

Géosciences de surface (Pédologie)
Modélisation de profil du ^{137}Cs par un modèle applicable à
différents types de sols non remaniés

Samira Faroussi ^{a,*}, Said Belali ^{a,b}, Ahmed Fahli ^a, Said Fakhi ^a,
Mustapha Khomsi ^b, Said Laachir ^{a,b}

^a *Laboratoire des sciences et instrumentation des rayonnements ionisants, université Hassan-II–Mohammedia, faculté des sciences Ben M'sik, BP 7955 Casablanca, Maroc*

^b *Laboratoire d'élaboration et d'analyse des matériaux et des couches minces, université Hassan-II–Mohammedia, faculté des sciences Ben M'sik, BP 7955 Casablanca, Maroc*

Reçu le 24 mai 2006 ; accepté après révision le 9 Janvier 2007

Disponible sur Internet le 6 mars 2007

Présenté par Georges Pédro

Résumé

Pour approcher le profil du césium 137 (^{137}Cs) dans les sols non remaniés et son comportement via les caractéristiques du sol, nous avons appliqué un modèle qui rassemble le modèle de compartiments et le modèle de diffusion–convection, dans lequel deux états du ^{137}Cs sont considérés : l'état libre et l'état piégé. Pour le calcul du rapport de concentration du ^{137}Cs dans chaque couche du sol, nous avons développé un programme de calcul sous Visual Fortran, basé sur la méthode des différences finies. Le profil expérimental et celui établi par le modèle nous ont permis de déterminer les paramètres du modèle pour différents types de sols moyens non remaniés et d'établir la relation entre le paramètre K , taux de transfert du ^{137}Cs de l'état libre à l'état piégé, et le pourcentage des argiles dans ces sols. Ainsi, l'application de ce modèle à huit types de sols prouve qu'il est applicable à tout sol non remanié. **Pour citer cet article :** S. Faroussi et al., C. R. Geoscience 339 (2007).

© 2007 Académie des sciences. Publié par Elsevier Masson SAS. Tous droits réservés.

Abstract

^{137}Cs profile modelling by means of a model applicable to different types of undisturbed soils. To make an approach of the caesium-137 (^{137}Cs) profile in undisturbed soils and of its behaviour from soil characteristics, we have used a model unifying the compartment model and the diffusion–convection model, in which two ^{137}Cs states are considered: free and bound. In order to calculate the concentration ratio for each one of the soil layers, we have developed a numerical program running under Visual Fortran, based on the finite-difference method. The experimental profile and the modelled one allow us to find out the model parameters for different types of undisturbed soil, and to establish the relation linking K , the transfer ratio from free state to bound state in these soils, and the clay content. Therefore, the application of this model to eight types of soil proves that it is applicable to any type of undisturbed soil. **To cite this article:** S. Faroussi et al., C. R. Geoscience 339 (2007).

© 2007 Académie des sciences. Publié par Elsevier Masson SAS. Tous droits réservés.

Mots clés : ^{137}Cs ; Sol ; Tchernobyl ; Argile ; Diffusion–convection ; Compartiment

Keywords: ^{137}Cs ; Soil; Chernobyl; Clay; Diffusion–convection; Compartment

* Auteur correspondant.

Adresse e-mail : Samirafaroussi2004@yahoo.fr (S. Faroussi).

Abridged English version

Caesium-137 is an artificial radioactive isotope that was diffused worldwide during the atomic bomb tests carried out above the ground at the end of the 1950s. The 1986 Chernobyl reactor accident represents the greatest phenomenon of deposition of radioactive substances. Prediction of the migration of ^{137}Cs in soil following deposition is important for external dose and plant uptake knowledge, and studies of soil erosion.

The organic and inorganic components of soil show an affinity for ^{137}Cs , and thereby limit downward migration. Some inorganic components of soils, particularly clays, have a large capacity for absorbing and retaining ^{137}Cs . It is clear that soils with different characteristics will present different degrees of ^{137}Cs binding, hence, different availability of ^{137}Cs for migration.

