



**HAL**  
open science

# Traçage de la dispersion des sédiments contaminés dans les bassins versants côtiers de Fukushima

Hugo Lepage

► **To cite this version:**

Hugo Lepage. Traçage de la dispersion des sédiments contaminés dans les bassins versants côtiers de Fukushima. Sciences de la Terre. Université Paris Sud - Paris XI, 2015. Français. NNT : 2015PA112183 . tel-01238070

**HAL Id: tel-01238070**

**<https://theses.hal.science/tel-01238070>**

Submitted on 4 Dec 2015

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.



Comprendre le monde,  
construire l'avenir®



UNIVERSITÉ PARIS-SUD

ÉCOLE DOCTORALE 534 :  
MODÉLISATION ET INSTRUMENTATION EN PHYSIQUE, ÉNERGIES, GÉOSCIENCES  
ET ENVIRONNEMENT

Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement

## THÈSE DE DOCTORAT SUR TRAVAUX

SCIENCES DE L'UNIVERS

par

**Hugo LEPAGE**

Traçage de la dispersion des sédiments contaminés dans les  
bassins versants côtiers de Fukushima

**Date de soutenance : 24/09/2015**

**Composition du jury :**

Directeur de thèse :	Sophie AYRAULT	Directrice de recherche (LSCE, Gif-sur-Yvette, France)
Co-directeur de thèse :	Olivier EVRARD	Chercheur (LSCE, Gif-sur-Yvette, France)
Rapporteurs :	Philip OWENS	Professeur (UNBC, Prince George, Canada)
	Jérôme POULENARD	Professeur (EDYTEM, Le Bourget-du-Lac, France)
Présidente :	Cécile QUANTIN	Professeur (GEOPS, Orsay, France)
Examineurs :	Yuichi ONDA	Professeur (CRIED, Tsukuba, Japon)
	Yves THIRY	Chercheur (ANDRA, Chatenay-Malabry, France)



A mon grand-père, *Alphonse*

## Remerciements

Ainsi s'achève trois années riches en partage et animées par de nombreuses rencontres. Pour cela, je tiens à remercier l'ensemble des personnes avec qui j'ai travaillé, de près ou de loin, pour m'avoir aidé et accompagné dans les nombreuses étapes franchies au cours de cette thèse.

Mes premiers remerciements vont à mes directeurs de thèse, Sophie Ayrault et Olivier Evrard, qui ont su me faire confiance et dont leur aide fut très précieuse. Merci Sophie pour m'avoir montré les nombreux intérêts de l'activation neutronique et merci Olivier pour l'ensemble des connaissances que tu m'as transmises.

Je remercie également l'ensemble des membres de mon jury, Philip Owens et Yuichi Onda pour être venu de très loin, Jérôme Poulenard pour le rapport très constructif sur mon mémoire de thèse, et surtout Cécile Quantin et Yves Thiry qui m'ont également apporté conseils lors des deux comités de pilotage en fin de 1<sup>ère</sup> et de 2<sup>ème</sup> année.

Je tiens à remercier les membres de l'équipe GEDI (ex TCO) du LSCE, à savoir Philippe Bonté, pour le travail inestimable qu'il a fait avec les résultats d'activation neutronique, Irène Lefèvre pour les analyses gamma qu'elle maîtrise avec perfection, mais aussi pour la résolution des nombreux couacs que l'on a rencontré avec le passeur, merci également à Caroline Chartin, qui même si elle n'est plus au LSCE, y a toujours un pied, merci de m'avoir épaulé au début de ma thèse et de m'avoir aidé à avancer ! Un merci à Patrick Laceby qui a apporté la dimension modélisation à ma thèse. Pour terminer avec l'équipe GEDI, je remercie les autres membres de l'équipe avec qui les échanges ont été constructifs (Matthieu Roy Barman, Louise Bordier, et les nombreux stagiaires qui ont animés les fins d'années scolaires).

Je remercie l'ensemble des personnes du LSCE que j'ai croisé durant ma thèse, notamment les différentes équipes du site de la vallée.

Merci également à toutes les personnes que j'ai croisé lors des réunions de projets, que ce soit à Gif sur Yvette, à Cadarache ou à Tsukuba.

Un grand merci à Christelle Latrille pour les nombreuses discussions que l'on a pu avoir sur les minéraux de mes sols et sédiments et sur la plongée sous-marine.

Je remercie également Sylvain Bassot et son équipe (IRSN/LAME), notamment Aurélie Ritt et Anthony Julien, pour les analyses de carbone organique dans mes échantillons.

Un énorme merci à Jean Louis Joron, pour le travail colossale qu'il a accompli pour l'activation neutronique et les très nombreuses discussions sur mes résultats. Un pincement au cœur pour son excellent travail sur les roches de Fukushima qu'il a réalisé avec Michel Treuil mais qui n'est malheureusement pas présenté dans ce manuscrit.

Il m'est coutume de remercier les personnes de l'ombre, à savoir le personnel d'entretien des locaux, de la cantine du CNRS ainsi que Phillippe Nardin et Pascal Béguin.

Un énorme merci à tous ceux du dernier étage et notamment les nombreux thésards, toujours là pour se soutenir les uns et les autres. Merci aux plus vieux, Flora et la plongée aux Gléna, Elian et sa tarte tatin au confit de canard, Pierre et ses framboises, Romain et « sa » maison des basques, sans oublier Cécile. Merci aux plus jeunes, Marion et son Louroux, Jens et ses BBQ, Naoufel et ses péruches, Alison et son musée, Dariouche et son sens de l'orientation. Je remercie Wiem pour le partage de culture sur son pays, sa religion, même si j'ai déjà oublié comment dire mon prénom en arabe... Et enfin un gros merci à Cindy, qui a survécu à trois années dans « mon » bureau, et elle seule pourra vous dire que ce n'est pas une chose facile ! Heureusement qu'elle avait l' « Amour est dans le pré » et le « Tennis » pour tenir ! Courage à vous tous !

Merci à ma famille pour le soutien physique et moral, qu'ils soient en France ou à l'étranger. Un gros merci à François et Véronique, qui m'ont aidé à traverser une période très difficile et dont les conseils me serviront bien au-delà de cette thèse. Egalement merci à tous les enfants qu'ils accueillent pour m'avoir changé les idées (Zavier, Brahim, Leila et Chacha). Merci Alyzé, pour l'avant, le pendant et l'après thèse, parce qu'une aventure, c'est mieux à deux. Enfin, même si je ne peux lui dire de vive voix, j'ose espérer qu'il est fier de moi, là-haut dans son nuage, merci à toi pépé, pour l'ensemble de ta vie et pour toutes les valeurs que tu m'a transmises et qui m'aideront à avancer.

Merci.



TRAÇAGE DE LA DISPERSION DES  
SEDIMENTS CONTAMINES DANS LES  
BASSINS VERSANTS COTIERS DE  
FUKUSHIMA

## Résumé

Suite aux séismes et au tsunami qui ont frappé les côtes japonaises le 11 mars 2011, des quantités importantes de radionucléides présentant une affinité forte pour les particules (dont le césium-137) ont été émises par la centrale de Fukushima Dai-Ichi dans l'atmosphère. Une fraction significative de ceux-ci (20%) s'est déposée sur les sols de la Préfecture de Fukushima. Cette étude vise à développer des méthodes de traçage sédimentaire originales afin de comprendre la dispersion des particules contaminées. L'étude se concentre sur plusieurs bassins versants côtiers situés au nord de la centrale (bassins des rivières Mano – 175 km<sup>2</sup>, Niida – 270 km<sup>2</sup> et Ota – 75 km<sup>2</sup>) et drainant la partie la plus contaminée du panache de pollution radioactive (contamination surfacique initiale en césium-137 comprise entre 100 et 2000 kBq/m<sup>2</sup>). Ces bassins versants sont caractérisés par des plateaux montagneux à l'ouest, séparés de la plaine côtière, où se trouve leur exutoire par une zone boisée où les gradients de pente sont très élevés (> 30 %). Cette région du Japon connaît un climat particulièrement érosif, avec des crues printanières récurrentes qui peuvent être associées à la fonte des neiges, ainsi que le passage de typhons entre juillet et octobre. La majeure partie des bassins est occupée par des forêts (env. 60 % de leur surface), tandis que les rizières constituent la majorité des terres agricoles.

Pour étudier la dispersion de la contamination radioactive initiale, des échantillons de sols (n=95) et de laisses de crues (n=271) ont été collectés au cours de 6 campagnes de terrain (organisées tous les 6 mois entre novembre 2011 et mai 2014 après les crues printanières et les typhons éventuels). Ils ont tous été analysés par spectrométrie gamma pour en déterminer l'activité en <sup>134</sup>Cs et en <sup>137</sup>Cs, et le cas échéant, celle des autres émetteurs gamma présents. Une sélection d'échantillons (35 sols et 110 laisses) a également été analysée par activation neutronique afin de déterminer leur teneur en une vingtaine d'éléments.

L'analyse de l'activité en <sup>137</sup>Cs dans dix profils de sols (0–10 cm de profondeur) collectés dans des rizières localisées dans différentes parties du panache de pollution radioactive a confirmé la faible migration du césium en profondeur dans les sols de la région. En effet, plus de 90 % de la contamination étaient encore concentrés dans les 2 cm superficiels des sols en novembre 2013. Les particules contaminées par le <sup>137</sup>Cs situées à la surface du sol restent donc, plusieurs années après l'accident, potentiellement mobilisables par l'érosion en cas de fortes pluies.

Ensuite, la détection d'argent-110 métastable (<sup>110m</sup>Ag) dans la plupart des échantillons collectés entre novembre 2011 et novembre 2012 et le fait que ce radioisotope ait un comportement similaire à celui du césium, ont permis d'utiliser cet isotope pour tracer la dispersion de la contamination dans le bassin versant de la Niida. En effet, le rapport d'activités <sup>110m</sup>Ag/<sup>137</sup>Cs dans les sols de ce bassin est significativement différent à l'amont et à l'aval de celui-ci. L'utilisation de ce rapport et d'un modèle de mélange binaire a permis d'identifier l'occurrence de cycles d'érosion et de dispersion saisonniers de la contamination. Cependant, <sup>110m</sup>Ag ayant une demi-vie de 250 jours, il a rapidement décrépu et l'activité produite est devenue inférieure aux limites de détection à compter de mai 2013.

Afin de pallier la disparition de ce traceur, la contribution des sols des plateaux montagneux amont aux sédiments transitant par la rivière dans les plaines côtières a été quantifiée à partir

de leur signature en  $^{137}\text{Cs}$ . En utilisant un modèle de mélange binaire basé sur les distributions du  $^{137}\text{Cs}$  à l'amont ( $> 20 \text{ kBq/m}^2$ ) et à l'aval ( $< 20 \text{ kBq/m}^2$ ) des bassins versants, les résultats montrent que la contribution de la zone amont diffère en fonction du bassin versant. Elle fournit une part non négligeable (46% en moyenne) des sédiments à la rivière Niida, qui est dépourvue de barrage. Par contre, cette contribution est beaucoup plus faible (20 % en moyenne) dans la rivière Mano, qui en est équipée. Ces résultats montrent donc l'impact de ce type d'aménagement qui génère une disconnectivité sédimentaire dans les bassins versants. Cependant, les lâchers de barrage, comme ceux qui sont intervenus lors des typhons d'automne 2013, peuvent conduire à la redistribution d'une partie des sédiments contaminés stockés dans leur réservoir.

Enfin, afin de préciser l'origine spatiale des sédiments contaminés transportés par ces rivières, la carte des sols des bassins versants a été utilisée. Les principaux types de sols (Andosols, Cambisols et Fluvisols) ont été caractérisés par leurs teneurs en éléments chimiques, qui ont permis de les discriminer. Ainsi, Sc et Yb se sont révélés être le couple d'éléments les plus discriminants. Les distributions de ces deux éléments dans les trois sources ont été utilisées dans un modèle de mélange. Les résultats montrent une contribution majoritaire ( $> 70 \%$ ) des Fluvisols dans les sédiments prélevés dans les rivières, quel que soit le bassin versant. Ce type de sol que l'on trouve principalement dans les rizières indique donc l'érodabilité accrue de ces zones agricoles. Le reste des sédiments provient principalement des Andosols ( $\approx 20\%$ ), notamment sur l'ensemble du bassin de la Niida tandis que les Cambisols fournissent moins de 11 % des sédiments qui transitent dans la plaine côtière de la Mano. Cette différence s'explique en partie par la présence de dépôts de cendres volcanique plus épais dans le bassin de la Niida, dépôts qui sont à l'origine des Andosols.

Globalement, les résultats montrent que la dispersion des sédiments contaminés est caractérisée par d'importantes variations saisonnières. Celles-ci sont principalement contrôlées par l'interaction entre l'occupation des sols et la pluviométrie qui est extrêmement variable dans la région.

## Abstract

Large quantities of radionuclides were released into the atmosphere by the Fukushima Dai-Ichi Nuclear Power Plant (FDNPP) after the earthquake triggered tsunami devastated the eastern coast of Japan on March 11, 2011. Many of these radionuclides, particularly Caesium-137 ( $^{137}\text{Cs}$ ), that has a strong affinity with fine particles, were deposited on soils of the Fukushima Prefecture.

This PhD thesis develops original fingerprinting methods to track the dispersion of contaminated particles following this accident. The study focuses on three coastal catchments north of the FDNPP (Mano — 175km<sup>2</sup>, Niida — 270km<sup>2</sup> and Ota — 75km<sup>2</sup>) draining heavily contaminated areas of the radioactive plume where initial  $^{137}\text{Cs}$  surface contamination ranged between 100—2000 kBq/m<sup>2</sup>. These catchments have mountainous plateaus to the west drained to the coastal plains through an area with high slopes (>30%) covered with forests. The Fukushima Prefecture is characterized by an erosive climate, with the occurrence of spring floods and typhoons between July and October. Most of the catchment surface area (60% of the total area) is occupied by forests, and paddy fields constitute the main agricultural land use.

To study the dispersion of the radioactive contamination, soil samples (n=95), soil cores (n=10), and sediment drape deposits (n=271) were collected during 6 sampling campaigns (November 2011, April 2012, November 2012, May 2013, November 2013 and May 2014; i.e., after the major flood events). Each sample was analyzed by gamma spectrometry to determine its  $^{134}\text{Cs}$  and  $^{137}\text{Cs}$  activities, and other measurable gamma emitters. Furthermore, 35 soil and 110 sediment samples were also analyzed by neutron activation analysis to determine their geochemistry.

First, the analysis of  $^{137}\text{Cs}$  activity in 10 soil cores (0-10 depth cm) collected in paddy fields across the radioactive pollution plume confirmed the limited migration of radiocesium with depth in the soils of the coastal catchments. More than 90% of the contamination was still concentrated in the uppermost 2cm of the soils by November 2013. Particles contaminated were therefore available for mobilization and transport downstream by processes that govern soil erosion.

Second, metastable silver-110 ( $^{110\text{m}}\text{Ag}$ ) was detected in most of the samples collected between November 2011 and November 2012, and our investigation showed that this radionuclide has a similar behavior as  $^{137}\text{Cs}$  in soil and sediment. Consequently, we used  $^{110\text{m}}\text{Ag}$  to track the dispersion of the contamination as the  $^{110\text{m}}\text{Ag}/^{137}\text{Cs}$  activity ratio in soils of the Niida catchment showed significant differences between upstream and downstream locations. The use of a binary mixing model allowed the identification of a seasonal cycle of erosion and dispersion of particles. However, as  $^{110\text{m}}\text{Ag}$  has a short half-life (250 days), it rapidly decayed and could not be detected anymore by May 2013. Other approaches were therefore required to trace radioactive dispersion following the decay of  $^{110\text{m}}\text{Ag}$ .

Third, the contribution of soils located on the mountainous plateaus to the sediment transiting the river in the coastal plains was quantified based on their  $^{137}\text{Cs}$  signature. Binary mixing models were used, based on the distributions of  $^{137}\text{Cs}$  in mountainous areas (> 20 kBq/m<sup>2</sup>) and

in coastal plains ( $< 20$  kBq/m<sup>2</sup>). Furthermore, the distribution of <sup>137</sup>Cs in sediment was calculated by grouping samples collected during each campaign in the coastal plains. The results demonstrated that the contribution of the mountainous area varied in the different catchments. In the Niida catchment where no dam has been built, the mountainous area supplies more sediment to the river (mean = 46%) than in the Mano catchment, that has a dam (mean = 20%). These results show the impact of dams generating a sediment disconnectivity. However, dam releases (i.e. in autumn 2013), were shown to lead to the potential release of contaminated sediment stored in their reservoir.

Finally, the soil map of the region was used in order to identify the soil types that may supply sediment to the rivers. The main soil types (Andosols, Cambisols and Fluvisols) were characterized by their geochemical composition, and Sc and Yb were identified as the most discriminant elements. The distributions of these elements in the three sources were used in a mixing model. We grouped the sediment samples by location (mountain or coastal plain) and by campaign to calculate the distribution of both selected elements in sediment. Results show that Fluvisols are the main source supplying  $>70\%$  of sediment to the rivers in both catchments. This soil type is mainly found in paddy fields, which confirms the enhanced erodibility of these cultivated areas. Andosols are the second largest source of sediment ( $\approx 20\%$ ), especially in the Niida catchment, whereas Cambisols supply less than 11% of sediment transported in the coastal plain of the Mano. This difference was mainly attributed to the presence of thicker volcanic ash deposits in which Andosols developed in the Niida catchment.

Overall, results show that the dispersion of the contaminated sediments is characterized by strong seasonal variations. These variations are mainly controlled by land use and rainfall which is extremely variable in this region of the world.

# TABLE DES MATIERES

<b>LISTE DES FIGURES</b>	<b>XIII</b>
<b>LISTE DES TABLEAUX</b>	<b>XVII</b>
<b>INTRODUCTION GENERALE</b>	<b>4</b>
<b>CHAPITRE I – CONTEXTE DES TRAVAUX</b>	<b>12</b>
I - 1 L'accident de la centrale nucléaire de Fukushima Dai-ichi	14
I - 2 Dynamique sédimentaire dans les cours d'eau	31
I - 3 Traçage des sédiments	44
I - 4 Conclusion du chapitre I	49
I - 5 Références	50
<b>CHAPITRE II – PRESENTATION DU SITE D'ETUDE ET DE LA METHODOLOGIE</b>	<b>64</b>
II - 1 Caractéristiques de la zone d'étude	66
II - 2 Echantillonnages des sédiments et des sources potentielles	77
II - 3 Méthodes d'analyse	81
II - 4 Conclusion du chapitre II	98
II - 5 Références	99
<b>CHAPITRE III – ETUDE DE LA MIGRATION DU <sup>137</sup>Cs DANS LE SOL DES RIZIERES IMPACTEES PAR LES RETOMBEES RADIOACTIVES DE FUKUSHIMA</b>	<b>106</b>
III - 1 Depth distribution of cesium-137 in paddy fields across the Fukushima pollution plume in 2013	108
III - 2 Informations complémentaires	120
III - 3 Conclusions du chapitre III	123
III - 4 Références	124
<b>CHAPITRE IV – TRAÇAGE DE LA DISPERSION DE LA CONTAMINATION RADIOACTIVE : UTILISATION DE L'EMPREINTE RADIOACTIVE DES REJETS DE LA CENTRALE</b>	<b>130</b>
IV - 1 Utilisation du rapport d'activité <sup>110m</sup> Ag/ <sup>137</sup> Cs pour tracer la dispersion de la contamination	133
IV - 2 Tracking the origin and dispersion of contaminated sediments transported by rivers draining the Fukushima radioactive contaminant plume	160
IV - 3 Tracage de la dispersion en utilisant l'activité en <sup>137</sup> Cs	169
IV - 4 Conclusions du chapitre IV	171
IV - 5 Références	173
<b>CHAPITRE V – ANALYSE DE LA DISPERSION DE LA CONTAMINATION PAR UNE METHODE GEOCHIMIQUE (INAA)</b>	<b>180</b>
V - 1 Tracing sediment dynamics in coastal catchments affected by the Fukushima Dai-Ichi Nuclear Accident	182
V - 2 Cas de la carte des sols de 1972	201
V - 3 Impact de la granulométrie	203
V - 4 Conclusion sur le chapitre V	204
V - 5 Références	205

<b>CONCLUSION GENERALE ET PERSPECTIVES</b>	<b>212</b>
VI - 1 Conclusion générale	213
VI - 2 Perspectives	219
VI - 3 Références	223
<b>ANNEXES</b>	<b>228</b>
Annexe A. Caractéristiques des échantillons	229
Annexe B. Résultats des analyses	239
Annexe C. Caractéristiques des standards utilisés	270
Annexe D. Tests statistiques pour valider les données d'INAA	272

