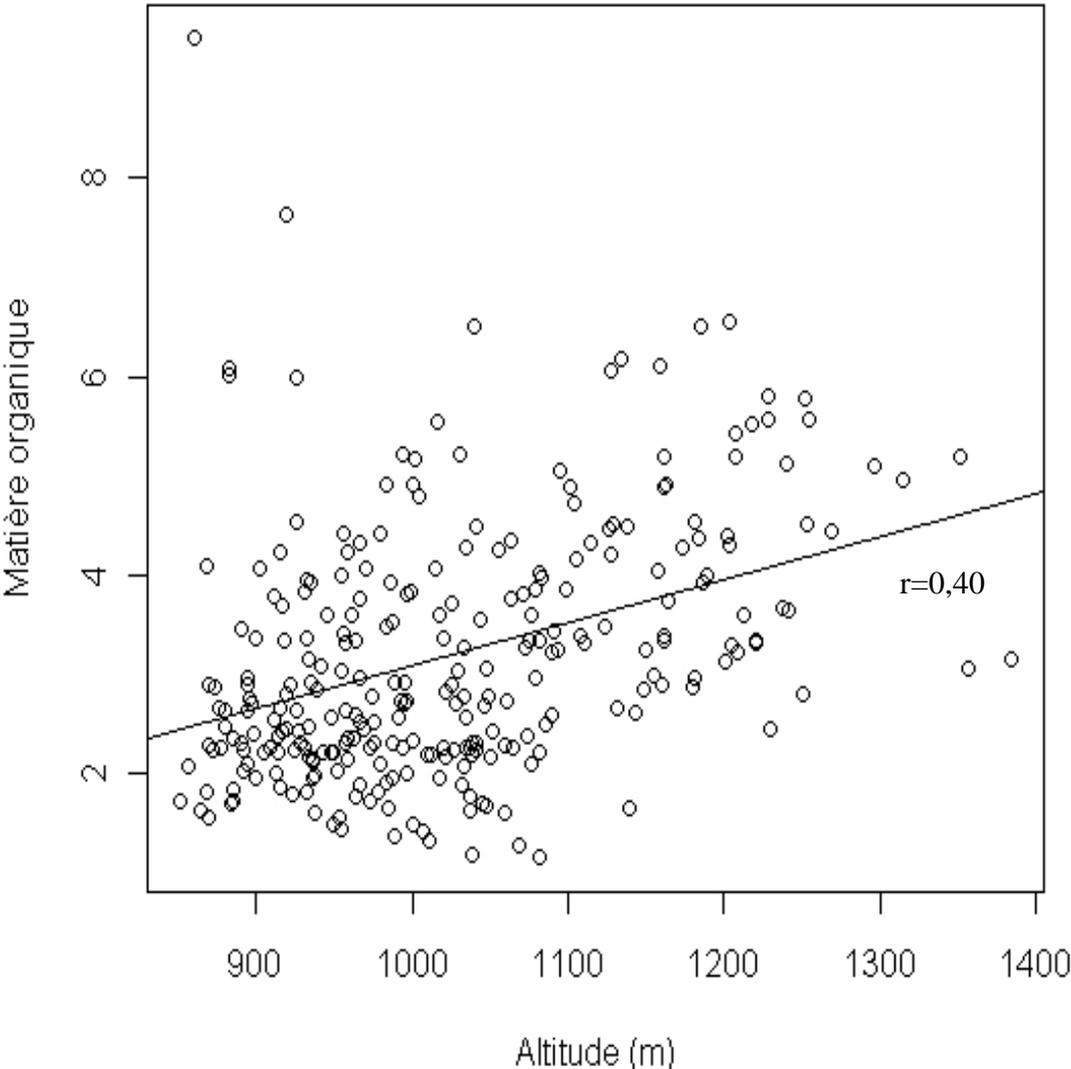


Figure III 5a: Corrélation entre carbone organique total et altitude (m)

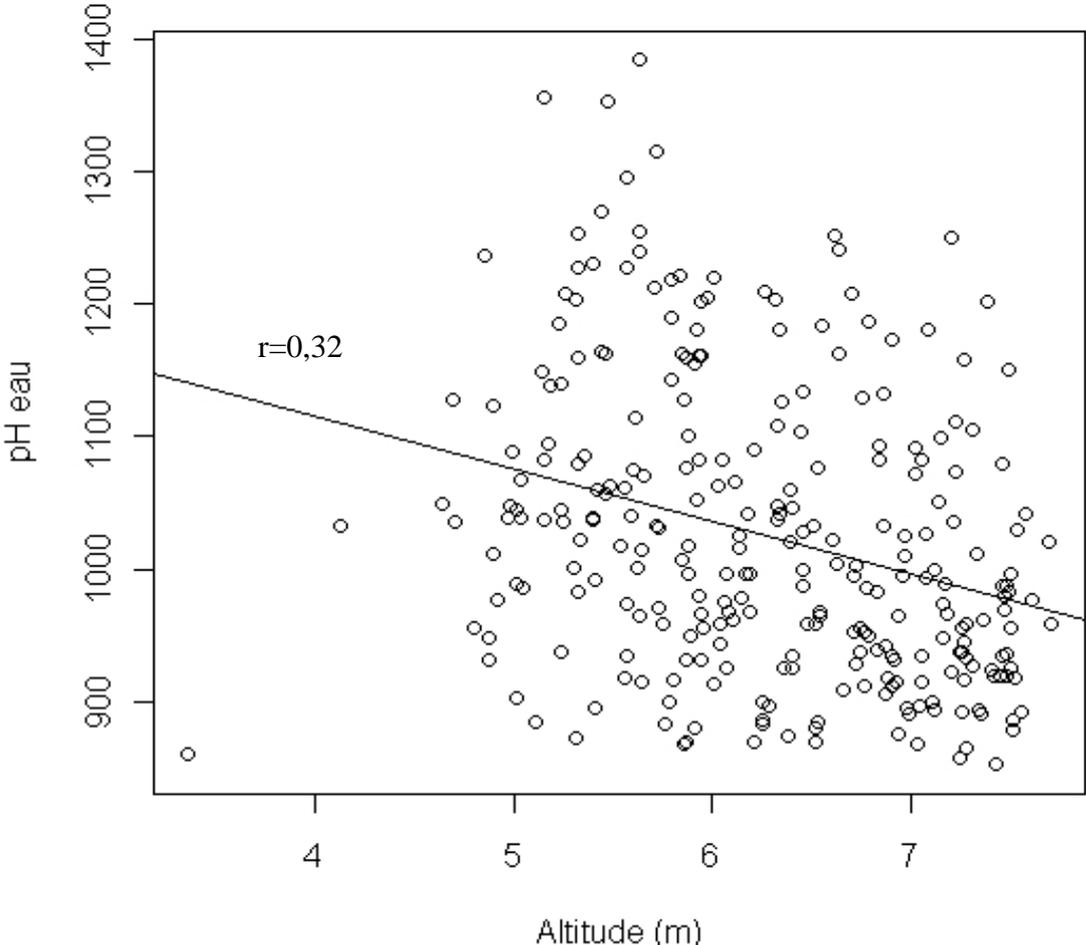


Figure III 5b: Corrélation entre pH eau et altitude(m)

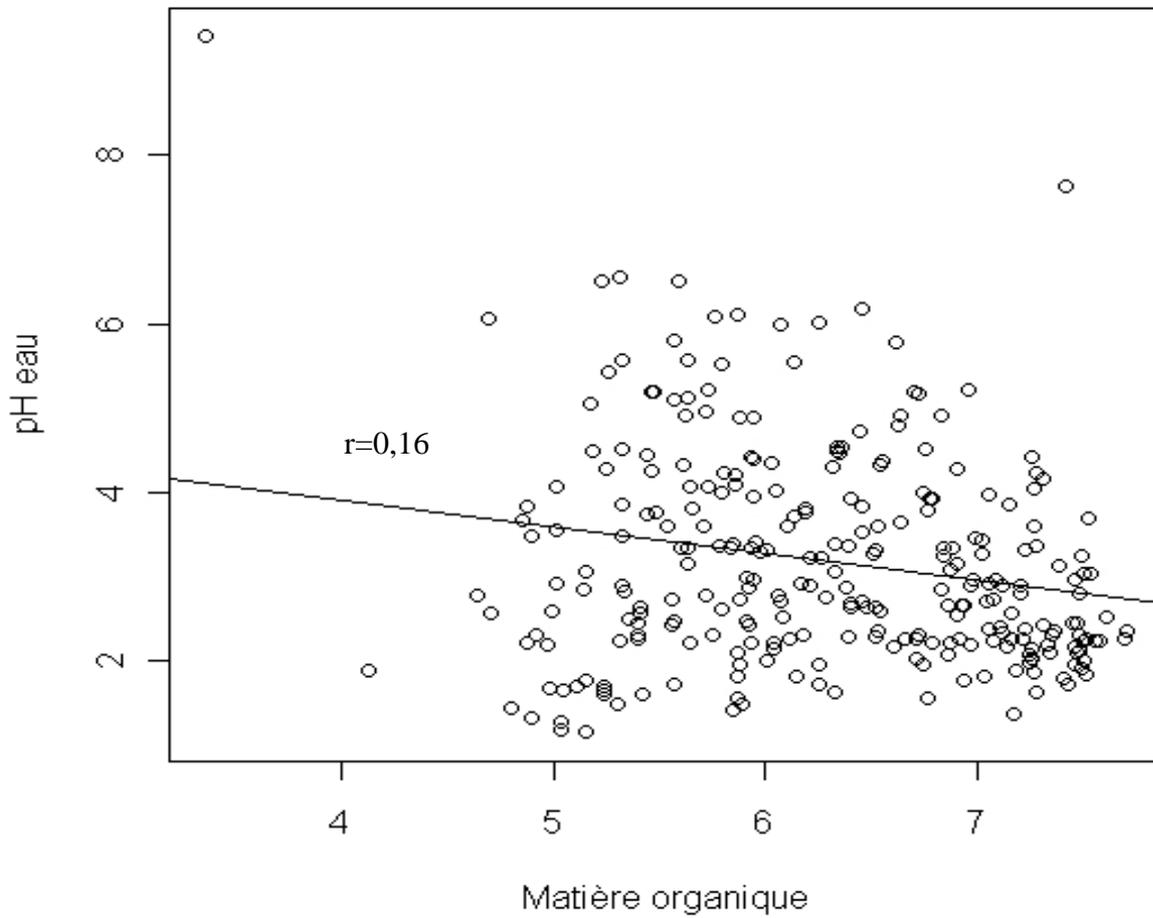


Figure III 5c: Corrélation entre pH eau et le carbone organique total

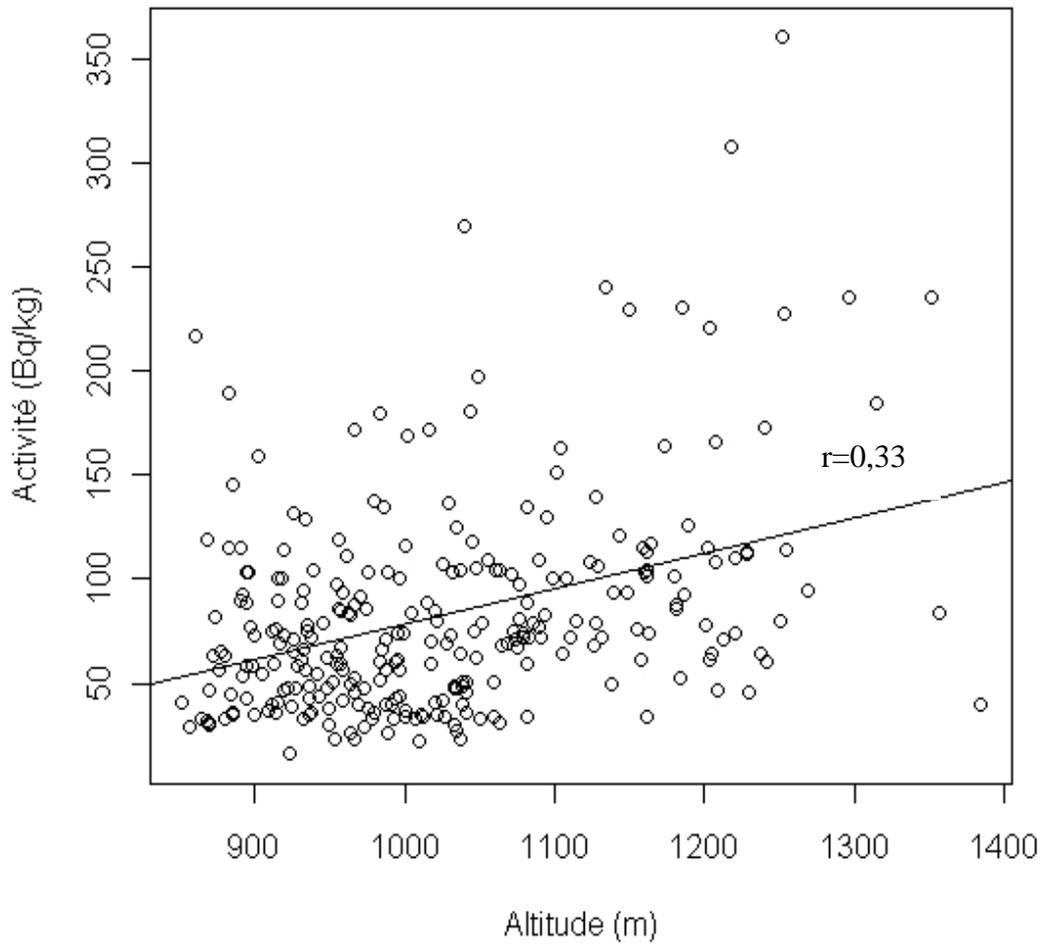


Figure III 6a: Corrélation entre activité massique ($\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$) et l'altitude (m)

