

CYCLE DE L'IODE 129 ET DE L'IODE 127 DANS L'ECOSYSTEME FORESTIER

Yves THIRY

ANDRA

Direction Scientifique et Technique (DISTEC), Centre de Meuse / Haute-Marne -
Route départementale 960 - BP 9 - 55290 Bure

yves.thiry@andra.fr

Origine de l'iode 129

L'iode 129 (^{129}I) est produit naturellement dans l'atmosphère par l'interaction des rayons cosmiques de haute énergie avec les isotopes du xénon. Cette production cosmogénique de ^{129}I est cependant mineure. L'essentiel de ^{129}I présent aujourd'hui dans les environnements de surface résulte de l'activité humaine. Initiés vers 1945 et culminant en 1963, les essais atmosphériques d'armes nucléaires ont ajouté plusieurs dizaines de kilogrammes de ^{129}I dans l'atmosphère, entraînant une augmentation des rapports isotopiques d'iode ($^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$) de plusieurs ordres de grandeur supérieurs au rapport naturel. La plupart des autres radionucléides (^{14}C , ^3H , $^{239+240}\text{Pu}$, ^{90}Sr , ^{36}Cl ...) produits lors des essais de bombes atmosphériques sont maintenant revenus à des niveaux proches de ceux de la période pré-bombes, mais la quantité de ^{129}I dans l'atmosphère et dans les eaux de surface a continué à augmenter. Cette augmentation n'est pas due aux accidents nucléaires (Chernobyl en 1986 et Fukushima en 2011) qui sont responsables seulement de l'émission de quelques kilogrammes additionnels. L'augmentation observée est clairement associée aux rejets des installations de retraitement du combustible nucléaire. Les rejets de ^{129}I les plus importants sont observés dans la mer du Nord à partir des installations de retraitement de Sellafield (Royaume-Uni) et du Cap de La Hague (France). Des concentrations accrues de ^{129}I dans l'environnement actuel ont conduit à diverses applications prometteuses de datation ou de traçage (eaux souterraines, courants océaniques et atmosphériques ...). Des relâchements liquides et gazeux se poursuivent à des niveaux assez élevés pour constituer une source ponctuelle capable d'influencer aussi l'évolution des inventaires de ^{129}I dans les environnements terrestres en Europe.

L'iode 127 et 129 dans les écosystèmes continentaux : une variabilité encore peu maîtrisée

A l'échelle continentale européenne, les sols de surface représentent un réservoir clé d'iode où il peut être retenu principalement sous forme organique en lien avec un phénomène d'iodination de la matière organique (Svensson et al., 2023, et les références qu'il contient). En Europe, la teneur médiane en iode stable est de $3,94 \text{ mg.kg}^{-1}$ dans la couche arable (0–25 cm) et de $3,40 \text{ mg.kg}^{-1}$ dans le sol plus profond (50-200 cm). Il est intéressant de noter qu'à grande échelle, les valeurs médianes pour les sols sont bien supérieures à la moyenne de $1,4 \text{ mg.kg}^{-1}$ pour la croûte terrestre, suggérant que l'enrichissement en iode dans de nombreux sols de surface ne provient pas de l'altération des roches sur lesquelles ils se sont développés mais plutôt de la rétention des dépôts atmosphériques. Comme démontré dans plusieurs études, cette observation n'est pas vraie à une échelle locale, dans les régions caractérisées par des terrains calcaires et crayeux où l'altération de la roche mère peut représenter une source significative d'iode pour l'enrichissement des sols et des eaux de drainage.

En France, les dépôts humides et secs de ^{127}I atmosphérique sont principalement d'origine marine. Dans les sols de surface où cette source est prédominante depuis des milliers d'années, on peut faire l'hypothèse que le ^{127}I était en équilibre avec le ^{129}I naturel jusqu'à une période récente avec un rapport isotopique proche de 10^{-12} . L'introduction de ^{129}I anthropogénique depuis les années 1940 a bouleversé cet équilibre isotopique en induisant un changement du rapport isotopique vers des valeurs plus élevées dans de nombreux compartiments de l'environnement de surface. Dans les sols, il faut s'attendre à une divergence des profils de distribution verticale de ^{127}I et ^{129}I compte tenu des apports qui ont prévalu pendant des durées différentes pour chaque isotope. En plus de l'influence éventuelle de la roche mère sur l'inventaire de ^{127}I du sol, il convient aussi de tenir compte des variations des conditions environnementales locales (bilan hydrique, occupation du sol, dynamique de la matière organique ...) et de la proximité de l'océan, qui ont nécessairement influencer les apports et la redistribution de ^{127}I et ^{129}I en fonction du temps. Alors que les précipitations transfèrent de grandes quantités d'iode avec une source marine atmosphérique évidente, en particulier dans les sols côtiers, on pense que le « land hopping » (ou rebond terrestre) impliquant la volatilisation à partir de l'environnement terrestre et une nouvelle déposition plus loin sous les vents dominants est une cause de variabilité supplémentaire de la redistribution de l'iode en Europe. En d'autres termes, la quantification de la contribution de ^{129}I à un fond radiologique local nécessite une approche intégrée spécifique au site, et ne peut être estimée à partir de l'étude d'autres sites éloignés.

