

# Impact du changement climatique sur la mobilité des radionucléides: Rôle de la matière organique dans la mobilité actuelle et future du radium

**Localisation:** Institut Terre et Environnement de Strasbourg (ITES), 5 rue Descartes, Strasbourg

**Domaine:** géochimie et modélisation numérique

**Direction de thèse (renseignements, contact):** Sophie Rihs: rihs@unistra.fr

Emilie Beaulieu: emilie.beaulieu@engees.unistra.fr

## Contexte scientifique

L'exposition aux rayonnements externes et internes causée par les Matériaux Radioactifs Naturels (NORM) représente environ 50 % de la dose annuelle de radionucléides pour l'homme. Parmi ces NORM, le radium (Ra) est un élément de première importance à considérer en radioprotection <sup>[1]</sup> en raison de sa proximité chimique avec le calcium (famille des cations alcalino-terreux) fortement prélevé par la végétation, des très courtes périodes radioactives de ses descendants, de sa forte mobilité dans la biosphère et des nombreuses sources potentielles de ce radionucléide dans l'environnement (déchets provenant d'activités industrielles historiques ou contemporaines telles que les industries du phosphate, la combustion du charbon, la production de pétrole et de gaz, l'extraction de minerais d'uranium ou encore l'énergie géothermique profonde). Le Ra et ses descendants constituent ainsi la seconde source de radioactivité dans l'alimentation humaine. Des études comparatives des climats tempérés et subtropicaux ont montré que le comportement des radionucléides est influencé par de nombreuses caractéristiques environnementales telles que la température, les précipitations, les propriétés du sol et la teneur en matière organique (MO). Par conséquent, le changement climatique pourrait potentiellement modifier de manière significative les interactions actuellement connues des radionucléides avec les compartiments de la zone critique (hydrosphère, pédosphère, biosphère, atmosphère) à travers des effets directs ou indirects tels que des changements dans les propriétés du sol, en particulier celles liées à la MO. En effet, un changement significatif de la quantité et de la réactivité de la MO est prédit en réponse aux modifications de température ou de précipitation, en particulier dans les sols forestiers, représentant plus des 2/3 de la réserve mondiale de MO du sol. Cependant, l'influence de la MO sur la mobilité de certains radionucléides comme le radium, reste encore très mal quantifiée, principalement en raison de la grande hétérogénéité de la MO naturelle. L'impact des modifications de la MO des sols sur la mobilité des radionucléides est ainsi à ce jour quasiment imprévisible.

## Objectif de la thèse et organisation

L'objectif de la thèse est de **quantifier et modéliser la dynamique du Ra associé à la MO dans les sols, et proposer une prédiction de l'impact du changement climatique sur sa mobilité**. Parmi les très nombreux effets du changement climatique, l'augmentation des événements de sécheresse sera particulièrement ciblée car cette augmentation est supposée induire une modification importante de la MO des sols. Ce travail impliquera **deux aspects complémentaires**: la caractérisation de l'interaction Ra-MO dans les compartiments de l'écosystème de deux sites d'études impliquant un **travail en laboratoire de géochimie** et une **modélisation** couplée hydro-biogéochimique. Les sites envisagés pour cette étude correspondent à deux sites forestiers instrumentés et étudiés depuis de nombreuses années, permettant le suivi des solutions de sol en continu. Il s'agit du bassin du Strengbach dans les Vosges, Observatoire Hydrogéochimique de l'Environnement (<http://ohge.unistra.fr/>), et du site de Montiers faisant partie de l'OPE Andra de Meuse Haute-Marne (<https://www6.nancy.inrae.fr/bef/Moyens-analytiques/Montiers>). Sur ce dernier, une parcelle a été récemment équipée par l'INRAE (Champenois) d'un dispositif expérimental innovant dédié à l'étude sur le terrain de l'impact de la sécheresse sur les cycles biogéochimiques. Une végétation identique (hêtres) se développe sur les deux sites, dans des contextes

climatiques différents : tempéré pour le site de Montiers, de moyenne montagne et plus froid pour le bassin du Strengbach.