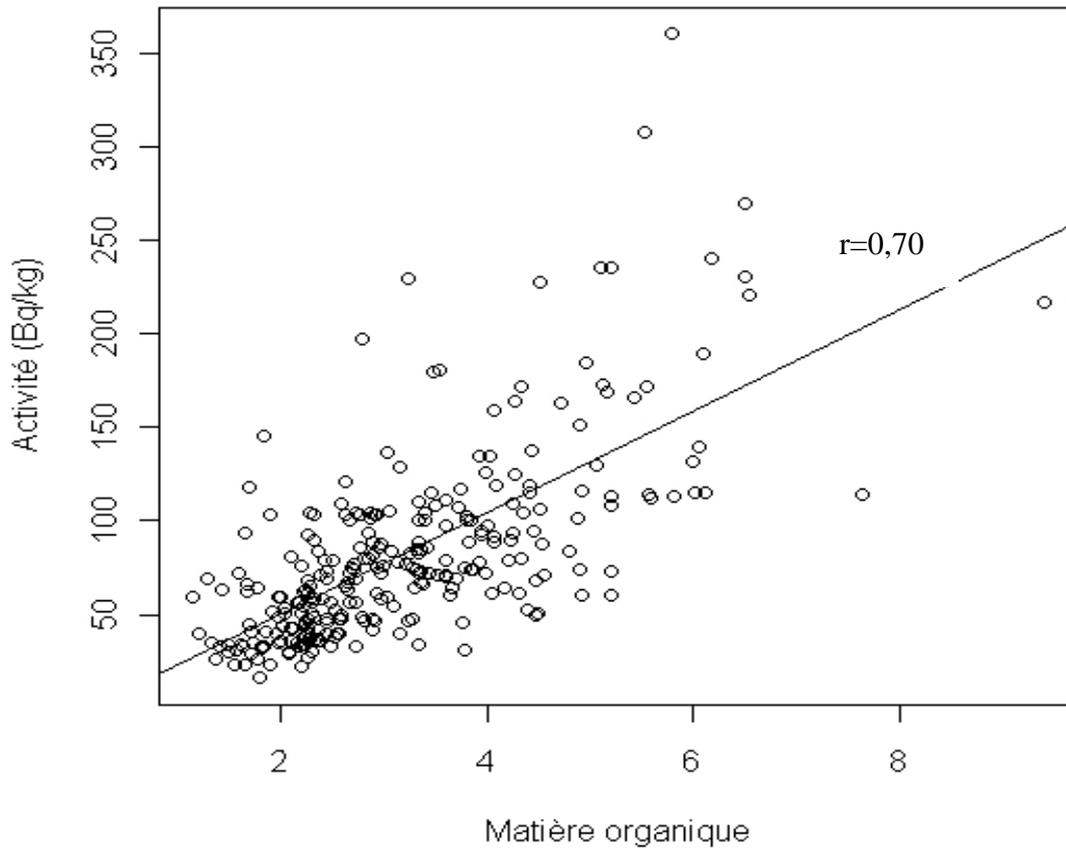


Figure III 6b: Corrélation entre activité massique ($\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$) et le carbone organique total

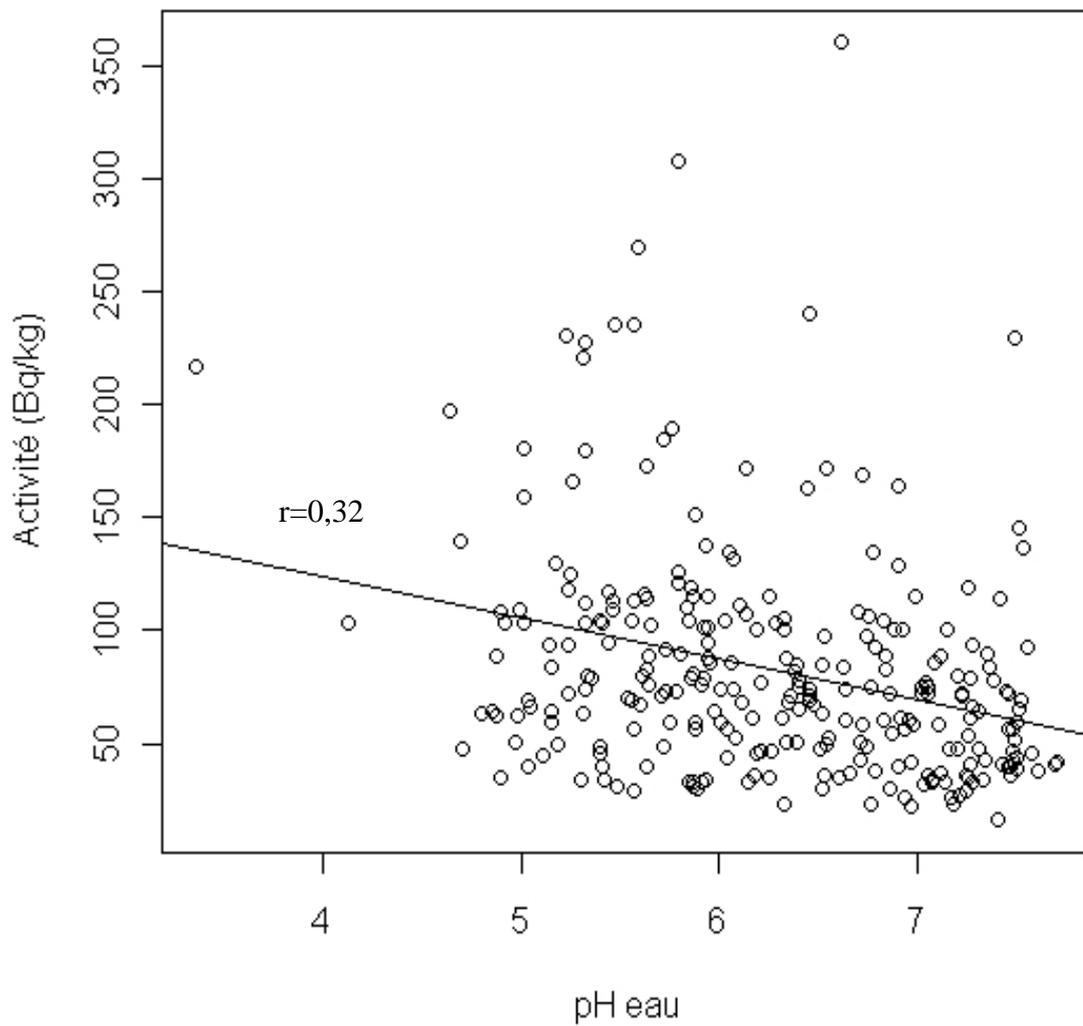


Figure III 6c: Corrélation entre activité massique (Bq.kg^{-1}) et le pH eau

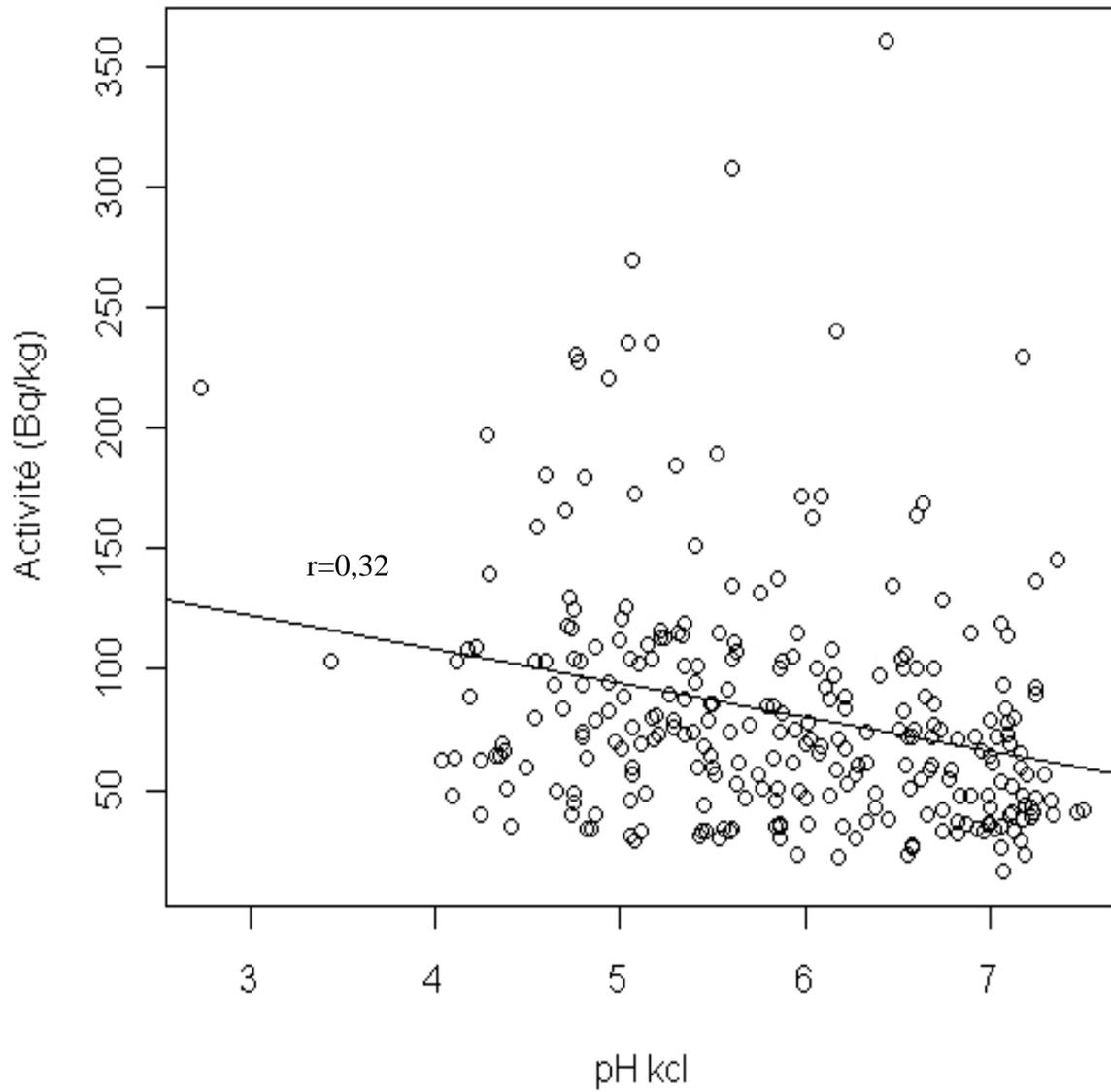


Figure III 6d: Corrélation entre activité massique (Bq.kg^{-1}) et le pH KCl

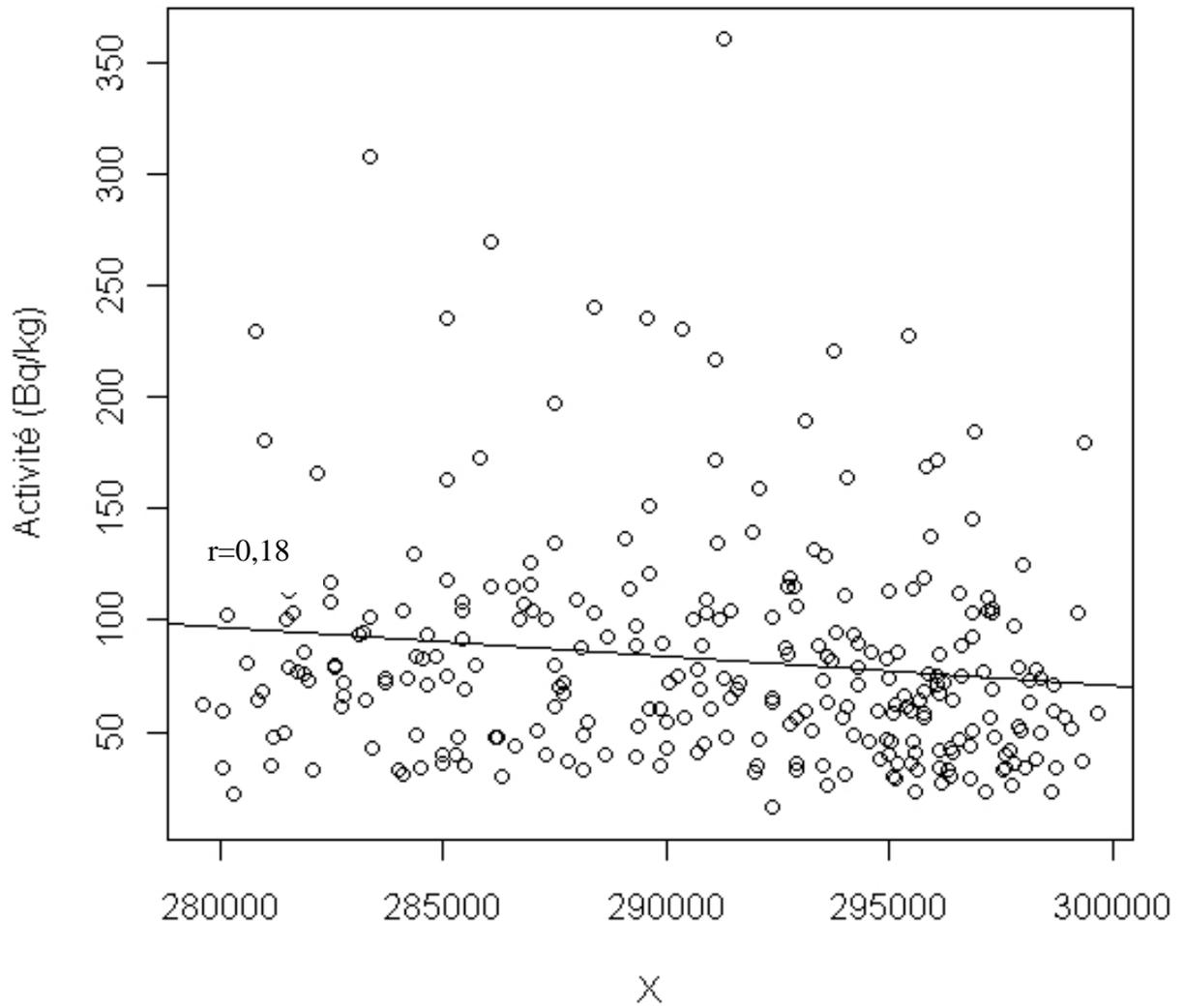


Figure III 6e: Corrélation entre activité massique (Bq.kg^{-1}) et les coordonnées spatiales (X)