# LISTE DES FIGURES

Figure I - 1-1 - Plaques tectoniques à proximité du Japon et épïcentre du séisme de magnitude de moment (Mw) de 9 du 11 mars 2011 (New Scientist, 2015). .....	14
Figure I - 1-2 - Distance parcourue par le tsunami (University of Tokyo) et hauteur des vagues (Mori et al., 2011; Mori & Takahashi, 2012) sur les côtes de Sendai et à proximité de la centrale nucléaire de Fukushima Dai-Ichi (FDNPP). .....	15
Figure I - 1-3 - Dégâts causés par le tsunami (Spratt, 2015). .....	15
Figure I - 1-4 - Emplacement des 6 réacteurs de la centrale nucléaire de Fukushima Dai-ichi (Wikipedia, 2015a). .....	17
Figure I - 1-5 - Fonctionnement d'un réacteur de type REB (Wikipedia, 2015b). .....	18
Figure I - 1-6 - Exemple de barre de combustible. 1 bouchon du bas ; 2 combustible (UO <sub>2</sub> ) ; 3 enceinte de zirconium; 4 ressort ; 5 douille; 6 bouchon du haut (Wikipedia, 2015c). .....	18
Figure I - 1-7 - Zone inondée suite au tsunami et localisation des 6 réacteurs (IRSN, 2012). .....	19
Figure I - 1-8 - Hauteur du tsunami – A : bâtiment de la centrale contenant les générateurs de secours ; B: hauteur maximum du tsunami ; C: niveau du sol ; D : niveau moyen de l'océan (Wikipedia, 2015d). .....	19
Figure I - 1-9 - Explosions et incendies dans les différents réacteurs (Wikipedia, 2015e). .....	20
Figure I - 1-10 – Schéma de désintégration du césium-137. Le pourcentage entre parenthèse indique la probabilité d'émission du rayonnement à l'énergie indiquée. Le Baryum-137m est dans un état métastable (m) qui est un état transitoire au cours duquel un rayonnement gamma est émis (reproduit à partir de Chelet, 2006). .....	22
Figure I - 1-11 - Estimation des débits de rejets du césium-137 durant les premiers jours qui ont suivi l'accident de la centrale nucléaire (Saunier et al., 2013) avec indication de l'occurrence des explosions dans les réacteurs 1, 2 et 3. ....	25
Figure I - 1-12 - Estimation des rejets dans l'océan par voie atmosphérique et par voie directe (Estournel et al., 2012). .....	26
Figure I - 1-13 – Direction du vent mesurée à l'aéroport de Fukushima (points) et simulée avec le modèle WRF (courbe) (Achim et al., 2012). .....	27
Figure I - 1-14 - a) Carte de la dose ambiante (29 avril 2011) (MEXT & USDE, 2011a) et b) carte de la contamination surfacique du <sup>137</sup> Cs (14 juin 2011) réalisée par le MEXT à la suite de la campagne de prélèvement de sols (MEXT, 2011b). .....	28
Figure I - 1-15 – Rétention des ions Cs <sup>+</sup> sur un site de bord altéré d'une illite (Fuller et al., 2015). Le césium (Cs) et le potassium (K), ont des comportements très similaires. ....	29
Figure I - 1-16 – Bassins versants impactés par les retombées de particules radioactives dans la Préfecture de Fukushima (Evrard et al., 2015). .....	30
Figure I - 2-1 - Chemins potentiels de transfert du <sup>137</sup> Cs dans un bassin versant contaminé. Dc : décontamination, Dp : dépôt, Ds : désorption et E : érosion (Evrard et al., 2015). .....	31

Figure I - 2-2 - Diagramme ombrothermique réalisé à partir des données des stations AMEDAS localisées dans un rayon de 100km autour de la centrale de Fukushima (1977 - 2013) disponibles sur le site de l'agence météorologique japonaise (Japanese Meteorological Agency, 2015). .....	32
Figure I - 2-3 – Précipitation quotidienne dans la Préfecture de Fukushima (Japanese Meteorological Agency, 2015) et débit de la rivière Mano. ....	33
Figure I - 2-4 - Relief de la zone contaminée par l'accident de la centrale de Fukushima Dai-Ichi (Geospatial Information Authority of Japan, 2015). ....	34
Figure I - 2-5 - Division tectonique des montagnes de l'Abukuma (Geological Survey of Japan, 2012). ....	35
Figure I - 2-6 - Carte des sols aux alentours de la centrale de Fukushima Dai-Ichi (Economic Planning Agency, 1972) et localisation des téphras (principalement des cendres volcaniques) issus du volcan Adatara (Yamamoto, 2013). ....	36
Figure I - 2-7 - Utilisation des sols dans les bassins versants côtiers de la Préfecture de Fukushima (Land conservation research, 2005). ....	38
Figure I - 2-8 - Rizière en eau avec des pousses de riz dans la Préfecture de Fukushima - Source : H. Lepage... ..	39
Figure I - 2-9 - Exemple de placettes de Wischmeier visant à étudier l'impact de différents types de couverts sur l'érosion des sols dans la Préfecture de Fukushima (Yoshimura et al., 2014). ....	40
Figure I - 2-10 - Principaux processus de transport des particules dans les cours d'eau (Des rivières et des Hommes, 2015). ....	41
Figure I - 2-11 - Diagramme de Hjulström (Wikipedia, 2015f). ....	41
Figure I - 2-12 – Pourcentage du césium-137 dissous et particulaire dans les bassins versants impactés par l'accident de la centrale FDNPP (Evrard et al., 2015). ....	42
Figure I - 3-1 – Procédure couramment utilisée pour déterminer la contribution de chacune des sources dans les sédiments de rivière (adapté et traduit de Haddadchi et al. (2013)). ....	44
Figure I - 3-2 - Propriétés fondamentales pouvant être utilisées afin de tracer la source des sédiments (Foster et Lees, 2000; reproduit dans Koiter et al., 2013). ....	46
Figure II - 1-1 - Contamination massive en radiocésium dans les bassins versants côtiers corrigée de la décroissance au 14 juin 2011 d'après les travaux du MEXT (MEXT, 2011b). ....	66
Figure II - 1-2 - Topographie des bassins versants (Geospatial Information Authority of Japan). ....	67
Figure II - 1-3 - Utilisation des sols dans les bassins versants étudiés (Land conservation research, 2005). ....	68
Figure II - 1-4 - Géologie des bassins versants étudiés (Geological Survey of Japan, 2012). ....	69
Figure II - 1-5 – Carte des sols des bassins versants étudiés (Economic Planning Agency, 1972) et dépôts de téphras (principalement des cendres volcaniques) issus du volcan Adatara (Yamamoto, 2013). ....	70
Figure II - 1-6 - Profil d'un Andosol (Geographical Survey Institute, 2002). ....	71
Figure II - 1-7 - Profil d'un Cambisol (Geographical Survey Institute, 2002). ....	72
Figure II - 1-8 - Profil d'un Fluvisol (Geographical Survey Institute, 2002). ....	73

Figure II - 1-9 - Profil d'un Gleysol (Geographical Survey Institute, 2002).....	73
Figure II - 1-10 - Profil d'un Histosol (Geographical Survey Institute, 2002).....	74
Figure II - 1-11 - Profil d'un Régosol (Geographical Survey Institute, 2002).....	74
Figure II - 1-12 - Indice de connectivité sédimentaire versants – zones de stockages dans les bassins versants étudiés (Chartin et al., 2013).....	75
Figure II - 1-13 - a) Forêt d'arbres caducs sur une pente à fort gradient dans le bassin de l'Ota, et b) forêt de conifère avec une litière dense et épaisse qui couvre le sol dans le bassin de la Mano – Source : H. Lepage. ....	76
Figure II - 2-1 – Localisation des sites d'échantillonnage où des laisses de crue ont été prélevées entre novembre 2011 et mai 2014.....	77
Figure II - 2-2 - Précipitations journalières dans le bassin de la Niida d'après les données de l'Agence Météorologique Japonaise (2014), avec indication de l'occurrence des quatre typhons et des campagnes de prélèvements. ....	79
Figure II - 2-3 - Identification d'un prélèvement de laisse de crue – Source : H. Lepage.....	80
Figure II - 2-4 - Mesure du débit de dose au niveau d'un sol de la Préfecture de Fukushima – Source : O. Evrard .....	80
Figure II - 3-1 - Schéma de la chaîne d'analyse par spectrométrie gamma (Tessier, 2003).....	82
Figure II - 3-2 – Visualisation de l'impact des phénomènes parasites sur un spectre gamma (Tessier, 2003). ....	83
Figure II - 3-3 - Rayonnements secondaires interférant lors de la mesure d'un échantillon (Tessier, 2003). ....	84
Figure II - 3-4 - Tamisage d'un échantillon de Fukushima (ABC Catalyst, 2015). ....	85
Figure II - 3-5 - Schéma de principe de l'analyse par activation neutronique (adapté de NAA, 2015).....	89
Figure II - 3-6 - Cœur du réacteur lors de l'irradiation d'une navette. La disposition des échantillons et des standards peut varier en fonction de leur nombre (figure adaptée et traduite de Kim et al., 2013).....	91
Figure II - 3-7 - Exemple de spectres de raies Gamma mesurés à différentes périodes après irradiation (Greenberg et al., 2011). On note que les éléments qui ressortent ne sont pas les mêmes. ....	92
Figure III - 2-1 - Diffractogramme d'un échantillon collecté dans une rizière (type de sol : Andosol). Ph : phyllosilicate, Amp : amphibole, Q : quartz et Al : albite.....	121
Figure IV - 1-1 - Rapport d'activité $^{110m}\text{Ag} : ^{137}\text{Cs}$ mesuré dans les premiers 5 cm des sols de la Préfecture de Fukushima par le MEXT en juin 2011 et délimitation de trois zones possédant des valeurs différentes (Chartin et al., 2013). ....	156
Figure IV - 1-2 - Rapport d'activité $^{110m}\text{Ag} : ^{137}\text{Cs}$ mesuré dans les premiers 5 cm des sols des bassins côtiers (Chartin et al., 2013). Nitta = Niida. ....	157
Figure IV - 1-3 – Contribution de chaque source dans le bassin versant de la Niida de novembre 2011 à mai 2013 (adapté de Chartin et al., 2013). ....	158
Figure IV - 1-4 - Décroissance radioactive de l'argent-110m depuis l'accident.....	159
Figure IV - 1-5 - Détection du $^{110m}\text{Ag}$ dans les échantillons de la Niida en mai 2013. ....	159

Figure V - 2-1 - Comparaison d'une zone de l'amont de la Niida telle qu'elle est représentée sur a) la carte des sols de 1972 et b) la carte des sols de 2002.....	201
Figure V - 2-2 - Concentration en Sc et Yb dans les échantillons des trois sources. ....	202
Figure V - 3-1 – Diagramme en boîte des SSA pour les échantillons de sols et de sédiments.....	203
Figure VI - 2-1 - a) Exemple de champ décontaminé à l'amont de la Niida et b) couche d'arène granitique (couleur claire) de 5 cm sur l'ancien sol (couleur sombre). ....	219
Figure D-1 – Schéma décrivant les étapes pour valider l'utilisation des données apportées par l'irradiation sous Cadmium.....	278

# LISTE DES TABLEAUX

Tableau I - 1-1 - Echelle INES et principaux exemples d'événements nucléaires (IAEA, 2008).....	16
Tableau I - 1-2 - Principales caractéristiques des réacteurs de la centrale nucléaire de Fukushima Dai-ichi (IAEA, 2009).....	17
Tableau I - 1-3 – Exemples de période radioactive et de types d'émission des radionucléides les plus courants.	22
Tableau I - 1-4 - Liste exhaustive des évènements qui ont impacté les réacteurs et entraîné des rejets.....	23
Tableau I - 1-5 – Liste des estimations des activités des principaux radionucléides rejetés exprimées en PBq (=10 <sup>15</sup> Bq) dans l'atmosphère.....	24
Tableau I - 1-6 - Classe de volatilité des radionucléides (Pontillon et al., 2010).....	27
Tableau I - 2-1 – Typhons et tempêtes tropicales qui ont eu lieu dans la Préfecture de Fukushima après l'accident. ....	33
Tableau I - 3-1 – Formule de quatre modèles récents utilisés dans la littérature. ....	48
Tableau II - 1-1 - Caractéristiques de contamination initiale des bassins versants côtiers.....	67
Tableau II - 1-2 - Caractéristiques des cartes des sols de la Préfecture de Fukushima .....	70
Tableau II - 2-1 - Nombre d'échantillons de laisses de crues et de sols collectés dans chaque bassin versant et pour chaque campagne de prélèvement.....	78
Tableau II - 3-1 – Caractéristiques des détecteurs utilisés pour la spectrométrie gamma.....	84
Tableau II - 3-2 – Caractéristiques des standards utilisés pour calibrer les détecteurs.....	86
Tableau II - 3-3 - Caractéristiques de détection des radionucléides étudiés.....	87
Tableau II - 3-4 - Avantages et inconvénients de l'analyse par activation neutronique.....	88
Tableau II - 3-5 - Caractéristiques des deux réacteurs (Tessier, 2003).....	90
Tableau II - 3-6 – Séries de mesures sur les échantillons irradiés.....	92
Tableau II - 3-7 - Caractéristiques des pics photoélectriques sélectionnés et des séries correspondantes pour chaque élément.....	93
Tableau II - 3-8 - Synthèse des tests (Annexe D), les valeurs en gras indiquent l'étape de rejet de l'élément .....	95
Tableau III - 2-1 - Synthèse des minéraux détectés dans les principaux types de sols des bassins étudiés.....	122
Tableau IV - 1-1 - Caractéristiques du rapport d'activité <sup>110m</sup> Ag/ <sup>137</sup> Cs dans les deux zones du bassin de la Niida. ....	158
Tableau IV - 4-1 - Synthèse des résultats obtenus pour les sédiments collectés dans la plaine côtière du bassin de la Niida.....	171

Tableau D-1 – Ecart entre les valeurs certifiées de SL1 et les valeurs mesurées de SL1 <sub>fin</sub> – Les résultats en rouges sont hors de l'intervalle et présentent un écart supérieur à 15% de la valeur certifiée. ....	273
Tableau D-2 - Ecart entre les valeurs certifiées de Soil7 et les valeurs mesurées de Soil7 <sub>début</sub> et de Soil7 <sub>fin</sub> – Les résultats en rouges sont hors de l'intervalle et l'écart est > à 15% de la valeur certifiée. ....	275
Tableau D-3 – Pourcentage d'écart entre la valeur référence de Soil7 et la moyenne des valeurs mesurées dans Soil7 <sub>début</sub> et Soil7 <sub>fin</sub> des échantillons hors intervalles certifiés. Les écarts supérieurs à 20% sont notés en rouge. ....	276
Tableau D-4 – Ecart moyen des teneurs mesurées par les deux méthodes. Les écarts en rouge sont supérieurs à 15%. ....	277
Tableau D-5 – Ecart entre les valeurs certifiées de SL1 et les valeurs mesurées de SL1 <sub>fin</sub> .....	279
Tableau D-6 – Ecart entre les valeurs certifiées de SL1 et les valeurs mesurées de SL1 <sub>début</sub> .....	279
Tableau D-7 – Ecart (%) entre les teneurs obtenues par INAA classique et sous Cadmium en utilisant SL1 <sub>début</sub> comme référence. Les écarts supérieurs à 15% sont en rouge et les résultats inférieurs à 10% en gras. ....	280
Tableau D-8 - Ecart (%) entre les teneurs obtenues par INAA classique et Cadmium en utilisant SL1 <sub>fin</sub> comme référence. Les écarts supérieurs à 15% sont en rouge et les résultats inférieurs à 10% en gras. ....	280
Tableau D-9 - Ecart entre les valeurs certifiées de Soil7 et les valeurs mesurées de Soil7b et de Soil7c. ....	281



# INTRODUCTION GENERALE



# INTRODUCTION GENERALE

## Contexte et problématique

Depuis la construction des premiers réacteurs nucléaires, rares ont été les accidents graves ayant entraîné la dispersion de particules radioactives. Cependant, les retombées radioactives engendrées par de tels accidents ont un impact durable sur la contamination de l'environnement proche des sites accidentés et sur le ressenti des populations.

L'accident de Tchernobyl (26 avril 1986) a ainsi impacté l'environnement et, aujourd'hui encore, certaines zones (situées à proximité de la centrale) restent fortement contaminées et difficiles ou même interdites d'accès. Plus récemment, l'accident de la centrale nucléaire de Fukushima Dai-Ichi (11 mars 2011) a rappelé qu'il était difficile d'anticiper les catastrophes naturelles.

Si les accidents nucléaires sont dramatiques, ils offrent aussi l'opportunité unique d'améliorer notre compréhension de l'érosion et du transfert des particules fines auxquelles certains radionucléides viennent se fixer dans l'environnement. Plus généralement, de telles situations de dispersion accidentelle sont une expérience « grandeur nature » de traçage du transfert de particules et des radionucléides associés.

Ainsi, rapidement après l'accident de la centrale de Fukushima Dai-Ichi, le projet TOFU (Traçage des conséquences environnementales du tsunami provoqué par le séisme de TOhoku et de l'accident de FUKushima) a été financé conjointement par l'Agence Nationale de la Recherche (ANR) et la *Japan Science and Technology (JST) agency*. L'objectif de ce projet impliquant le LSCE et l'équipe du Professeur Onda, de l'Université de Tsukuba, était d'étudier la redistribution spatiale et temporelle des radionucléides dans les bassins versants montagneux drainant la partie la plus contaminée du panache radioactif. L'équipe japonaise y avait déjà notamment installé un réseau de placettes expérimentales caractérisées par différentes occupations du sol pour mesurer les taux d'érosion des sols et d'exportation du césium radioactif. D'une durée de 18 mois, ce projet s'est terminé au printemps 2013 et a financé une partie de ces travaux de thèse. Ceux-ci ont également bénéficié du soutien financier du CEA (Direction des Relations Internationales), de l'Université de Versailles-Saint-Quentin (Bonus Qualité Recherche) et du programme NEEDS-Environnement (projet HAMUSUTA mené en collaboration avec l'IRSN) pour financer les campagnes de terrain et certaines mesures expérimentales réalisées en 2013, après la fin du projet TOFU.

Depuis lors, le projet AMORAD (Amélioration des modèles de prévision de la dispersion et d'évaluation de l'impact des radionucléides au sein de l'environnement), coordonné par l'IRSN et financé par l'ANR dans le cadre des Investissements d'Avenir en RadioProtection et Sécurité Nucléaire (RPSN), a ensuite démarré courant 2014. Il se poursuivra jusqu'en 2019. L'un des axes de ce projet, porté par le LSCE, a pour objectif d'améliorer les modèles d'érosion et de « lessivage » des radionucléides dans les bassins versants à partir du retour d'expérience et des mesures réalisées au Japon après l'accident de Fukushima.

Parmi les contaminants qui se sont déposés sur les sols de la Préfecture de Fukushima, le césium-137, dont la période radioactive est de 30 ans, est considéré comme le plus problématique à l'heure actuelle car il sera présent dans l'environnement pendant plusieurs siècles si aucune action n'est entreprise. En effet, c'est un radionucléide qui est connu pour se fixer fortement aux particules de sol. Les particules contaminées en césium-137 sont susceptibles d'être érodées, d'atteindre les rivières de la région et d'être dispersées dans des zones épargnées par les retombées radioactives initiales. C'est d'autant plus le cas dans une région du Japon qui connaît un climat particulièrement érosif, avec des crues printanières récurrentes qui peuvent être associées à la fonte des neiges, ainsi que le passage de typhons entre juillet et octobre. De mars 2011 à mai 2014, quatre puissants typhons ont ainsi balayé la Préfecture de Fukushima et engendré des crues.

Les zones côtières, densément peuplées et cultivées, qui avaient été relativement épargnées par les retombées de radiocésium lors de l'accident, pourraient donc être le réceptacle de la contamination radioactive apportée par les rivières lors de ces événements extrêmes. Il est donc impératif d'étudier la dispersion des particules radioactives afin de dégager des préconisations pour améliorer la gestion des rivières et des bassins versants contaminés dans ce contexte post-accidentel inédit.

### Objectifs

L'objectif de cette thèse est **d'étudier la dispersion des particules contaminées le long des rivières côtières drainant le panache principal de pollution radioactive** de Fukushima. L'accident offre également l'opportunité **d'étudier la dynamique sédimentaire dans des bassins versants impactés par des typhons**. Pour ce faire, des méthodes de traçage sédimentaire originales basées sur l'activité de certains **radionucléides émis par l'accident** et sur la **signature géochimique** des sols et des sédiments de la région vont être développées.

L'étude se concentre sur plusieurs bassins versants côtiers situés au nord de la centrale (bassins des rivières Mano — 175km<sup>2</sup>, Niida — 270 km<sup>2</sup> et Ota — 75 km<sup>2</sup>) et drainant des zones fortement contaminées (contamination surfacique initiale en césium-137 comprise entre 100 et 2000 kBq/m<sup>2</sup> contre moins de 3 kBq/m<sup>2</sup> avant l'accident). Ces bassins versants drainent des plateaux montagneux à l'ouest (entre 400 et 900 m d'altitude), jusqu'à la plaine côtière où se trouve leur exutoire en traversant une zone boisée caractérisée par des gradients de pente très élevés (> 30 %). Les bassins versants de la Mano et de l'Ota sont équipés de barrages sur leur cours d'eau principal, et leurs réservoirs sont susceptibles de stocker les particules. La majeure partie des bassins est occupée par des forêts (env. 60 % de leur surface), tandis que les rizières constituent la majorité des terres agricoles et se concentrent le long des rivières. Les principaux sols de la région sont des Cambisols (sols forestiers), des Andosols (développés sur des dépôts de cendres volcaniques) et des Fluvisols (dépôts alluviaux). La ville de Minamisoma (63 000 habitants en 2015, 71 000 avant l'accident) se situe dans la plaine côtière de la Niida et a été en partie épargnée par les retombées au moment de l'accident. Elle pourrait cependant être impactée par la dispersion de la contamination le long du réseau hydrographique.

### Démarche

Pour étudier la dispersion de la contamination radioactive initiale, plusieurs méthodes de traçage sédimentaire ont été développées. Ces méthodes consistent à comparer un ou plusieurs paramètres physico-chimiques caractéristiques des sédiments à ceux des différentes sources potentielles.