The main objective of the present work is to investigate the relationship between the ^{137}Cs profile and the percent of clay in an undisturbed soil. We have applied a model unifying the compartment model and the diffusion–convection one, in which two ^{137}Cs states are considered: free and bound. In order to calculate the ^{137}Cs concentration ratio for each soil layer, we have developed a numerical program running under Visual Fortran based on the finite-difference method. The modelled profile and the experimental one have permitted us to find the model parameters for different types of undisturbed soil, and to establish the following relationship:

$$\tau_1 = 2K, \quad \frac{\tau_6}{\tau_1} = 10,66, \quad \frac{K}{\mu} = 16$$

and the relation linking K , the free-state-to-bound-state transfer rate, and the clay content in these undisturbed soils:

$$K = -12.51011 + m[1.23135 - 0.03055 m]$$

with m the percentage of clays in the soil.

Therefore, we concluded that the model parameters depend strongly on the soil's clay content. Determination of the free-state-to-bound-state transfer rate K allows us to predict the ^{137}Cs profile in undisturbed soils. Therefore, the application of this model to eight types of soil proves that it can be applied to any type of undisturbed soil.

1. Introduction

Le césium 137 est un radio-isotope introduit artificiellement dans l'environnement par le rejet des

déchets et les accidents nucléaires [15,16]. Compte tenu de sa radiotoxicité et sa grande capacité d'absorption aux sédiments et aux particules du sol [9], de nombreuses études ont été focalisées sur la gestion des sols contaminés [5,7,16]. L'objet du présent travail s'inscrit dans ce contexte. Il s'agit d'appliquer un modèle qui rassemble le modèle de compartiments et le modèle de diffusion–convection, dans lequel deux états du ^{137}Cs sont considérés (l'état libre et l'état piégé), pour approcher le profil du ^{137}Cs dans différents types de sols non remaniés et le comportement de cet élément via les caractéristiques du sol [3,13]. Pour le calcul du rapport de concentration du ^{137}Cs dans chaque couche de sol, nous avons développé un programme de calcul sous Visual Fortran basé sur la méthode des différences finies. En se basant sur les profils expérimentaux et ceux issus du modèle du ^{137}Cs , huit types de sols moyens (à faible teneur en matière organique) non remaniés, provenant de différentes régions, ont été considérés [1,3,10–12,18], afin de déterminer l'influence du pourcentage des argiles dans ces sols sur la valeur du paramètre K , taux de transfert du ^{137}Cs de l'état libre à l'état piégé.

2. Modélisation mathématique

Notre approche considère un modèle qui en rassemble deux : le modèle de diffusion–convection et le modèle de compartiment.

2.1. Le modèle de diffusion–convection [3]

Le modèle de diffusion–convection se base sur deux phénomènes de migration verticale du ^{137}Cs dans le sol : la diffusion et la convection, en considérant les états libre et piégé du ^{137}Cs [4,5] :

$$\frac{\partial x}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial z} \left(D \frac{\partial x}{\partial t} \right) - \frac{\partial(vx)}{\partial z} - Kx - \lambda x + \mu b \quad (1)$$

$$\frac{\partial b}{\partial t} = Kx - \mu b - \lambda b \quad (2)$$

avec : $x(z,t)$ la concentration du ^{137}Cs libre à la profondeur z et à l'instant t ; $b(z,t)$ la concentration du ^{137}Cs fixe à la profondeur z et à l'instant t ; λ la constante de décroissance du ^{137}Cs ; D le coefficient de diffusion ; K le taux de transfert de l'état libre à l'état piégé ; v la vitesse de transport du ^{137}Cs ; μ le taux de transfert de l'état piégé à l'état libre.