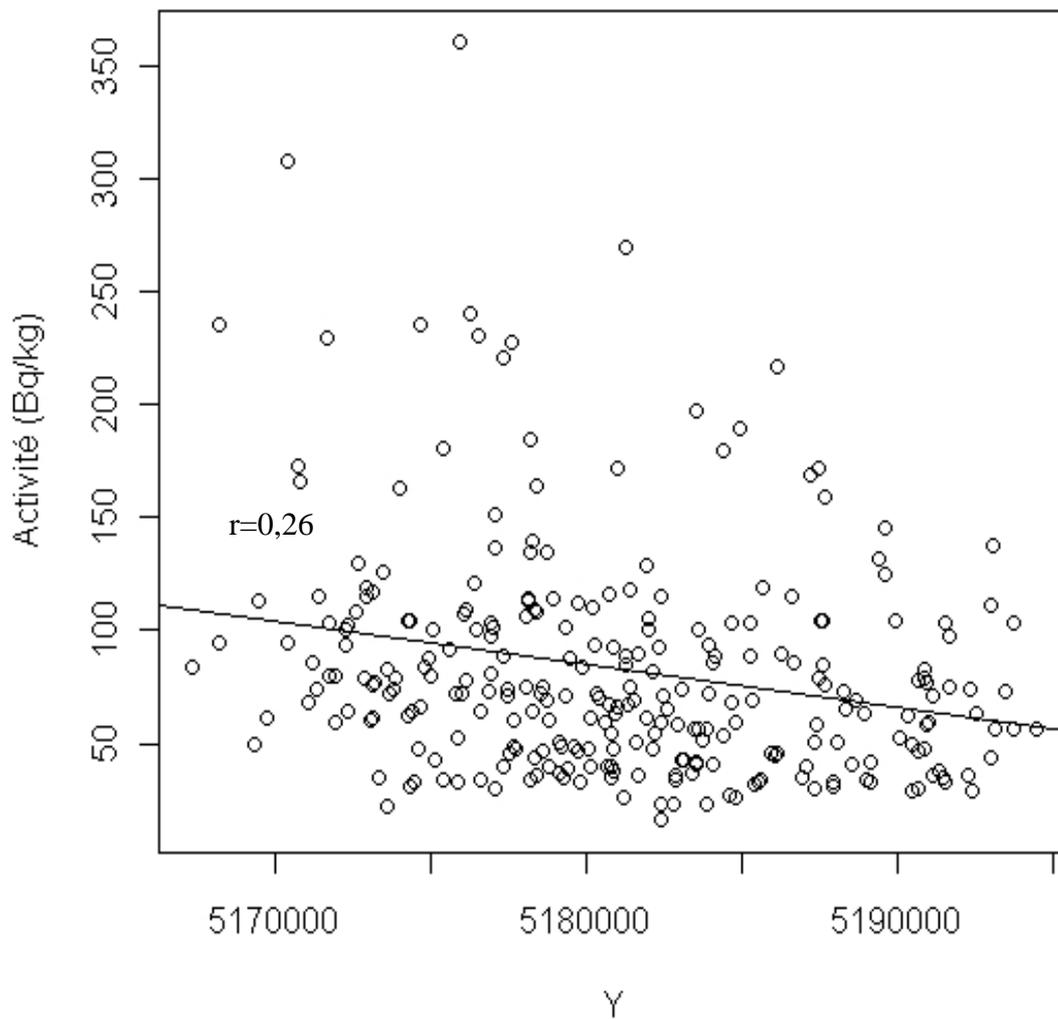


Figure III 6f: Corrélation entre activité massique (Bq.kg^{-1}) et les coordonnées spatiales (Y)

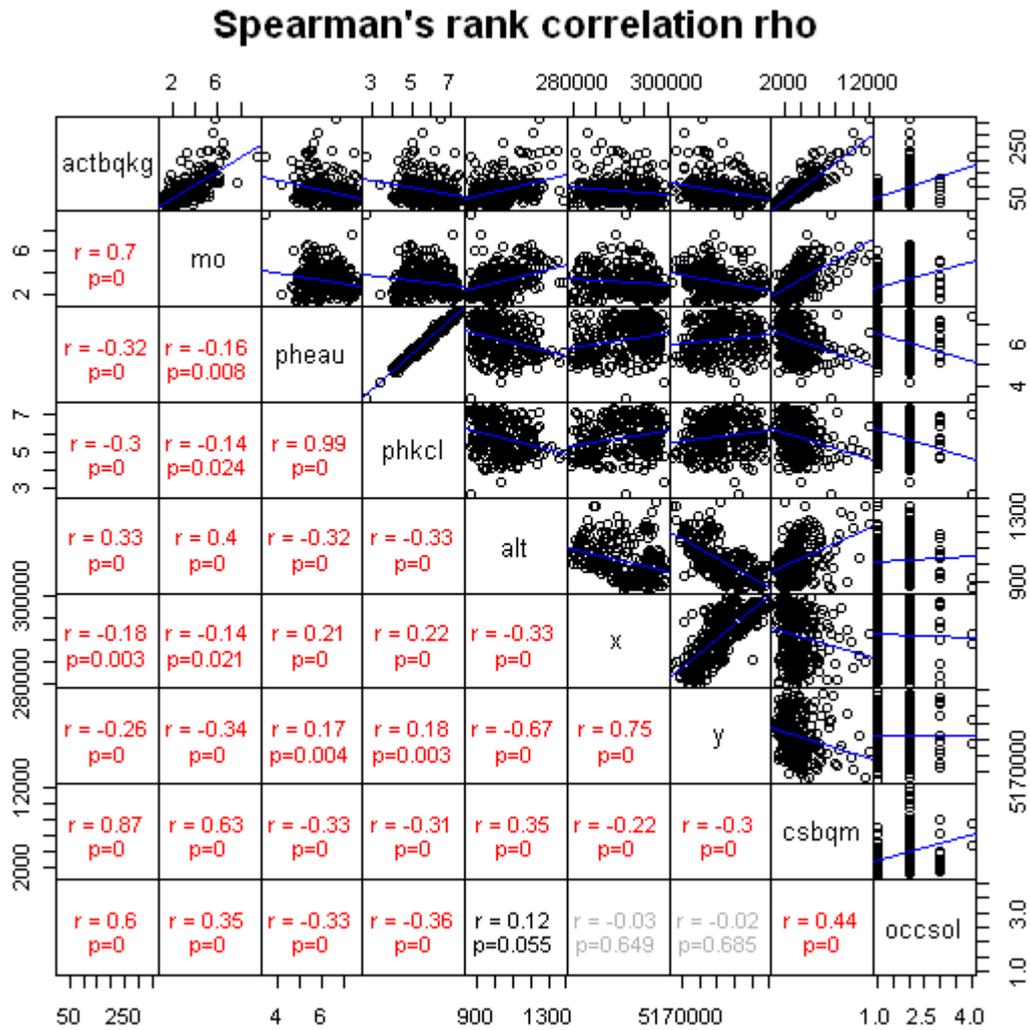


Figure III 7: Matrice de corrélation de Spearman graphique à 0-5 cm

III- Discussion

L'ensemble des compartiments du bassin versant sont affectés par la contamination par le césium 137. Les sommets où prédominent les sols forestiers, particulièrement sur les parties Sud et Sud-est de la zone d'étude, présentent une activité en césium les plus importantes alors que les sols des prairies permanentes (sols agricoles en particuliers), plus présents dans la vallée, ont des teneurs en radiocésium relativement plus faibles. La contamination du bassin versant est très hétérogène et tous les types de sol analysés montrent une activité de ce polluant.

Les sols d'altitude n'ont pas toujours des teneurs en césium plus élevées que dans des sols de vallée ou tout simplement les sols rencontrés aux altitudes les plus basses. Malgré la persistance et le recyclage du césium dans les sols forestiers, l'unique décroissance physique de la contamination dans les sols agricoles, qui justifieraient les différences observées au niveau de leurs teneurs en césium, il est important de noter que le bassin versant est soumis à l'influence régulière des précipitations qui sont très abondantes et qui sont à l'origine d'importants phénomènes d'érosion. Par ce phénomène d'érosion, il est fort possible que la fraction soluble du radioélément dans les eaux d'écoulement pourrait subir une redistribution importante et alimenterait les parties basses du bassin versant.

On remarque que les dépôts de césium 137 enregistrés sur le bassin versant sont plus élevées que ceux rapportés usuellement dans la littérature mais se trouvent dans la moyenne de ceux rencontrés pour des travaux effectués à l'échelle de la région Franche-Comté (112 Bq.kg^{-1} soit 4576 Bq.m^{-2}) et ceux rencontrés en Europe pour lesquels la contamination en césium d'origine de Tchernobyl se situe autour de 6600 Bq.m^{-2} (De Cort et al., 1998). Les valeurs observées sur le bassin versant sont très proches de celles mesurées en Franche-Comté, en France et dans les pays voisins (tableau III.1).

Région	Type de sol	Activité en césium (Bq.m^{-2})	Références	Technique d'analyse
Estonie	Sol	40000	Realo et al. (1995)	modèle
Allemagne	Sol forestier	6449	Bunzl et al. (1995)	mesure
Norvège	Sol montagneux	20000-60000	Pedersen et al. (1998)	mesure
Russie	Surface du sol	700	Strand et al. (1999)	mesure
Suède	Surface du sol	890-1735	Isaksson et al. (2001)	mesure
Autriche	Surface du sol	21000	Bossew et al. (2001)	mesure
Canada	Surface du sol	701-5055	Blagoeva et al. (1995)	mesure
Italie	Surface du sol	40000	Belli et al. (1989)	mesure
France	Surface du sol	1500-40000	Renaud et al. (2003)	modèle
France	Sol forestier	15000-20000	Lamarque et al. (2004)	mesure
Libye	Surface du sol	1,3-2,25	Shenber et al. (2001)	mesure

Tableau III.1: Comparaison de l'activité en ^{137}Cs des sols de l'hémisphère Nord

Les sommets du bassin versant combinent deux facteurs favorisant l'accumulation du césium dans les sols à savoir: l'altitude qui est un obstacle orographique et les zones forestières qui occupent des surfaces importantes interceptant les retombées atmosphériques.

Plusieurs facteurs sont susceptibles d'expliquer la variabilité de l'activité du césium. La variabilité des teneurs en radiocésium de Tchernobyl dans les sols est due à une grande variabilité du dépôt de césium sur les surfaces, mais aussi sur l'importance des précipitations, par la durée

relativement courte de la contamination (Barisic et al., 1999) et par les propriétés physico-chimiques des sols. Elle dépend également des mécanismes de dépôt (dépôt sec par gravité, dépôt humide lors de précipitations) mais aussi de l'intensité de l'interception par la végétation, etc.

La contamination actuelle en césium représente la résultante de trois différents processus écologiques et physico-chimiques inhérents au milieu étudié. Le premier processus est l'hétérogénéité des retombées radioactives au moment du passage du nuage radioactif et les conditions météorologiques locales durant la contamination. Le deuxième fait référence aux caractéristiques du sol et du fonctionnement particulier de l'écosystème. Le dernier processus est la décroissance physique du césium qui provoque une disparition avec le temps de l'activité en césium par désintégration radioactive.

La diversité écologique et fonctionnelle à l'échelle du bassin versant s'explique vraisemblablement par l'hétérogénéité des caractéristiques écologiques des différents compartiments.

L'observation de la grande variabilité de la teneur en césium ^{137}Cs en fonction de la typologie des sols serait liée à la présence plus ou moins importante de la litière et de la matière organique dans les horizons superficiels des sols, riches en charges négatives constituant des sites de fixation préférentiels pour le césium.

En effet, les sols les plus contaminés en césium (humus calciques et humiques à gley) sont les sols dont la teneur en matière organique est la plus importante. La matière organique semble être un paramètre important dans l'explication de la teneur en césium. Le coefficient de corrélation entre le carbone organique et la teneur en césium est de 0,63 lorsqu'on considère l'activité surfacique et de 0,70 lorsqu'on considère la teneur massique du césium ^{137}Cs pour les prélèvements effectués à 0-5 cm de profondeur.

A titre comparatif, on observe une différence entre les coefficients de corrélation du césium en Bq.kg^{-1} et le césium exprimé en Bq.m^{-2} avec de plus fortes corrélations pour l'activité du césium exprimée en masse sèche, en particulier en ce qui concerne la matière organique. Il est probable que cette différence s'explique par le mode de calcul de l'activité du césium en Bq.m^{-2} . Pour le calcul de l'activité du Césium en Bq.m^{-2} , nous utilisons la densité apparente moyenne de chaque sol à partir de laquelle on calcule l'activité du césium en Bq.m^{-2} à partir des teneurs en Bq.kg^{-1} . Or, il est reconnu que la densité apparente d'un sol possède une grande variabilité spatiale aussi bien verticale qu'horizontale. Cette variabilité introduit un biais dans le calcul de l'activité du césium en Bq.m^{-2} qui peut être de ce fait soit sous estimée ou au contraire surestimée et ne reflétant pas systématiquement la réalité sur le terrain. De plus, l'effet des variations de la pierrosité dans

l'estimation de la densité apparente est important, or ce paramètre n'a pas été pris en compte au cours de nos travaux. La pierrosité est particulièrement importante dans les sols humo calciques. Ces biais ont été limités dans notre étude.

A contrario, la mesure de l'activité du césium en Bq.kg^{-1} s'effectue directement sur les échantillons prélevés du terrain. Les valeurs d'activité du césium en Bq.m^{-2} sont ainsi calculées dans l'optique de comparaisons avec les valeurs de la littérature.

IV- Conclusions

Au regard des résultats obtenus, les niveaux de contamination en césium 137 sur l'ensemble du bassin versant se caractérisent par une forte hétérogénéité. Cette hétérogénéité de la distribution spatiale sur une surface pourtant peu étendue (300 km^2) rend difficile la compréhension des facteurs impliqués dans cette distribution et notre estimation du risque pour les populations.

Un certain nombre de facteurs sont potentiellement à l'origine des différences observées (historique des dépôts initiaux, nature de la végétation, occupation et fonctionnement des sols, fonctionnement écologique de la zone étudiée) et représentent les paramètres clés de la compréhension de la contamination en ^{137}Cs et de son devenir au cours du temps.

Les sols d'altitude, généralement des sols forestiers, montrent les teneurs en césium les plus importantes. Ce sont des sols parmi les plus humifères et on sait d'après les données présentes dans la littérature scientifique que la teneur en matière organique et la physico-chimie (pH) des sols influent fortement sur leurs aptitudes à la rétention ou au transfert du césium.

Sur le bassin versant du Doubs en amont du Lac-Saint-Point, la teneur en matière organique des sols est statistiquement corrélée à leur activité en césium 137, ce qui ne semble pas être le cas pour le pH des sols (aussi bien pour le pH eau que pour le pH KCl).