A cette fin, des échantillons des sols (n=95) et de laisses de crues (n=271) ont été collectés au cours de 6 campagnes de terrain organisées dans la Préfecture de Fukushima. Compte-tenu de l'absence d'échantillonneurs collectant les matières en suspension, nous avons eu recours aux laisses de crues qui constituent un échantillonnage intégratif des matières en suspension circulant dans les cours d'eau lors des événements érosifs. Pour étudier l'impact des phénomènes érosifs majeurs qui se produisent dans la région, les campagnes ont été organisées tous les 6 mois entre novembre 2011 et mai 2014, après les crues printanières et la saison des typhons estivaux. Les échantillons ont tous été analysés par spectrométrie gamma pour en déterminer l'activité en  $^{134}\text{Cs}$  et en  $^{137}\text{Cs}$ , et le cas échéant, celle des autres émetteurs gamma présents. Une sélection d'échantillons (35 sols et 110 laisses) a également été analysée par activation neutronique afin de déterminer leur teneur en une vingtaine d'éléments.

Dans un premier temps, la distribution en profondeur du  $^{137}\text{Cs}$  dans les sols des rizières a été étudiée pour vérifier s'il n'avait pas migré. En effet, les Andosols qui composent les rizières sont généralement caractérisés par une faible affinité avec le  $^{137}\text{Cs}$ , qui pourrait lui permettre de migrer en profondeur. Cette étude est basée sur les mesures d'activités en  $^{137}\text{Cs}$  réalisées dans 10 carottes de sols prélevées dans des rizières des bassins versants étudiés en novembre 2013.

Dans un second temps, quatre méthodes ont été développées pour étudier la dispersion de la contamination :

1. La première approche est opportuniste et se base sur la répartition spatiale du rapport d'activité  $^{110\text{m}}\text{Ag}/^{137}\text{Cs}$  qui délimite deux zones dont les sols présentent des signatures différentes dans le bassin de la Niida. Cette délimitation permet d'appliquer un modèle de mélange binaire basé sur ce rapport d'activité dans les sols et les sédiments. Cette utilisation est possible car l'analyse du comportement des deux radionucléides montre qu'il est similaire dans les sols et les sédiments de la Préfecture de Fukushima.
2. La seconde méthode utilise le facteur d'enrichissement en  $^{137}\text{Cs}$  dans les sols et les sédiments. Ce facteur correspond au rapport de l'activité des sédiments sur l'activité des sols voisins et il permet de mettre en évidence si les sédiments sont plus ou moins contaminés que les sols voisins, et donc de caractériser l'apport de sédiments provenant de l'amont du point observé.
3. La troisième méthode utilise la distribution de l'activité en  $^{137}\text{Cs}$  dans les sols et les sédiments dans un modèle binaire, pour discriminer la contribution de deux sources, (1) la zone amont des bassins versants qui est caractérisée par une contamination élevée ( $> 20 \text{ kBq/m}^2$  de  $^{134}\text{Cs} + ^{137}\text{Cs}$ ) et (2) les plaines côtières, faiblement contaminées ( $< 20 \text{ kBq/m}^2$ ). Il est ainsi possible de déterminer la contribution de chacune de ces deux sources dans les sédiments côtiers.

4. La dernière méthode utilise un modèle de mélange basé sur la composition élémentaire des sols pour discriminer la contribution des principaux types de sols, à savoir les Andosols (principalement dans les rizières et dans la zone amont), les Cambisols (principalement sous forêt) et les Fluvisols (principalement le long des cours d'eau et dans la plaine côtière).

### **Plan du manuscrit**

Le manuscrit décrivant ces travaux est organisé en 5 chapitres :

- **Chapitre I** : la première partie de ce chapitre présentera l'accident nucléaire de la centrale de Fukushima Dai-Ichi et notamment les dépôts terrestres qui ont été générés, en particulier ceux du  $^{137}\text{Cs}$  dont les propriétés seront également exposées. Dans une seconde partie, l'érosion des sols et le transport sédimentaire seront présentés à travers un état de l'art, complété par des exemples concrets de la Préfecture de Fukushima. Enfin, ce chapitre se terminera par la présentation du fingerprinting et de la méthode appliquée pour tracer les sédiments.
- **Chapitre II** : dans un premier temps, les caractéristiques des trois bassins versants étudiés seront présentées, notamment le relief, la géologie, l'occupation et les types des sols ainsi que les campagnes d'échantillonnage de laisses de crues et de sols. Les différentes méthodes d'analyses utilisées (notamment la spectrométrie gamma et l'analyse par activation neutronique) seront présentées dans un second temps.
- **Chapitre III** : ce chapitre décrira l'étude de la distribution en profondeur du  $^{137}\text{Cs}$  dans les carottes de sols prélevées dans les rizières en novembre 2013. Cette étude a fait l'objet d'une publication scientifique dans la revue « *Journal of Environmental Radioactivity* », incluse dans le chapitre. Des analyses par diffraction des rayons X seront également décrites dans ce chapitre pour compléter la discussion sur la mobilité du césium, en caractérisant les minéraux contenus dans les sols.
- **Chapitre IV** : dans ce chapitre, trois méthodes basées sur l'empreinte radioactive afin de tracer la dispersion seront détaillées. Ces méthodes permettent de mieux comprendre l'effet des crues sur les particules de sol et les sédiments ainsi que l'impact des barrages sur la dispersion de la contamination. Ce chapitre a fait l'objet de plusieurs publications scientifiques dans les revues *Journal of Environmental Radioactivity*, *IAHS* et *Anthropocene*.
- **Chapitre V** : ce dernier chapitre présentera les résultats obtenus par l'utilisation de l'empreinte géochimique pour tracer la dispersion des particules contaminées, notamment pour obtenir des informations sur la contribution des principaux types de sols des bassins versants.

En conclusion, une réflexion mettra en perspectives l'ensemble des résultats de ces travaux et la complémentarité des différentes méthodes. On tentera notamment de mettre en évidence (1) les conclusions qui se rapportent au transfert des sédiments par le réseau hydrographique dans la situation particulière de la Préfecture de Fukushima et (2) les avancées méthodologiques apportées par cette étude quant au traçage des sédiments. Une seconde partie sera consacrée aux perspectives ouvertes par ces travaux de thèse, que ce soit pour la gestion de la zone contaminée à Fukushima ou les futurs travaux impliquant l'approche de fingerprinting dans des situations forcément différentes de celles rencontrées dans la Préfecture de Fukushima.



# CHAPITRE I



# CHAPITRE I – CONTEXTE DES TRAVAUX

---

## Sommaire

<b>L'ACCIDENT DE LA CENTRALE NUCLEAIRE DE FUKUSHIMA DAI-ICHI</b>	<b>14</b>
LES SEISMES	14
LE TSUNAMI	15
LA CENTRALE DE FUKUSHIMA DAI-ICHI	16
Impact des seismes et du tsunami sur la centrale nucleaire	18
Les rejets	21
<i>Notions de radioactivit�</i>	21
<i>Rejets dans l'athmosph�re</i>	23
<i>Rejets dans l'oc�an</i>	26
LA DISPERSION DES RADIONUCLEIDES PAR VOIE ATMOSPHERIQUE	27
DEPOT DES RADIONUCLEIDES DANS LA PREFECTURE DE FUKUSHIMA	28
<b>DYNAMIQUE SEDIMENTAIRE DANS LES COURS D'EAU</b>	<b>31</b>
EROSION DES SOLS DANS UN BASSIN VERSANT	31
Param�tres climatiques	32
Param�tres topographiques	34
Param�tres lithologiques	35
<i>G�ologie autour de la centrale de Fukushima Dai-Ichi</i>	35
<i>P�dologie de la Pr�fecture de Fukushima</i>	36
Impact de la v�g�tation	37
Impact anthropique	39
Equation universelle de perte en terre (USLE)	40
TRANSPORT DES PARTICULES ERODEES PAR LES COURS D'EAU	41
G�n�ralit�s	41
La dispersion de la contamination � Fukushima	42
<b>TRA�AGE DES SEDIMENTS</b>	<b>44</b>
LES SOURCES	45
LES SEDIMENTS	45
LES PROPRIETES PHYSICO-CHIMIQUES	45
LES MODELES	47
<b>CONCLUSION DU CHAPITRE I</b>	<b>49</b>
<b>REFERENCE</b>	<b>50</b>

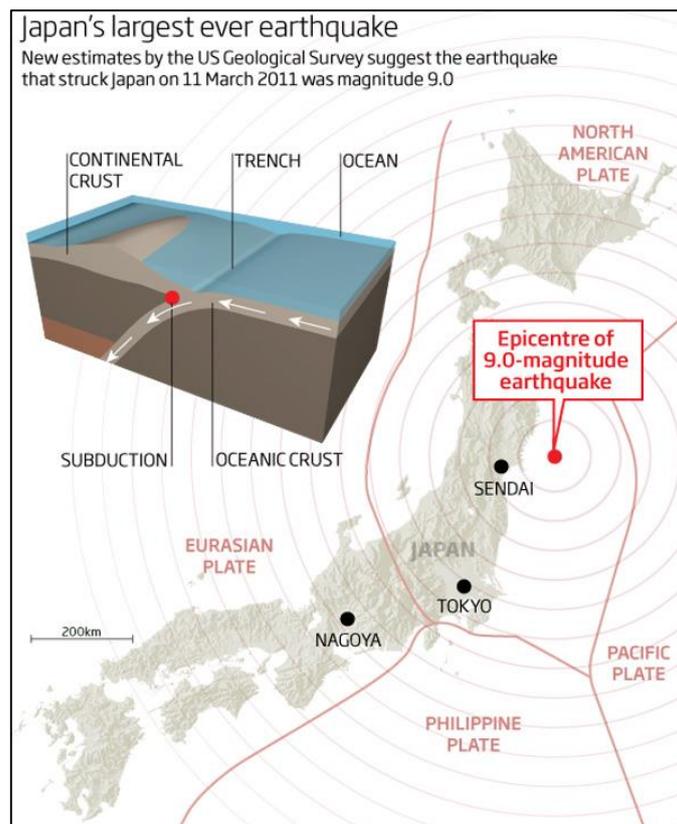
## CONTEXTE DES TRAVAUX

Ce chapitre, qui est subdivisé en trois parties, présentera dans un premier temps l'accident de la centrale nucléaire de Fukushima Dai-Ichi et ses conséquences environnementales, notamment les dépôts de contamination dans la Préfecture de Fukushima. Dans un second temps, les processus d'érosion des sols et de transport des particules dans les cours d'eau seront introduits dans le contexte particulier de cette même Préfecture. Enfin, nous présenterons les généralités concernant la technique de traçage (ou fingerprinting) des sédiments qui sera adaptée au contexte japonais pour étudier la dispersion des polluants radioactifs particuliers dans certains bassins versants côtiers contaminés suite à l'accident.

## I - 1 L'ACCIDENT DE LA CENTRALE NUCLEAIRE DE FUKUSHIMA DAI-ICHI

### I - 1.1 LES SEISMES

Le Japon est un pays connu pour le très grand nombre de séismes qu'il subit (plus de 10 000 séismes de magnitude supérieure à 1.5 par mois ; [Zhao, 2015](#)). Cette particularité est due à son emplacement sur une zone où convergent rapidement ( $8 \text{ cm.an}^{-1}$ ) trois plaques tectoniques majeures (Pacifique, Eurasienne et Philippines - [Zhen Shao, 1997](#)). C'est cette structure géodynamique complexe qui engendre un nombre important de séismes (Figure I - 1-1).



**Figure I - 1-1 - Plaques tectoniques à proximité du Japon et épicentre du séisme de magnitude de moment (Mw) de 9 du 11 mars 2011 ([New Scientist, 2015](#)).**

Le 11 mars 2011, plusieurs séismes se sont produits au large des côtes du Pacifique, résultant du chevauchement des failles à proximité de la zone de subduction entre les plaques tectoniques du Pacifique et d'Eurasie ([Simons et al., 2011](#)) (Figure I - 1-1). L'épicentre était situé à une profondeur d'environ 32km, et se trouvait à 130km de Sendai (Figure I - 1-1), l'une des principales villes du Japon (1 million d'habitants). L'aire de rupture a été estimée à  $450 \text{ km} \times 200 \text{ km}$  et le plus puissant de ces séismes a atteint une magnitude 9.0 Mw ([Yagi & Fukahata, 2011](#) ; [Zhao, 2015](#)). La puissance de ce séisme fut telle qu'il a été ressenti jusqu'à Pékin (à plus de 2000km de l'épicentre). Les données collectées par quelques 1200 stations GPS du GSI (*Geospatial Information Authority*) réparties dans le Nord du Japon ont montré que la côte Nord-Est s'est déplacée vers l'épicentre en moyenne de 2.4m et qu'elle a subi un affaissement d'environ 50cm ([Simons et al., 2011](#) ; [IRSN, 2012](#)).

I - 1.2 LE TSUNAMI

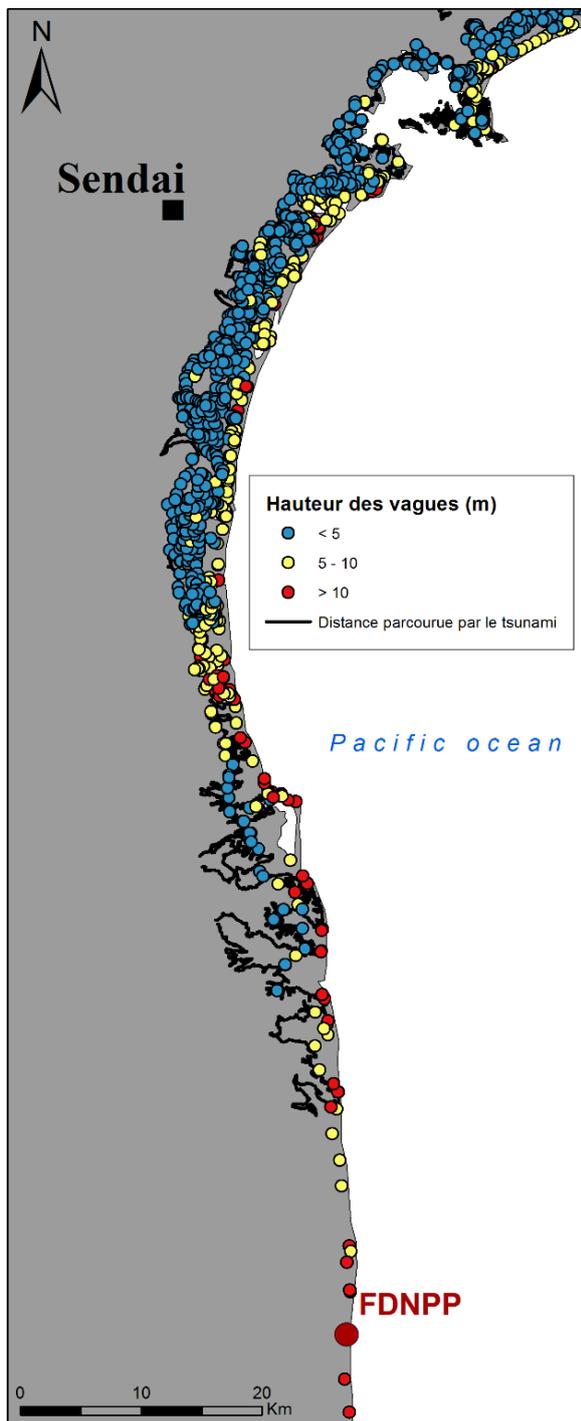


Figure I - 1-2 - Distance parcourue par le tsunami (University of Tokyo) et hauteur des vagues (Mori et al., 2011; Mori & Takahashi, 2012) sur les côtes de Sendai et à proximité de la centrale nucléaire de Fukushima Dai-Ichi (FDNPP).

Rapidement après les séismes, un tsunami s’est formé dans l’Océan Pacifique et il a heurté environ 2000 km de côtes japonaises. Il était composé de plusieurs vagues ayant fusionné en haute mer (Nasa, 2011), décuplant sa puissance.

Aux environs de Sendai, la vague destructrice atteint parfois plus de 20 m et s’engouffra sur plus de 4 km dans les terres japonaises (Mori et al., 2012)(Figure I - 1-2). A Misawa, au Nord du Japon, les dépôts sableux dus au tsunami ont été identifiés sur plusieurs centaines de mètres à l’intérieur des terres (Koiwa et al., 2014).

La succession de ces évènements fut catastrophique pour les Japonais, les pertes humaines étant évaluées à plus de 20 000 morts et disparus (Tajima et al., 2013), les dégâts à plus de 210 milliards de dollars de dégâts et plus de 2 millions de tonnes des déchets furent déposés sur les sols et dans les rivières de la Préfecture de Fukushima (UNEP, 2012) (Figure I - 1-3).



Figure I - 1-3 - Dégâts causés par le tsunami (Spratt, 2015).

De nombreux débris ont également été emportés dans l'Océan Pacifique et selon la *National Oceanic and Atmospheric Administration* (NOAA), ils devraient prochainement atteindre les côtes américaines, emportés par les courants marins (NOAA, 2014).

Dans cette région, seuls 4 séismes ayant entraîné un tsunami avaient été recensés au cours du dernier millénaire (869, 1611, 1896 et 1933) (Tajima et al., 2013).

Sur la côte impactée par le tsunami se trouvait la centrale nucléaire de Fukushima Dai-ichi (Figure I - 1-2), qui n'a pas pu résister à l'assaut des vagues, initiant l'un des plus graves accidents nucléaires de l'histoire, atteignant 7, le plus haut niveau, sur l'échelle internationale des événements nucléaires - INES) (Tableau I - 1-1).

**Tableau I - 1-1 - Echelle INES et principaux exemples d'événements nucléaires (IAEA, 2008)**

INES	Type	Cas
7	Accident majeur	Catastrophe de Tchernobyl (1986) et accident nucléaire de Fukushima Dai-Ichi (2011)
6	Accident grave	Catastrophe de Kychtym (1957)
5	Accident (entraînant un risque hors du site)	Accident nucléaire de Three Mile Island (1979)
4	Accident (n'entraînant pas de risque important à l'extérieur du site)	Accident de Fleurus (2006)
3	Incident grave	Fuite de 300 tonnes d'eau radioactive à la centrale de Fukushima (2013)
2	Incident	Quelques cas par an en France
1	Anomalie	Une centaine de cas par an en France
0	Ecart	Un millier de cas par an en France

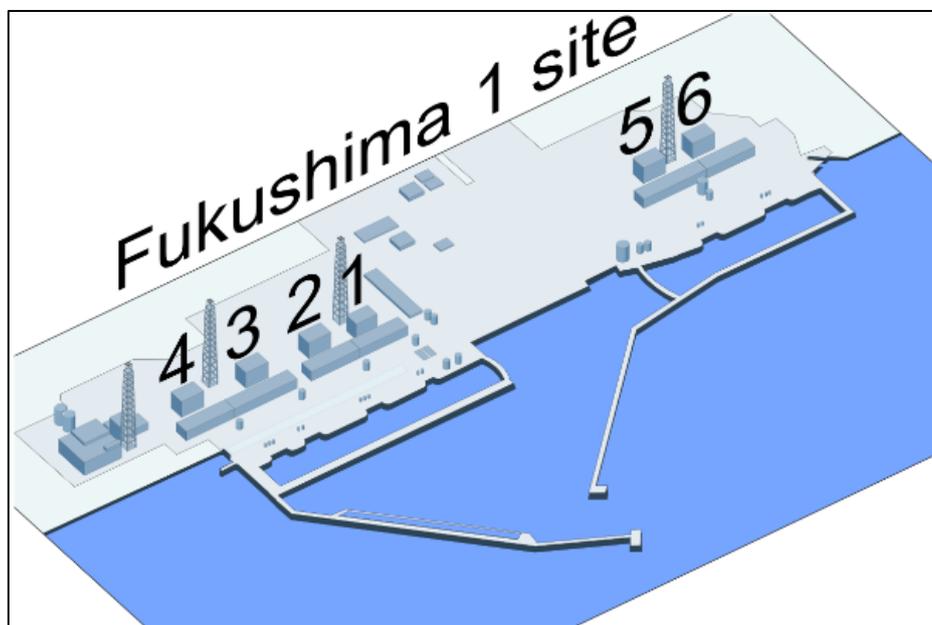
### I - 1.3 LA CENTRALE DE FUKUSHIMA DAI-ICHI

La centrale était en fonctionnement depuis 1971 et comportait 6 réacteurs de type « réacteur à eau bouillante » (REB) lors du séisme du 11 mars 2011 (Figure I - 1-4, Tableau I - 1-2). Elle est exploitée par la *Tokyo Electric Power Company* (TEPCO) qui a aussi assuré sa construction.

**Tableau I - 1-2 - Principales caractéristiques des réacteurs de la centrale nucléaire de Fukushima Dai-ichi (IAEA, 2009).**

Réacteur	1	2	3	4	5	6
Puissance électrique brute (MWE)	460	784	784	784	784	1100
Type de réacteur	Réacteur à eau bouillante (REB-3)	REB-4	REB-4	REB-4	REB-4	REB-5
Type d'enceinte	Mark-I	Mark-I	Mark-I	Mark-I	Mark-I	Mark-II
Date de mise en service	1971	1974	1976	1978	1978	1979
Nombre d'assemblages dans le cœur	400	548	548	0	548	764
Etat du réacteur	En marche	En marche	En marche	Cœur déchargé	A l'arrêt	A l'arrêt
Type de combustible	Dioxyde d'uranium (UO <sub>2</sub> )	UO <sub>2</sub>	UO <sub>2</sub> et 32 assemblages Mox <sup>1</sup> (Brady Raap, 2011)	UO <sub>2</sub>	UO <sub>2</sub>	UO <sub>2</sub>

<sup>1</sup>Un combustible MOx (Mélange d'Oxydes) est constitué d'environ 7 % de plutonium et 93 % d'uranium appauvri (Abe and Asakura, 2012). C'est un mélange contenant du dioxyde de plutonium (PuO<sub>2</sub>) et du dioxyde d'uranium appauvri (UO<sub>2</sub>).