2.2. Modèle de compartiment [2]

Soient respectivement $X_n(t)$ et $B_n(t)$ les teneurs en césium libre et en césium piégé dans la couche n :

$$X_n = \int_{(n-1)\Delta z}^{n\Delta z} x(z, t) dz$$

$$B_n = \int_{(n-1)\Delta z}^{n\Delta z} b(z, t) dz, \quad \text{avec } n = 1, 2, 3, 4$$

L'intégration de (1) et (2), sachant que :

$$J_D(z, t) = -D \frac{\partial X}{\partial z}$$

$$J_C(z, t) = vX$$

$$\tau_n X_n(t) = J_C + J_D \quad (3)$$

(avec J_D le courant de diffusion, J_C le courant de convection et τ_n le taux de transfert du césium libre de la couche n à la couche $n + 1$) donnent :

$$\frac{\partial X_n}{\partial t} = \tau_{n-1} X_{n-1} - \tau_n X_n - (k + \lambda) X_n + \mu \beta_n \quad (4)$$

Les équations (3) et (4) nous indiquent que le taux de transfert τ est fonction de la profondeur.

3. Résolution numérique

L'utilisation de la méthode des différences finies MDF et du schéma implicite (avec les conditions initiales et aux limites) nous donne les expressions suivantes :

– pour le césium piégé :

$$B_i^{n+1} = \frac{K \Delta t}{1 + \Delta t (\lambda + \mu)} X_i^{n+1} \quad (5)$$

– pour le césium libre :

$$X_i^{n+1} \left[1 + \Delta t \tau_i + (K + \lambda) \Delta t - \frac{K \mu \Delta t^2}{1 + \Delta t (\lambda + \mu)} \right] + \quad (6)$$

$$X_{i-1}^{n+1} [-\Delta t \tau_{i-1}] = X_i^n$$

Notons que les indices définissent la discrétisation spatiale et les exposants la discrétisation temporelle.

4. Résultats et discussions

Après la phase de dépôt du ^{137}Cs par les précipitations, le sol constitue le compartiment de stockage principal. La rétention du césium par le sol dépend

principalement des caractéristiques des différentes fractions organiques et des particules argileuses [4,9]. Il résulte de ces deux facteurs que le profil du ^{137}Cs présente une très forte variabilité.

On trouve dans la littérature des modèles rendant compte de la migration du radiocésium, mais qui ne sont applicables qu'à certains types de sol ; ils ne sont pas transférables d'un site à l'autre [6,8,13,14].

Nous avons utilisé dans notre travail un modèle applicable à n'importe quel type de sol non remanié [4].

De ce fait, nous avons repris les profils expérimentaux trouvés dans huit sols moyens non remaniés de différentes régions [3,5,10–12,18], dont les caractéristiques (matière organique et argile) sont regroupées dans le Tableau 1. Dans ces sols, les argiles contiennent une majorité d'illite.

Sachant qu'en général les caractéristiques du sol restent homogènes sur une profondeur de 30 cm et que le ^{137}Cs se concentre à la même profondeur, on peut donc considérer, pour le modèle utilisé dans notre travail, que les paramètres μ et K restent constants pour toutes les couches d'une profondeur de 30 cm de sol. Supposons que l'épaisseur de chaque couche soit $\Delta z = 5$ cm et que τ_i soit linéaire par rapport à i ($i = 1, 2, 3, \dots$) [2] ; si $T(^{137}\text{Cs}) = 30$ ans, on obtient, à l'aide de la relation $\lambda = \ln \frac{2}{T}$, $\lambda(^{137}\text{Cs}) = 7,32 \times 10^{-10} \text{s}^{-1}$. Nous avons appliqué le modèle à une grille de valeurs de (τ_1 , τ_6 , μ , K), afin de rechercher les valeurs qui fournissent l'erreur minimale entre modèle et expérience, et donc d'essayer de trouver un modèle qui s'applique à n'importe quel type de sol non remanié. Le Tableau 2 nous donne des valeurs pour chaque sol étudié.