L'importance des précipitations semblent accentuer les phénomènes d'érosion, lesquels expliqueraient l'importance de la redistribution du césium des zones d'altitude vers les zones les plus basses (présence dans la vallée des stations dont les prélèvements ont des teneurs en césium assez importantes).

Etude des variations de la teneur en ^{137}Cs dans les sols du bassin versant

Les parties Sud et Sud-est montrent des contaminations relativement plus élevées que le reste du bassin versant. Les valeurs d'activité enregistrées restent modestes et ne constituent pas une source de préoccupations majeures pour la santé publique.

CHAPITRE IV: ETUDE DES FACTEURS DE VARIATION PAR RAPPORT A L'ORIGINE DE LA VARIABILITE SPATIALE DES ACTIVITES EN ^{137}CS

I- Influence des caractéristiques environnementales sur la distribution spatiale des teneurs en césium au niveau du bassin versant

L'objectif au cours de ce chapitre est la mise en évidence de l'existence de paramètres environnementaux et pédologiques qui expliqueraient la variabilité spatiale de la contamination en césium dans le sol des stations du bassin versant. Tous les paramètres sont introduits dans une série afin de tester l'importance de chacun dans la compréhension de la variabilité du césium.

Une analyse spatiale va être réalisée par cartographie spatiale afin d'interpoler les données de césium à l'ensemble du bassin versant, à partir des données ponctuelles obtenues par les mesures d'activité des échantillons récoltés sur les 275 stations et des analyses statistiques effectuées.

Pour créer l'information aux points de l'espace non enquêtés pour cartographier un phénomène, l'interpolation est un moyen. A partir des données ponctuelles décrivant le phénomène étudié, il est possible d'étendre les valeurs de ce phénomène à tous les points de l'espace. De fait, les valeurs seront estimées sur la totalité de l'espace; il s'agit d'une interpolation spatiale.

A ce jour, on dénombre deux types d'interpolation spatiale:

- l'interpolation verticale: le phénomène à estimer (connu partiellement) est lié à un ensemble de données exogènes couvrant l'espace de façon exhaustive. Il est ainsi possible de construire à partir des points connus un modèle statistique de cette relation puis de l'appliquer en chaque point de l'espace. Les modèles statistiques les plus couramment utilisés sont les suivants :

#cas d'une variable qualitative: maximum de vraisemblance ou analyse discriminante linéaire ou quadratique,

#cas d'une variable quantitative: régression linéaire multiple.

L'interpolation n'est possible que si un ensemble de conditions sont respectées. Il est primordial que les données ponctuelles soient représentatives de la réalité et que le modèle statistique soit validé avant d'être généralisé (Girard et al., 1999).

-l'interpolation horizontale: aucune donnée exogène n'est connue dans ce cas. On ne dispose que des relevés ponctuels: la mise en place d'un modèle en prenant en compte les données exogènes devient problématique. La solution ici est la construction des valeurs à partir des seuls points connus en adoptant une certaine règle de voisinage. En supposant que le phénomène se distribue de façon continue dans l'espace, la valeur à estimer d'un lieu est en toute logique plus proche de celles des points à proximité que celles des points éloignés. La pondération des valeurs connues peut donc résulter d'une fonction de voisinage. On dénote de nombreuses façons de l'exprimer:

interpolation par une fonction inverse de la distance: à partir de la simple distance à vol d'oiseau, on pourra utiliser l'inverse de la distance comme pondération des points évalués (Arnaud et al., 2000; Burrough et al., 1998).

interpolation par des surfaces de tendance: représentation cartographique simplifiée du phénomène de façon globale en fonction de la localisation par exemple (Burrough et al., 1998; Arnaud et al., 2000).

Interpolation par triangulation ou tessellation: le but est d'établir une segmentation de la zone étudiée par une triangulation opérée sur les points d'observation (Arnaud et al., 2000)

Interpolation par krigeage: c'est la méthode d'interpolation spatiale issue des géostatistiques. Le principe de cette méthode d'interpolation est de pondérer les valeurs connues en fonction de leur structure spatiale non seulement en fonction de la distance mais aussi en fonction de la configuration spatiale. Le principe commun aux différentes formes de krigeage est la minimisation

Etude des facteurs de variation par rapport à l'origine de la variabilité spatiale des activités en ^{137}Cs des écarts entre les valeurs connues et estimées (Burrough et al., 1998; Arnaud et al., 2000; Cressie, 1993).

II- Exploration des corrélations entre les co-variables

La caractérisation des sols des 275 stations ont été décrites afin de comprendre et d'expliquer les facteurs qui régissent la distribution du césium dans les sols.

Dans cette optique, une Analyse en Composantes Principales (ACP) a été réalisée. Les ACP sont des analyses statistiques multivariées. Le but est de réduire les paramètres initiaux à quelques variables appelées Composantes Principales qui résument l'information de départ.

Le résultat espéré est la représentation, dans un nouveau système d'axes, du nuage des points initial. Ceci permet d'étirer au maximum le nuage de points pour une meilleure visualisation des données. Les nouvelles dimensions des axes principaux sont indépendantes et hiérarchisées. Le premier axe explique le mieux la variabilité de la matrice de dispersion. Les axes principaux peuvent être considérés comme des facteurs écologiques (ou une combinaison de facteurs écologiques) qui expliquent au mieux la dispersion des données multivariées. Les ACP sont des méthodes exploratrices pour décrire la distribution des variables (Carlon et al., 2001; Burns et al., 1997).

L'importance de la variation des données (leur dispersion par rapport à un point moyen) est mesurée par l'inertie totale. Les tendances principales de cette variation sont décomposées en une succession d'axes principaux orthogonaux, ordonnées par importance de décroissance. Le point individuel de chacun des axes est donné par sa valeur propre. La somme des valeurs propres est égale à l'inertie totale. L'ACP effectué au cours de ces travaux montre que les axes 1 et 2 (les deux premiers) expliquent 64% de la variance totale (tableau 1). Nous avons utilisées ici les mesures d'activité exprimées aussi bien en Bq.kg^{-1} qu'en Bq.m^{-2} à 0-5 cm de profondeur des sols et les caractéristiques édaphiques mesurées à cette profondeur (figure IV.1).

Axes	Coefficient d'inertie des axes	Somme des coefficients	Somme des pourcentages de l'inertie totale
1	3.54986368	3.549864	0.4437330
2	1.58338045	5.133244	0.6416555
3	1.56444259	6.697687	0.8372108
4	0.62803972	7.325726	0.9157158
5	0.40716047	7.732887	0.9666109
6	0.14221809	7.875105	0.9843881
7	0.11430917	7.989414	0.9986768
8	0.01058584	8.000000	1.0000000

Tableau IV 1: Valeurs des coefficients d'inertie des différents axes de l'ACP.

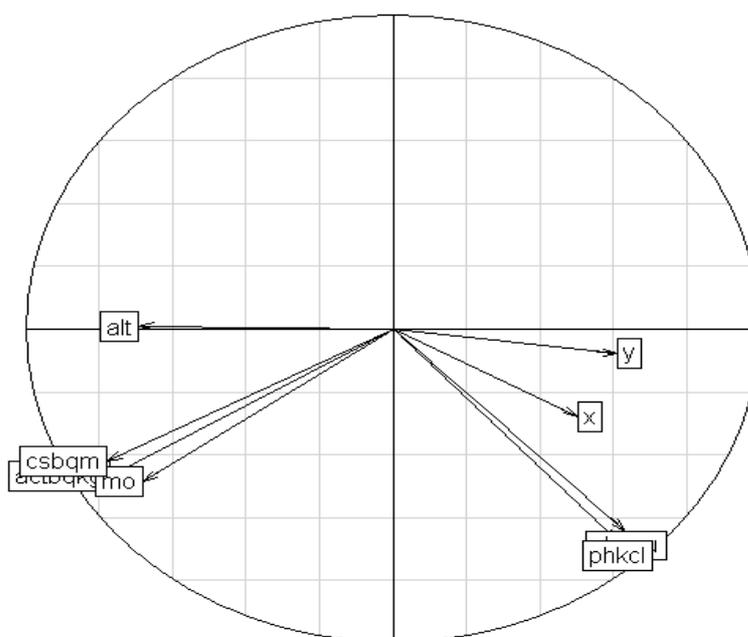


Figure IV.1: Projection des résultats de l'ACP sur le cercle des corrélations

La projection sur le cercle des corrélations montre l'existence d'une corrélation positive entre les variables «carbone organique total» (mo) et «altitude» (alt) et celle d'une corrélation plutôt négative de ces dernières avec les variables «pH» (pH eau ou pH KCL) et «coordonnées spatiales» (X et Y).

Ce sont les variables Carbone organique, Altitude et Césium à 0-5 cm en Bq.kg^{-1} et en Bq.m^{-2} qui contribuent à l'axe 1 (axe horizontal). Le pH et les coordonnées spatiales contribuent à l'axe 2 (axe vertical).

A l'aide du logiciel SPSS, d'autres analyses statistiques ont été effectuées (voir tableau 2, tableau 3). Nous avons utilisé ici les mesures d'activité du césium exprimées en Bq.m^{-2} à 0-5 cm et les caractéristiques édaphiques mesurées à cette profondeur (figure IV.2). Nous avons réalisé une classification ascendante hiérarchique sur les coordonnées factorielles des 275 stations sur les deux premières dimensions de l'ACP. On dénombre au final 20 groupes de stations encore appelés "clusters". En fonction des relations de proximité entre les 20 clusters (sous- groupes), on peut faire ressortir 5 grands groupes de stations (figure IV.3).

Le groupe I est celui constitué par les «clusters» 1, 2 et 3. 59 stations occupées par de la végétation forestière d'une part, par les sols agricoles d'autre part constituent ce groupe. Leurs positions topographiques dans le relief général semblent être similaires: ce sont des stations localisées généralement en bas de pente. Les propriétés physico-chimiques (pH) des sols de ces stations sont également très proches. Ce sont des sols alcalins, situés à des altitudes n'excédant pas mille mètres dont les pH sont supérieurs à 7. Ce sont des sols peu humifères avec des teneurs en césium qui oscille entre x et y pour les sols forestiers et s et f pour les sols agricoles.

Le groupe II est le regroupement des «clusters» 4, 5, 6 et 7. En plus des sols forestiers et agricoles de ces stations, on peut également noter la présence de pelouses qui sont de types d'occupation de sol intermédiaires entre les deux. Tous les profils topographiques sont représentés ici (haut, mis, bas de pente). Les sols agricoles de ces stations sont localisés plus en altitude que ceux du groupe I (la station agricole 256 culmine à 1250 m d'altitude), moins alcalins (pH compris entre 6,07 et 7,39) et sont également un peu plus humifères. Les sols forestiers présentent également les caractéristiques similaires sauf que les sols de ces stations se situent à des altitudes moins élevées sur le bassin versant et ont des teneurs en césium bien plus importantes.

Les stations 23 et 212 sont les seules représentantes du type d'occupation intermédiaire entre les sols agricoles et les sols forestiers. Au final, 61 stations sont répertoriées dans ce groupe.

Le groupe III est celui qui matérialise la proximité entre les « clusters» 8, 9,10, 11 et 12. Ce groupe est un peu plus étendu que les précédents. On y retrouve des stations à végétation forestière,

des sols agricoles mais aussi des tourbières. Ce sont les stations qui occupent les parties les plus élevées du bassin versants (exception faite des tourbières). Il convient de noter que ce sont des sols très humifères avec des propriétés physico-chimiques (pH) plus acides que basiques. La teneur en matière organique et la physico-chimie (pH) de ces sols influent fortement sur leurs aptitudes à la rétention du césium. On observe ici une grande variabilité de la position topographique de chaque station dans le relief général. Les teneurs en césium des sols des stations appartenant à ce groupe sont les plus importantes que nous ayons obtenues au cours de ces travaux. Ces stations sont en général situées dans la partie Sud et Sud-est du bassin versant.

Le groupe IV est constitué des «clusters» 13, 14, et 15. Ce sont des stations généralement localisées en bas de pente dans le relief local. Elles sont aussi bien occupées par de la végétation forestière que les sols agricoles. Ces stations ne dépassent pas les 1000 m d'altitude. Les sols sont peu humifères et leur physico-chimie (pH) couvre un large spectre (pH compris entre 5 et 7). Les teneurs en césium des sols de ces stations sont relativement faibles avec néanmoins des valeurs plus élevées pour les sols forestiers que pour les sols agricoles.

Le groupe V est tout aussi étendu que le groupe III, les «clusters» 16, 17, 18, 19 et 20 constitue l'ensemble des stations représentées. Les sols agricoles, forestiers et les pré-bois y sont présents. Ce sont des stations situées en général au dessus de 1000 m d'altitude avec des positions topographiques variées. Les sols sont plus ou moins humifères avec des pH plus ou moins acides (pH compris entre 4,5 et 5,8). Les teneurs en césium au niveau des pré-bois sont intermédiaires entre l'activité du césium au niveau des sols agricoles et celle des sols forestiers.

La figure IV.4 est l'illustration du phénomène observé au niveau du groupe V à une échelle plus globale (activité du césium en fonction du mode d'occupation du sol pour l'ensemble des stations du bassin versant). Elle résume les variations de l'activité surfacique en fonction des quatre types d'occupation du sol qui ont été identifiés dans le bassin versant. Les sols agricoles et les pré-bois présentent des activités les plus faibles et les différences observées entre ces deux types ne sont pas statistiquement significatives. De la même façon, les moyennes des activités mesurées dans les sols des pré-bois et dans les sols forestiers ne sont pas différentes. Les sols forestiers présentent en occurrence des activités significativement supérieures à celles des sols agricoles. Les zones humides sont les zones les plus contaminées et qui présentent en moyenne les activités supérieures aux trois autres types d'occupation du sol. En résumé, on fait le constat que dans une région de moyenne montagne, en milieu continental dont on sait qu'elle a été impactée cumulativement par les retombées des essais nucléaires et par celles de l'accident de Tchernobyl (Badot et al., 1984; Le Roux et al., 2008), les teneurs en césium mesurées dans les sols varient significativement avec le type d'occupation du sol. Mis à part les pré-bois (n=10) et les zones humides (n=4) qui sont peu

Etude des facteurs de variation par rapport à l'origine de la variabilité spatiale des activités en ^{137}Cs

représentés, le principal enseignement réside dans le fait que les activités sont supérieures dans les sols forestiers par comparaison aux sols agricoles.