**Figure I - 1-4 - Emplacement des 6 réacteurs de la centrale nucléaire de Fukushima Dai-ichi (Wikipedia, 2015a).**

Les Réacteurs à Eau Bouillante (REB) sont des réacteurs refroidis à l'eau qui circule dans le cœur où elle se vaporise afin de faire tourner une turbine génératrice qui produit de l'électricité. Elle est ensuite refroidie par un circuit secondaire (Figure I - 1-5).

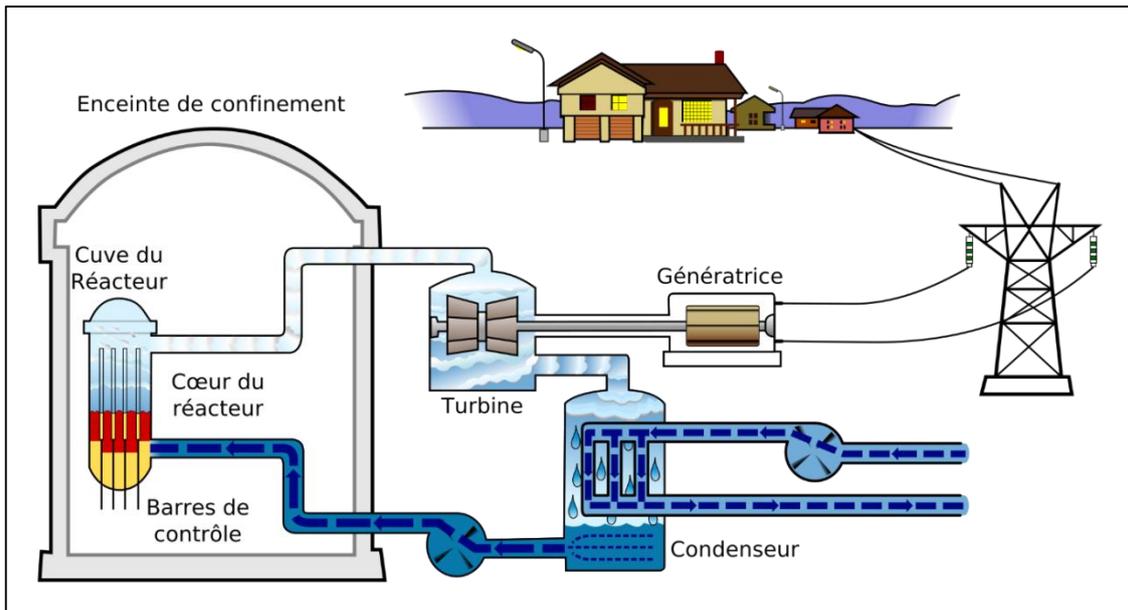


Figure I - 1-5 - Fonctionnement d'un réacteur de type REB (Wikipedia, 2015b).

Les réacteurs sont composés d'une cuve en acier étanche de 16 cm d'épaisseur, enfermant un ensemble de tubes d'alliage au zirconium (Zr) remplis de combustible nucléaire (Figure I - 1-6).

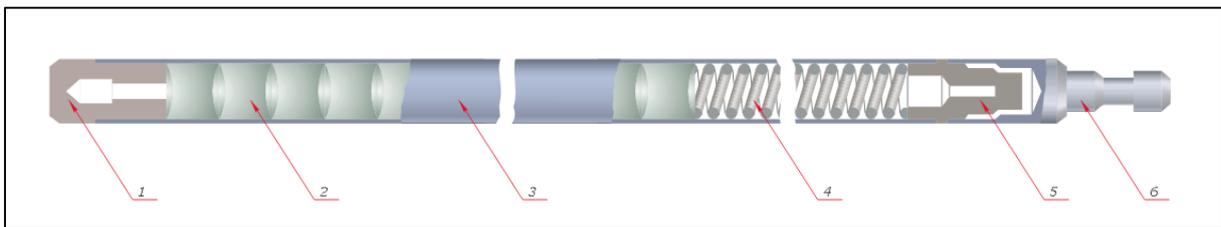


Figure I - 1-6 - Exemple de barre de combustible. 1 bouchon du bas ; 2 combustible (UO<sub>2</sub>) ; 3 enceinte de zirconium ; 4 ressort ; 5 douille ; 6 bouchon du haut (Wikipedia, 2015c).

### I - 1.3.1 IMPACT DES SEISMES ET DU TSUNAMI SUR LA CENTRALE NUCLEAIRE

Lors du séisme de magnitude 9 Mw, les réacteurs en cours de fonctionnement (Tableau I - 1-2) ont suivi la procédure de sécurité et ils ont donc été arrêtés par insertion des grappes de contrôle dans le cœur pour stopper la réaction en chaîne. Les alimentations électriques des systèmes d'évacuation de la puissance résiduelle ont été assurées par les groupes électrogènes de secours.

Malgré une réévaluation du risque d'inondation au cours des années 2000 par l'exploitant TEPCO (IRSN, 2012) qui a conduit au rehaussement des barrières de protection à 5,7 m au-dessus du niveau de la mer (anciennement 4 m), les vagues du tsunami ont pénétré dans l'enceinte de la centrale et immergé l'ensemble des systèmes électriques de secours et de refroidissement (Figure I - 1-7). La digue de protection a ainsi été submergée par plusieurs vagues dont la plus élevée a atteint 14m (TEPCO, 2011) (Figure I - 1-8).

A l'exception des réacteurs n°5 et n°6 qui sont situés sur une plateforme plus élevée, tous les réacteurs du site se sont retrouvés à la fois en situation de perte totale des sources électriques et de perte totale de source froide.



Figure I - 1-7 - Zone inondée suite au tsunami et localisation des 6 réacteurs (IRSN, 2012).

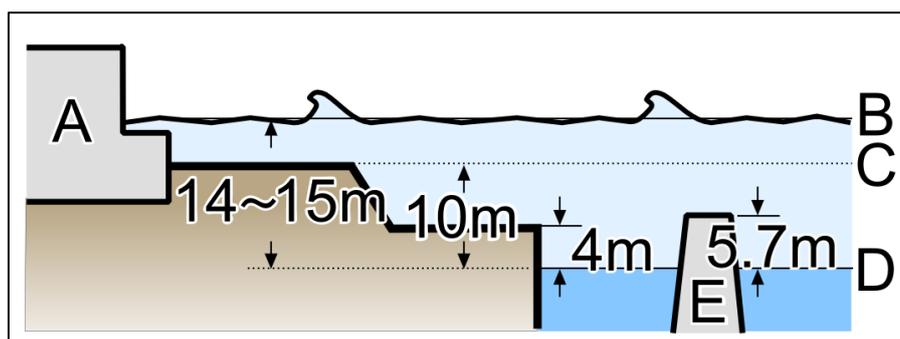


Figure I - 1-8 - Hauteur du tsunami – A : bâtiment de la centrale contenant les générateurs de secours ; B: hauteur maximum du tsunami ; C: niveau du sol ; D : niveau moyen de l'océan (Wikipedia, 2015d).

Sans système de refroidissement, l'eau initialement présente dans les cuves des réacteurs s'est échauffée au contact des barres de combustible chaudes et elle s'est évaporée, conduisant à l'augmentation de la pression dans la cuve des réacteurs et à la diminution du niveau d'eau. Pour diminuer la pression, l'exploitant a réalisé des opérations de dépressurisation, relâchant ainsi dans l'atmosphère d'importantes quantités de radionucléides sous forme de gaz ou d'aérosols.

Dans le cœur du réacteur où le niveau d'eau était insuffisant et la température très élevée (> 1000°C), le zirconium (Zr) des gaines (Figure 1.2-6) s'est mis à fondre ( $T_{\text{fusion}} = 800^{\circ}\text{C}$ ) et il est entré en contact avec la vapeur d'eau ( $\text{H}_2\text{O}$ ) produisant de l'hydrogène ( $\text{H}_2$ ) par oxydation (Eq. 1), sa production étant d'autant plus rapide que la température est élevée (Gillon, 1979).



L'hydrogène ainsi produit s'est mélangé avec la vapeur d'eau et accumulé dans les parties supérieures des réacteurs 1 et 3.

Lors des opérations de dépressurisation suivantes, deux puissantes explosions se sont produites lorsque l'hydrogène est entré en contact avec l'oxygène de l'air ; la première a détruit le toit du réacteur 1 le 12 mars et la seconde, plus puissante, a détruit une grande partie du réacteur 3 le 14 mars ([German Hydrogen and Fuel Cell Association, 2011](#); [IRSN, 2012](#)) (Figure I - 1-9). Le 15 mars, plusieurs incendies et explosions d'hydrogène se sont produits au sein du réacteur 4 au niveau des piscines de combustible ([UNSCEAR, 2013](#)). Ce même jour, une explosion créa une brèche sur le côté du réacteur 2 à cause d'une importante augmentation de pression dans le tore de condensation (Figure I - 1-9), libérant ainsi une importante quantité d'eau contaminée contenue dans le bâtiment du réacteur.

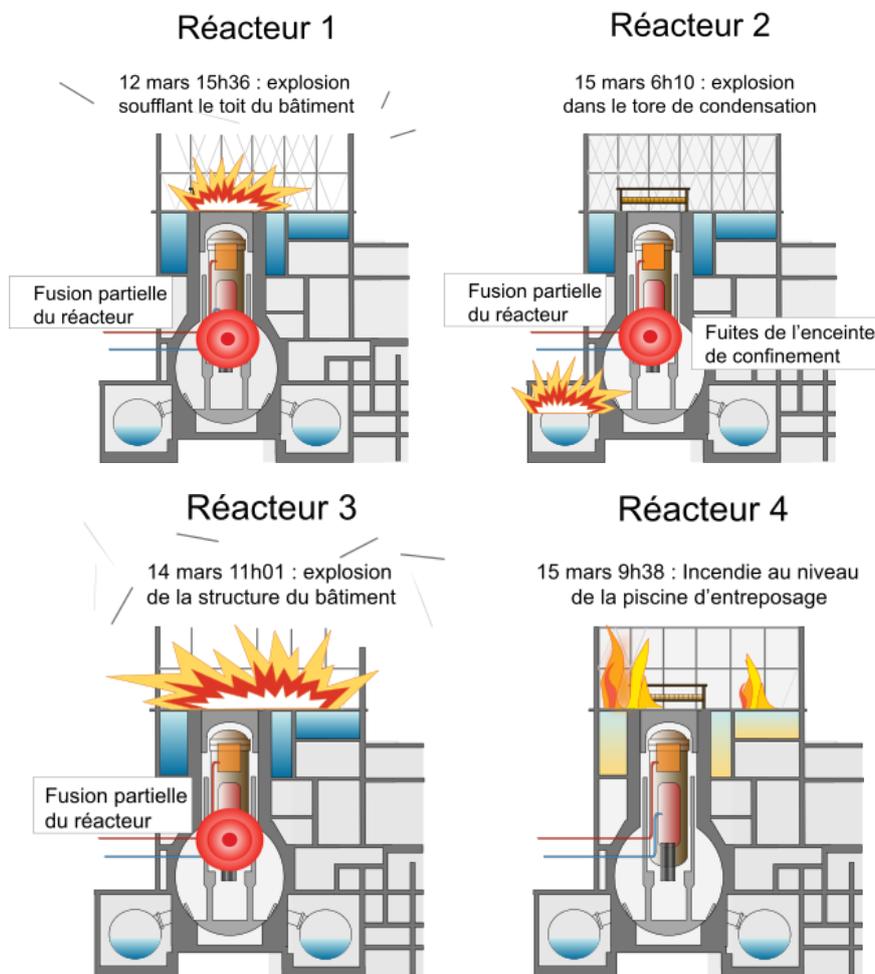


Figure I - 1-9 - Explosions et incendies dans les différents réacteurs ([Wikipedia, 2015e](#)).

En plus des rejets atmosphériques dus aux explosions, d'importants rejets liquides ont pu être observés peu de temps après l'accident ([Buessler et al., 2012](#); [Tsumune et al., 2012](#)) et se poursuivaient encore quelques années après ([Black, 2014](#); [Buessler, 2014](#)). Ces rejets sont dus aux nombreuses explosions qui ont endommagé l'intégrité des réacteurs, notamment pour le réacteur 2 où l'explosion a conduit à d'importantes fuites (Figure I - 1-9). De plus, comme les opérations de refroidissement consistent à injecter de l'eau en permanence dans les réacteurs, l'eau est continuellement dispersée par les nombreuses fissures des bâtiments.

### I - 1.3.2 LES REJETS

Pour mieux comprendre la suite de l'accident et avant d'évoquer les différents éléments radioactifs rejetés, il est nécessaire de rappeler brièvement les bases de la radioactivité.

#### I - 1.3.2.1 Notions de radioactivité

---

Un élément chimique est composé d'un noyau accompagné de protons, d'électrons et généralement de neutrons. L'écriture conventionnelle pour décrire un atome est :  ${}^A_ZX$  où A correspond au numéro atomique (la somme des protons et des neutrons) et Z est le nombre de protons (et généralement le nombre d'électrons).

Un élément peut se décliner en plusieurs atomes qui diffèrent par leur nombre de neutron. On parle alors d'isotope. Par exemple, l'hydrogène a trois isotopes :

- 0 neutron : hydrogène ( ${}^1_1H$  ou  ${}^1H$ )
- 1 neutron : deutérium ( ${}^2_1H$  ou  ${}^2H$ )
- 2 neutrons : tritium ( ${}^3_1H$  ou  ${}^3H$ )

Les propriétés chimiques des isotopes d'un élément sont les mêmes, seules leurs propriétés physiques changent.

Les isotopes sont caractérisés par deux états. Lorsque leur structure est équilibrée, ils sont dits « stables » et ne peuvent changer d'état que par une cause extérieure (par exemple, l'impact d'une autre particule). Cependant, il arrive que le nombre de protons et de neutrons ne soit pas équilibré, rendant fragile l'architecture du noyau. L'isotope doit donc se transformer en un autre élément, c'est ce que l'on appelle la désintégration radioactive. Un élément instable est appelé « radio-isotope » ou « radionucléide ».

Lors de cette désintégration radioactive, l'élément émet un rayonnement sous forme d'une particule :

- Rayonnement alpha ( $\alpha$ ) : particule d'hélium
- Rayonnement bêta ( $\beta$ ) : électron (positif ou négatif)
- Rayonnement gamma ( $\gamma$ ) : particule gamma
- Rayonnement X : particule X

L'énergie des rayonnements dépend du radionucléide émetteur et du type de rayonnements. L'unité de l'énergie d'émissions est l'électron-volt (eV). On résume les principales émissions des radionucléides à travers des schémas de désintégration (Figure I - 1-10).

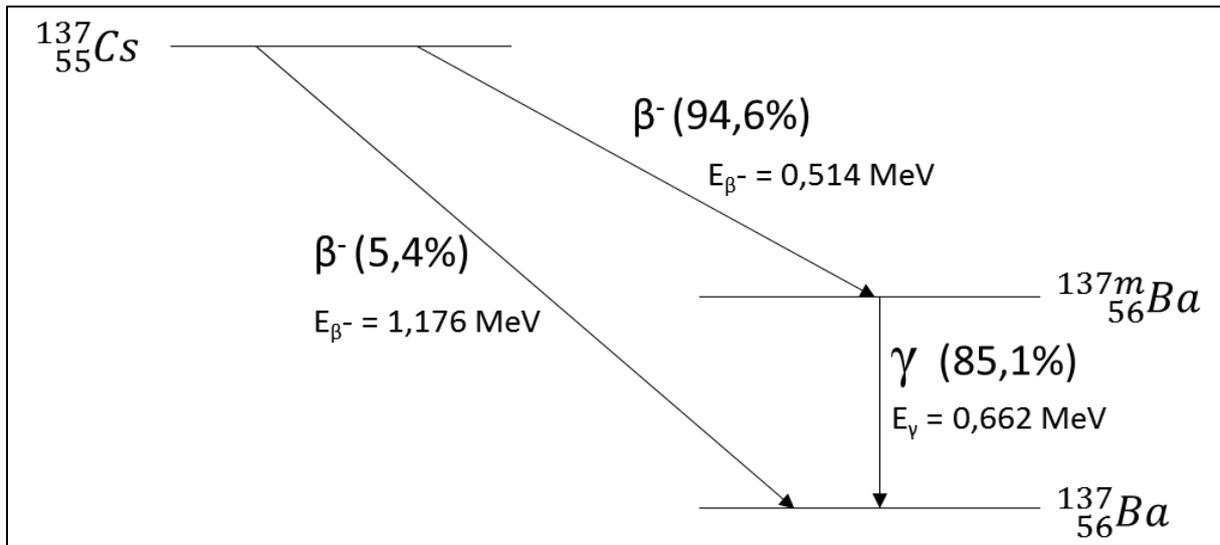


Figure I - 1-10 – Schéma de désintégration du césium-137. Le pourcentage entre parenthèse indique la probabilité d'émission du rayonnement à l'énergie indiquée. Le Baryum-137m est dans un état métastable (m) qui est un état transitoire au cours duquel un rayonnement gamma est émis (reproduit à partir de Chelet, 2006).

Le nombre de rayonnements par seconde est appelé l'activité. Celle-ci est exprimée en becquerel (Bq) qui correspond au nombre de désintégrations par seconde. Tous les éléments radioactifs ne se désintègrent pas à la même vitesse. Ils sont caractérisés par leur période radioactive aussi appelée demi-vie radioactive. Il s'agit d'une constante dépendante du radionucléide et qui varie d'un radionucléide à un autre (Tableau I - 1-3). Dans un échantillon composé de plusieurs atomes du même radionucléide, la demi-vie radioactive correspond au temps nécessaire pour que la moitié des particules se désintègrent.

Tableau I - 1-3 – Exemples de période radioactive et de types d'émission des radionucléides les plus courants.

Radionucléide	Demi-vie	Principaux types d'émission
Césium-137	30,05 années	Bêta et Gamma
Césium-134	2,06 années	Bêta et Gamma
Iode-131	8,02 jours	Bêta et Gamma
Argent-110m	249,78 jours	Bêta et Gamma
Plutonium-239	24110 années	Alpha, Bêta et Gamma
Tritium (Hydrogène-3)	12,31 années	Bêta
Carbone-14	5700 années	Bêta

Ces quelques informations concernant la radioactivité sont loin d'être exhaustives mais néanmoins suffisantes pour comprendre l'accident de FDNPP et les radionucléides rejetés.

I - 1.3.2.2 Rejets dans l'atmosphère

Suite aux opérations de dépressurisation et aux explosions des réacteurs, d'importants rejets atmosphériques de particules contaminées se sont produits. On dénombre ainsi une dizaine d'évènements entre le 11 et le 27 mars (Tableau I - 1-4). Cependant, les rejets auraient pu être plus importants, si l'eau contenue dans les tores des réacteurs n'avait pas permis de retenir prisonnières de nombreuses particules contaminées (IRSN, 2012).

Tableau I - 1-4 - Liste exhaustive des évènements qui ont impacté les réacteurs et entraîné des rejets.

Date (JST)*	Réacteur	Achim et al. (2012)	Unsear (2013)	IRSN (2012)	Saunier et al. (2013)
12/03 10h	1	Ventilation puis explosion d'hydrogène	Explosion d'hydrogène	Dépressurisation puis explosion d'hydrogène	Ventilation puis explosion d'hydrogène
13/03 08h	3	Ventilation		Dépressurisation	Ventilation
13/03 11h	2	Ventilation	Explosion d'hydrogène		
14/03 05h	3	Ventilation puis explosion d'hydrogène	Explosion d'hydrogène	Explosion d'hydrogène	Ventilation puis explosion d'hydrogène
15/03 00h	2	Ventilation			
15/03 06h	2	Explosion dans le tore	Rejet contamination dans le réacteur 2	Explosion dans le tore unit 2	Explosion dans le tore du réacteur 2
	4	Dégâts	Explosion d'hydrogène	Incendie	
15/03 10h	Piscine de combustible	Incendie		Incendie	
15/03 16h	3				Ventilation
16/03 00h	2 et/ou 3				Dépressurisation dans le réacteur 3
16/03 6h	Piscine de combustible	Incendie			
16/03 9h	2 et 3	Fumée blanche sur le réacteur 3			Dépressurisation dans le réacteur 2
17/03 21h	3				Ventilation
18/03 5h	3				Ventilation
20/03 11h	3				Ventilation
21/03 15h	2 et 3	Fumée grise			Fumée
23/03 16h	3	Fumée noire			Fumée
25/03 08h	2 ou 3				Fumée

\*Heures approximatives

Lors d'un accident de ce type, il est très difficile d'obtenir des informations sur la composition et la quantité des rejets car la forte radioactivité ambiante empêche les mesures directes pour des questions de sécurité. De plus, de nombreuses balises de mesures installées sur le site ont été détruites lors du tsunami et l'accès à la centrale, obstrué par de nombreux débris, était particulièrement compliqué. C'est pourquoi les propriétés physiques et chimiques (forme chimique, taille des particules, phase, solubilité...) des radionucléides rejetés ne sont pas bien connues (Burns et al., 2012).

Pour déterminer la composition des rejets, de nombreux travaux de modélisation ont été réalisés à l'aide d'informations obtenues bien après l'accident comme la quantité de radionucléides déposés dans l'environnement (Tableau I - 1-5).