Les Figs. 1–8 représentent successivement, selon une échelle semi-logarithmique, les profils expérimentaux

Tableau 1

Les pourcentages d'argile et de matières organiques dans les sols non remaniés de différentes régions

Table 1

Percentages of clay and organic matter in undisturbed soils of different regions

Région	Pourcentage d'argile	Pourcentage de matière organique
Osterberg (Allemagne)	14,687	0,938
Bliessgau (Allemagne)	11,667	1,25
Guelph Drumlin Field (Canada)	11,1	6,52
Salamiyah (Syrie)	17	0,84
Saydnaya (Syrie)	15,3	0,75
Jackmoor Brook (Royaume-Uni)	10,2	6,3
River Start (Royaume-Uni)	12,1	4,52
Thessalonique (Grèce)	22	1,28

Tableau 2

Les valeurs des paramètres (τ_1 , τ_6 , μ , K) pour les différentes régions

Table 2

Parameters' values (τ_1 , τ_6 , μ , K) for different regions

Région	K	μ	τ_1	τ_6
Osterberg (Allemagne)	0,48	0,03	0,9	9,6
Bliesgau (Allemagne)	0,08	5×10^{-3}	0,15	1,6
Guelph Drumlin Field (Canada)	0,07	$4,375 \times 10^{-3}$	0,13125	1,4
Salamiyah (Syrie)	0,6	0,0375	1,125	12
Saydnaya (Syrie)	0,5	0,03125	0,9375	10
Jackmoor Brook (Royaume-Uni)	0,06	$3,75 \times 10^{-3}$	0,1125	1,2
River Start (Royaume-Uni)	0,09	$5,625 \times 10^{-3}$	0,16875	1,8
Thessalonique (Grèce)	0,8	0,05	1,5	16

et ceux trouvés par le modèle du ^{137}Cs en fonction de la profondeur dans le sol moyen non remanié des régions de Osterberg, Bliesgau, Guelph Drumlin Field, River Start, Jackmoor Brook, Salamiyah et de Saydnaya [1,3,10,11,18] ; R_n représente le rapport de la concentration du ^{137}Cs dans la n^{e} couche et la concentration totale de l'ensemble des couches. Les Figs. 1–8 nous montrent que les profils théoriques trouvés grâce au modèle numérique, à l'aide du programme élaboré sous Visual Fortran pour la grille des valeurs (τ_1 , τ_6 , μ , K) données dans le Tableau 2, sont très proches des profils expérimentaux. Nous avons aussi remarqué que les paramètres (τ_1 , τ_6 , μ , K) sont liés par les relations suivantes :

$$\tau_1 = 2K, \quad \frac{\tau_6}{\tau_1} = 10,66 \quad \text{et} \quad \frac{k}{\mu} = 16$$

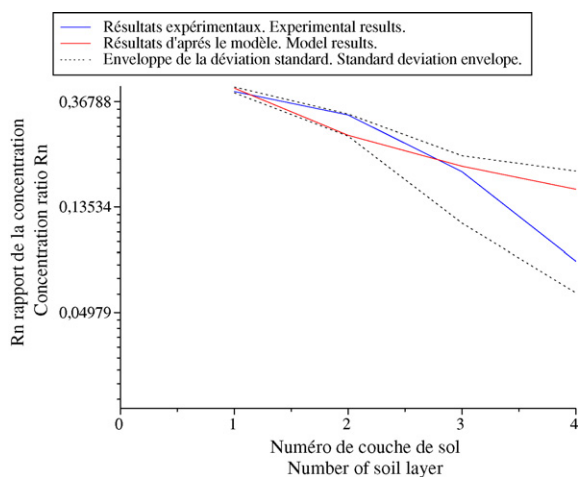


Fig. 1. Profils expérimental et théorique du césium 137 à Osterberg, 14 ans après l'accident de Tchernobyl.

Fig 1. Experimental and model profiles of caesium-137 at Osterberg, 14 years after the Tchernobyl accident.

Les profils expérimentaux du ^{137}Cs dans les deux sols des régions Saydnaya et Osterberg [10,11], sont très proches ; il en va donc de même pour les paramètres (τ_1 , τ_6 , μ , K). Cela est dû au fait qu'ils ont des caractéristiques (pourcentages d'argile et de matière organique) proches.

Le césium est en général considéré comme très peu mobile dans la majorité des sols, comme en témoignent les types de sols étudiés.