L'ensemble des données recueillies montre donc que les activités les plus élevées sont observées en altitude dans les sols forestiers riches en matière organique. Les résultats obtenus ici montrant le lien entre mode d'occupation des sols et l'activité surfacique du ^{137}Cs sont à rapprocher des résultats obtenus par Le Roux et al., (2008) qui indiquent que dans la Montagne Noir du Jura, les dépôts de ^{210}Pb sont supérieurs dans les sols forestiers par rapport aux sols de prairies. Dans la zone d'étude qui nous intéresse, il est difficile de déterminer si l'activité plus élevée des forestiers par rapport aux sols agricoles est due aux processus de dépôt, au devenir des contaminations post-dépôt et aux caractéristiques intrinsèques de ces sols.

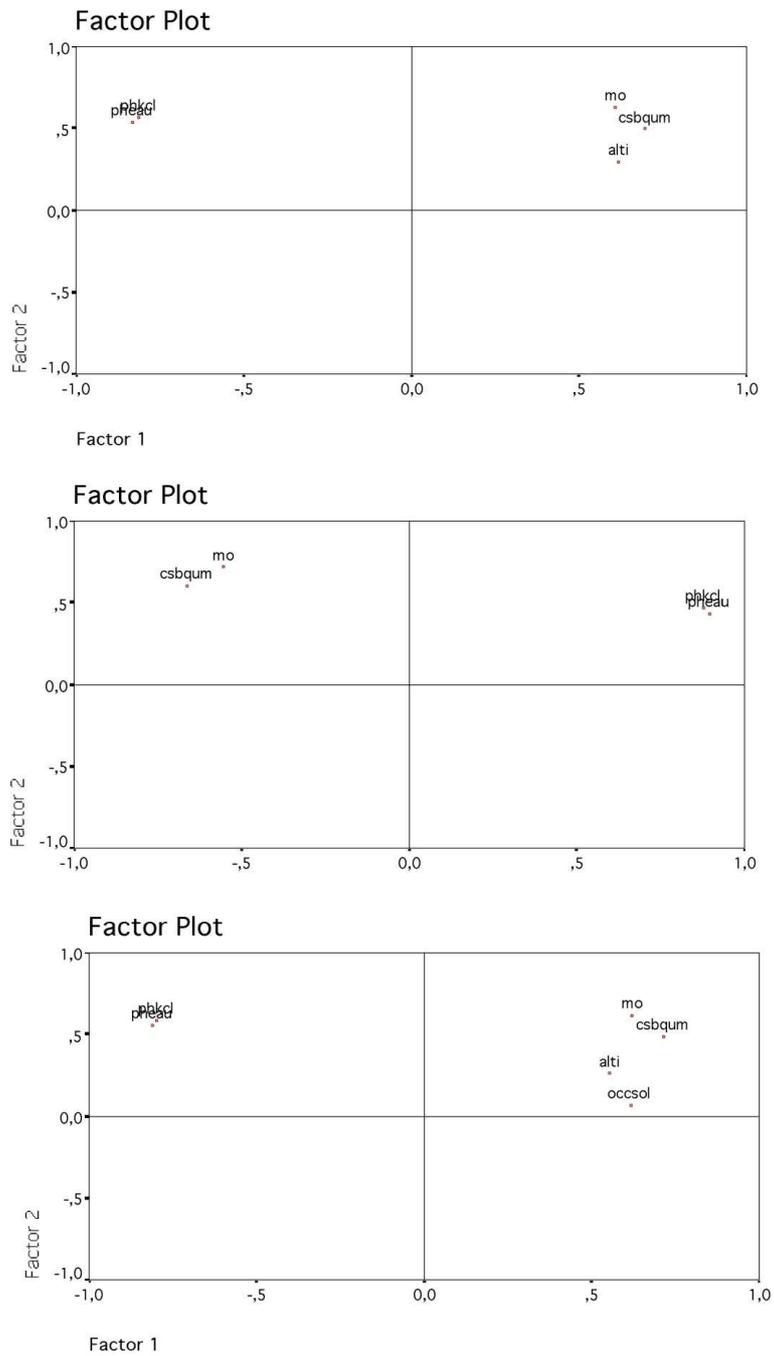


Figure IV 2: Représentation des variables sur les axes de l'ACP (mo: carbone organique total; csbqum: teneur césium en $\text{Bq}\cdot\text{m}^{-2}$; occsol: type

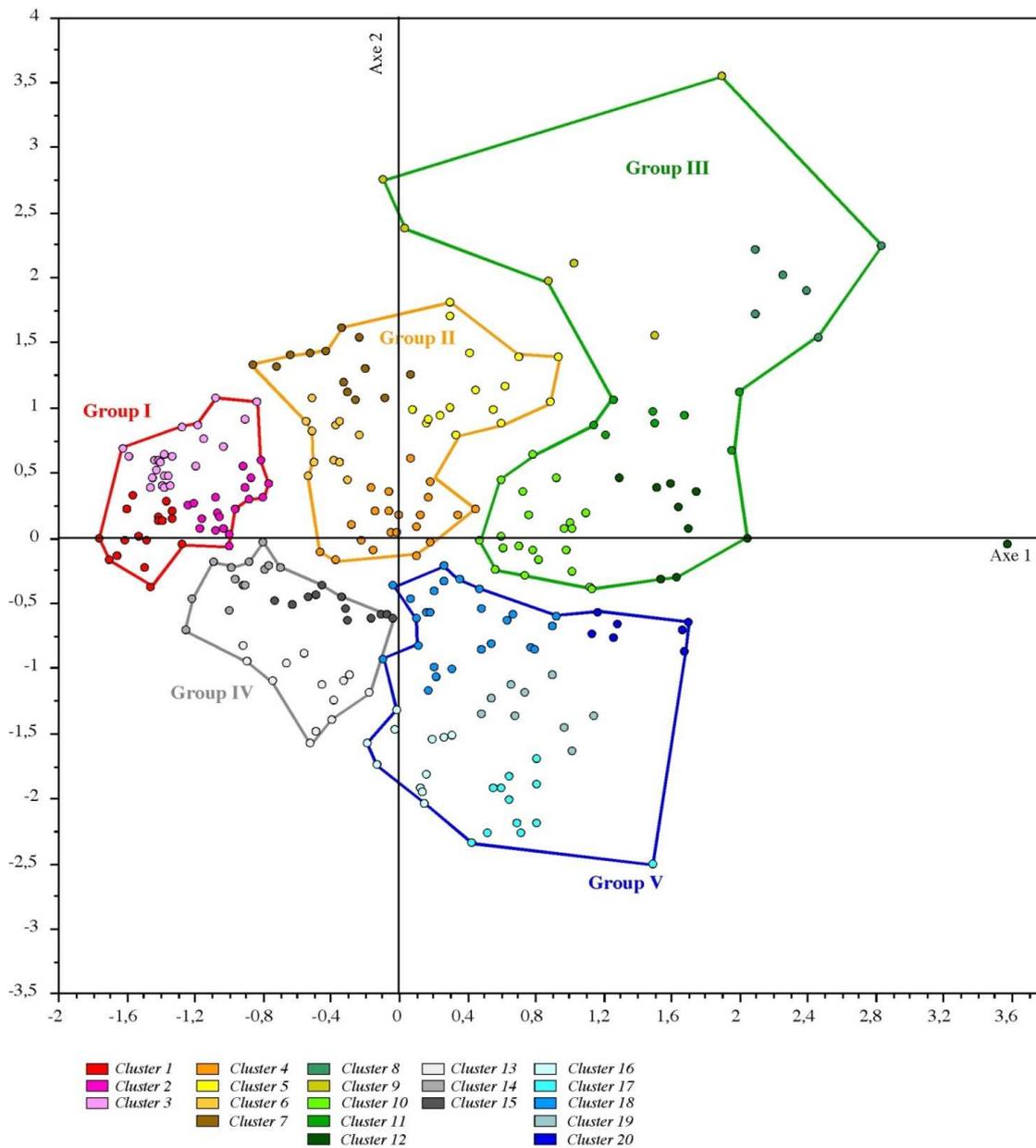


Figure IV 3: Représentation des 5 grands groupes de stations sur les axes de l'ACP

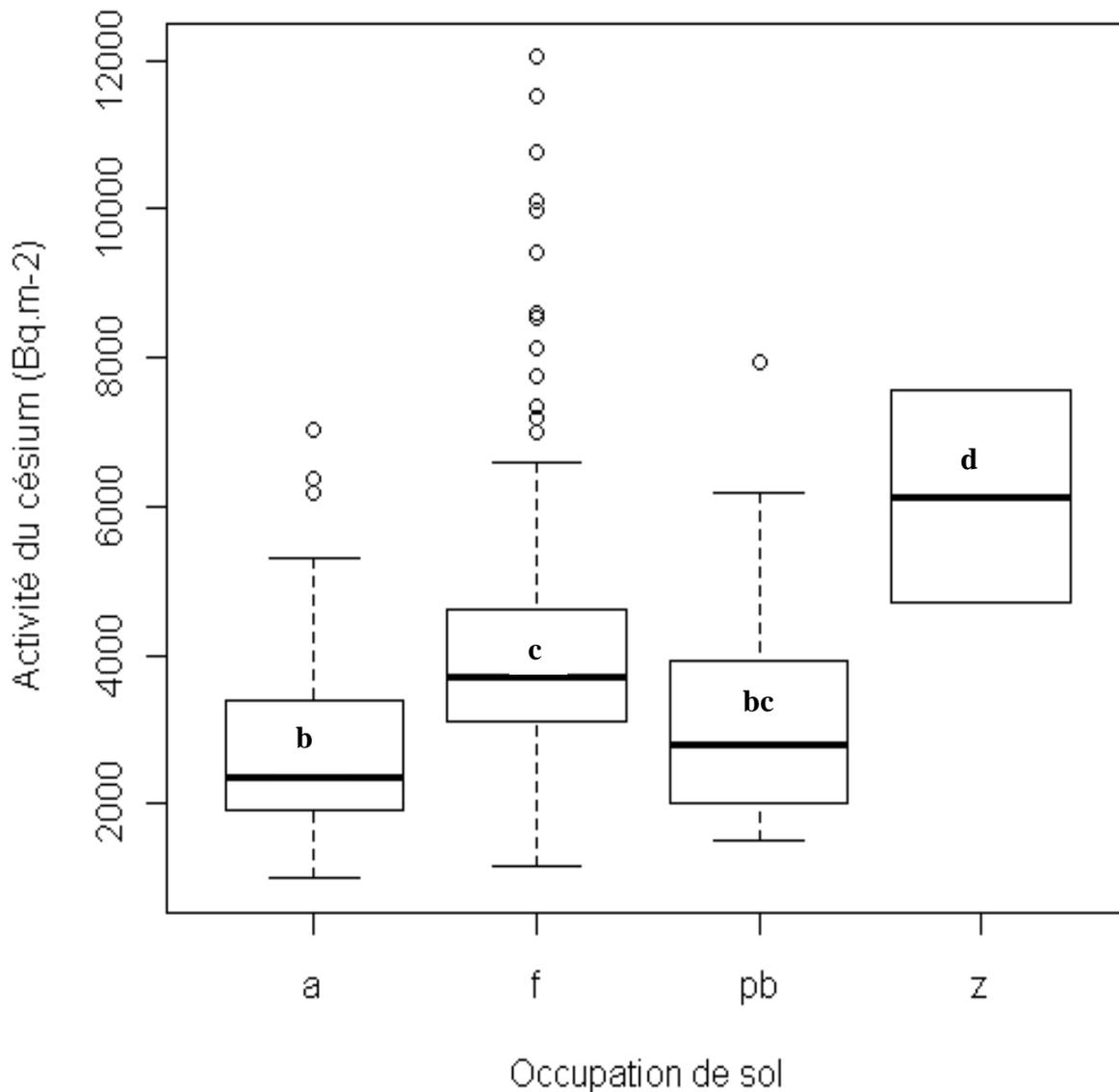


Figure IV 4: Représentation de l'activité surfacique du césium 137 en fonction du mode d'occupation du sol (a: sol agricole; f: sol forestier; pb: pré-bois; z: zone humide). Les «boîtes à moustaches» représentent respectivement du bas vers le haut le premier décile, le premier quartile, la médiane, le troisième quartile et le neuvième décile. Les lettres b, c, d indiquent que les différences sont significatives avec un risque d'erreur $p < 0,05$ dans un test de Mann-Whitney effectué sur les moyennes

Sur la figure IV.5, la répartition des stations a été représentée sur les axes de l'ACP. La représentation des stations peut s'accompagner par la matérialisation de groupes appartenant à un substrat géologique ou à un groupe sous forme de polygone dans lequel les conditions édaphiques et environnementaux sont proches, comme nous le montre la figure 3. Toutes les catégories de stations ont pu être représentées sous forme de polygone. Ainsi, certaines stations (groupe I, groupe IV) sont bien définies par un polygone assez compact, d'autres le sont moins (groupe III) de par leur gamme plus étendue et donc moins spécifique au niveau des caractéristiques édaphiques.

Le regroupement des stations par classe met en évidence un gradient d'organisation globale des stations en fonction de la physico-chimie (pH) des sols du haut à gauche vers le bas à droite des ACP. De même, la teneur en matière organique suit ce gradient d'organisation, du haut à droite vers le bas à gauche des ACP.

Le même type de représentation a été utilisé pour le type d'occupation des sols (figure IV.6). Aucun type d'occupation de sol ne semble véritablement sortir dans la répartition des types d'occupation du sol sur l'ACP sauf les zones humides (Station 304, station 7) et certains sols forestiers d'altitude (station 245, station 225) avec de forte teneur en matière organique humifiée. Ils sont ainsi très particuliers de part leurs caractéristiques édaphiques et fonctionnelles.