**Tableau I - 1-5 – Liste des estimations des activités des principaux radionucléides rejetés exprimées en PBq (=10<sup>15</sup> Bq) dans l'atmosphère.**

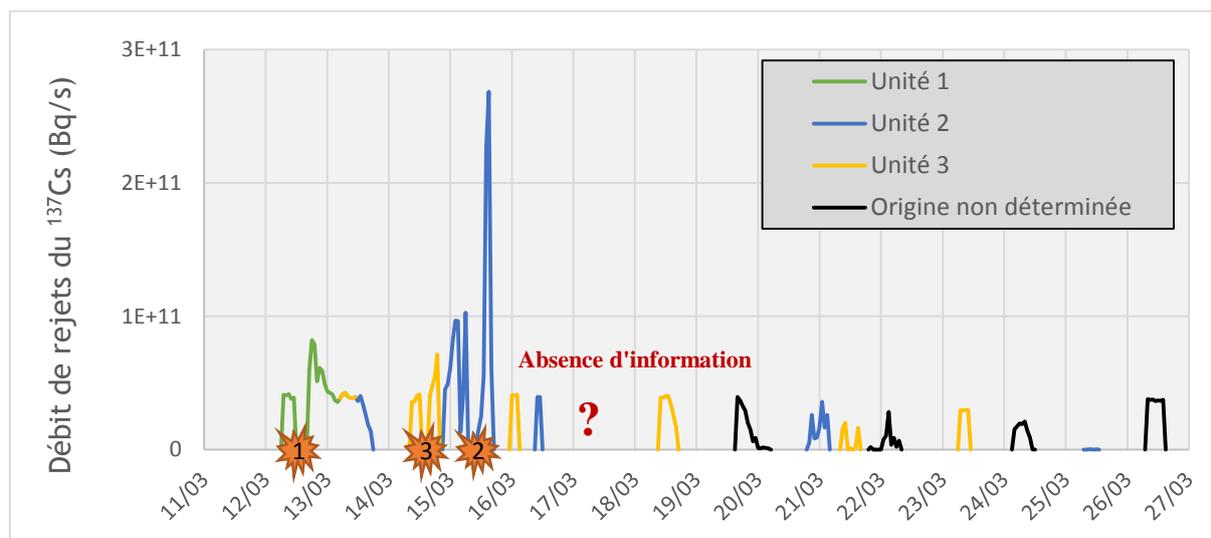
Source	<sup>137</sup> Cs*	<sup>131</sup> I	<sup>133</sup> Xe	<sup>132</sup> I	<sup>132</sup> Te	<sup>134</sup> Cs	<sup>133</sup> I	<sup>136</sup> Cs
Achim et al. (2012)	10	100 - 400	6000					
Bannai et al. (2012)	15	160	11000	0,5	0,8	18	0,7	
Chino et al. (2011)	13	150						
Hoeve and jacobson (2012)	17	70						
IAEA (2011)	12	150						
IAEA (2012)	10	500						
Kobayashi et al. (2013)	13	200						
Korsakissok et al. (2013)	20	197	5940	168	108	28		
Mathieu et al. (2012)	20	190	6000	56				10
Saunier et al. (2013)	15	106	12100	36				4
Stohl et al. (2012)	37		15000					
Terada et al. (2012)	9	124	7320	29	29	9	10	2
Winiarek et al. (2012)	12	190 - 380						

\*A titre de comparaison, les émissions atmosphériques en <sup>137</sup>Cs lors de l'accident de Tchernobyl étaient de 85 PBq (Unsear 2008).

Les rejets étaient principalement constitués de gaz rares (xenon-133), d'iode gazeux (iode-131) et de produits radioactifs sous forme d'aérosols comme le césium-137. Cependant, de nombreux autres radionucléides ont été détectés dans des proportions différentes. Ainsi, Bannai (2011) estima les taux de rejets de plus de 30 radionucléides : <sup>89</sup>Sr, <sup>90</sup>Sr, <sup>91</sup>Y, <sup>95</sup>Zr, <sup>99</sup>Mo, <sup>103</sup>Ru, <sup>106</sup>Ru, <sup>127m</sup>Te, <sup>127</sup>Sb, <sup>129m</sup>Te, <sup>129</sup>Sb, <sup>131</sup>I, <sup>131m</sup>Te, <sup>132</sup>I, <sup>132</sup>Te, <sup>133</sup>I, <sup>133</sup>Xe, <sup>134</sup>Cs, <sup>135</sup>I, <sup>137</sup>Cs, <sup>140</sup>Ba, <sup>141</sup>Ce, <sup>143</sup>Pr, <sup>144</sup>Ce, <sup>147</sup>Nd, <sup>238</sup>Pu, <sup>239</sup>Np, <sup>240</sup>Pu, <sup>241</sup>Pu, <sup>242</sup>Cm.

Après quelques fluctuations durant les premiers jours (Figure I - 1-11), les rejets ont diminué mais ils ont persisté quelques semaines à un taux plus faible. Plus aucun rejet significatif n'a été détecté après le 27 mars 2011 (Chino et al., 2011; Achim et al., 2012; Unsear 2013). En utilisant le modèle MELCOR, Sevón (2015) estima qu'environ 1 % de l'inventaire total du radiocésium des réacteurs avait été rejeté dans l'environnement durant l'accident.

En fonction des informations disponibles, certaines sources de rejets n'ont pas pu être identifiées (Figure I - 1-11) et certains rejets n'ont pas pu être estimés (c'est le cas du 17 mars).



**Figure I - 1-11 - Estimation des débits de rejets du césium-137 durant les premiers jours qui ont suivi l'accident de la centrale nucléaire (Saunier et al., 2013) avec indication de l'occurrence des explosions dans les réacteurs 1, 2 et 3.**

Comme on peut le voir sur la Figure I - 1-11, l'explosion dans le tore du bâtiment réacteur n°2 a été suivie du plus important rejet de contamination. Ce résultat a été confirmé par Zheng et al. (2014) qui ont utilisé le rapport isotopique  $^{135}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$  car sa valeur n'était pas la même dans les différents réacteurs (on parle alors de signature du combustible). Le feu dans les piscines de stockage de combustible du réacteur 4 a également contribué au rejet massif du 15 mars.

Certains événements projetèrent des particules contaminées à plus de 100m d'altitude (Achim et al., 2012; Korsakissok et al., 2012) leur permettant de rejoindre la troposphère (Qiao et al., 2011; Marzo, 2014). Ainsi, au gré des vents et des pluies, les particules se sont dispersées autour du globe (Masson et al., 2011).

## I - 1.3.2.3 Rejets dans l'océan

Alors que les rejets atmosphériques ont surtout eu lieu au cours des jours suivants l'accident (Figure I - 1-11), les rejets liquides, initiés suite à l'explosion dans le réacteur 2, se sont accentués la semaine suivante. Ces rejets d'eau étaient dus à la présence de nombreuses fuites qui évacuaient les eaux utilisées par l'opérateur pour refroidir les cœurs des réacteurs.

Cette contribution à la contamination des océans était bien plus élevée que l'apport par dépôt atmosphérique (Tsumune et al., 2012) (Figure I - 1-12).

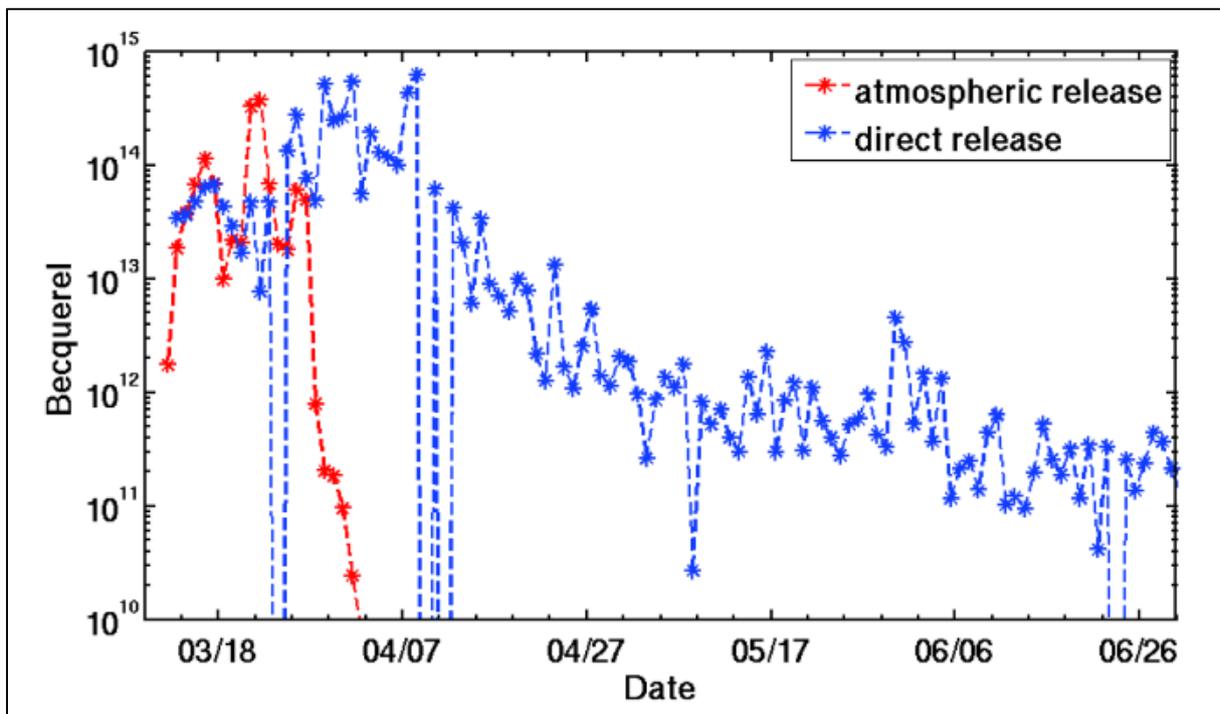


Figure I - 1-12 - Estimation des rejets dans l'océan par voie atmosphérique et par voie directe (Estournel et al., 2012).

Les estimations des rejets liquides de <sup>137</sup>Cs oscillent entre 3.5 et 27 PBq (Bailly du Bois et al., 2012; Estournel et al., 2012; Tsumune et al., 2012; Unsear 2013), avec un pic début avril 2011 (Figure I - 1-12). Quoiqu'il en soit, aucun effet biologique de cette radioactivité n'a été détecté sur la faune aquatique aux abords de la centrale (Yu et al., 2015).

Dans les sections qui suivent, nous allons nous concentrer sur les rejets atmosphériques.

### I - 1.4 LA DISPERSION DES RADIONUCLÉIDES PAR VOIE ATMOSPHERIQUE

Une fois émis, la dispersion des radionucléides est contrôlée par les conditions météorologiques. Au cours de l'accident, la direction des vents a beaucoup changé (Figure I - 1-13), dispersant les radionucléides sur l'ensemble du territoire japonais (Katata et al., 2012; Terada et al., 2012).

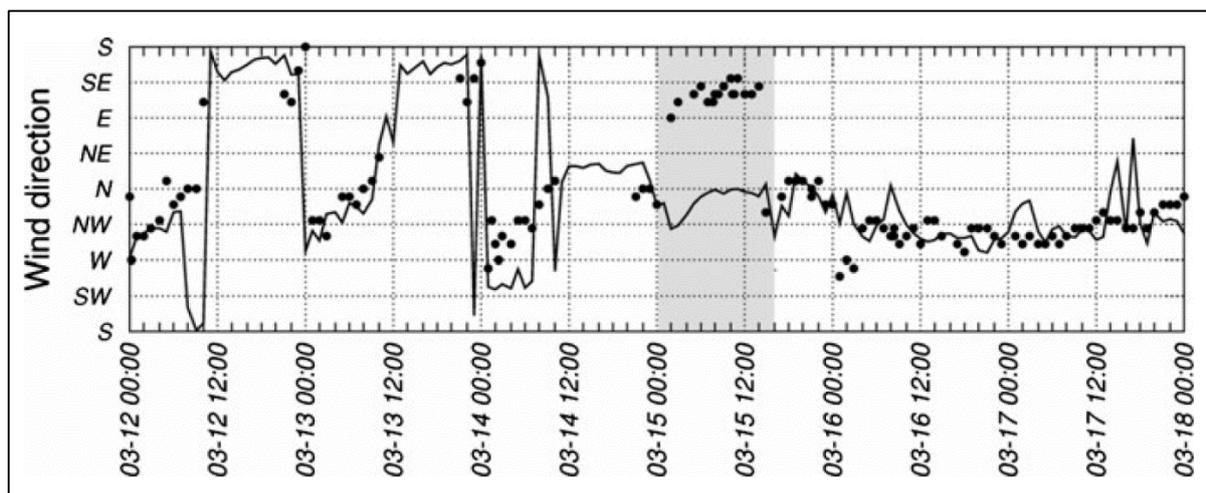


Figure I - 1-13 – Direction du vent mesurée à l'aéroport de Fukushima (points) et simulée avec le modèle WRF (courbe) (Achim et al., 2012).

De plus, les radionucléides émis ne présentent pas le même comportement dans l'atmosphère (Tableau I - 1-6). Certains sont peu volatils (e.g. Pu, Sr) et ne se sont dispersés qu'à proximité de la centrale. D'autres, comme les gaz radioactifs (Xe, I) ou les radionucléides volatils (<sup>137</sup>Cs) (Pontillon, 2010; Le Petit, 2012), se sont dispersés beaucoup plus facilement. Ils ont en partie pu parcourir plusieurs milliers de kilomètres comme en attestent les nombreuses mesures de contamination réalisées autour du globe (Masson et al., 2011; Evrard et al., 2012; Steinhäuser et al., 2014).

Tableau I - 1-6 - Classe de volatilité des radionucléides (Pontillon et al., 2010).

Groupe	Éléments	Volatilité	Distance de dispersion	Difficulté d'émission du combustible	Taux d'émission
Volatile	Ag, Cd, Cs, I, Kr, Rb, Sb, Te, Xe	Haute	Très longue	Très facile	100%
Semi-volatile	Ba, Mo, Pd, Rh, Tc	Moyenne	Longue	Facile	50 – 100%
Peu-volatile	Cu, Eu, La, Nb, Ru, Sr, Y	Faible	Courte	Difficile	3 – 10% (parfois 20 – 40%)
Non-volatile	Nd, Pr, Zr	Nulle		Très difficile	Non mesuré
Actinide	Pu, U		Courte	Dépend du RN	U : < 10% Pu : < 1%



Ces deux cartes montrent l'existence d'un important panache de contaminants radioactifs au nord-ouest de la centrale. Ceux-ci se sont déposés lors des pluies qui ont suivi les rejets des réacteurs et notamment ceux dus au réacteur numéro 2 (15 et 16 mars) (Kinoshita et al., 2011; Zheng et al., 2014). Selon Kinoshita et al. (2011), ce sont les rejets du 21 mars qui ont le plus impacté le sud de la centrale, notamment Tokyo (située à environ 300 km du site). Les contaminations au Nord et au Sud correspondent à des dépôts secs (Korsakissok et al., 2012). Les estimations montrent que près de 70% des dépôts étaient humides même s'ils ne représentaient que  $\approx 20\%$  de l'ensemble des émissions (Groell et al., 2012), le reste s'étant principalement dispersé au-dessus des océans.

De plus, le césium-137, qui est considéré comme le radionucléide le plus problématique car il est le plus abondant dans l'environnement (Figure I - 1-14b) et par sa demi-vie élevée (30 ans), est connu pour être rapidement et irréversiblement fixé sur les particules fines de sols après dépôt (Sawhney, 1972). Le  $^{137}\text{Cs}$  est un ion positif (cation) qui se fixe aux zones chargées négativement dans les sols, notamment sur les sites de bord altérés (*Frayed Edge Sites* (FES)). Ces FES sont connus pour contrôler la dynamique du  $^{137}\text{Cs}$  (Nakao et al., 2008) et leur quantité varie en fonction du type de sol et de sa teneur en minéraux micacés (Nakao et al., 2012) comme par exemple l'illite (Figure I - 1-15).

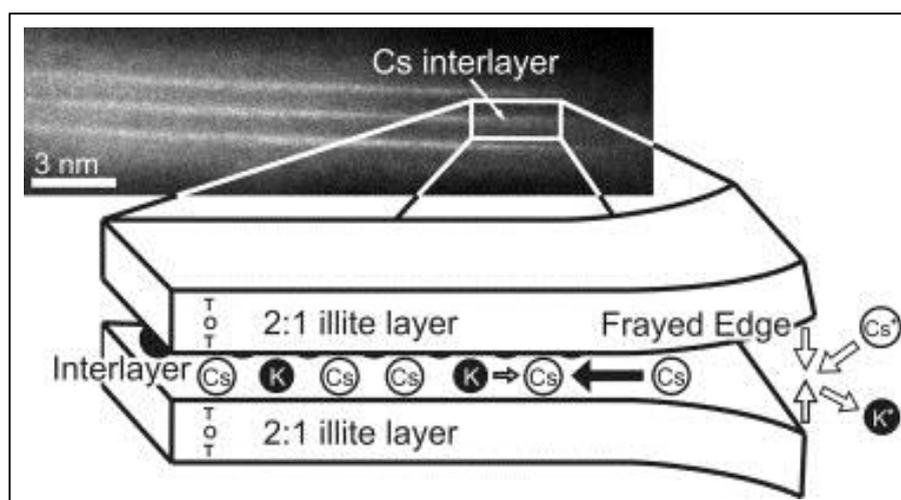


Figure I - 1-15 – Rétention des ions  $\text{Cs}^+$  sur un site de bord altéré d'une illite (Fuller et al., 2015). Le césium (Cs) et le potassium (K), ont des comportements très similaires.

Ainsi, la capacité des FES de 47 sols européens a pu être estimée entre 0.013 et 4.861 mmol/kg (Delvaux et al., 2001). Ceci signifie que, pour une contamination de 5000Bq/kg en  $^{137}\text{Cs}$  ( $\approx 10^{-8}$  mmol/kg), l'ensemble du  $^{137}\text{Cs}$  peut se fixer irréversiblement aux particules de sol (Nakao et al., 2012). Néanmoins, dans les sols contenant plus de 20% de matière organique, celle-ci aurait tendance à empêcher le  $^{137}\text{Cs}$  de se fixer et par conséquent à augmenter sa disponibilité pour migrer (Kruyts and Delvaux, 2002). Dans la Préfecture de Fukushima, les études conduites sur l'adsorption du césium sur des sols contaminés après l'accident confirment les résultats déjà connus, à savoir que le  $^{137}\text{Cs}$  issu des retombées de Fukushima montre une forte affinité pour les particules fines, en particulier les minéraux micacés (muscovite, biotite et illite) et certaines argiles (montmorillonite, vermiculite) (Nakao et al., 2012; Nakao et al., 2014; Saito et al., 2014).

Comme le  $^{137}\text{Cs}$  ne migre pas en profondeur dans le sol (Beck 1966, Ivanov et al., 1996), il peut être transporté lors d'évènements érosifs (Ritchie and McHenry 1990; Nakao et al., 2012). Sa dispersion est donc dépendante des différents facteurs qui contrôlent l'érosion. Dans la Préfecture de Fukushima, plusieurs rivières drainent les bassins versants dont les sols sont les plus contaminés (Figure I - 1-16) et les premiers résultats confirment cette dispersion lors d'évènements érosifs, notamment les typhons (Chartin et al., 2013; Evrard et al., 2013).

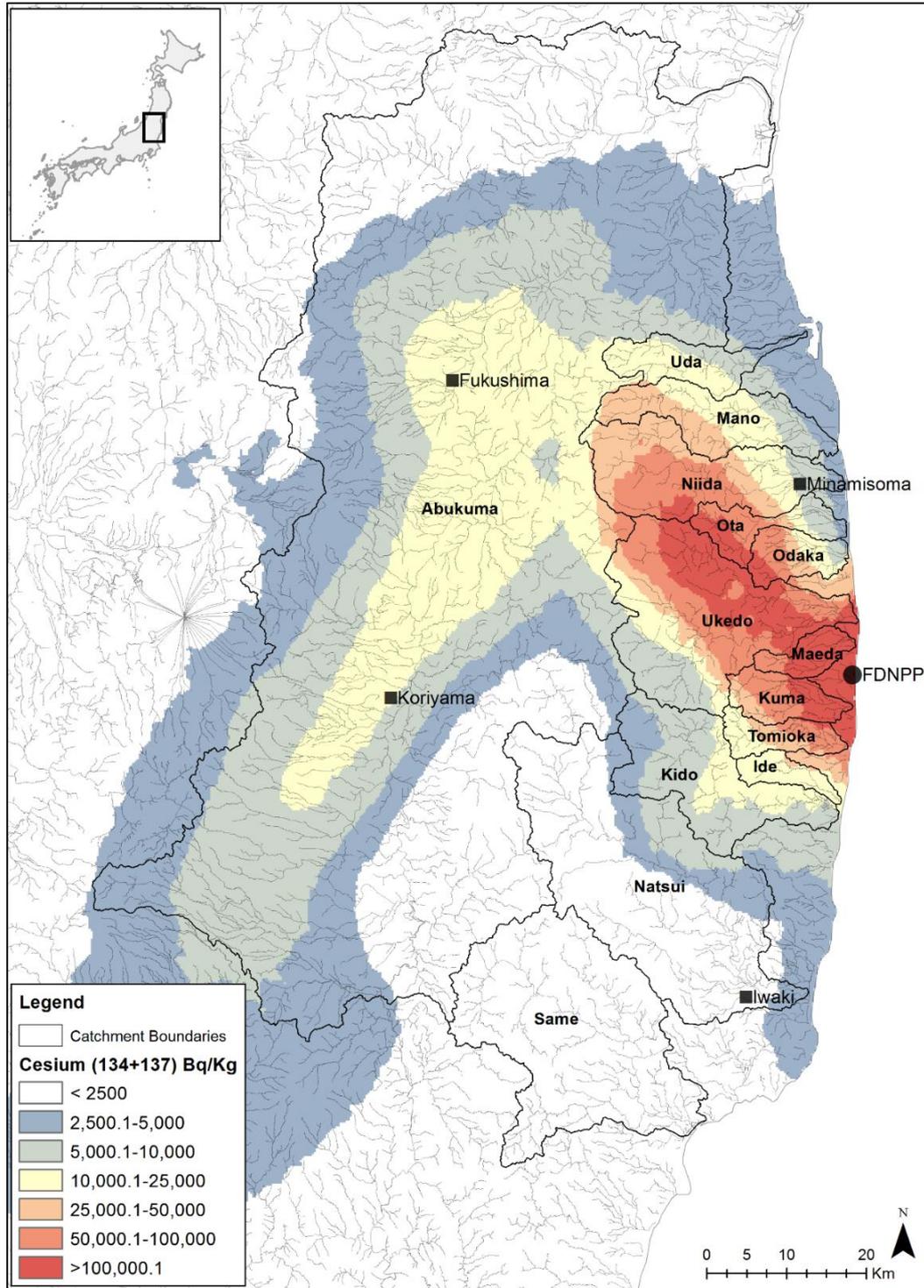


Figure I - 1-16 – Bassins versants impactés par les retombées de particules radioactives dans la Préfecture de Fukushima (Evrard et al., 2015).

