

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

Yves Thiry, Taku Tanaka, Paulina Pisarek, Maité Bueno, Marine Roulier, Hervé Gallard, Arnaud Legout, Manuel Nicolas



IRSN

INRAE



SFRP, 26-27 mars 2024

# Pourquoi comprendre le devenir de l'iode dans l'environnement reste-t-il important ?



- Iode 127: un micronutriment encore déficient dans de nombreuses régions; biofortification des céréales
- Iode 131: un radiotoxique (de courte demi-vie : 8,02 jours) en cas de rejet accidentel
- Iode 129:
  - Transfert et impact hypothétique à long terme (demi-vie de  $15,7 \cdot 10^6$  ans) à partir des déchets radioactifs stockés
  - Fond radiologique: sources naturelles vs. rejets anthropiques

**Un intérêt évident pour un bilan global amélioré de l'iode terrestre; les dépôts, inventaires et temps de séjour sont imprécis et sérieusement remis en question, par ex. :**

- 129I - Aldahan et al., Applied Geochemistry 2007
- 127I - Cuevas et al., Nature communications 2018

# Les sources de $^{129}\text{I}$ : un cas un peu particulier

- **$^{129}\text{I}$  naturel** : produit par la fission spontanée de l'uranium dans la lithosphère et par la spallation du xénon induite par les rayons cosmiques dans l'atmosphère
- **$^{129}\text{I}$  anthropique : des relâchements liquides et gazeux cumulés en augmentation**
  - environ 95 % proviennent du retraitement du combustible nucléaire usé après les années 1950 (Sellafield, La Hague),
  - 3% issus des essais d'armes nucléaires dans les années 1940-1980,
  - moins de 0,1% de l'accident nucléaire de Tchernobyl (Fukushima : 10 fois moins)
- Les ratios  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  environnementaux modernes sont de 2 à 8 ordres de grandeur supérieurs au rapport isotopique naturel.

Source	Inventory / release *	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ ratio in the environment
Nature	250 kg	$\sim 1 \times 10^{-12}$
Nuclear weapons testing	57 kg	$0^{11}-10^{-9}$
Chernobyl accident	1.3-6 kg	$10^{-8}-10^{-6}$ (in contaminated area)
Marine discharge from European NFRP by 2008	5600 kg	$10^{-8}-10^{-6}$ (North Sea and Nordic Sea water)
Atmospheric release from European SFRP by 2007	440 kg	$10^{-8}-10^{-6}$ (in rain, lake and river water in west Europe) $10^{-6}-10^{-3}$ (in soil, grass near NFRP)
Atmospheric release from Hanford NFRP	275 kg	$10^{-6}-10^{-3}$ (in air near NFRP)

Hou & Hou, JAST 2012

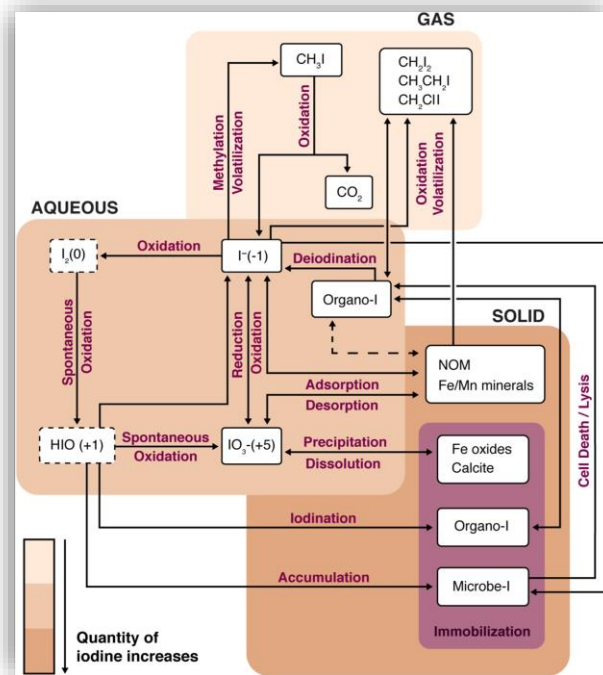
- Encore stocké ou en attente d'un futur retraitement : > 90% !!!