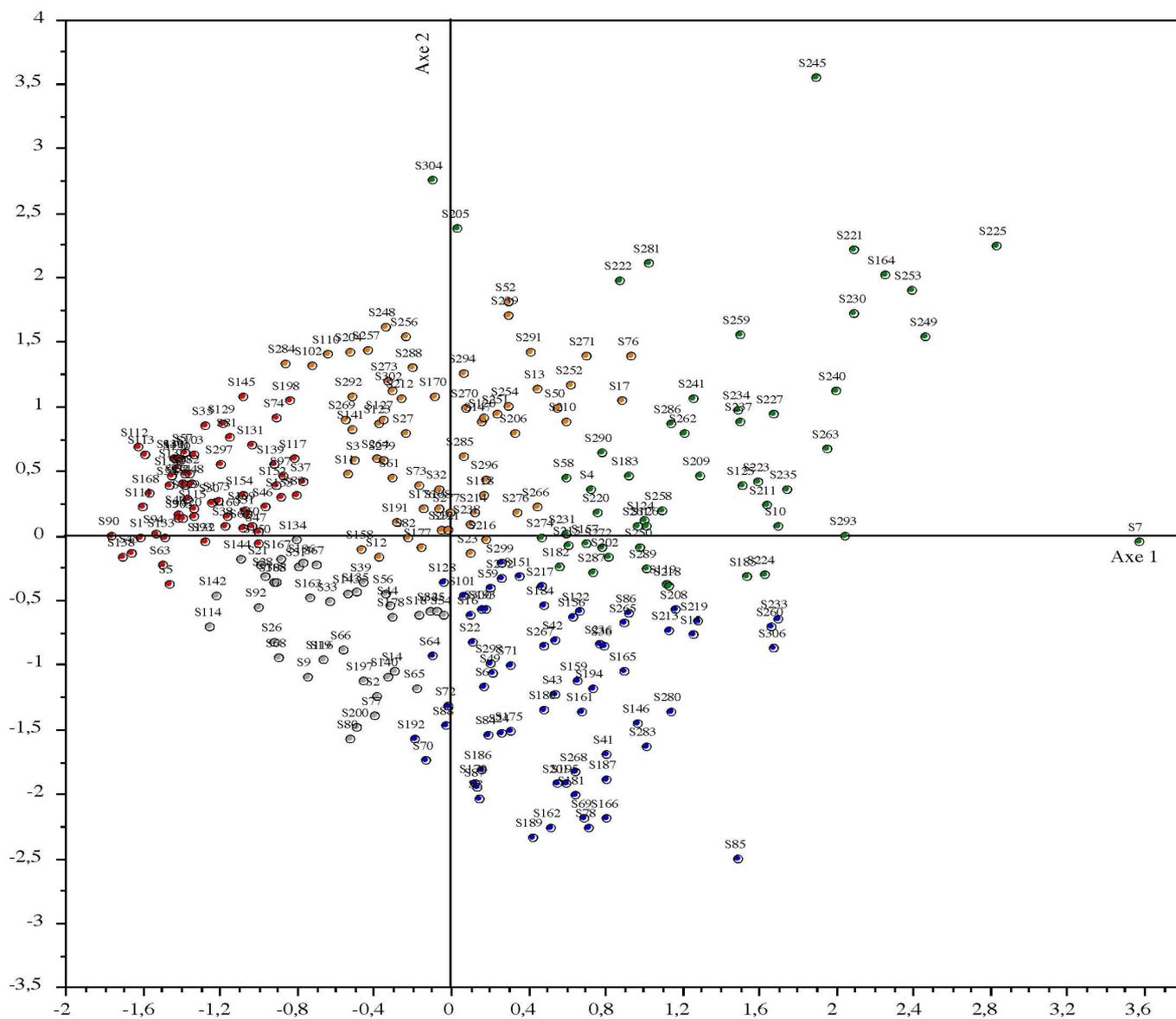


Figure IV 5: Représentation des stations sur les axes de l'ACP

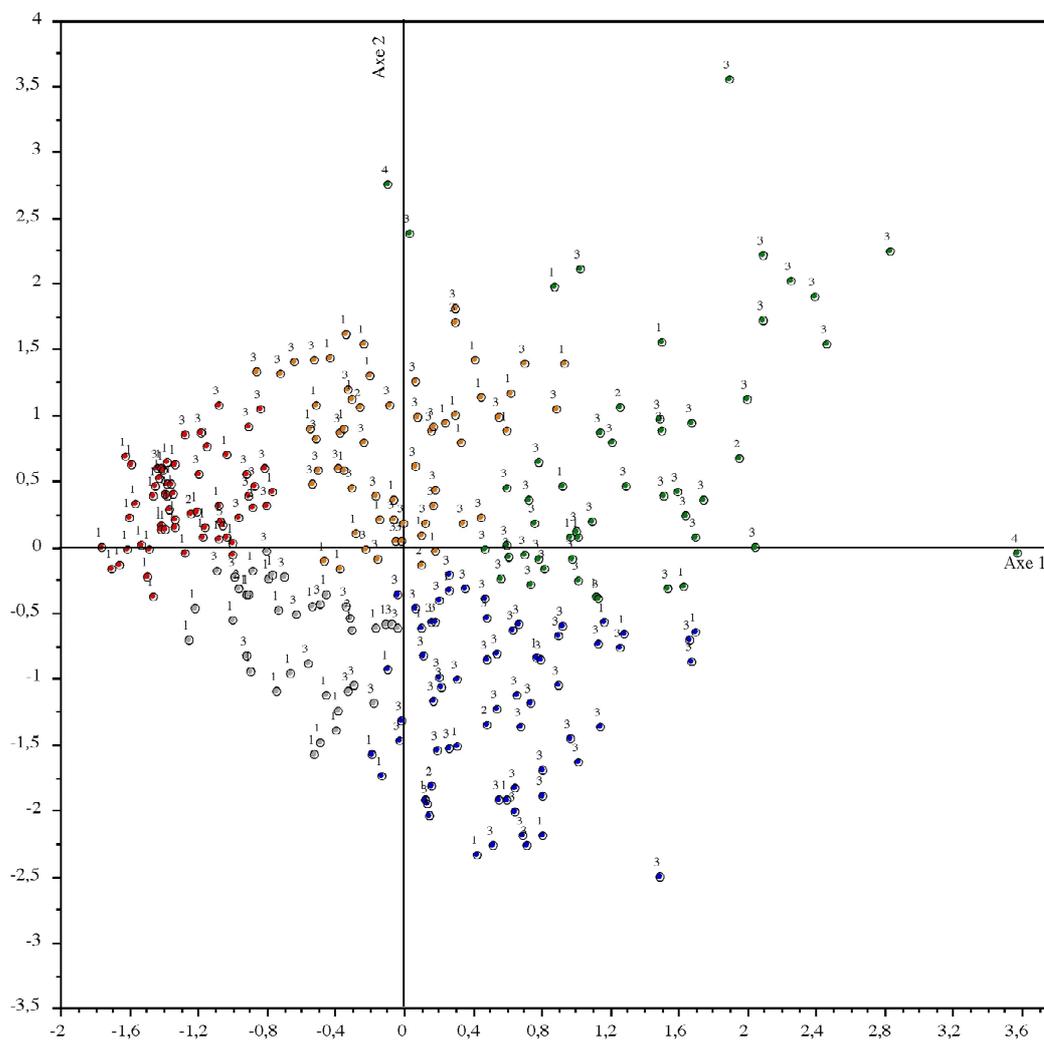


Figure IV 6: Représentation des types d'occupation de sol sur les axes de l'ACP (1: sol agricole; 2: pré-bois; 3: sol forestier; 4: zone humide).

III- Approche cartographique

III-1 Approche cartographique par krigeage

A partir des différents modèles réalisés, la construction de semi-variogramme permet d'établir des cartes krigées à partir des points mesurés. Le krigeage est une méthode d'interpolation qui attribue des valeurs aux points non mesurés (Ribeiro et al., 2001; R Development Core Team, 2004). Les poids des points utilisés lors du krigeage sont calculés à partir des moyennes d'un modèle fonctionnel (semi-variogramme) décrivant la corrélation spatiale du paramètre étudié, à savoir l'activité en césium exprimée ici en Bq.m^{-2} .

Un modèle théorique de semi-variogramme sur l'ensemble des données sera sélectionné sur la base du semi-variogramme du paramètre observé. Le modèle théorique statistiquement le plus ressemblant au modèle calculé sera choisi. Cela permet de modéliser la configuration spatiale des valeurs interpolées.

Les teneurs surfaciques en césium ont été utilisées pour les analyses spatiales par krigeage. Un préalable consiste à transformer les données pour obtenir une distribution normale de ces dernières. Les transformations utilisées sont la fonction carrée et la fonction logarithmique.

Ce modèle met en évidence l'existence d'une structure spatiale de la distribution des données surfaciques en césium. A partir de ce modèle, un krigeage conventionnel est réalisé sur l'ensemble des données. Ce krigeage s'effectue à partir d'une moyenne de la teneur surfacique en césium considérée comme étant identique sur l'ensemble du bassin versant et de fait chaque valeur est comparée à cette moyenne. La valeur de la moyenne utilisée ici est 3583 Bq.m^{-2} . On obtient ainsi une carte d'isoactivité en Bq.m^{-2} de césium (figure IV.7).

L'examen de la carte obtenue met en évidence des zones fortement contaminées dans les parties Sud et Sud-est du bassin versant. Il est rare de voir apparaître des zones au niveau desquelles on observe une sous ou surestimation lors du krigeage. Cette carte krigée ressemble étrangement à

Etude des facteurs de variation par rapport à l'origine de la variabilité spatiale des activités en ^{137}Cs

celle obtenue à partir des teneurs en césium mesurées. Ceci peut s'expliquer par le fait l'importance du nombre de points d'échantillonnage par rapport à la surface du bassin versant (275 points d'échantillonnages sur une surface de 300 km^2). Ce modèle montre une certaine continuité dans la distribution spatiale des contaminations en césium et l'existence d'une certaine structure spatiale altitudinale et donc selon un gradient d'altitude.

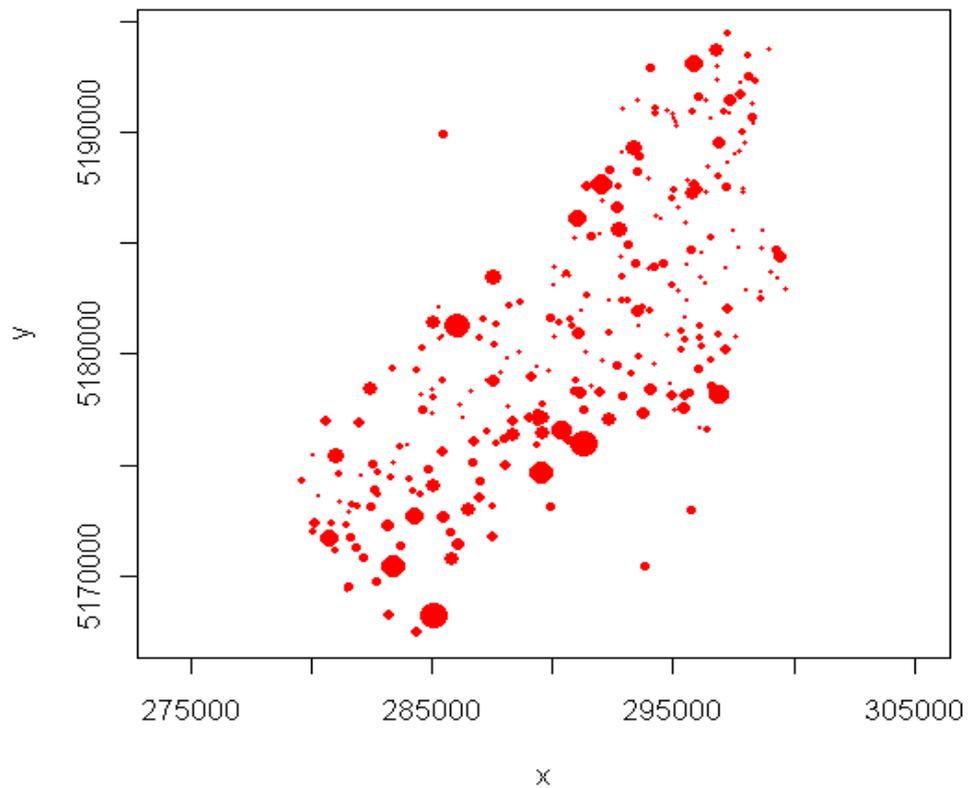


Figure IV 7: Carte obtenue à partir d'un krigeage conventionnel calculé à partir d'un modèle de vraisemblance maximum restreint ($\text{Bq}\cdot\text{m}^{-2}$)

IV- Evaluation des risques radioécologiques

Au regard des résultats, il apparaît que les stations d'altitudes et de fortes précipitations, souvent localisées dans le Sud et le Sud-est du bassin versant sont les zones les plus contaminées lors du dépôt de césium au moment du passage du nuage radioactif de Tchernobyl. Ce sont les stations qu'on rencontre autour des communes de Chaux-Neuve, Villedieu-les-Mouthe et du Mont d'Or qui sont les plus contaminées par les retombées en césium. A contrario, les communes situées sur les rives du Lac Saint-Point et celles situées dans la vallée du Doubs depuis sa source à Mouthe ont les valeurs de contamination les plus faibles.

Ainsi, les stations à forte contamination en césium et à fort temps de demi-résidence, généralement occupées par la végétation forestière, peuvent être considérées comme des zones «radio sensibles».

La prise en compte des différents modes d'occupation des sols lorsqu'il s'agit d'évaluer l'impact d'une contamination dans une région donnée est importante. Nos travaux le démontrent. Des travaux récents suggèrent que le lait pouvait constituer dans les régions de montagne un bien meilleur indicateur que le sol ou les prélèvements végétaux pour rendre compte de la contamination à une échelle régionale (Pourcelot et al., 2007). En effet, les activités mesurées dans le lait sont homogénéisées par le fait que les animaux d'élevage exploitent de larges surfaces et qu'il y a intégration dans cette matrice des variations spatiales existant dans les zones pâturées. Les résultats obtenus au cours du présent travail confirment le bien fondé de cette proposition et montrent qu'il convient de la compléter dans les régions montagneuses par l'échantillonnage de sites forestiers.

Quelle que soit la région naturelle ou le type de sol considéré, il est admis que les vitesses de migration du césium en Franche-Comté sont très faibles. Ce constat peut également s'établir à une échelle plus petite que celle du Bassin versant, objet de notre étude. Le potentiel de transfert sol-plante du césium dans ces stations est fort. Les facteurs de transfert peuvent être relativement importants si les sols de ces stations présentent des capacités d'échange cationique faibles et des ions compétiteurs du césium. Ces zones présentent ainsi un risque radioécologique de transfert à la

Etude des facteurs de variation par rapport à l'origine de la variabilité spatiale des activités en ^{137}Cs
végétation voire même de transfert vers l'Homme par l'intermédiaire des réseaux trophiques car
leur contamination en césium en surface perdurera pendant un certain nombre d'années.

