

Modélisation du Chlore 36 dans l'Environnement: Les différentes approches au vu des dernières connaissances du rôle du chlore dans l'environnement.

IRSN

INSTITUT
DE RADIOPROTECTION
ET DE SÛRETÉ NUCLÉAIRE

Christian Tamponnet

Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire

Direction de l'Environnement et de l'Intervention

CADARACHE, B. P. 3,

F-13115 Saint-Paul-lez-Durance Cedex

FRANCE

christian.tamponnet@irsn.fr

SOMMAIRE

Introduction

Le Chlore 36 dans l'Environnement

Modélisation par compartiment (Facteurs de Transfert)

Modélisation par dilution isotopique (Activité Spécifique)

Modélisation phénoménologique : approche dynamique

Le choix du type de modèle

Dernières données sur le chlore 36 : les organochlorés d'origine naturelle

Conclusion

INTRODUCTION

Le chlore 36 est un isotope radioactif du chlore. Il est issu de l'activation du chlore stable présent à l'état d'impuretés dans le combustible. Il est aussi produit lors des explosions nucléaires et il se forme également de façon naturelle par l'action des rayonnements cosmiques sur certains éléments (K, ^{40}Ar , Ca) dans les hautes couches de l'atmosphère.

De ce fait, il est susceptible d'être rejeté dans l'environnement sous forme d'effluents gazeux lors des opérations de retraitement du combustible, de stockage profond des déchets ainsi que lors du démantèlement des installations nucléaires.

De ce fait, la modélisation des transferts environnementaux du chlore 36 dans l'environnement continental terrestre et aquatique d'eau douce est devenue un problème important qui intéresse fortement les entreprises publiques ou privées concernées (EdF, COGEMA, ANDRA).

Le Chlore 36 dans l'Environnement

SOURCE	contamination							
	AIR	dépôts	transferts					inhalation
		SOL	transferts		migration			exposition externe
			PLANTES TERRESTRES	transferts				aliments
				ANIMAUX TERRESTRES				aliments
		irrigation	irrigation	boisson	EAU	transferts		boisson
						PLANTES AQUATIQUES	transferts	aliments
							ANIMAUX AQUATIQUES	aliments
								HOMME

Le Chlore 36 dans l'Environnement

Les différents processus de transfert du radionucléide concerné intervenant successivement dans l'environnement terrestre et dans l'environnement aquatique d'eau douce sont :

- Transfert au sol (dépôt humide ou sec air → eau du sol et irrigation → eau du sol)
- Transfert aux végétaux et produits végétaux (eau du sol → plantes et dépôt humide ou sec air → plantes)
- Ecoulement vers la nappe phréatique (eau du sol → nappe phréatique)
- Transfert aux animaux et produits animaux
- Transfert de la nappe phréatique vers les eaux de surface
- Transfert dans les chaînes trophiques aquatiques aux animaux et produits animaux aquatiques

Modélisation par Compartiment

En radioécologie, le modèle Facteurs de Transfert qui considère que les différents compartiments étudiés dans un écosystème sont à l'équilibre est le modèle de base pour la plupart des radionucléides concernés. Une telle approche se définit par des équations du type suivant :

$$FT_{N-1 \rightarrow N} = \frac{[^{36}\text{Cl}]_N}{[^{36}\text{Cl}]_{N-1}}$$

Dans le cas particulier du Chlore 36, un tel modèle apparaît comme fort peu approprié. En effet, si on l'applique aux compartiments du sol, on introduit l'approche KD qui se définit par l'équation suivante reliant la concentration en chlore 36 dans le sol et celle dans la solution du sol :

$$KD = \frac{[^{36}\text{Cl}]_{\text{soil}}}{[^{36}\text{Cl}]_{\text{soilsolution}}}$$

Modélisation par Compartiment

Or, le chlore 36 est connu pour ne pas ou très peu se fixer sur les constituants minéraux du sol (Sheppard et al., 1996 ; Khasparov et al., 2007) et les valeurs de KD mesurées sont toujours très faibles. De plus, le chlore 36 possède une longue demi-vie (Cf. Tableau 1) et une très forte mobilité (qui en a fait parfois comme le tritium un marqueur spécifique de l'eau).

Tableau 1 : caractéristiques radiologiques du ^{36}Cl (Delacroix et al., 1998).

<i>Période radioactive</i>	<i>Activité massique</i>	<i>Emission principale</i>
3.01×10^5 ans	1.22×10^9 Bq.g ⁻¹	désintégration β - $E_{\text{max}} = 710$ keV (98 %)

Modélisation par Dilution Isotopique

Le principe de base d'un tel type de modèle repose sur le fait que les différents compartiments ne font pas de différence entre les différentes formes isotopiques de l'élément chimique concerné.