# Le cycle biogéochimique de l'iode en termes de facteurs et processus dominants

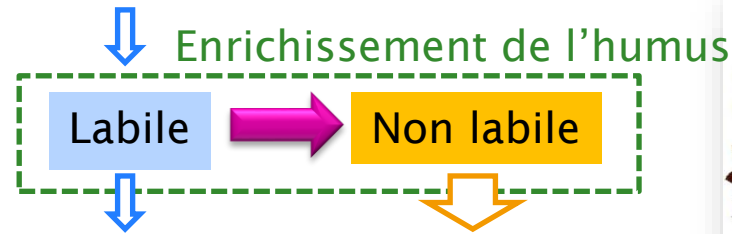
- Une interaction complexe entre **trois phases : solide, aqueuse et gazeuse** avec plusieurs processus qui contrôlent le devenir des différentes espèces d'iode,
- Les principaux facteurs d'influence :
  - la concentration en iode, le potentiel rédox, le pH, la présence et le type de **matière organique**, les éléments minéraux sensibles au rédox (par exemple, Fe et Mn),
  - et **l'activité enzymatique microbienne**. Les oxydases extracellulaires, principalement d'origine bactérienne, sont le principal catalyseur de l'iodination de la MO du sol (Grandbois et al., fchem, 2023)



Neeway et al., STOTEN 2019

# Comment gérer la complexité du cycle de l'iode, et l'iodination de la matière organique ?

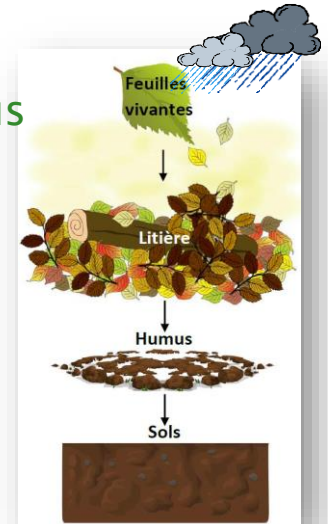
- Nous avons postulé que la mobilité complexe de diverses espèces d'iode inorganiques et organiques dans le sol peut être représentée par la coexistence de **2 pools d'iode : labile et non labile**.
- La formation du pool non labile correspond à l'augmentation cumulée de l'iode lors de la décomposition des litières forestières.



$$\text{I accumulation rate} = \frac{([\text{I}]_{\text{humus}} - [\text{I}]_{\text{litterfall}}) \times \text{DM}_{\text{humus}}}{t_{\text{resDM}}} \left( \text{g ha}^{-1} \text{ yr}^{-1} \right)$$

With  $t_{\text{resDM}} = \frac{\text{DM}_{\text{humus}}}{\text{LF} \times (1 - \text{litter fraction mineralized})}$  (years)

Redon et al., EST 2011



# Le modèle conceptuel et son paramétrage

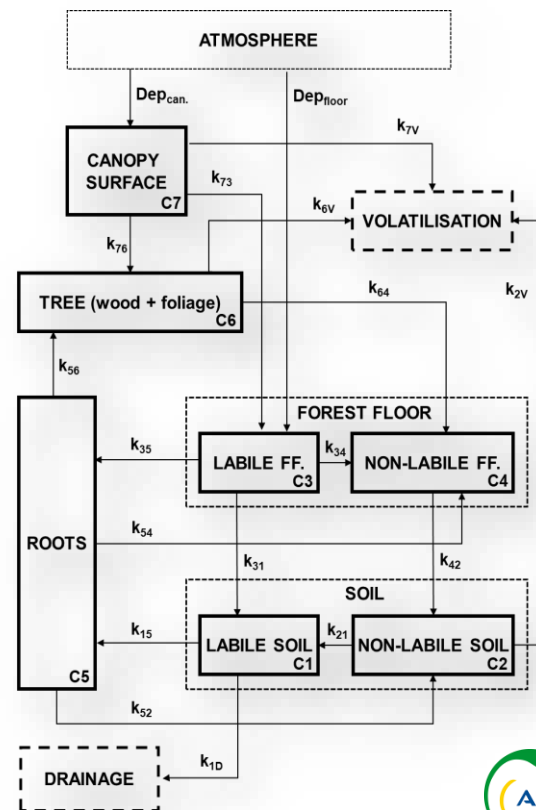
- Utilisation des stocks et flux mesurés sur différents sites de monitoring en forêt (ONF-Renecofor, Andra-Ope, INRAE-Breuil),

INRAE



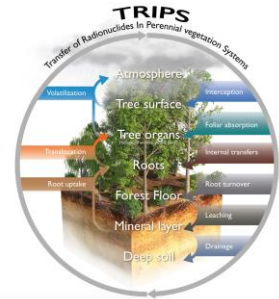
## Nos données pour le paramétrage :

- Roulier et al., 2018, 2019, 2021a, 2021b
- Pisarek et al., 2021a; 2021b
- Autres articles spécifiques