RECAPITULATIF

- **Les facteurs qui conditionnent l'accumulation du césium au niveau des stations sont multiples.**
- **Ce sont les dépôts initiaux qui conditionnent la contamination en césium le plus significativement et non pas les caractéristiques édaphiques locales.**
- **L'approche cartographique par krigeage universel rend possible une estimation rapide de la contamination en césium sur l'ensemble du bassin versant.**
- **Ce sont les stations forestières fortement contaminées, à faible capacité d'échange cationique et à teneur en ions compétiteurs, qui présentent des facteurs de transfert de césium vers la végétation puis vers l'Homme potentiellement importants.**

CONCLUSION GENERALE ET PERSPECTIVES

L'estimation de la contamination spatiale a demandé la mise en place d'une stratégie d'échantillonnage particulière basée sur une approche fonctionnelle du milieu. Cette stratégie s'appuie sur des caractéristiques fonctionnelles du bassin versant dont le substratum géologique, la topographie et le mode d'occupation du sol. L'objectif était d'évaluer si la stratégie d'échantillonnage raisonnée utilisée permettait de mieux décrire la variabilité spatiale de la contamination par rapport à un échantillonnage systématique.

Le bassin versant du Doubs supérieur, couvrant une superficie d'environ 300 km², a été affectée par les retombées radioactives de césium. Les retombées atmosphériques liées à l'accident de Tchernobyl (avril 1986) et les essais atmosphériques d'armes nucléaires (1945-1963) sont les sources principales des contaminations enregistrées dans les sols.

L'étude de la distribution du césium dans le sol montre une grande variabilité spatiale de la contamination sur l'ensemble du bassin versant du haut Doubs alors même que l'on peut considérer que les retombées de l'accident de Tchernobyl dans cette zone ont été homogènes. Les teneurs en césium des sols sont comprises entre 16 et 360 becquerels par kg de masse sèche, soit 1 à 11 kilo becquerel par mètre carré avec des valeurs moyennes de l'ordre de 3600 Bq.m⁻². Les valeurs observées au niveau du bassin versant sont proches de celles rapportées par l'Agence de l'Energie Atomique de l'OCDE faisant état d'une contamination de l'ordre de 4 kBq.m⁻² observées à l'échelle de la région Franche-Comté mais aussi celles publiées par Badot et al., 2004 pour le même territoire régional (6 et 16 kilo becquerel par mètre carré). Ces valeurs semblent en moyenne plus élevées que celles publiées par la Commission des Communautés Européennes (1998) qui sont l'ordre de 2,4 kBq.m⁻² pour de nombreuses régions d'Europe situées à ces latitudes.

Cette hétérogénéité spatiale peut s'expliquer par l'hétérogénéité spatiale du devenir du césium après les retombées, variabilité liée au fonctionnement et aux propriétés des sols. Les sommets en tant que barrière orographique, occupés par de la végétation forestière, jouent un rôle important par leur capacité d'interception des poussières et d'aérosols. La prise en compte de différents paramètres (altitude, matière organique, modes d'occupation des sols) pris ensemble peut

expliquer pour partie la variabilité spatiale de la distribution du césium. Nos résultats montrent qu'il est important de prendre en compte les modes d'occupation des sols lorsqu'il s'agit de mesurer l'impact d'une contamination dans une région donnée.

L'activité en césium 137 est généralement plus forte pour les stations occupées par de la végétation forestière, principalement dans le sud et le sud-est du bassin versant. Ce sont les sols d'altitude, très riches en matière organique. Pour l'ensemble des stations échantillonnées au cours de cette étude, la teneur en matière organique est statistiquement corrélée à leur activité en césium 137. D'après les données de la littérature, la teneur en matière organique et la physico-chimie (pH) des sols influent fortement sur leurs aptitudes à la rétention ou au transfert du césium, ceci pouvant expliquer le fait qu'on puisse observer des contaminations plus ou moins fortes présentes dans ces sols. A contrario, les stations situées dans la vallée du Doubs, généralement occupées par des sols agricoles, montrent les valeurs d'activité en césium 137 les plus faibles.

Cependant, il n'est pas rare qu'à côté des sols contaminés ou très fortement contaminés, on rencontre des sols peu contaminés.

Le bassin versant du Doubs à l'amont du lac de Saint-Point n'est pas une région de grande culture et la mise en valeur agricole s'y effectue essentiellement sous forme de prairies permanentes destinées à l'élevage laitier, ce qui se traduit par le peu de perturbations que subissent les sols agricoles qui sont soumis à peu d'interventions. La plus faible activité moyenne observée dans les sols agricoles du bassin versant n'est donc pas liée au travail de la terre.

En définitive, la distribution du césium dans le sol est très complexe et multifactorielle et son devenir dépend du fonctionnement écologique du milieu.

L'étude de la distribution spatiale du césium par une approche cartographique a permis de mettre en évidence les intérêts et les difficultés de cette méthode. La méthode par krigeage universel a permis d'obtenir une estimation statistiquement robuste de l'ensemble des contaminations en césium sur le bassin versant.

Par définition et dans un environnement donné, la dose reçue par la population varie en fonction d'un certain nombre de facteurs avec en prime les comportements individuels. Les contaminations relevées au niveau du bassin versant correspondent à des doses annuelles relativement faibles comparativement aux valeurs communément admises d'exposition moyenne en France (4 milliSievert par an). Les niveaux de contamination mesurés au cours de cette étude dans toutes les communes du bassin versant, connues pour leur attraction pour le tourisme hivernal et estival, restent modestes, ainsi que leur contribution à l'exposition moyenne annuelle des riverains.

Pour l'analyse des constituants des sols, nous nous sommes limités au cours de ces travaux à la physico-chimie (pH) et à la teneur en matière organique. Or, d'après les données de la littérature, la teneur en sable, limon et particulièrement en argile des sols peuvent conditionner de manière significative leurs aptitudes à la rétention ou au transfert du césium 137. Ces différentes particules nous fourniraient ainsi de précieuses informations sur l'influence de la texture sur les contaminations des sols. Cette étude pourrait être poursuivie en effectuant la granulométrie de nos échantillons de sols collectés, laquelle étude nous donnera la composition et la taille des particules présentes dans la partie fine du sol (sables, limons, argiles). La proportion de chaque particule permettant de définir la texture du sol à partir du triangle des textures.

En perspective, on pourrait également s'intéresser à l'étude de la migration du césium 137 le long du profil des sols. La connaissance de la distribution du radiocésium le long du profil pédologique fournit une information importante pour estimer les quantités de radiocésium en contact avec la zone racinaire et les risques éventuels de transfert et de pollution des eaux, c'est aussi le facteur essentiel pour la détermination à long terme de la dose externe pour l'Homme après un dépôt radioactif.

On pourrait aussi envisager l'étude du transfert du césium du sol vers les arbres dans les différentes stations forestières répertoriées sur le bassin versant, mais également le transfert de ce radioélément vers certains organes cibles tels que les fruits. L'analyse de la biodisponibilité (Capacité d'Echange Cationique) du césium dans le sol peut s'avérer importante afin d'estimer la phase disponible pour l'absorption de la végétation et ainsi prédire le risque de transfert.

L'étude du transfert du césium 137 vers le milieu abiotique (sédiments lacustres) et au milieu biotique (poissons, macrophages) du Lac-St-Point peut se révéler une piste intéressante à explorer.

Bibliographie

Absalom J.P., Crout N.M.J., Joung M.J., 1996. Modeling radiocesium fixation in upland organic soils of Northwest England. *Environ. Sci. Technol.* 30: 2735-2741.

Adriano D.C., Hoyt G.D., Pinder J.E., 1981. Fallout of cesium-137 on forest ecosystem in the vicinity of a nuclear fuel reprocessing plant. *Health Physics* 40: 369-376.

AFNOR, Qualité des sols 1996. 3^{ème} édition.

Al Rayyes A.H., Ronneau C., Stone W.E.E., Genet M.J., Ladriere J., Cara J., 1993. Radiocesium in hot particles solubility vs chemical speciation. *Journal of Environmental Radioactivity*, 21: 143-151.

Arapis G., Petrayev E., Shagalova E., Zhukova O., Sokolik G., Ivanova T., 1997. Effective migration velocity of ¹³⁷Cs and ⁹⁰Sr as a function of the type of soil in Belarus. *Journal of Environmental Radioactivity* 34(2): 171-185.

Aslani M.A.A., Aytas S., Akyil S., Yaprak G., Yener G., Eral M., 2003. Activity concentration of caesium-137 in agricultural soils. *J. Environ. Radioactivity* 65: 131-145.

Auerbach S.I., Olson J.S., Walter H.D., 1964. Landscape investigation using caesium-137. *Nature* 201(4921): 761-764.

Auerbach S.I., 1986. Comparative behaviour of three long-live radionuclides in forest ecosystems. In : Annual seminar on the cycling of the long-live radionuclides in the biosphere, vol 1. CEC-CIEMAT meeting, 1-19 sept. 1986, Madrid.

Avery S.V., 1996. Fate of caesium in the environment: distribution between the abiotic and biotic components of aquatic and terrestrial ecosystems. *Journal of Environmental Radioactivity*, 30(2): 139-171.

Badot P.M., Lucot E., Lamarque S., 2004. Pollution de l'air et retombées atmosphériques en Franche-Comté. Contamination des sols et de la végétation par le césium 137. Observatoire régional de l'environnement, Conseil régional de Franche-Comté Editions, France, p30.

Bailly G., Schmit A., 1982. Pré-étude pour l'établissement des catalogues des stations forestières de la zone des feuillus (plaine et premier plateau du Jura) de Franche-Comté

Besançon: Université de Franche-Comté, Laboratoire de Biologie et de Taxonomie expérimentale et de Phytosociologie, 105p.

Baize D., 1988. Guide des analyses courantes en pédologie. *INRA (Paris)*, 170p..

Baize D., 1998. Analyse des sols. Editions INRA.

Barber D.A., 1968. Microorganisms and the inorganic nutrition of higher plants. *Annual Review of plant Physiology* 19: 71-88.

Barber D.A., Lee R.B., 1974. The effects of microorganisms on the absorption of manganese by plants. *The New Physiologist* 73: 97-106.

Barisic D., Vertacnik A., Lulic S., 1999. Caesium contamination and vertical distribution in undisturbed soils in Croatia. *Journal of Environmental Radioactivity*, 46: 361-374.

Briot M., 2009. Analyse des critères de définition de la zone d'appellation d'origine contrôlée des résineux du massif du Jura par des facteurs écologiques et application à sa délimitation. Thèse de doctorat, Université de Franche-Comté, pp. 1-198.

Burrough, P.A; Mc Donnel R.A; 1998. Principles of Géographical Information Systems, Oxford University Press N.Y., 132-161.

Burns M.A., Mankiewicz P.J., Bence A.E., Page D.S., Parker K.R., 1997. A principal component and least squares method for allocating polycyclic aromatic hydrocarbons in sediment to multiple sources. *Environ. Toxicology and Chemistry* 16: 490-495.

Brunner I., Frey B., Riesen, T.K., 1996. Influence of ectomycorrhization and cesium/potassium ratio on uptake and localization of cesium in Norway spruce seedlings. *Tree Physiology* 16: 705-711.

Bunzl K., Forster H., Kracke W., Schimmack W., 1994. Residence time of fallout $^{239+240}\text{Pu}$, ^{238}Pu , ^{241}Am and ^{137}Cs in the upper horizons of an undisturbed grassland soil. *J. Environ. Radioactivity* 22: 11-27.

Bunzl K., Kracke W., Schimmack W., Averswald K., 1995. Migration of fallout $^{239+240}\text{Pu}$, ^{238}Pu , ^{241}Am and ^{137}Cs in the various horizons of a forest soil under pine. *Journal of Environmental Radioactivity*, 28: 17-34.

Carlson C., Critto A., Marcomini A., Nathanail P., 2001. Risk based characterisation of contaminated industrial site using multivariable and geostatistical tools 111: 417-427.

Charles I., 1991. Zonage agro-pédologique régional de Franche-Comté. Mise au point méthodologique de cartogénèse à petite échelle. Contrôle statistique des unités cartographiées. Thèse de doctorat, Besançon, Université de Franche-Comté, pp. 1-171.

Chesnokov A.V., Govorun A.P., Linnik V.G., Shcherbak S.B., 2000. ^{137}Cs contamination of the Techa river flood plain near the village of Muslumovo. *Journal of Environmental Radioactivity*, 50: 179-191.

Chibowski S., Zygmunt J., 2002. The influence of the sorptive properties of organic soils on the migration rate of ^{137}Cs . *Journal of Environmental Radioactivity*, 61: 213-223.

Comans R.N.J., Preter P., 1991. Sorption of cesium on illite: non equilibrium behaviour and reversibility. *Geochim. Cosmochim. Acta*, 55: 433-440.

- Cornell R.M., 1993. Adsorption of cesium on minerals: a review. of *Radioanal. And Nucl. Chemistry Articles* 171: 483-500.
- Coughtrey P.J., Thorne M.C., 1983. Radionuclide distribution and transport in territorial and aquatic ecosystems. *A critical review of data*, vol. 4, Rotterdam: A.A. Balkema.
- Cremers A., Elsen A., De Preter P., Maes A., 1988. Quantitative analysis of radiocaesium retention in soils. *Nature* 335: 247-249.
- Cressie N.A.C., 1993. *Statistics for spatial data*, wiley, New York.
- CUER Centre Universitaire d'Etudes Régionales, Université de Franche-Comté, les sols de Franche-Comté, Gaiffe M. et Bruckert S., ISBN : 2-904088-04-0, 1985.
- Delvaux B., Kruyts N., Cremers A., 2000. Rhizospheric mobilization on radiocaesium in soils. *Journal of Environmental Radioactivity*, 41: 19-32.
- Delvaux B., Kruyts N., Cremers A., 2000. Rhizosphere mobilization on radiocaesium in soils. *Environmental Science and Technology*.
- Dubois G., DeCort M., 2001. Mapping ^{137}Cs deposition: data validation methods and data interpretation. *Journal of Environmental Radioactivity*, 53: 271-289.
- Dumat C., Staunton S., 1999. Reduced adsorption of caesium on clay minerals caused by various humic substances. *Journal of Environmental Radioactivity*, 46: 187-200.
- Ehlken S., Kirschner G., 2002. Environmental processes affecting plant root uptake of radioactive trace elements and variability of transfer factors data: a review. *J. Environ. Activity* 58: 97-112.