La Fig. 9 nous montre la relation entre la rétention du ^{137}Cs dans les argiles des sols moyens non remaniés et représente la variation du paramètre K , taux de transfert du ^{137}Cs de l'état libre à l'état piégé, ainsi que le pourcentage d'argiles dans les huit sols moyens non remaniés, étudiés selon une échelle semi-logarithmique. On observe sur la courbe une augmentation exponentielle du paramètre K avec le pourcentage

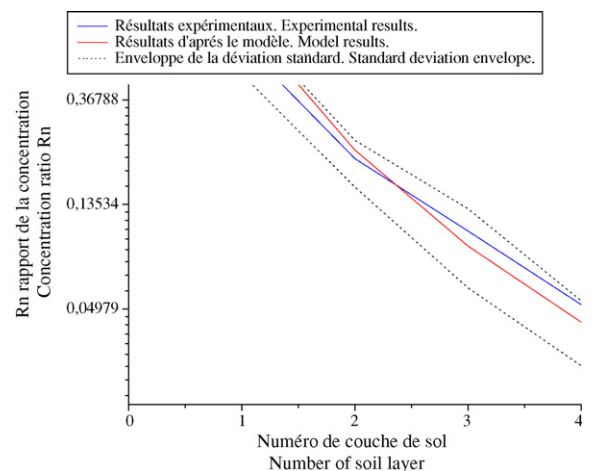


Fig. 2. Profils expérimental et théorique du césium 137 à Bleisgau, 14 ans après l'accident de Tchernobyl.

Fig. 2. Experimental and model profiles of caesium-137 at Bleisgau, 14 years after the Tchernobyl accident.

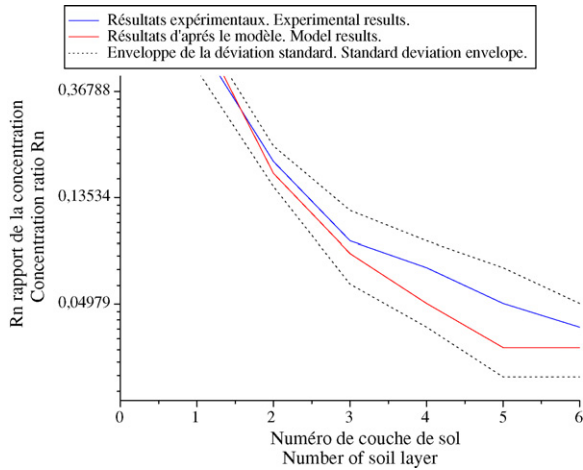


Fig. 3. Profils expérimental et théorique du césium 137 à Thessalonique, 14 ans après l'accident de Tchernobyl.

Fig. 3. Experimental and model profiles of caesium-137 at Thessaloniki, 14 years after the Tchernobyl accident.

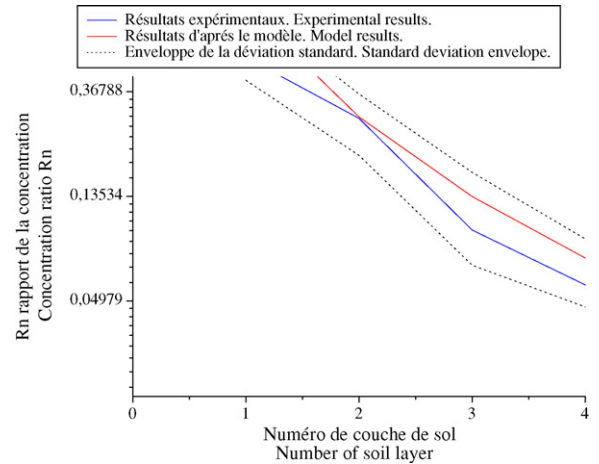


Fig. 5. Profils expérimental et théorique du césium 137 à River Start, dix ans après l'accident de Tchernobyl.

Fig. 5. Experimental and model profiles of caesium-137 at River Start, 10 years after the Tchernobyl accident.

d'argiles, selon une loi trouvée par ajustement polynomial, exprimée dans l'échelle semi-logarithmique par l'expression :

$$K = -12,51011 + m[1,23135 - 0,03055 m]$$

avec m le pourcentage d'argiles dans le sol.