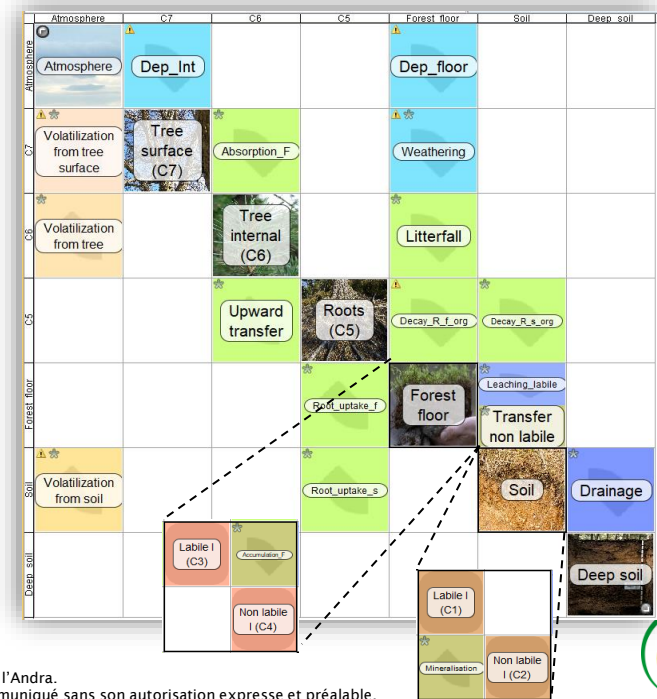




# TRIPS-Iodine: un modèle dynamique à compartiment typique



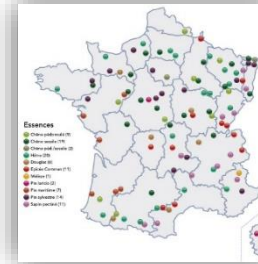
- Un outil numérique pour : intégrer les connaissances disponibles et simuler **la distribution temporelle et l'accumulation** de l'iode dans les écosystèmes forestiers suite à des dépôts atmosphériques
- Un système simple d'équations différentielles linéaires et des coefficients de taux de transfert constants (gamme de  $k_{ij}$  [ $d^{-1}$ ])
- 9 compartiments; 18 transferts. via le logiciel ECOLEGO



Ce document est la propriété de l'Andra.  
Il ne peut être reproduit ou communiqué sans son autorisation expresse et préalable.

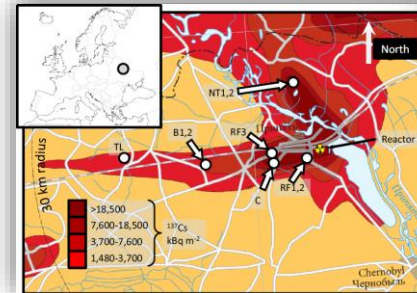
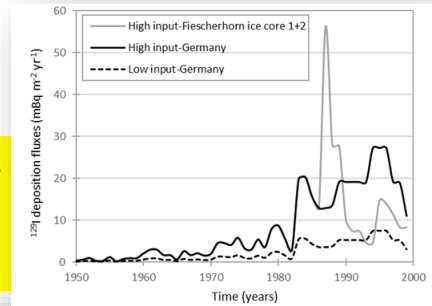
# Une évaluation du modèle via des scénarios contrastés

- Plusieurs scénarios : différents dépôts atmosphériques locaux de  $^{127}\text{I}$  et/ou  $^{129}\text{I}$  et conditions du sol, ainsi que différents temps de contact pour chaque isotope,
- Les dépôts atmosphériques issus de l'observation sur le terrain ont été utilisés comme entrée du modèle tandis que les inventaires d'iode observés dans les compartiments du sol ont servi à la comparaison avec les prédictions.



ONF-RENECOFOR network,  
Andra-OPE, INRAE-Breuil  
(France) - chronic  $^{127}\text{I}$

Lower Saxony (Germany) -  
chronic  $^{127}\text{I}$  and  $^{129}\text{I}$   
(Michel et al., 2005,2012)



Chernobyl (Ukraine)  
- Pulse of  $^{129}\text{I}$   
(Sahoo et al., 2009;  
Shaw et al., 2019)