Ainsi, pour le Chlore 36, on considère qu'un compartiment N de la biosphère reçoit du chlore de I compartiments différents. Pour chacun d'entre eux, on connaît sa concentration en chlore stable $[Cl]_i$ et en chlore radioactif $[^{36}Cl]_i$ ainsi que le volume de leur apport V_i .

Connaissant la concentration en chlore stable dans le compartiment N, la concentration en chlore radioactif de ce compartiment nous est alors donnée par l'équation suivante :

$$[^{36}Cl]_N = [Cl]_N \cdot \frac{\sum_{i=1}^I [^{36}Cl]_i \cdot V_i}{\sum_{i=1}^I [Cl]_i \cdot V_i}$$

Modélisation par Dilution Isotopique

L'avantage de cette approche, qui suppose l'absence de tout procédé de discrimination isotopique est qu'elle s'applique sans connaître pour autant la nature des mécanismes de transfert du chlore 36.

Mais un tel modèle a néanmoins quelques limitations. Il fonctionne assez bien dans le cas de contamination chronique à long terme mais devient assez vite dépassé dans le cas de contamination accidentelle à court terme.

De plus, il est absolument nécessaire que la valeur des concentrations en chlore stable dans les différents compartiments concernés soit connue ainsi que la concentration en chlore 36 dans le compartiment initial de la contamination (Tamponnet, 2006; IAEA, 2009).

Modélisation phénoménologique : approche dynamique

Dans le cas où le modèle à l'équilibre et celui à activité spécifique ne sont pas assez fidèles aux données expérimentales, il est alors nécessaire de développer des modèles beaucoup plus près de la compréhension phénoménologique des transferts du radionucléide : c à d rapprocher le modèle de prévision du modèle de connaissance.

Dans le cas du chlore 36, il devient obligatoire d'introduire l'aspect fortement dynamique de ce cet anion dans l'environnement (Tamponnet, 2007).

Modélisation phénoménologique : approche dynamique

Ainsi, dans le sol, l'évolution de la concentration en chlore 36 est définie par l'équation suivante:

$$\frac{\partial}{\partial t} SC_{36}^{P.S} = TC_{36}^{InS}_P - TC_{36}^{Mig}_P - TC_{36}^{Up}_P - TC_{36}^{Rad}_{P.S}$$

avec:

$SC_{36}^{P.S}$	stock de chlore 36 dans le sol
$TC_{36}^{InS}_P$	flux de chlore 36 déposé sur le sol
$TC_{36}^{Mig}_P$	flux de migration verticale du chlore 36 vers la nappe phréatique
$TC_{36}^{Up}_P$	flux de sorption racinaire du chlore 36 par les plantes
$TC_{36}^{Rad}_{P.S}$	flux de perte de chlore 36 par décroissance radioactive