## I - 2 DYNAMIQUE SEDIMENTAIRE DANS LES COURS D'EAU

### I - 2.1 EROSION DES SOLS DANS UN BASSIN VERSANT

L'érosion est l'un des processus naturels du transfert des particules du sol vers les cours d'eau. Elle est principalement induite par la pluie qui détache les particules de sols lors de l'impact des gouttes d'eau (Zachar, 2011) et qui, en s'accumulant à la surface du sol, va former une lame d'eau que l'on appelle ruissellement (Wischmeier & Smith, 1958). Lors d'évènements pluvieux et lorsque le sol n'est pas ou peu protégé contre l'impact des gouttes de pluie (absence de végétation...), les particules de sols sont « détachées » et transportées par le ruissellement. On appelle ce phénomène l'érosion hydrique, et, en fonction de certains paramètres (comme le degré de la pente ou le type de sol), le ruissellement de surface peut soit conduire au dépôt des particules, soit les transporter jusqu'au cours d'eau le plus proche (Hudson, 1993).

Les principaux paramètres qui affectent l'érosion sont :

- Le climat
- La topographie
- La lithologie
- La végétation
- Les activités humaines

L'impact de l'ensemble de ces paramètres est pris en compte dans l'équation universelle de perte en terre (*Universal Soil Loss Equation* – USLE) (Wishmeier & Smith, 1960) qui sera présentée à la fin de cette section.

Dans la Préfecture de Fukushima, l'érosion est un problème majeur car c'est le principal processus qui engendre le transfert des particules radioactives des zones contaminées vers des zones, principalement côtières, moins impactées par les retombées initiales (Yoshida and Kanda, 2012 - Figure I - 2-1) mais densément peuplées (ville de Minamisoma – Figure I - 1-16)

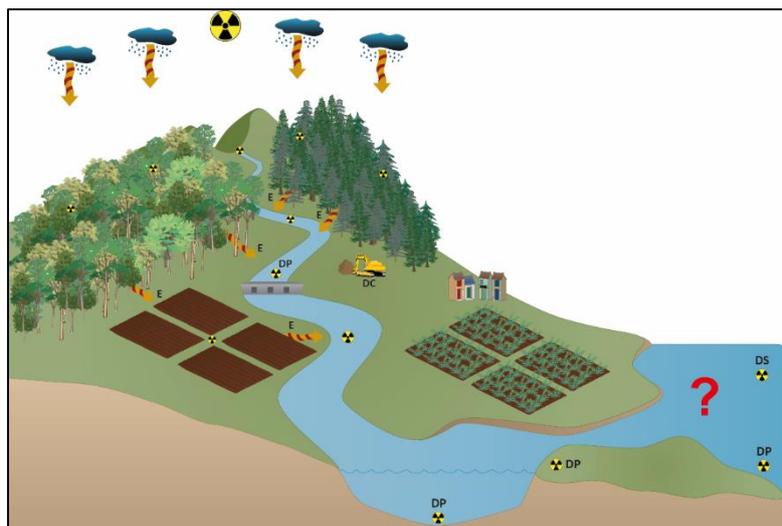
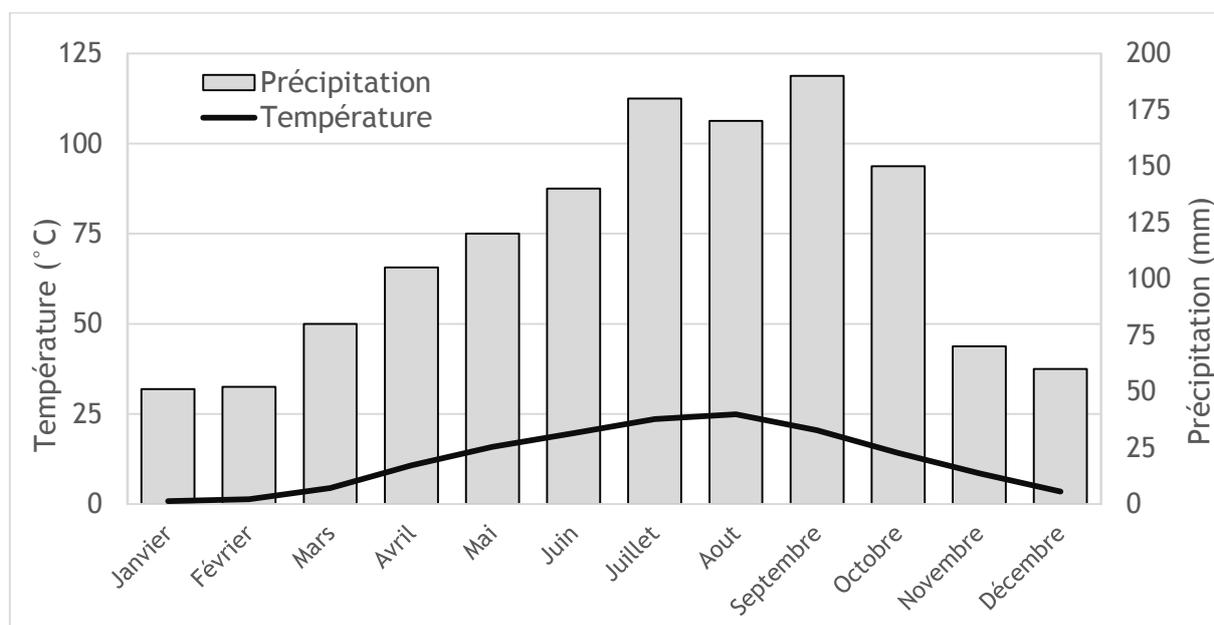


Figure I - 2-1 - Chemins potentiels de transfert du <sup>137</sup>Cs dans un bassin versant contaminé. Dc : décontamination, Dp : dépôt, Ds : désorption et E : érosion (Evrard et al., 2015).

### I - 2.1.1 PARAMETRES CLIMATIQUES

Le climat est l'un des paramètres qui affecte le plus l'érosion et notamment la pluie, car le détachement des particules survient lors de l'impact des gouttes de pluie (libération de l'énergie cinétique) sur le sol (Zachar, 2011). L'érosivité d'une pluie (son pouvoir érosif) dépend principalement de son intensité. Lors de l'impact des gouttes de pluie sur le sol, les particules sont projetées par l'effet « splash » (Ekern, 1950) et peuvent ainsi être transportées par le ruissellement (Zobeck, 1989). Le ruissellement intervient lorsque la vitesse à laquelle la pluie arrive sur le sol est plus rapide que la vitesse d'infiltration dans le sol (ruissellement hortonien, Horton, 1933), ou lorsque le sol est saturé d'eau (ruissellement par saturation, Dunne et al., 1975) lors de pluies de longue durée.

Enfin, la répartition saisonnière de la pluie est un paramètre à prendre en compte. Au Japon, et plus particulièrement dans la Préfecture de Fukushima, le climat est de type subtropical humide, caractérisé par de fortes pluies durant la saison des typhons (juin – octobre ; Figure I - 2-2). La pluviométrie est en moyenne de 1400 mm par an au Japon (Japanese Meteorological Agency, 2015), tandis qu'à Tchernobyl les précipitations annuelles n'étaient que de 400 mm (Tsuji et al., 2014).



**Figure I - 2-2 - Diagramme ombrothermique réalisé à partir des données des stations AMEDAS localisées dans un rayon de 100km autour de la centrale de Fukushima (1977 - 2013) disponibles sur le site de l'agence météorologique japonaise (Japanese Meteorological Agency, 2015).**

Les typhons et les crues printanières (parfois liées à la fonte des neiges) sont les principaux événements érosifs dans cette région du Japon (Tsuboi et al., 2015). Les premiers travaux menés suite à l'accident de Fukushima confirment que les particules contaminées sont principalement exportées lors des typhons (Evrard et al., 2013; Yamashiki et al., 2014). En effet le débit des rivières augmente considérablement lors des typhons (Figure I - 2-3).

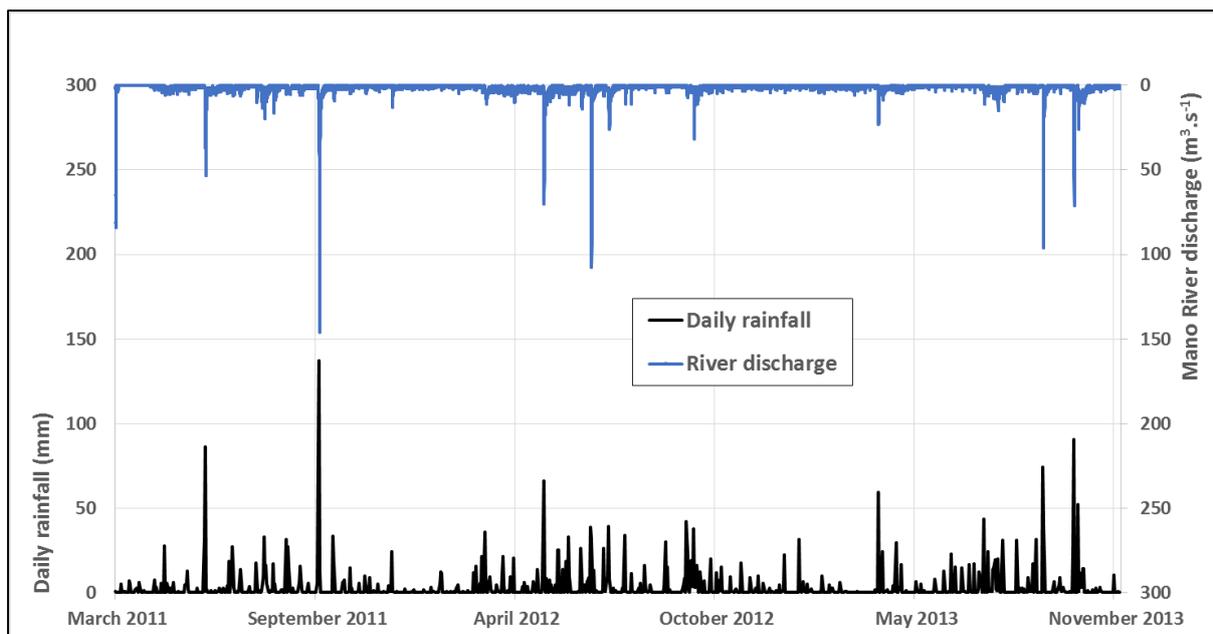


Figure I - 2-3 – Précipitation quotidienne dans la Préfecture de Fukushima (Japanese Meteorological Agency, 2015) et débit de la rivière Mano.

Depuis l'accident, de nombreux typhons ont impacté les alentours de la centrale de Fukushima Dai-Ichi (Tableau I - 2-1).

Tableau I - 2-1 – Typhons et tempêtes tropicales qui ont eu lieu dans la Préfecture de Fukushima après l'accident.

Nom	Date	Type	Echelle de Saffir-Simpson
Songda	30/05/2011	Typhon	5
Roke	10/09/2011	Typhon	4
Guchol	06/2012	Typhon	4
Jelawat	09-10/2012	Typhon	5
Man-Yi	16/09/2013	Typhon	Tropical storm
Pabuk	26/09/2013	Tempête tropicale sévère	2
Septat	01/10/2013	Tempête tropicale	Tropical storm
Danas	10/10/2013	Typhon	4
Wipha	16/10/2013	Typhon	4
Neoguri	11/07/2014	Typhon	3
Phanfone	09-10/2014	Typhon	4

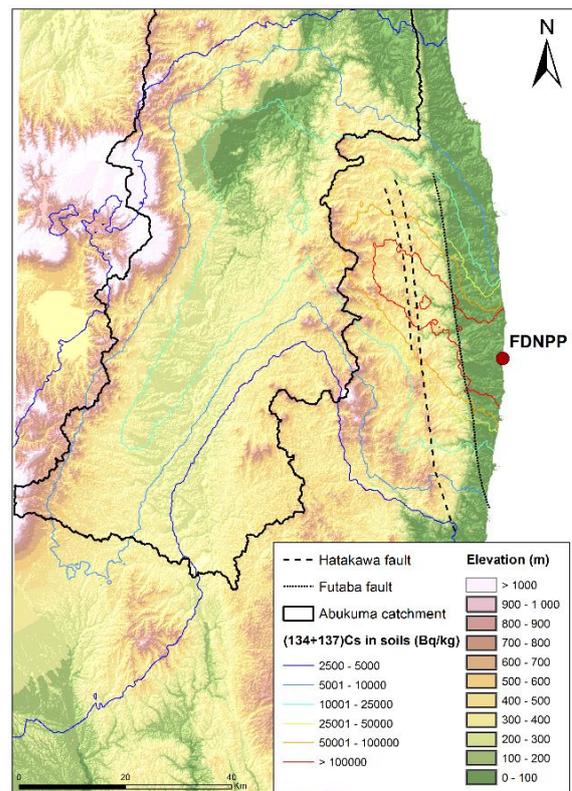
### I - 2.1.2 PARAMETRES TOPOGRAPHIQUES

La topographie des bassins versants constitue également un élément important qui contrôle l'érosion, notamment à travers l'altitude et la pente. Les paramètres climatiques comme les précipitations, la température ou encore la végétation, sont aussi directement liés à l'altitude.

La pente est un paramètre clé de l'érosion car elle contrôle l'énergie potentielle de l'écoulement de l'eau. Ainsi, plus la pente est importante, plus l'énergie est élevée et plus l'eau est à même d'éroder les terrains drainés. Ce phénomène se produit généralement pour des terrains dont la pente est supérieure à 5 % (Robert, 1996). De plus, l'impact des pentes est d'autant plus important quand elles sont longues, car le ruissellement peut y atteindre une vitesse d'écoulement beaucoup plus élevée.

Sur une pente faible, l'eau a tendance à s'infiltrer plus facilement dans le sol, favorisant un processus de sédimentation, de dépôt des sols précédemment érodés (Zingg, 1940; Wischmeier et al., 1958). Cette « capacité d'infiltration » dépend des paramètres lithologiques du bassin versant. Enfin, dans certains cas où la pente est suffisamment longue, la formation de ravines ou de rigoles concentrant le ruissellement est observée (Valentin et al., 2005).

La partie contaminée de la Préfecture de Fukushima est en partie occupée par le massif de l'Abukuma (Figure I - 2-4) qui est caractérisé par une topographie escarpée notamment au niveau des failles de Futaba et Hatakawa (Regalla et al., 2013; Kinouchi et al., 2015; Minoura et al., 2014). C'est cette région montagneuse qui a été la plus impactée par les retombées de l'accident.



**Figure I - 2-4 - Relief de la zone contaminée par l'accident de la centrale de Fukushima Dai-Ichi (Geospatial Information Authority of Japan, 2015).**

### I - 2.1.3 PARAMETRES LITHOLOGIQUES

La lithologie des bassins versants, notamment les types des sols et les propriétés physico-chimiques de la roche mère, impacte directement la capacité d'infiltration (la capacité d'un sol à laisser l'eau s'infiltrer). En effet, les propriétés physiques de la roche mère (texture et structure) contrôlent sa perméabilité (Garrels et Mackenzie, 1971, Meybeck, 1986; Meybeck, 1987). Un sol faiblement poreux ne laissera pas l'eau s'infiltrer et encouragera la formation du ruissellement. Parfois, le sol se désagrège sous l'action de la pluie et forme une croûte en surface. Cette croûte de battance est directement liée au type du sol, mais aussi à l'intensité de la pluie et à la végétation (Romkens et al., 1995) et est surtout observée en milieu agricole. Les propriétés chimiques des roches ont, quant à elles, un rôle sur la nature du matériel exporté, nature qui influence des paramètres tels que la densité.

#### I - 2.1.3.1 Géologie autour de la centrale de Fukushima Dai-Ichi

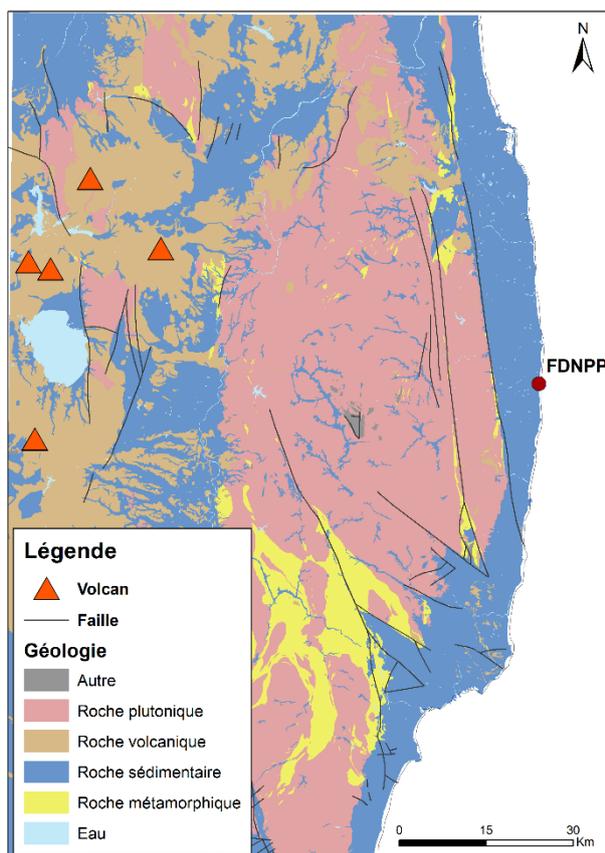


Figure I - 2-5 - Division tectonique des montagnes de l'Abukuma (Geological Survey of Japan, 2012).

Dans la région de Fukushima, les sols se sont développés sur les dépôts alluviaux des montagnes de l'Abukuma (Nakao et al., 2014).

On retrouve principalement des roches plutoniques (granite et granodiorite du Crétacé) ainsi que des sédiments du Cénozoïque (Figure I - 2-5 - Tsutsumi et al., 2010; Wakita, 2012). La présence de granite pourrait justifier la présence d'illite (mica) et de smectite dans les sols de la Préfecture. Ces minéraux sont connus pour leur forte affinité avec le  $^{137}\text{Cs}$  (Nakao et al., 2012).

Plusieurs volcans sont également présents dans la Préfecture de Fukushima (Figure I - 2-5) et les nombreuses éruptions ont conduit à la formation de dépôts de cendres qui ont notamment impacté la pédologie de cette zone (Yamamoto, 2013).

## I - 2.1.3.2 Pédologie de la Préfecture de Fukushima

Les sols de la Préfecture de Fukushima sont principalement des Cambisols (Figure I - 2-6), communément appelés sols bruns de forêt (Brown Forest Soil) par la communauté scientifique japonaise (Imaya et al., 2002; Hashimoto et al., 2013; Matsuda et al., 2014). On note également la présence d'Andosols, développés à partir des dépôts de cendres volcaniques (Saigusa et al., 1978; Imaya et al., 2002; Yamamoto, 2013) et dont la majeure partie se trouve dans la partie montagneuse (Figure I - 2-6). Finalement, les sols alluviaux (Fluvisol et Gleysol) sont en partie issus de sédiments érodés provenant des montagnes de l'Abukuma (Kyuma & Kawaguchi, 1975; Nakao et al., 2014). On les retrouve plutôt dans la partie côtière et sur les plateaux de la Préfecture.

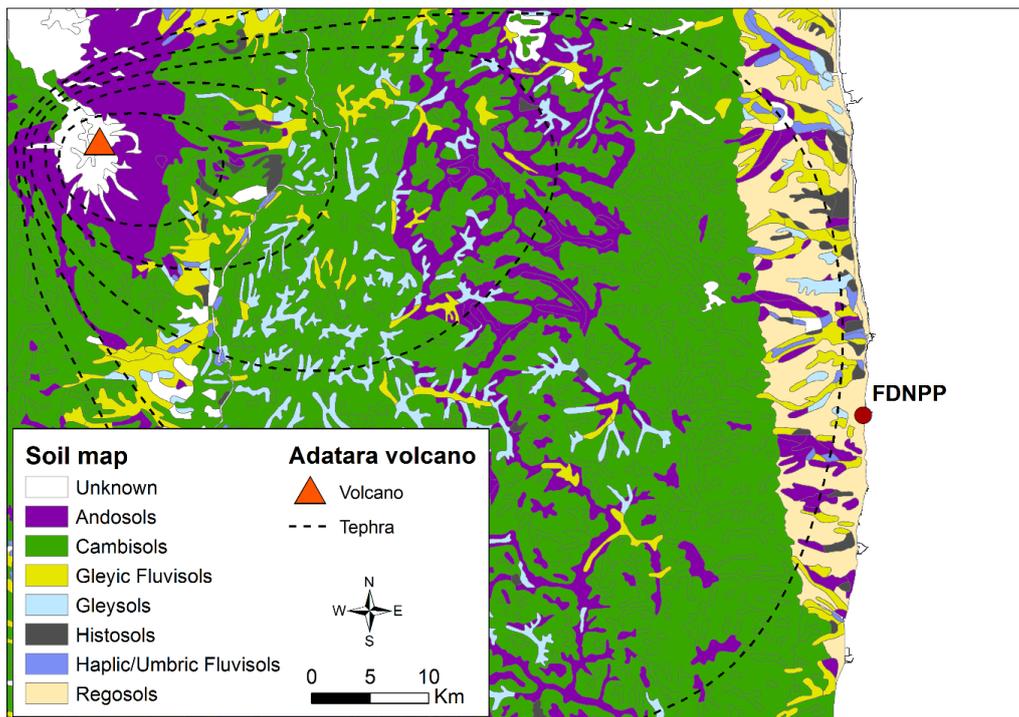


Figure I - 2-6 - Carte des sols aux alentours de la centrale de Fukushima Dai-Ichi ([Economic Planning Agency, 1972](#)) et localisation des téphras (principalement des cendres volcaniques) issus du volcan Adataro ([Yamamoto, 2013](#)).