Elprince A.M., Rich C.L., Martens D.C., 1977. Effect of temperature and hydroxy aluminium interlayers on the adsorption of trace radioactive caesium by sediments near water-cooled nuclear reactors. *Water Resources Research* 13: 375-380.

Fawaris B.H., Johanson K.J., 1995. Sorption of ^{137}Cs from undisturbed forest soil in a zeolite trap. *Science Total of Environment*, 172: 251-256.

Fessenko S.V., Sanzharova N.I., Spiridonov S.I., Alexakhin R.M., 1997. Estimation du temps de semi-épuration du césium 137 des horizons des sols où se trouvent les racines en prairie. *Radioécologie 2* : 267-280, en russe.

Fessenko S.V., Soukhova N.V., Sanzharova N.I., Avili R., Spiridonov S.I., Klein D., Badot P.M., 2001. ^{137}Cs availability for soil to understory transfert in different types of forest ecosystems. *Sc. Tot. Environ.* 269: 87-103.

Forsberg S., Rosen K., Fernandez V., Juhan H., 2000. Migration of caesium 137 and strontium 90 in undisturbed soil profiles under controlled and close-to-real conditions. *Journal of Environment Radioactivity*; 50: 235-252.

Fowler S.W., Buat-Menard P., Yokoyama Y., Ballestra S., Holm E., Nguyen H.V., 1987. Rapid removal of Chernobyl fallout from Mediterranean surface waters by biological activity. *Nature* 329: 56-57.

Gadd G.M., Influence of microorganisms on the environmental fate of radionuclides. *Endeavour* 20: 150-156.

Guillitte O., Melin J., Wallberg L., 1994. Biological pathways of radionuclides originating from the Chernobyl fallout in a boreal forest ecosystem. *Science Total on Environment*, 157: 207-215.

Harvey N.W., Shaw G., Bell J.N.B., 1997. Influence of roots upon the mobility of radionuclides in soil with respect to location of contamination below the surface. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 226 (1-2): 159-173.

- Hird A.B., Rimmer D.L., Livens L.R., 1996. Factors affecting the sorption and fixation of cesium in acid organic soils. *European Journal of Soil Science*, 47 (1): 97-104.
- Isaksson M., Erlandsson B., 1995. Experimental determination of the vertical and horizontal distribution of ^{137}Cs in the ground. *Journal of Environmental Radioactivity*, 27 (2): 141-160.
- Kastenholz U., Kubiniok J., Kunkel R., 2001. Modèle de repartition géoécologique du césium 137 à la suite de l'accident du réacteur nucléaire de Tchernobyl. *Etude et gestion des sols* 8 (3): 189-202.
- Konoplev A.V., Bulgakov A.A., Popov V.E., Bobovnikova T.I., 1992. Behaviour of long-lived Chernobyl radionuclides in soil-water system. *Analyst*, 117: 1041-1047.
- Kruyts N., Delvaux B., 2002. Soil organic horizons as a major source for radiocaesium biorecycling in forest ecosystems. *Journal of Environmental Radioactivity*, 58: 175-190.
- Kruyts N., Titeux H., Delvaux B., 2004. Mobility of radiocaesium in three distinct forest floors. *Sc. Tot. Environ.* 319: 241-252.
- Lamarque S., 2004. Etude de la distribution spatiale du radiocésium, de son transfert sol-plante et de son devenir dans les écosystèmes faiblement contaminés. Thèse de doctorat, Université de Franche-Comté, pp 1-224.
- Le Roux G., Pourcelot L., Masson O., Duffa C., Vray F., Renaud P., 2008. Aerosol deposition and origin in French mountains estimated with soil inventories of ^{210}Pb and artificial radionuclides, *Atmos. Environ.* **42**. 1517-1524.
- Lettner H., Griesebner A., Peer T., Hubmer A.K., Pintaric M., 2006. Altitude dependent ^{137}Cs concentrations in different plant species in alpine agricultural areas, *Journal of Environmental Radioactivity*, 86: 12-20.

Linkov I., 1995. Radionuclide transport in forest ecosystems; modelling approaches and safety evaluation, PhD thesis, University of Pittsburgh, PA pp 171.

Lofts S., Tipping E.W., Sanchez A.L., Dodd B.A., 2002. Modelling the role of humic acid in radiocaesium distribution in a British upland peat soil. *Journal of Environmental Radioactivity*, 61: 133-147.

Maes E., Iserentant A., Herbauts J., Delvaux B., 1999. Influence of nature of clay minerals on the fixation of radiocaesium traces in an acid brown earth-podzol weathering sequence. *Europ.J. Soil Sc.* 50: 117-125;

Maubert H., Renaud P., Beaugelin K., 1998. Contamination: example of the radioecological consequences of the Tchernobyl accident in France. Workshop Comparative Evaluation of Environmental Toxicans, Chiban, Japan, January 28-30.

McGee E.J., Synnott H.J., Johanson K.J., Fawaris B.H., Nielsen S.P., Horrill A.D., Kennedy V.H., Barbayiannis N., Veresoglou D.S., Dawson D.E., Colgan P.A., McGarry A.T., 2000. Chernobyl fallout in a Swedish spruce forest ecosystem. *Journal of Environmental Radioecology*, 48: 59-78.

Mamikhin S.V., Tikhomirov F.A., Shcheglov A.I., 1997. Dynamics of ^{137}Cs in the forest of the 30-km around the Chernobyl nuclear power plant. *The Science of the Total Environment*, 193: 169-177.

Marey A.N., Barkhudarov R.M., Navikova N.Y., 1974. Les retombées globales de ^{137}Cs et l'homme, Moscou, *Atomizdat*, pp168.

Marschner H., 1995. Mineral nutrition of higher plant. London UK: *Academic Press*

Molchanova I.V., 1991. Les aspects radioécologiques de la couverture sol-végétal. Thèse, Sverdlovsk, (en russe).

Morgan J.E., 1990. Retention and mobility of artificial radionuclides in soil. UK Nirex Ltd, Harwell. NSS/R217.

Myttenaere Q., Schell W.R., Thiry H., Sombré L., Ronneau C., Vander Stegendet Schrieck J., 1993. Modelling of the Cs-137 cycling in forest: recent developments and research needed. *The Science of the Total Environment* 136: 77-91.

Nabyvanets Y.B., Gesell T.F., Jen M.H., Chang W.P., 2000. "Distribution of Cs-137 in soil along Ta-han River Valley in Tau- Yuan County in Taiwan. *Journal of Environmental Radioactivity*, 54: 391-400.

Nisbet A.F., Lembrechts K.J., 1990. The dynamics of radionuclides behaviour in soil solution with special reference to the application of countermeasures. In: Transfer of Radionuclides in Natural and Semi-natural Environments (eds G. Desmet, P. Nassimbeni, M. Belli) pp 371-381. *Elsevier Applied Science*, London.

OCDE, 1996. Tchernobyl. Dix ans déjà. Impacts radioécologiques et sanitaires. Agence pour l'Energie Nucléaire, OCDE 120p.

Olsen R.A., Joner E., Bakken L.R., 1990. Soil fungi and the fate of radiocaesium in the soil ecosystem. In : Transfer of Radionuclides in Natural and Semi-natural Environments (eds G. Desmet, P. Nassimbeni, M. Belli) pp. 657-663. *Elsevier Applied Science*, London.

Oughton D.H., Salbu B., Riise G., Lien H., Ostby G., Noren A., 1992. Radionuclide mobility and bioavailability in Norwegian and Soviet soils. *Analyst*, 117: 481-486.

Poinssot C., Baeyens C., Bradbury M.H., 1999. Experimental and modelling studies of cesium sorption on illite. *Geochemica and Cosmochemica Acta*, 63, (19/20): 3217-3227.

Pourcelot L., Steinmann P., Froidevaux P. 2007. Lower variability of radionuclide activities in upland dairy products compared to soils and vegetation: implication for environmental survey, *Chemosphere* 66, 1571-1579.

- Rafferty B., Dawson D., Kiashtorin A., 1997. Decomposition in two pine forest: the mobilization of ^{137}Cs and K from forest litter. *Soil Biology and Biochemistry*, 29 (11/12): 1673-1681.
- Rafferty B., Brennan M., Dawson D., Dowding D., 2000. Mechanisms of ^{137}Cs migration in coniferous forest soils. *Journal of Environmental Radioactivity*, 48: 131-143.
- Renaud P., Pourcelot L., Métivier J.M., Morello m., 2003. Mapping of ^{137}Cs deposition over eastern France 16 years after the Chernobyl accident. *Science of Total Environment*, 309: 257-264.
- Rigol A., Vidal M., Rauret G., Shand C.A., Cheshire M.V., 1998. Competition of organic and mineral phases in radiocaesium partitioning in organic soils of Scotland and the area near Chernobyl. *Environment Science and Technology*, 32: 663-669.
- Roca M.C., Vallejo V.R., 1995. Effect of soil potassium and calcium on caesium and strontium uptake by plant roots. *Journal of Environmental Radioactivity*, 28: 141-159.
- Rosen K., Oborn I., Lonsjo H., 1999. Migration of radiocaesium in Swedish soil profiles after the Chernobyl accident 1987-1995. *Journal of Environmental Radioactivity*, 46: 45-66.
- Schimmack W., Bunzl K., Zelles L., 1989. Initial rates of migration of radionuclides from the Chernobyl fallout in undisturbed soil columns. *Geoderma* 44: 211-218.
- Schimmack W., Bunzl K., Dietl F., Klotz D., 1994. Infiltration of radionuclides with low mobility (^{137}Cs and ^{60}Co) into a forest soil. Effect of the irrigation intensity. *J. Environ. Radioactivity*, 24: 53-63.
- Schimmack W., Bunzl K., Kreutzer K., 1997. A long-term field study on the effect of acid irrigation and compensatory liming on the transport of Chernobyl derived radiocaesium in a forest soil. *The Science of the Total Environment*, 198: 271-285.

Shawhney B.L., 1964. Sorption and fixation of microquantities of caesium clay minerals: effect of saturating cations. *Soil Science Society of America Proceeding*, 28: 183-186.

Shawhney B.L., 1967. Cesium sorption in relation to lattice spacing and cation exchange capacity of biotite. *Soil Science Society of America Proceeding*, 31: 181-185.

Shawhney B.L., 1972. Selective sorption and fixation of cations by clay minerals: a review. *Clays Clay Minerals*, 20: 93-100.

Shcheglov A.I., Tsvetnova O.B., Tikhomirov F.A., 1992. La migration des radionucléides de longue vie des retombées de Tchernobyl dans les sols de la partie européenne des pays de l'Union des Pays Indépendants. *Messenger de l'Université de Moscou* 17 (2) : 27-35.

Staunton S., Dumat C., Zsolnaey A., 2002. Possible role of organic matter in radiocaesium adsorption in soils. *Journal of Environmental Radioactivity*, 58: 163-173.

Steiner M., Linkov I., Yshida S., 2002. The role of fungi in the transfer and cycling of radionuclides in forest ecosystems. *Journal of Environmental Radioactivity*, 58: 217-241.

Strebl F., Gerzabeck M.H., Bossew P., Kienzl K., 1999. Distribution of radiocaesium in a Austrian forest stand. *The Science of the Total Environment*, 226: 75-83.

Takenata C., Onda Y., Hamajima Y., 1998. Distribution of cesium-137 in Japanese forest soils: correlation with the contents of organic carbon. *The Science of the Total Environment*, 222: 193-199.

Tamura T., Jacobs D.G., 1960. Structural implications in cesium sorption. *Health Physics* 2 : 391-396.

- Tegen I., Dorr H., Munnich K.O., 1991. Laboratory experiments to investigate the influence of microbial activity on the migration of cesium in a forest soil. *Water and Soil Pollution*, 57-58: 441-447.
- Tikhomirov F.A., Shcheglov A.I., 1994. Main investigation results on the forest radioecology in the Kyshtym and Chernobyl accident zones. *The Science of the Total Environment*, 157: 45-57.
- Treeby M., Marschner H., Romheld V., 1989. Mobilization of iron and other micronutrient cations from a calcareous soil by plant-borne, microbial and synthetic metal chelators. *Plant and Soil*, 114: 217-226.
- Tyler A.N., Carter S., Davidson D.A., Long D.J., Tipping R., 2001. The extent and significance of bioturbation on Cs-137 distributions in upland soils. *Catena*, 43: 81-99.
- Valcke E., Cremers A., 1994. Sorption-desorption dynamics of radiocaesium in organic matter soils. *The Science of the Total Environment*, 157: 275-283.
- Van Bergeijk K.E., Noordijk H., Lembrechts J., Frissel M.J., 1992. Influence of pH, soil type and soil organic matter content in soil-plant transfer of radiocaesium and radiostrontium as analyzed by a non parametric method. *Journal of Environmental Radioactivity*, 15: 265-276.
- Van Der Perk M., Burrough P.A., Voigt G., 1998. GIS-based modelling to identify regions of Ukraine, Belarus and Russia affected by residues of the Chernobyl nuclear power plant accident. *Journal of Hazardous Materials*, 61: 85-90.
- Walter C., 1990. Estimation de propriétés du sol et quantification de leur variabilité à moyenne échelle. Thèse de doctorat, Université de Paris VI, Paris, pp 1-172.
- Wiley J. and Sons. Radioecology after Chernobyl. Biogeochemical pathways of artificial radionuclides. Scope 50, 1993. Eds F. Warner and R.M. Harrison, Chichester N.Y., Brisbane, Toronto, Singapore.

Wirth E., Hiersche L., Kammerer L., Krajewska G., Krestel R., Mahler S., Rommelt R., 1994. Transfer equations for cesium-137 for coniferous forest understorey plant species. *The Science of the Total Environment*, 157: 163-170.

Wright S.M., Strand P., Sickel M.A.K., Howard B.J., Howard D.C., Cooke A.I., 1997. Spatial variation in the vulnerability of Norwegian Arctic counties to radiocaesium deposition. *The Science of the Total Environment*, 202: 173-183.