Modélisation phénoménologique : approche dynamique

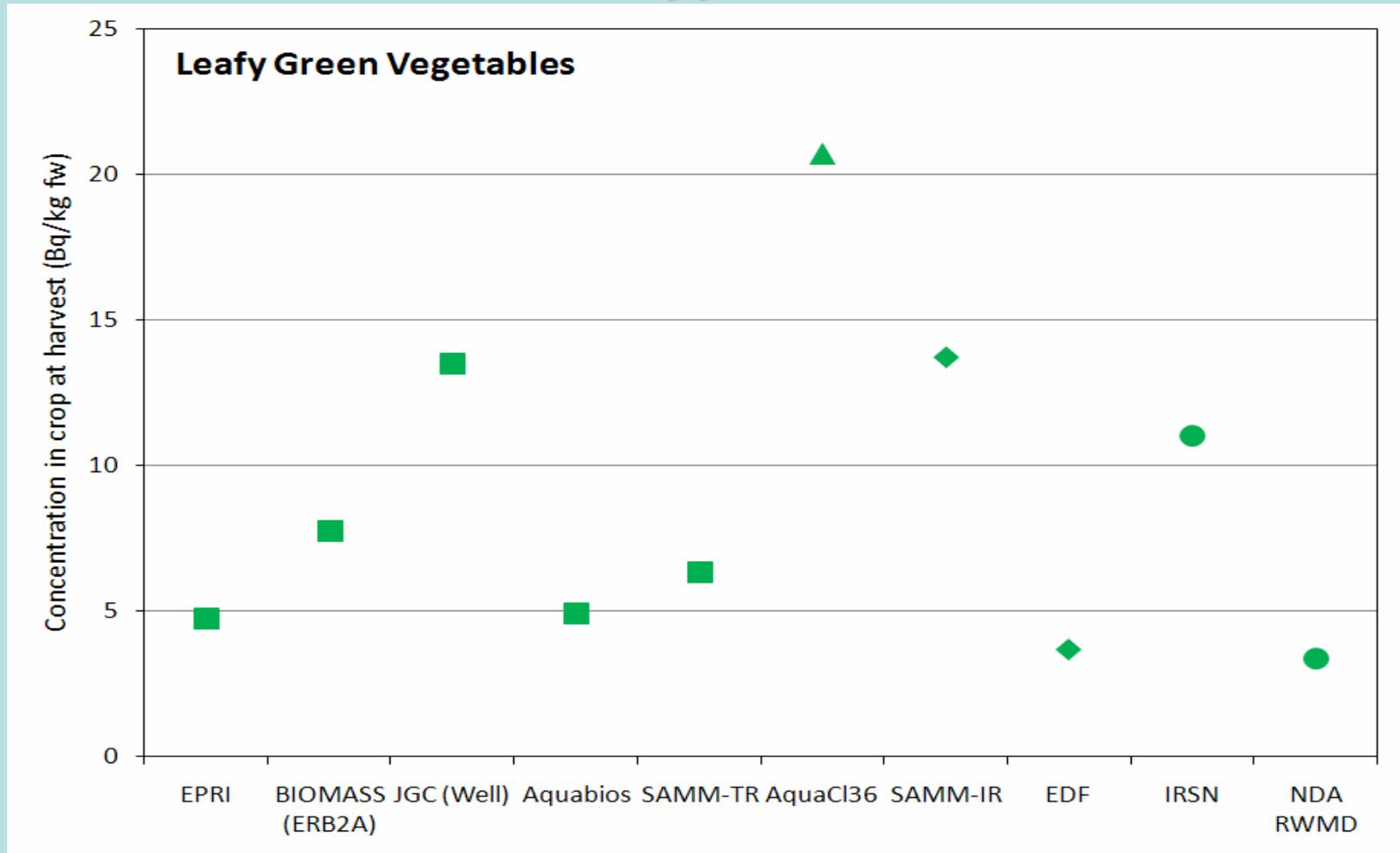
Une telle modélisation est beaucoup plus précise mais est beaucoup plus gourmande en paramètres à fournir.

En effet, chacun de ces flux doit être calculé à partir de nouvelles équations qui chacune demande de connaître de nouveaux paramètres.

Le choix du type de modèle

- ❑ Si on considère successivement ces 3 types de modèles, on voit bien la progression dans la complexification du modèle qui s'accompagne d'une augmentation notable du nombre de paramètres à renseigner. Par contre, on gagne en précision dans la prévision.
- ❑ Donc, **en fonction du type de radionucléide étudié et du type de scénario proposé**, on va d'abord tester un modèle prédictif à compartiment. S'il s'avère par trop éloigné des données réelles connues, on devra alors s'orienter vers un modèle à activité spécifique si le type de radionucléide étudié le permet.
- ❑ Sinon, on devra soit accepter l'incertitude du modèle à compartiment, soit développer des modèles mixtes (à compartiment et à activité spécifique par exemple), soit s'orienter vers le développement d'un modèle dynamique beaucoup plus gourmand en paramètres à renseigner.

Le choix du type de modèle



Intercomparaison de modèles (d'après le Rapport BIOPROTA 2008, Investigation of Cl-36 Behaviour in Soils and Uptake into Crops)

Les Organochlorés d'origine naturelle

Or, dans le cas du chlore 36, il a été récemment démontré que les plantes et les microorganismes du sol pouvaient métaboliser du chlore organique (Oberger et al., 1996; Oberger and Bron, 1998; Oberger, 2002 ; Oberger, 2003).

Ainsi, il a fallu modifier les modèles prédictifs afin de renseigner les nouveaux processus de transfert de Chlore 36 sous forme d'organochlorés :

- Synthèse microbienne des organochlorés dans le sol
- Synthèse des organochlorés par les plantes
- Minéralisation microbienne des organochlorés
- Transfert sol → air des organochlorés volatils
- Transfert plante → sol des organochlorés avec la biomasse morte (litière)

CONCLUSION

Paradoxalement, une telle introduction, complique les modèles dynamiques mais renforce la validité du modèle le plus simple, celui à compartiment.

Ainsi, dans le cas d'un sol possédant une teneur importante en matières organiques, seul cas où ces organochlorés se trouvent en quantité telle qu'elle justifie d'en tenir compte dans la modélisation, leur présence a renforcé la validité du modèle KD.

En effet, elle explique une valeur non nulle et non négligeable du KD.

Merci de votre attention