Les Andosols sont généralement connus pour présenter un faible pourcentage de fixation du  $^{137}\text{Cs}$  ([Kamei-Ishikawa et al., 2008](#); [Uematsu et al., 2015](#)) en partie à cause de la présence de minéraux amorphes (ne présentant pas de forme cristalline définie comme les allophanes ou les imogolites) ([NIAES, 1996](#); [Vandebroek et al., 2012](#)) qui sont connus pour avoir un faible taux de FES ([Uematsu et al., 2015](#)). Cependant, des études récentes montrent que les Andosols originels, formés à partir des cendres volcaniques, ont en partie été modifiés par les pratiques agricoles et pourraient ne pas avoir conservé leurs propriétés originelles ([Takahashi et al., 2014](#)). C'est également le cas pour les sols qui composent les rizières, où l'apport de minéraux lors de l'irrigation a en partie modifié leurs propriétés ([Nemoto et al., 2013](#); [Yamasaki et al., 2013](#)). La présence de phyllosilicates, qui présentent de fortes capacités de fixation du césium, comme minéraux majeurs a ainsi été montrée dans des rizières de la région ([Sano et al., 2010](#); [Nakao et al., 2014](#)).

#### I - 2.1.4 IMPACT DE LA VEGETATION

La végétation protège la surface du sol de l'érosion en réduisant l'impact des gouttes de pluie et en limitant le ruissellement (Le Bissonais et al., 2005; Evrard et al., 2008). Dans le sol, les racines jouent aussi un rôle important pour maintenir en place les particules et empêcher leur arrachement (Patin et al., 2012). Sous forêt, la litière des arbres réduit l'impact des gouttes de pluies de la même manière que l'herbe (Kim et al., 2014) et la matière organique qui se trouve dans le sol après la décomposition des végétaux permet de renforcer celui-ci face à l'érosion (Le Bissonais et al., 1996).

Au Japon, comme dans la Préfecture de Fukushima, la forêt est omniprésente, occupant respectivement 67% et 49% de la surface (Onda et al., 2010; Koizumi et al., 2014). Au lendemain de la seconde guerre mondiale et pour répondre à la demande croissante en bois, les Japonais ont planté de nombreuses forêts dans l'ensemble du pays et notamment sur les pentes infertiles (Onda et al., 2010; Teramage et al., 2014). Cependant, avec l'émergence de la Chine qui a eu pour conséquence une chute des prix du bois, les Japonais ont progressivement abandonné l'exploitation de leurs nombreuses forêts qui revenait plus chère que l'importation du bois chinois.

Aujourd'hui, les forêts de la Préfecture de Fukushima sont donc très denses (env. 2500 arbres/ha – Teramage et al., 2014). Elles sont généralement composées de conifères (Figure I - 2-7 ; Yoshihara et al., 2014) réduisant considérablement la décomposition de la litière et limitant donc l'érosion (Nagao et al., 2013; Kitamura et al., 2014; Yoshimura et al., 2014). Cette érosion affecte donc majoritairement les zones agricoles, notamment les rizières, situées le long des rivières.

On estime que 66% de la contamination issue de l'accident s'est déposée sur les forêts (Hashimoto et al., 2012). Cependant, dans les forêts caduques, la contamination s'est déposée sur les sols et les branches, car la majorité des arbres n'avaient pas de feuilles lors des retombées qui se sont produites début mars 2011 (Kinouchi et al., 2015). Pour les forêts de conifères, Kato et al. (2012) estiment que plus de 60% de la contamination a été interceptée par la canopée.

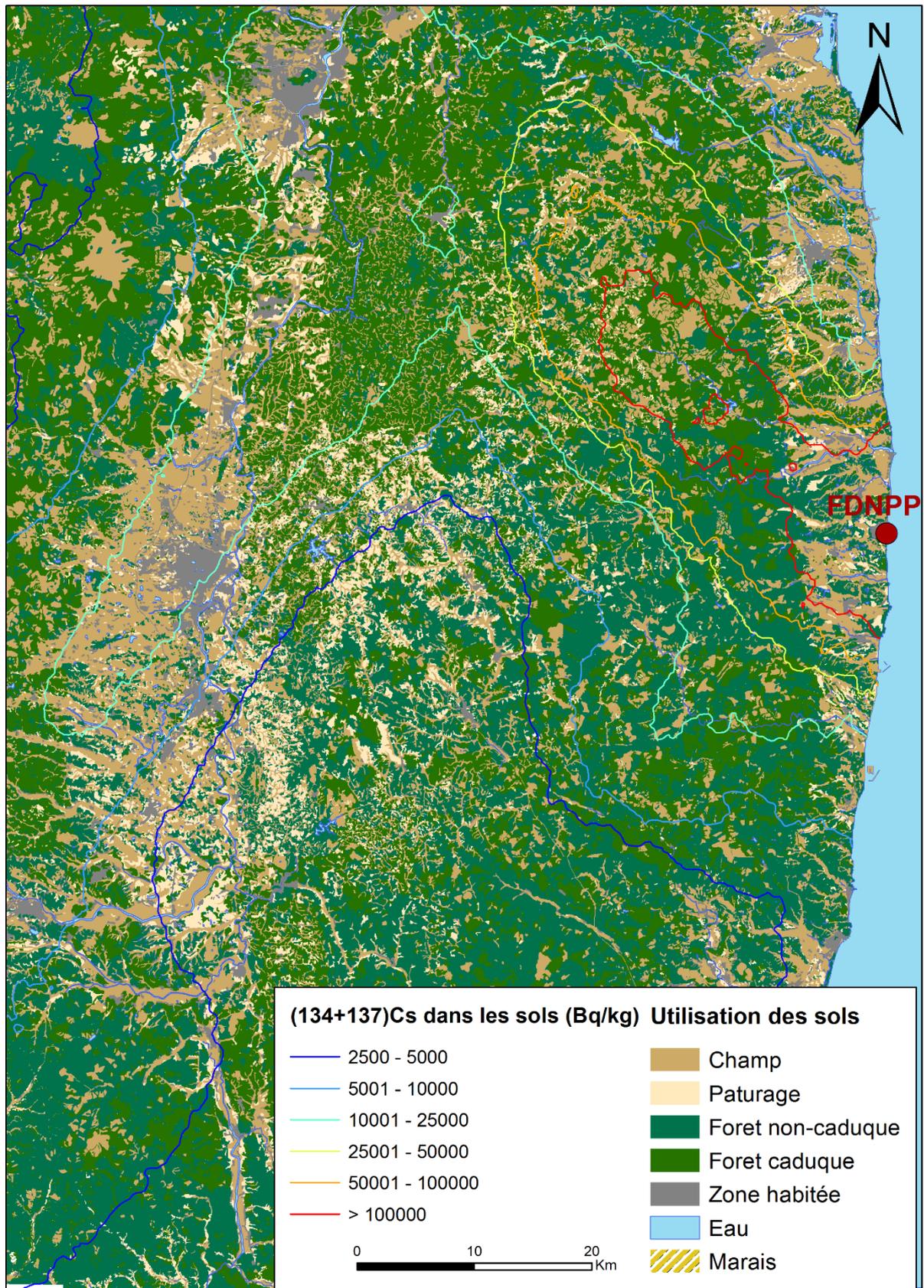


Figure I - 2-7 - Utilisation des sols dans les bassins versants côtiers de la Préfecture de Fukushima (Land conservation research, 2005).

### I - 2.1.5 IMPACT ANTHROPIQUE

Le contexte de développement actuel fait que l'Homme a tendance à modifier son environnement à travers ses activités telles que l'agriculture. Ainsi, l'occupation des sols et les pratiques agricoles contrôlent directement les états de surface des sols et le couvert végétal qui déterminent la sensibilité des sols à l'érosion. Cependant, ce n'est pas sans conséquence pour les rivières qui se retrouvent chargées de sédiments (Abal et al., 2005; Bunn et al., 2007). Ainsi, l'augmentation de l'érosion liée à la déforestation est l'une des causes les plus importantes des problèmes de qualité de l'eau (Ensign and Mallin, 2001; Litschert and MacDonald, 2009).

L'agriculture occupe une place importante dans la Préfecture de Fukushima et 70% de la surface sous culture est utilisée pour le riz (Wakahara et al., 2013). Les rizières sont dites « irriguées » et régulièrement remplies avec 10 cm d'eau (Figure I - 2-8 - Yoshikawa et al., 2014). Le riz est planté en mai (Endo et al., 2013) après avoir mélangé l'eau contenue dans la rizière avec la couche supérieure du sol à l'aide d'un tracteur. On appelle cette technique le « puddling » (Wakahara et al., 2013).



Figure I - 2-8 - Rizière en eau avec des pousses de riz dans la Préfecture de Fukushima - Source : H. Lepage.

Au moment de l'accident de la centrale de Fukushima, et lors des événements de dépôt de radionucléides, les rizières étaient principalement recouvertes de neige et dépourvues de couvert végétal (Takahashi et al., 2014). Après l'accident, certaines rizières ont été abandonnées et la végétation s'y est rapidement développée (Mizoguchi et al., 2013), protégeant ces sols contaminés de l'érosion. Cependant, comme les rizières sont situées le long de cours d'eau, les premières études réalisées après l'accident montrent qu'une part importante de la contamination provient de ces rizières car elles sont directement affectées par les crues des cours d'eau (Tanaka et al., 2013). On note également la présence de barrages le long des rivières impactées par l'accident.

### I - 2.1.6 EQUATION UNIVERSELLE DE PERTE EN TERRE (USLE)

L'ensemble des paramètres présentés dans cette section peuvent être associés en présentant l'équation universelle de perte en terre (USLE – Eq. 2), régulièrement utilisée dans les études sur l'érosion pour calculer la perte annuelle en sol A (moyenne sur le long terme) :

$$A = R.K.L.S.C.P \text{ exprimée en tonnes/hectare} \quad (\text{Eq. 2})$$

Avec R le facteur d'érosivité de la pluie et K le facteur d'érodabilité du sol, déterminé à l'aide de placettes dites de Wischmeier (Wishmeier & Smith, 1960; Figure I - 2-9). L correspond au facteur lié à la longueur de la pente et S à celui lié à son inclinaison. Enfin, C est le facteur associé à l'utilisation du sol (ex. culture, végétation) et P aux pratiques de conservation qui pourraient être appliquées sur ce sol (Wishmeier & Smith, 1960; Wishmeier et al., 1971; Hudson, 1993).



Figure I - 2-9 - Exemple de placettes de Wischmeier visant à étudier l'impact de différents types de couverts sur l'érosion des sols dans la Préfecture de Fukushima (Yoshimura et al., 2014).

Yoshimura et al. (2015a) ont appliqué cette équation dans la Préfecture de Fukushima, en se basant sur des placettes représentatives de 7 occupations du sol différentes (forêt, champs cultivés et non cultivés, pâturages). Ces résultats montrent que l'érosion est plus marquée dans les champs ( $\approx 7,5 \text{ t ha}^{-1} \text{ an}^{-1}$ ) tandis que l'export sous forêt et dans les pâturages est très faible ( $< 0,5 \text{ t ha}^{-1} \text{ an}^{-1}$ ).

Chartin et al. (2013) ont calculé un indice de connectivité sédimentaire entre les versants et les rivières (Borselli et al., 2008) dans les bassins versants contaminés pour mettre en évidence les zones les plus connectées. Cet indice prend en compte différents paramètres comme le couvert végétal mais aussi l'intensité de la pluie. Les résultats confirment que les rizières sont les zones les plus connectées aux rivières.

## I - 2.2 TRANSPORT DES PARTICULES ERODEES PAR LES COURS D'EAU

### I - 2.2.1 GENERALITES

Une fois érodées et lorsqu'il n'y a pas dépôt, les particules de sols sont transportées par le ruissellement et atteignent les cours d'eau avoisinants où elles pourront être transportées jusqu'à l'exutoire. Cet apport de sédiments aux cours d'eau peut être problématique car ils participent à la dégradation du cours d'eau, en augmentant sa turbidité, ce qui a un impact négatif sur les populations piscicoles, en transportant des contaminants ou encore en gênant la gestion des barrages (Le Bissonnais et al., 2005; Walling, 2005)

Le transport des particules dépend de plusieurs paramètres, comme la vitesse d'écoulement de l'eau ou la taille des particules (Malam Issa et al., 2006). Les particules fines, qui sont érodées préférentiellement (Govers, 1985), restent la plupart du temps en suspension dans la colonne d'eau et sont transportées sur de longues distances, tandis que les particules plus grossières ont tendance à racler le fond du cours d'eau (charriage - Figure I - 2-10) et à se déposer dans des zones de stockage où la vitesse d'écoulement n'est plus suffisante pour les transporter (ex. amont d'un barrage) (Malam Issa et al., 2006). L'action de ces deux paramètres sur une particule dans un cours d'eau est décrite dans le diagramme de Hjulström (Figure I - 2-11).

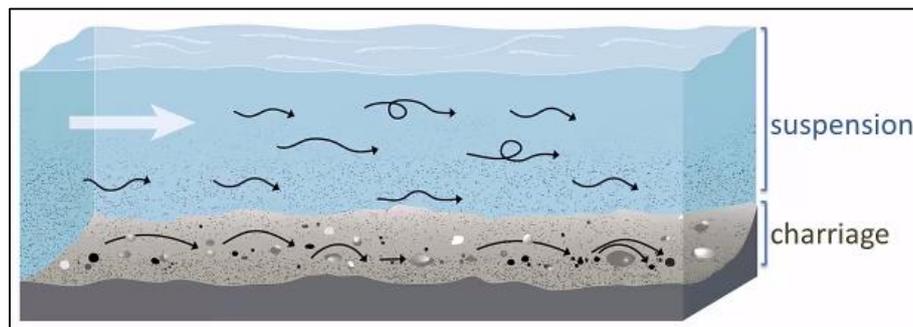


Figure I - 2-10 - Principaux processus de transport des particules dans les cours d'eau (Des rivières et des Hommes, 2015).

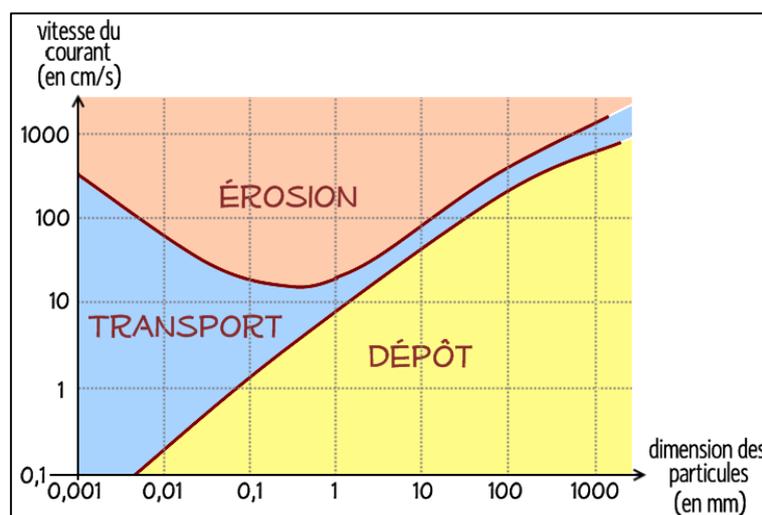


Figure I - 2-11 - Diagramme de Hjulström (Wikipedia, 2015f).

Au-delà de la taille des particules, on classe, de façon opérationnelle, les éléments transportés en trois groupes : particulaire, colloïdale ou dissous. On considère les particules de taille supérieure à  $2\mu\text{m}$  comme la fraction particulaire et les plus fines ( $<0,2\mu\text{m}$ ) sont définies comme « matière dissoute ». La fraction colloïdale se situe entre  $0,2$  et  $2\mu\text{m}$ .

Les phénomènes qui contrôlent le transport des particules dans les cours d'eau sont aujourd'hui mieux connus. De nombreuses équations ont été développées afin de décrire au mieux le déplacement des particules dans les fleuves et les rivières (Meyer-Peter & Müller, 1948; Van Rijn, 1984abc; Wong & Parker, 2006).

### I - 2.2.2 LA DISPERSION DE LA CONTAMINATION A FUKUSHIMA

Le comportement des radionucléides, lors du transport en rivière, diffère selon qu'ils soient sous forme dissoute ou particulaire (Ueda et al., 2013; Yoshimura et al., 2015b). Généralement, le coefficient de distribution  $K_d$  entre les fractions dissoute et particulaire est calculé (Ueda et al., 2013). Dans la Préfecture de Fukushima, de nombreuses études ont étudié le coefficient relatif au  $^{137}\text{Cs}$  et les résultats montrent que la fraction particulaire est très généralement majoritaire (Figure I - 2-12). C'est donc cette fraction qui domine le transfert de la contamination dans les rivières, notamment lors des typhons. À l'étiage, la fraction dissoute est majoritaire mais la quantité de contamination transportée est très faible au regard de celle qui l'est par la fraction particulaire lors d'événements érosifs (Kinouchi et al., 2015).

Author(s)	Catchment(s)	Sampling Period	Radionuclide(s)	Particulate Fraction of transported $^{137}\text{Cs}$ (%)	Average $K(d)$
Nagao et al. (2013)	Same / Natsui	July 2011 - Dec. 2011	$^{134}\text{Cs}$ & $^{137}\text{Cs}$	99 Flood 33 Event	$2.5 \times 10^5$
Nagao et al. (2014)	Niida	May 2011 - Nov. 2012	$^{134}\text{Cs}$ & $^{137}\text{Cs}$	47 (Before Sept. 2011) 84 (After Sept. 2011)	N/A
Sakaguchi et al. (2015)	Abukuma	June 2011 - Dec. 2012	$^{137}\text{Cs}$	80	$8.8 \times 10^5$
Shinomiya et al. (2014)	Experimental Catchment (Abukuma)	June 2012	$^{134}\text{Cs}$ , $^{137}\text{Cs}$	92-97% Flood 12-96% Event	N/A
Tsuji et al. (2014)	Abukuma, Ota	Sept. 2012 - May 2013	$^{134}\text{Cs}$ & $^{137}\text{Cs}$	64	N/A
Ueda et al. (2013)	Niida	July 2011 - Nov. 2011	$^{134}\text{Cs}$ & $^{137}\text{Cs}$	>90 Flood 40 Event	$3.5 \times 10^5$
Yamashiki et al. (2014)	Abukuma	June 2011 - May 2012	$^{134}\text{Cs}$ & $^{137}\text{Cs}$	82-93	N/A
Yoshikawa et al. (2014)	Abukuma	April 2012 - Sept. 2012	$^{137}\text{Cs}$	60-83 Base 69-95 Event	$1.2 \times 10^5$ Base $10.6 \times 10^5$ Event
Yoshimura et al. (2015b)	Abukuma, Mano, Samje, Fujiwara, Niida, Ota, Odaka, Asami, Ukedo,	Dec. 2012	$^{134}\text{Cs}$ & $^{137}\text{Cs}$	58-100*	$3.6 \times 10^5$

\*excluding an estuary site.

Figure I - 2-12 – Pourcentage du césium-137 dissous et particulaire dans les bassins versants impactés par l'accident de la centrale FDNPP (Evrard et al., 2015).

Fan et al. (2014a) ont montré que ce coefficient  $K_d$  était lié à la taille des particules et à la minéralogie des argiles transportées. Comme le  $^{137}\text{Cs}$  présente une affinité non négligeable avec les argiles et les particules minérales fines, il est important de connaître la relation qui existe entre les particules de césium, et la taille des particules transportées.

Dans la Préfecture de Fukushima, de nombreuses études ont confirmé que le  $^{137}\text{Cs}$  avait une forte affinité avec les particules fines (notamment les argiles) dans les cours d'eau (Fan et al., 2014a; Tanaka et al., 2014; Sakaguchi et al., 2015; Tanaka et al., 2015). L'adsorption de ce radionucléide sur les sédiments est directement liée à leurs propriétés physico-chimiques, comme la capacité d'échange cationique ou la teneur en matière organique (Fan et al., 2014a).

Néanmoins, les quantités de césium transportées lors d'évènements érosifs depuis l'accident ne totalisent que quelques pourcents des inventaires totaux correspondant aux dépôts initiaux de contamination dans les bassins versants. Ainsi, que ce soit par le biais de mesures sur le terrain (Nagao et al., 2013 ; Shinomiya et al., 2014 ; Ueda et al., 2013 ; Yamashiki et al., 2014) ou de travaux de modélisation (Iwasaki et al., 2015; Kinouchi et al., 2015; Kitamura et al., 2014; Kurikami et al., 2014; Mori et al., 2014; Mouri et al., 2014; Pratama et al., 2015; Yamada et al., 2015; Yamaguchi et al., 2014), les résultats montrent que moins de 5% de l'inventaire initial en  $^{137}\text{Cs}$  des différents bassins versants ont été exportés par les cours d'eau entre l'accident et décembre 2013. Ces résultats montrent que la contamination initiale des sols mettra un certain nombre d'années avant d'être dispersée par les cours d'eau.