Un modèle de cycle pour caractériser la persistance des isotopes de l'iode dans l'environnement terrestre

Les différences dans l'origine et le comportement des isotopes 129 et 127 de l'iode ont été illustrées pour plusieurs environnements de surface, mais on sait peu de choses sur les taux de recyclage de chaque isotope dans les écosystèmes terrestres. Nous avons développé un modèle dynamique à compartiments comme outil pour intégrer les données empiriques de monitoring les plus récentes et celles de la littérature avec pour objectif la simulation du cycle de l'iode dans l'écosystème forestier (Fig. 1). Le recyclage des dépôts atmosphériques en forêt a été simulé pour le ^{127}I stable et le ^{129}I anthropique moderne dans divers scénarios correspondant à des conditions écologiques différentes (Thiry et al., 2022, et les références qu'il contient).

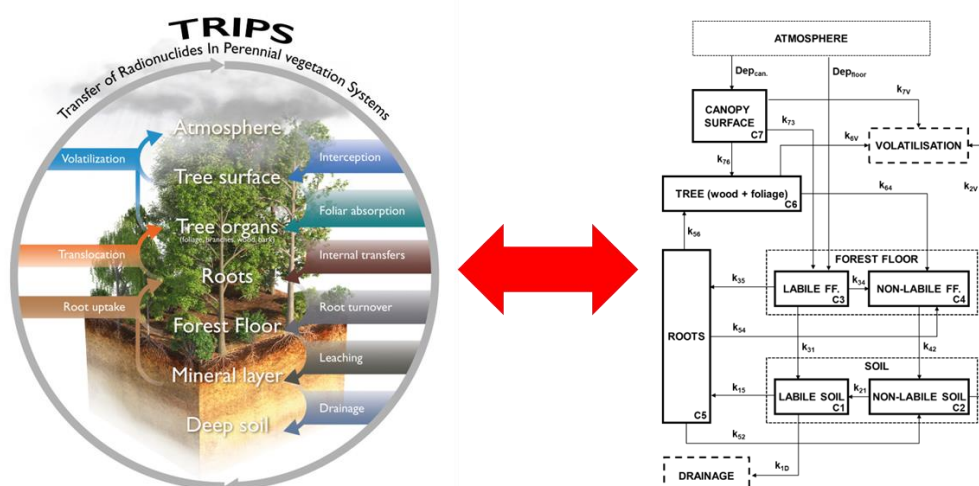


Fig. 1. Description phénoménologique du cycle des éléments en forêt et sa conceptualisation dans un modèle à compartiments pour l'iode (TRIPS-iodine), comprenant une représentation simplifiée du transfert complexe de diverses espèces d'iode inorganique et organique dans le sol forestier via la coexistence de pools labiles et non labiles

Plusieurs enseignements soutenus par les résultats du modèle sont détaillés ci-dessous :

- Les dépôts secs peuvent contribuer de manière significative aux apports atmosphériques locaux qui représentent une source majeure pour le recyclage de l'iode dans la plupart des sites, sauf là où l'altération des roches mères calcaires constituent une source plus importante d'iode.
- Le sol est le principal puits d'iode atmosphérique dans les écosystèmes forestiers, principalement en raison de l'iodination de la matière organique et de l'accumulation progressive d'iode organique dans un réservoir non labile.
- En régime permanent et conditions d'équilibre, le cycle de l'iode non labile peut conduire au stockage d'environ 20 % du dépôt total avec un temps de séjour moyen de 900 ans, tandis que l'iode labile serait recyclé dans le sol avec un temps de séjour moyen de 90 ans.
- La volatilisation de l'iode du sol, qui contribue à environ 80 % des pertes d'iode par volatilisation, s'est avérée être une voie d'exportation beaucoup plus importante que le drainage pour la plupart des sites.
- Concernant les dépôts anthropiques de ^{129}I en forêt, une stabilisation des fractions labiles et non labiles dans le sol n'est pas établie avant quelques décennies, voire plusieurs siècles, expliquant pourquoi le déséquilibre isotopique est courant dans l'analyse des données de terrain.

Comme le soulignent les exercices de modélisation, des simulations plus performantes du cycle de l'iode dans certains sites spécifiques pourraient nécessiter de meilleures estimations des dépôts secs atmosphériques, de l'altération des roches mères et de la volatilisation à partir du sol et de la végétation, ces processus restant peu étudiés et insuffisamment documentés jusqu'à présent.

Références

Svensson, T., Thiry, Y., Bueno, M., Oelmann, Y. Halogens in soils. In M. J. Goss & M. Oliver (Eds), *Encyclopedia of Soils in the Environment (Second Edition)*, Academic Press, 2023, Pages 234-242. <https://doi.org/10.1016/B978-0-12-822974-3.00170-1>

Thiry, Y., Tanaka, T., Bueno, M., Pisarek, P., Roulier, M., Gallard, H., Legout, A., Nicolas, M. (2022). Recycling and persistence of iodine 127 and 129 in forested environments: A modelling approach. *Science of The Total Environment*, 831, 154901. <http://dx.doi.org/10.1016/j.scitotenv.2022.154901>