L'augmentation de K avec le pourcentage d'argiles dans ces sols est en bon accord avec des recherches expérimentales sur la rétention du ^{137}Cs dans le sol

[9,11], qui ont montré que, dans les sols moyens présentant une teneur en matière organique de l'ordre de quelques pourcents, comme c'est le cas des sols considérés dans cet article, la partition sol-solution de l'ion Cs^+ est majoritairement contrôlée par un mécanisme d'échange ionique avec les argiles ; dans les illites, en bordure des feuilletts, apparaissent des sites FES (*frayed edge sites*) [17], qui jouent un rôle déterminant dans la fixation sélective du Cs^+ .

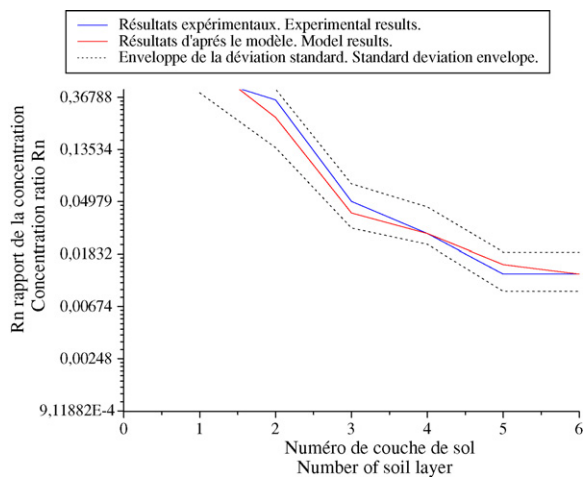


Fig. 4. Profils expérimental et théorique du césium 137 à Guelph Drumlin Field, 14 ans après l'accident de Tchernobyl.

Fig. 4. Experimental and model profiles of caesium-137 at Guelph Drumlin Field, 14 years after the Tchernobyl accident.

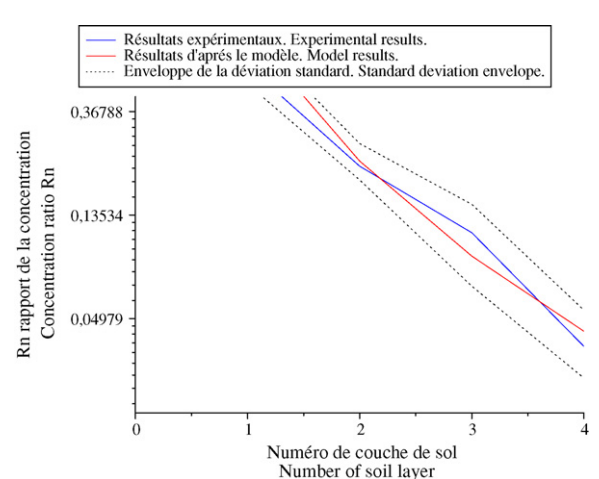


Fig. 6. Profils expérimental et théorique du césium 137 à Jackmoor Brook, dix ans après l'accident de Tchernobyl.

Fig. 6. Experimental and model profiles of caesium-137 at Jackmoor Brook, 10 years after the Tchernobyl accident.

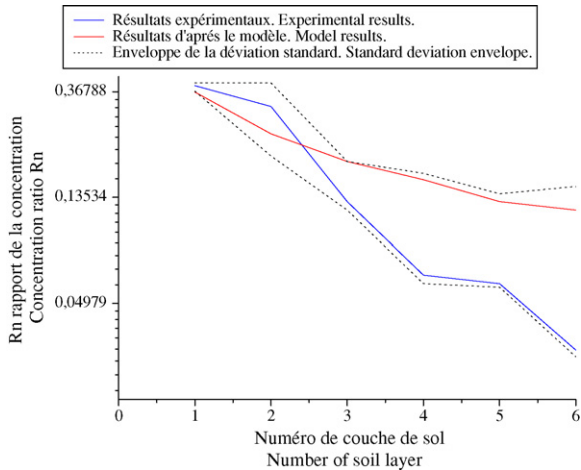


Fig. 7. Profils expérimental et théorique du césium 137 à Salamiya, 14 ans après l'accident de Tchernobyl.