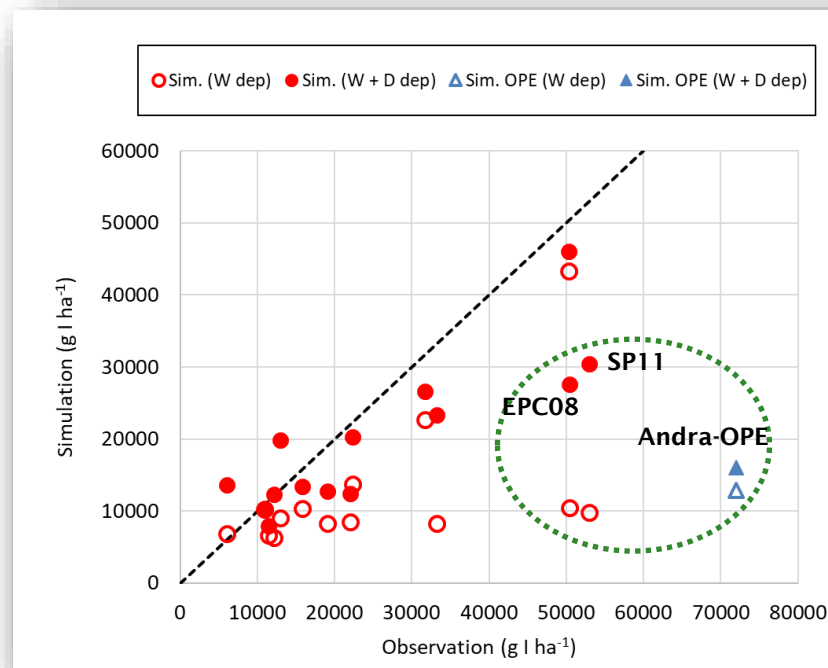




# Simulation pour des sites spécifiques où les dépôts atmosphériques sont documentés – précipitations et dépôts secs (Roulier et al., 2021b)

- Données d'entrée – 14 sites individuels
- Dépôts humides : min,-max., 7,6 - 51,8 g/ha/y
- **Utilisation du paramétrage moyen**
- Stock observé: 6005 to 52 987 g/ha (+ Ope : 72 000)
- **Ajustement avec des dépôts secs spécifiques au site (Roulier et al., 2021)**

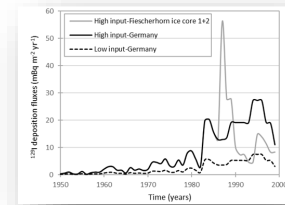
Un bon accord, sauf pour 3 sites  
CCLs: apport de l'altération des roches calcaires : 30-80%



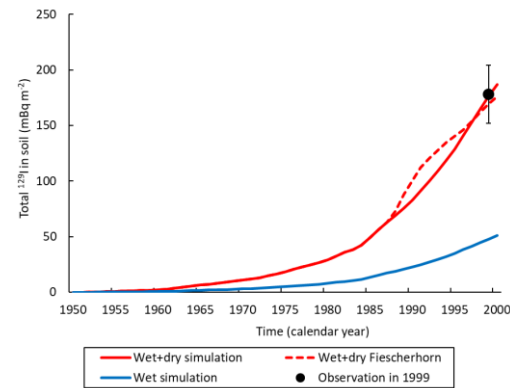


# Simulation pour $^{127}\text{I}$ et $^{129}\text{I}$ en Basse-Saxe, et des dépôts chroniques (Michel et al., STOTEN 2012)

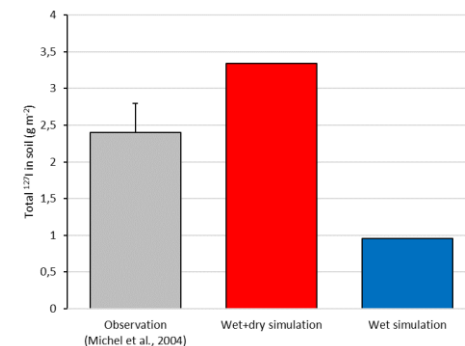
- Simulation sur une période de 5000 ans pour  $^{127}\text{I}$  tandis que la simulation couvre la période 1950-1999 pour  $^{129}\text{I}$  pour correspondre aux dépôts de chaque isotope dans l'environnement.
- Bon accord pour des apports élevés (humides + secs) pour les deux isotopes malgré des temps de contact très différents pour chaque isotope.
- Une faible surestimation d'environ 35 % pour  $^{127}\text{I}$ .
- La contribution supplémentaire des dépôts secs (Michel et al., 2012), comme données d'entrée pour la modélisation, correspondait à 73 % des dépôts totaux (humides + secs). Cette proportion était clairement hors de la fourchette (médiane : 38 % ; 0-68 %) donnée par Roulier et al. (2021a) pour l'iode stable.