*i) Caractérisation de l'interaction matière organique – Ra dans les sols*

La diversité des molécules organiques présentes dans la fraction organique des sols représente une difficulté dans l'étude des mécanismes d'interaction Ra-MO, expliquant probablement en partie le peu de données existantes. L'objectif de ce volet est d'identifier un certain nombre de groupes fonctionnels pouvant intervenir de façon significative dans la rétention/mobilité du Ra au sein d'un sol, information actuellement quasiment inconnue mais néanmoins cruciale dans un objectif de prédiction de la mobilité du Ra. La caractérisation des groupes fonctionnels organiques (carboxyles, phénoliques, alcooliques, etc...) du sol, associée à la quantification du Ra de la fraction correspondante constituera une première approche permettant de mieux comprendre les mécanismes d'interaction Ra-MO. L'analyse du/des complexes Ra-MO dans les solutions de sol (flux d'export) est quant à elle nécessaire pour mieux comprendre le devenir et l'évolution des flux de Ra dans le sol. La caractérisation de la MO dans les profils de sol et les solutions de sol sera donc associée à l'analyse de la concentration en Ra ainsi que du rapport isotopique ( $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ ) permettant de distinguer clairement le flux d'altération du flux de recyclage biologique. Cette caractérisation sera réalisée par Py-GC-MS. L'identification des groupes fonctionnels organiques impliqués dans la rétention du Ra permettra dans un 2<sup>ème</sup> temps de réaliser des expériences de complexation du Ra avec des molécules de références pertinentes (à définir en fonction des résultats obtenus sur les sols étudiés) afin de déterminer expérimentalement les constantes de complexation correspondantes puis implémenter de façon plus précise les modèles d'adsorption/complexation du Ra. L'impact de la sécheresse sera directement observé sur le site de Montiers grâce à la comparaison des profils et solutions prélevés sur une parcelle soumise à 3 mois de sécheresse complète par an et une parcelle témoin.

*ii) Modélisation de la mobilité du Ra et première évaluation de l'influence des variables hydro-climatiques*

La prédiction de l'impact de la réduction de la quantité d'eau sur la réactivité de la MO et de fait sur la mobilité du Ra sera abordée en s'appuyant sur une modélisation hydro-biogéochimique des sites étudiés. Les modèles numériques biogéochimiques couplés existants prennent en compte les échanges entre la végétation et le sol ainsi que les échanges des cations avec le complexe argilo-humique dans les simulations à l'échelle de bassin versant ou à l'échelle de profil de sol. Les réactions associées à ce complexe d'échange sont contraintes par des coefficients de sélectivité, en général ajustés pour calibrer les modèles induisant des variations de plusieurs ordres de grandeur entre les sites. Cependant, aucune donnée pour le Ra n'est actuellement disponible. Des données expérimentales (coefficients de sélectivité) ou de terrain (identification de l'origine des flux dissous grâce au rapport isotopique du Ra) obtenues au cours de ce travail permettront d'améliorer et de développer les formalismes des modèles existants. Ce volet sera réalisé avec le couplage de modèles WITCH-LPJ à partir des chroniques de données disponibles sur les deux sites (entrées des modèles) afin de modéliser les suivis des concentrations des solutions de sol des deux sites en incluant le recyclage des éléments par la végétation. La deuxième étape de ce volet consistera à tester plusieurs scénarii de changement climatique (basés sur un scénario du GIEC) impliquant une diminution de la pluviométrie et/ou une modification des caractéristiques du complexe d'échange du sol (impliquant la MO).

<sup>[1]</sup> IAEA (2014) The Environmental Behaviour of Radium: Revised Edition—Technical report series 476, Vienna: International Atomic Energy Agency, 267 p.