Fig. 7. Experimental and model profiles of caesium-137 at Salamiya, 14 years after the Tchernobyl accident.

D'autres sites interfoliaires spécifiques peuvent piéger le césium de manière irréversible.

Le césium est réputé pour être relativement mobile dans les sols organiques, au sens d'une teneur en matière organique de l'ordre de plusieurs dizaines de pourcents [4]. Les relations entre l'absorption du césium et la matière organique sont cependant complexes, puisque la présence dans un sol d'une faible quantité d'argile suffit pour que l'absorption soit gouvernée par les sites spécifiques de l'argile [4].

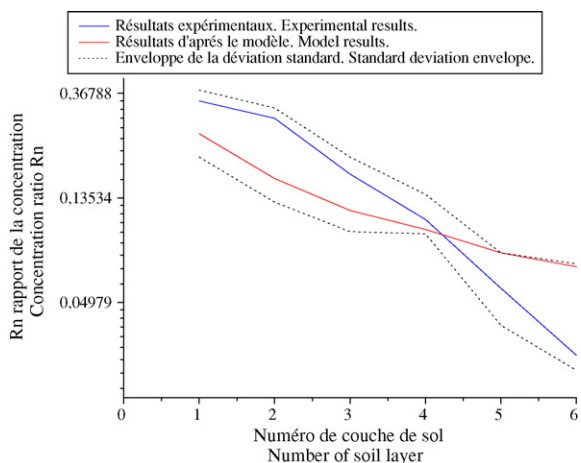


Fig. 8. Profils expérimental et théorique du césium 137 à Saydnaya, 14 ans après l'accident de Tchernobyl.

Fig. 8. Experimental and model profiles of caesium-137 at Saydnaya, 14 years after the Tchernobyl accident.

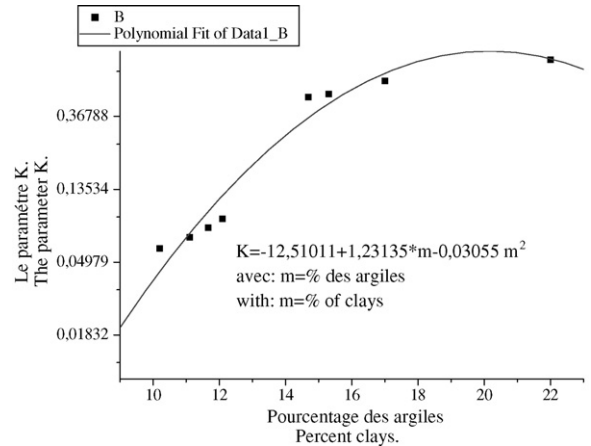


Fig. 9. Variation de K , taux de transfert du césium 137 de l'état libre à l'état piégé dans le sol, avec le pourcentage des argiles.

Fig. 9. Variation of the free-state-to-bound-state transfer rate K , with the percentage of clays.

5. Conclusion

L'idée fondamentale qui a présidé à notre travail consiste à appliquer ce modèle à des sols de caractéristiques différentes, en vue de trouver la relation qui existe entre le pourcentage d'argiles et le paramètre K , qui définit le taux de transfert de césium libre en césium piégé.

Dans ce travail, nous avons simulé le profil du ^{137}Cs dans des sols moyens non remaniés de différentes régions à l'aide d'un modèle qui rassemble les modèles de diffusion–convection et de compartiment. Le modèle global s'applique à n'importe quel type de sol non remanié, ce qu'a démontré son application à huit types de sols non remaniés de différentes régions. Ainsi, les paramètres trouvés (τ_1 , τ_6 , μ , K) nous ont permis d'obtenir des profils qui coïncident bien avec les résultats expérimentaux. Nous avons déduit les relations entre ces paramètres, en remarquant que les valeurs de ces derniers sont proches pour des sols de caractéristiques voisines (pourcentages en argile et matières organiques) et que le taux de transfert K du ^{137}Cs de l'état libre à l'état piégé croît lorsque le pourcentage d'argiles dans le sol augmente.