$^{129}\text{I}$



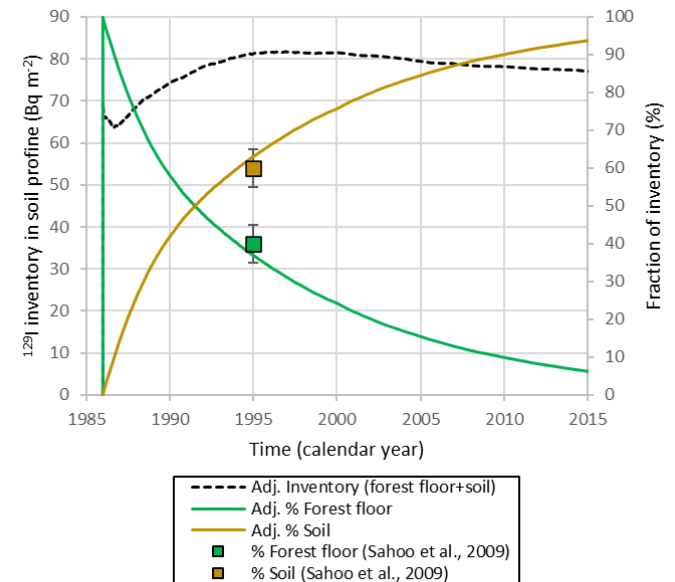
$^{127}\text{I}$



# Simulation pour Tchernobyl et I<sup>129</sup>I

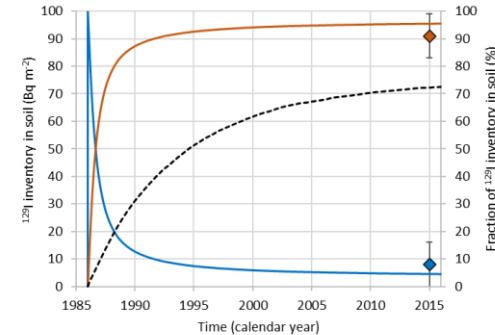
- Un exemple intéressant pour illustrer un scénario accidentel (dépôt aigu)
- Une grande partie (60-80 %) des retombées rapidement accumulée dans la colonne de sol
- Mais une redistribution très progressive entre humus et sol (conditions locales)
- Et probablement au sein des pools labile et non labile

## Redistribution entre humus et sol (Sahoo et al., JRR 2009)

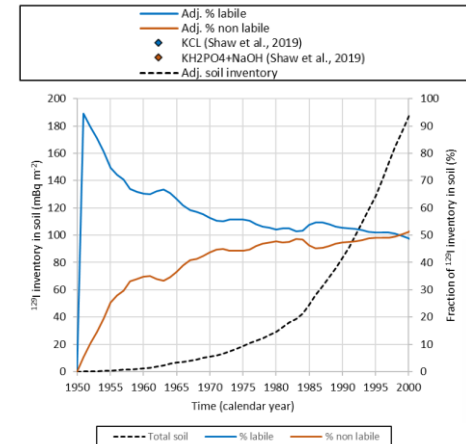


# Marquage par $^{129}\text{I}$ : une occasion d'explorer les temps d'équilibre entre les pools labile et non-labile du sol

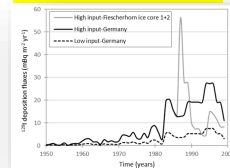
- La réponse de la répartition de l' $^{129}\text{I}$  aux dépôts de Tchernobyl et en Basse-Saxe montre un schéma temporel différent.
- > 10 ans (voire bcp plus) pour une stabilisation des différents pools de  $^{129}\text{I}$  (Shaw et al., STOTEN 2019)
- La dynamique de redistribution de  $^{129}\text{I}$  sur un site ne peut pas être extrapolée à partir d'un autre site si les chroniques de dépôts sont différentes.
- Un déséquilibre isotopique attendu entre l' $^{127}\text{I}$  natif et l' $^{129}\text{I}$  anthropique pour de nombreux compartiments (sol, eau du sol, végétation, rivière ...)



Tchernobyl  
Shaw et al.,  
STOTEN  
2019



Basse-Saxe





# Où va l'iode? : un bilan à partir de sa répartition simulée à l'état d'équilibre

Estimation des stocks, flux et temps de résidence (i.e. après 5000 years) pour une forêt générique en France

- Le plus grand stock: pool non labile du sol
  - stabilisation de 16 % des apports atmosphériques avec un temps de séjour de 860 ans
- Le plus grand flux de recyclage : la volatilisation (12,7+3,1) >>> drainage (0,5)
- le stockage de l'iode dans d'autres compartiments introduit peu de retard au sein du cycle de l'iode
  - Pool labile: 86 ans
  - NL Humus: 9,6 ans
  - Arbre et racines: < 2 ans