Références

- [1] M.S. Al-Masri, Vertical distribution and inventories of ^{137}Cs in the Syrian soils of the eastern Mediterranean region, J. Environ. Radioact. 86 (2006) 187–198.

- [2] M. Antopolous-Domis, Modelling of cesium migration in soils, Nucl. Sci. Eng. 121 (1995) 461–467.
- [3] M. Antonopoulous-Domis, A. Glouvas, A. Hiladakis, S. Kadi, Radio-cesium distribution in undisturbed soil: measurements and diffusion–advection model, Health Phys. 69 (1995) 949–953.
- [4] F. Bigorre, D. Tessier, G. Pédro, Contribution des argiles et des matières organiques à la rétention de l'eau dans les sols. Signification et rôle fondamental de la capacité d'échange en cations, C. R. Acad. Sci. Paris, Ser. Ila 330 (2000) 245–250.
- [5] G.C. Bonazzola, R. Ropolo, A. Facchinelli, Profiles and downward migration of ^{137}Cs and ^{106}Ru deposited on Italian soils after the Chernobyl accident, Health Phys. 64 (1993) 479.
- [6] A. Chappell, A. Warren, M.A. Oliver, M. Charlton, The utility of ^{137}Cs for measuring soil redistribution rates in southwest Niger, Geoderma 81 (1998) 313–337.
- [7] L.E.C. Ciuffo, M. Beli, A. Pasquale, S. Menegon, H.R. Valasco, ^{137}Cs and ^{40}K soil plant relationship in a seminatural grassland of Giulia Alps, Italy, Sci. Total Environ. 295 (2002) 69–80.
- [8] A. Dobnikar, S. Vavpotic, A. Likar, Dynamic systems modeling with stochastic cellular automata (Evolutionary versus stochastic correlation approach), J. Comput. Inf. Technol. (2002) 251–259.
- [9] Q. He, D.E. Walling, Interpreting particle size effects in the adsorption of ^{137}Cs and unsupported ^{210}Pb by mineral soils and sediments, J. Environ. Radioact. 30 (1996) 117–137.
- [10] Q. He, D.E. Walling, The fallout of ^{137}Cs and ^{210}Pb in undisturbed and cultivated soils, Pergamon 48 (1997) 677–690.
- [11] U. Kastenholz, J. Kubiniok, R. Kunkel, Modèle de répartition géoécologique du césium 137 à la suite de l'accident du réacteur de Tchernobyl. Contribution à la protection des sols en Sarre, Étude et gestion des sols 8 (3) (2001) 189–202.
- [12] J.J. Kiss, E. Jong, L.W. Martz, The distribution of fallout cesium 137 in southern Saskatchewan, Can. J. Environ. 17 (1988) 445–452.
- [13] O.V. Konshin, Applicability of the convection–diffusion mechanism for modeling migration of ^{137}Cs and ^{90}Sr in the soil, Health Phys. 63 (1992) 291–300.
- [14] O.V. Konshin, Mathematical model of ^{137}Cs migration in soil. Analysis of observations following the Chernobyl accident, Health Phys. 63 (1992) 301–306.
- [15] P. Kritidis, H. Florou, Radiological impact of the Chernobyl accident in Greece: a ten-year synopsis, Health Phys. 8 (2000) 440–446.
- [16] P. Porto, D.E. Walling, V. Tanburino, G. Callegari, Relating caesium-137 and soil loss from cultivated land, Catena 53 (2003) 303–326.
- [17] D. Tessier, Q. Bruand, Y. Bissonnais, E. Dambrine, Qualité physique et chimique des sols, implications pour l'agriculture et l'environnement, Étude et gestion des sols 34 (1996) 229–244.
- [18] A.J. Van den Bygaart, R. Protz, D.C. McCabe, Distribution of natural radionuclides and ^{137}Cs in soils of southwestern Ontario, Can. J. Soil Sci. 79 (2001) 189–202.