Cependant, les zones côtières de la région, plus faiblement impactées par les retombées radioactives initiales (Figure I - 1-16), sont fortement peuplées. Comme elles sont traversées par des rivières qui transportent des particules qui peuvent présenter des activités très élevées en  $^{137}\text{Cs}$ , il est impératif de prendre des mesures pour comprendre cette dispersion afin d'en réduire les effets. Malheureusement, la plupart des bassins versants côtiers ne sont pas instrumentés et le suivi de leur débit et de leur charge en sédiments n'a pas été assuré depuis l'accident. Afin de mieux comprendre cette dispersion et ces transferts, l'une des solutions qui peut être envisagée dans ce type de bassins non-jaugés est d'identifier des traceurs qui permettent d'identifier et de quantifier les sources des particules qui transitent dans les rivières drainant ces bassins versants.

### I - 3 TRAÇAGE DES SEDIMENTS

Depuis les années 1970, de nombreuses méthodes ont été développées afin de déterminer la source des sédiments transportés dans les rivières dans le but d'étudier leurs dynamiques de transport (Walling, 2005; Walling, 2013). Cette technique est communément appelée « fingerprinting ».

L'intérêt croissant du fingerprinting s'explique par le contexte actuel, où l'on cherche à mieux comprendre la dynamique de la matière transportée dans les rivières, et à quantifier les bilans sédimentaires ou encore l'impact des sédiments sur les habitats aquatiques (Walling, 2013). En comprenant mieux l'érosion, et notamment en connaissant les sources des particules transportées, les gestionnaires locaux sont à même de mieux protéger les rivières, mais aussi les lacs, les réservoirs ou les embouchures de fleuves.

Cette technique consiste à déterminer, dans un premier temps, les sources potentielles de sédiments, puis à identifier une ou plusieurs propriétés physico-chimiques permettant la discrimination de ces sources. Ces propriétés seront également mesurées dans les matières en suspension ou dans les sédiments prélevés dans les rivières. Enfin, l'utilisation de modèles de traçage statistiques permet de déterminer la contribution de chaque source dans les sédiments (Figure I - 3-1).

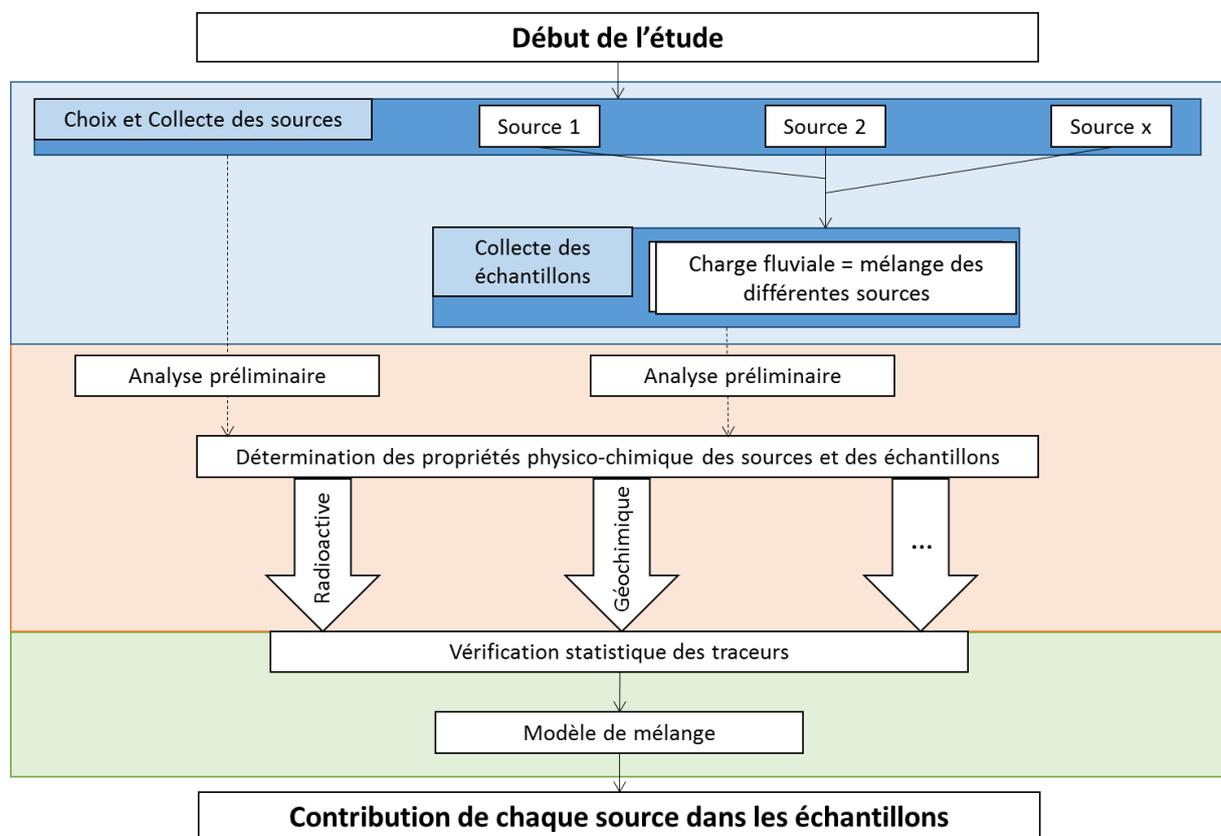


Figure I - 3-1 – Procédure couramment utilisée pour déterminer la contribution de chacune des sources dans les sédiments de rivière (adapté et traduit de Haddadchi et al. (2013)).

---

### I - 3.1 LES SOURCES

Par « source », on qualifie le ou les sols d'origine du sédiment. Le développement des méthodes de fingerprinting au cours des dernières années montre la variété des sources potentielles de sédiments dont le choix est conditionné par la question qui est posée (Haddadchi et al., 2013). En effet, un même sol peut être caractérisé par plusieurs sources, par exemple, son utilisation (champ, forêt), sa pédologie ou encore sa géologie (Collins & Walling, 2002; Haddadchi et al., 2013; Koiter et al., 2013; Walling et al., 2013). Ainsi, de nombreuses études utilisent comme sources les différentes utilisations du sols (Collins, 1997; Owens, 2000; Walling et al., 2008), quand d'autres utilisent la géologie des bassins versants (Walling and Woodward, 1995; Evrard et al., 2011; Lacey & Olley, 2014). Haddadchi et al. (2013) ont compilé pas moins de 25 études de fingerprinting (de 1993 à 2012), illustrant cette diversité dans le choix des sources mais aussi des propriétés physico-chimiques choisies pour tracer.

---

### I - 3.2 LES SEDIMENTS

La majorité des études de traçage se concentrent sur les particules fines transportées par les rivières car cette fraction de particules, typiquement inférieure à 2 mm, est déplacée sur de longues distances et leurs sources sont généralement plus difficiles à déterminer que celles des particules grossières (Walling, 2013). C'est aussi une fraction qui sert de vecteur de transport pour de nombreux contaminants (métaux lourds, pesticides...).

Pour collecter les sédiments, différentes méthodes existent en fonction de la matrice d'intérêt. Ainsi, dans la majorité des cas, ce sont les matières en suspension (MES) qui sont collectées, car elles intègrent le mieux les événements érosifs (Walling, 2013). Dans d'autre cas, notamment lorsqu'il est compliqué d'équiper une rivière d'instruments permettant une mesure continue des débits solides, ou lorsque l'on souhaite prélever les sources et les sédiments lors de la même campagne de prélèvement, d'autres matrices sont utilisées comme les laisses de crues (Haddadchi et al., 2013; Olley et al., 2013). Il s'agit des sédiments transportés par les crues qui se déposent sur les berges lorsque le niveau d'eau diminue. Ils caractérisent donc le dernier événement ayant engendré une crue.

Généralement, le choix de la matrice de sédiment est conditionné par la quantité de matériel nécessaire pour réaliser les analyses physico-chimiques envisagées.

---

### I - 3.3 LES PROPRIETES PHYSICO-CHIMIQUES

Pour déterminer l'origine d'un sédiment, il est nécessaire de comparer une ou plusieurs de ses propriétés avec celle de ses sources potentielles (Evrard et al., 2011; Haddadchi et al., 2013). Ces propriétés peuvent être géochimiques (ex : teneur en élément trace), biogéochimiques (ex : teneur en matière organique), physiques (ex : texture) ou encore radioactives (ex : activité en  $^{137}\text{Cs}$ ) (Figure I - 3-2). D'après Walling (2013), le nombre minimum de propriétés nécessaires pour discriminer des sources est égal au nombre de sources moins 1. Le choix de ces propriétés dépend du contexte et des caractéristiques du bassin versant.

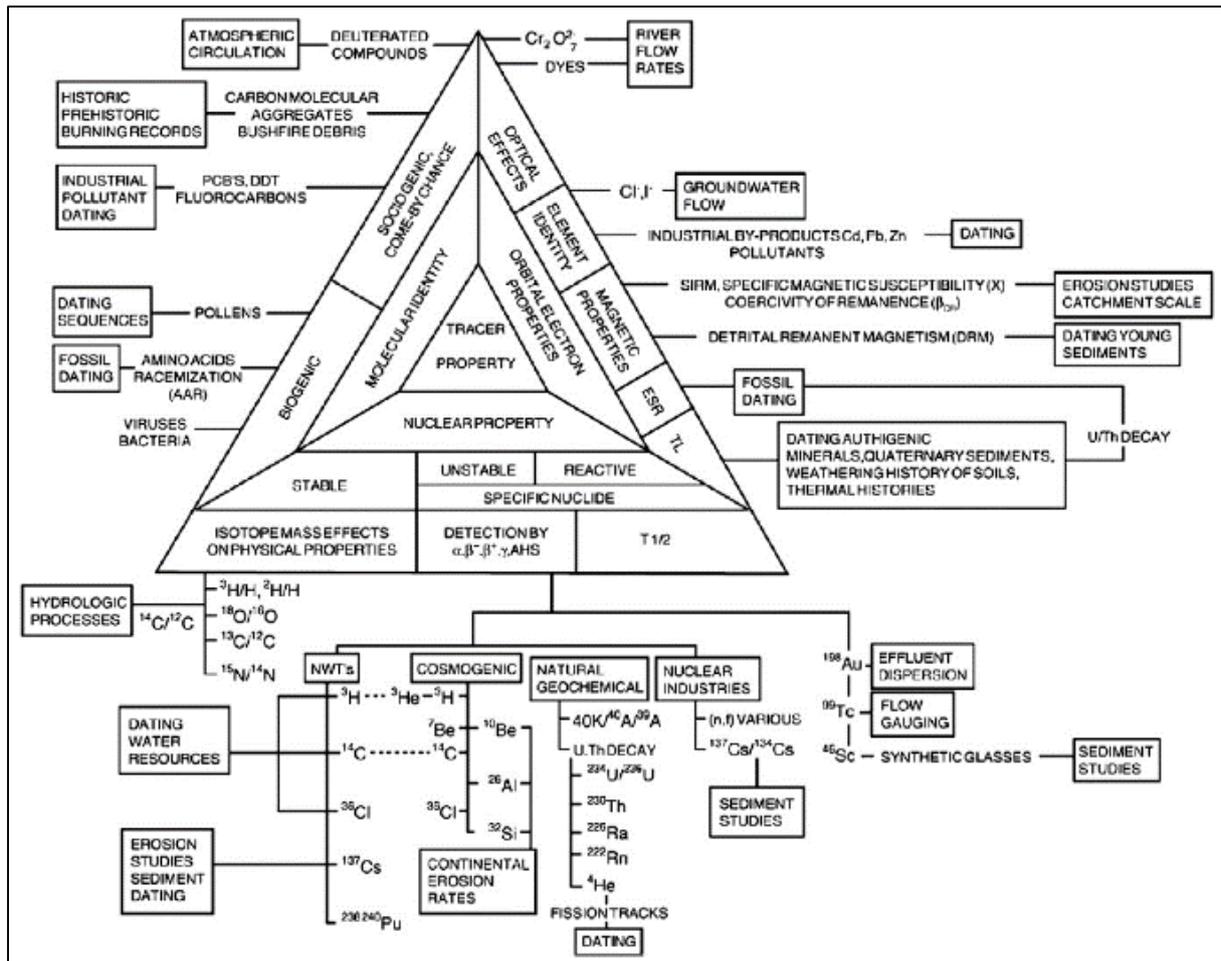


Figure I - 3-2 - Propriétés fondamentales pouvant être utilisées afin de tracer la source des sédiments (Foster et Lees, 2000; reproduit dans Koiter et al., 2013).

Cependant, la ou les propriétés choisies doivent impérativement être conservatives, c'est-à-dire qu'elles ne doivent pas être modifiées lors de la mise en solution du sol et de son transfert dans la rivière. Par exemple, les particules qui composent un sédiment sont généralement plus fines et plus organiques que leurs sources (Koiter et al., 2013), il est donc compliqué d'utiliser la granulométrie ou la teneur en matière organique comme traceurs. Des tests de Motha et al. (2002) ont montré qu'en dehors de ces deux paramètres, les autres propriétés testées étaient conservatives et ne changeaient pas lors de l'érosion du sol.

Cependant, certaines études proposent différentes solutions pour corriger les effets de la granulométrie ou de la matière organique, comme l'utilisation de facteurs de corrections, ou le tamisage des sources et des sédiments (Walling, 2013). Des tests récents ont montré que l'utilisation de telles corrections appliquées de manière universelle à tous les traceurs pouvait introduire plus d'erreurs qu'elles n'en corrigeaient (Smith and Blake, 2014).

### I - 3.4 LES MODELES

Dans les études de traçage géochimique, la contribution relative de chaque source est généralement estimée par un modèle de mélange multivarié. Cependant, avant l'application du modèle, il est nécessaire de déterminer, parmi les propriétés physico-chimiques mesurées, celles qui sont les plus discriminantes (Collins et al., 1997; Walling, 2005 ).

Pour y parvenir, on réalise généralement deux tests statistiques :

- Test de Kruskal-Wallis : ce test permet d'écarter les propriétés qui ne sont pas discriminantes entre les sources. C'est un test non-paramétrique équivalent à l'analyse de la variance où l'hypothèse nulle est qu'il n'existe pas de différence entre les différentes sources pour chaque propriété (Collins and Walling, 2002). Lorsque cette hypothèse nulle est rejetée (en fonction d'un seuil de confiance défini préalablement), la propriété est conservée car elle est considérée comme discriminante.
- Test de Wilk's Lambda : ce test, qui constitue une analyse factorielle discriminante, révèle alors parmi les propriétés restantes, la combinaison de celles qui seront les plus discriminantes.

Les propriétés les plus discriminantes peuvent être introduites dans un modèle de mélange pour déterminer la proportion de chaque source qui constituent l'échantillon de sédiment (Haddachi et al., 2013). Pour y parvenir, on impose généralement deux contraintes : chaque contribution de source doit être comprise entre 0% et 100% et la somme des contributions doit être égale à 100%. Il faut également vérifier la conservativité des propriétés choisies.

Les modèles sont généralement basés sur les distributions des propriétés dans les sources (Tableau I - 3-1 - Haddachi et al., 2014).

Il est alors possible de comparer la provenance des sédiments et d'analyser la variation de cette provenance spatiale (par exemple, en comparant l'amont et l'aval) et temporelle (par exemple l'évolution des sources lors d'une crue).

Appliquer une telle approche dans les bassins versants contaminés par l'accident nucléaire permettrait d'apporter des informations utiles pour la gestion des bassins versants et serait donc importante pour les populations implantées dans des zones préalablement épargnées par les retombées radioactives initiales, mais traversées par les rivières drainant la partie la plus contaminée du panache.

Tableau I - 3-1 – Formule de quatre modèles récents utilisés dans la littérature.

Modele	Formule	Description
<b>Modified Hughes mixing model</b> Hughes et al. (2009)	$E = \sum_{i=1}^n \left( \left( \sum_{l=1}^{1000} \sum_{j=1}^m \left( \frac{X_j S_{i,j,k,l}}{1000} - C_i \right) \right) / C_i \right)^2$	$C_i$ : concentration de la propriété (i) k : numéro de l'échantillon l : nombre d'itérations S : concentration de l'échantillon $X_j$ : contribution de la source (j)
<b>Collins mixing model</b> Collins et al. (2010)	$E = \sum_{i=1}^n \left\{ \left[ C_i - \left( \sum_{j=1}^m X_j S_{ij} SV_{ji} \right) \right] / C_i \right\}^2 W_i$	$C_i$ : concentration de la propriété (i) $S_{ij}$ : concentration médiane de la propriété (i) dans la source (j) $X_j$ : pourcentage optimisé de la contribution de la source (j) W et SV : propriétés pondérées supplémentaires
<b>Distribution mixing model</b> Lacey & Olley (2014)	$E = \sum_{i=1}^n \left( DC_i - \left( \sum_{j=1}^m DS_{ij} DX_j \right) / DC_i \right)^2$	$DC_i$ : distribution normale des sédiments dans le mélange $DS_{ij}$ : distribution du test de Student pour la propriété (i) dans la source (j) $DX_j$ : distribution normale de la contribution de la source (j)
<b>Landwehr model</b> Gellis et al. (2009); Devereux et al. (2010)	$E = \left( \frac{1}{n} \right) \sum_{i=1}^n \frac{ C_i - \sum_{j=1}^m X_j S_{ij} }{\sqrt{\sum_{j=1}^m X_j^2 \left( \frac{VAR_{ij}}{k_j} \right)}}$	$C_i$ : concentration de la propriété (i) $K_j$ : nombre d'échantillon dans la source (j) n : nombre de propriétés m : nombre de sources $S_{ij}$ : moyenne des propriétés (i) dans la source (j) $VAR_{ij}$ : variance des propriétés (i) dans la source (j) $X_j$ : contribution de la source (j)

## I - 4 CONCLUSION DU CHAPITRE I

Le 11 mars 2011, suite à l'occurrence de plusieurs tremblements de terre et d'un tsunami, la centrale de Fukushima Dai-Ichi a libéré d'importantes quantités de substances radioactives dans l'environnement. Parmi tous les radionucléides émis, le césium-137 est considéré comme le plus problématique car sa décroissance radioactive est longue (demi-vie de 30 ans) et qu'il a été émis en abondance. De plus, ce radionucléide est connu pour sa tendance à se fixer fortement aux particules de sols et notamment aux particules les plus fines comme les argiles. Le radiocésium peut donc, lors d'évènements érosifs, être mobilisé et transporté par les rivières avec ces particules. C'est notamment le cas dans la Préfecture de Fukushima, où les crues printanières et les typhons peuvent éroder les sols et accroître significativement le débit solide des rivières.

Comme les zones les plus impactées par les retombées radioactives se trouvent dans des régions montagneuses, il est nécessaire de comprendre les processus d'érosion et de transport de sédiments dans cette Préfecture, car ils peuvent conduire à la redistribution accélérée des particules contaminées.

L'amont et la partie centrale des bassins versants sont majoritairement recouverts de forêts, où l'érosion est faible, et de parcelles agricoles dont une majorité de rizières (70 % des zones agricoles) où l'érosion peut être beaucoup plus importante. Ces parcelles agricoles étaient recouvertes de neige et dépourvues de végétation au moment de l'accident. La contamination a donc rapidement pu atteindre la surface du sol et certains radionucléides, comme le  $^{137}\text{Cs}$ , se sont fixés aux particules de sol. Les plaines côtières qui ont été faiblement impactées par les retombées initiales de radiocésium sont fortement urbanisées et intensément cultivées. Les évènements érosifs pourraient donc disperser la contamination de la zone amont vers les plaines côtières en transitant par les rivières et directement impacter les populations implantées dans ces zones en se déposant.

Pour étudier cette dispersion et contraindre les transferts sédimentaires dans le temps et dans l'espace, il convient d'identifier des propriétés physico-chimiques qui permettraient de caractériser les variations spatiales et temporelles des apports de contamination de l'amont à l'aval de ces bassins côtiers.

## I - 5 REFERENCES

- Abal, E.G., Bunn, S.E., Dennison, W.C., 2005. Healthy Waterways Healthy Catchments: Making the connection in South East Queensland, Australia.
- Abe, T., Asakura, K., 2012. 2.15 – Uranium Oxide and MOX Production. *Compr. Nucl. Mater.* 2, 393–422.
- Achim, P., Monfort, M., Le Petit, G., Gross, P., Douysset, G., Taffary, T., Blanchard, X., Moulin, C., 2012. Analysis of Radionuclide Releases from the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant Accident Part II. *Pure Appl. Geophys.* 171(3-5), 645-667.
- Adachi, K., Kajino, M., Zaizen, Y., Igarashi, Y., 2013. Emission of spherical cesium-bearing particles from an early stage of the Fukushima nuclear accident. *Sci. Rep.* 3, 2554.
- Bailly du Bois, P., Laguionie, P., Boust, D., Korsakissok, I., Didier, D., Fievet, B., 2012. Estimation of marine source term following Fukushima Dai-ichi accident. *J. Environ. Radioact.* 114, 2–9.
- Bannai, M., 2011. Evaluation of the Conditions on Reactor Cores of Unit 1, 2 and 3 related to the Accident at Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Station, Tokyo Electric Power Co. Inc. Nucl. Ind. Saf. Agency.
- Beck, H.L., 1966. Environmental gamma radiation from deposited fission products. *Health Phys.* 12, 313.
- Black, E., Buesseler, K.O., 2014. Spatial variability and the fate of cesium in coastal sediments near Fukushima, Japan. *Biogeosciences Discuss.* 11, 7235–7271.
- Borselli, L., Cassi, P., Torri, D., 2008. Prolegomena to sediment and flow connectivity in the landscape: A GIS and field numerical assessment. *Catena* 75, 268–277.
- Brady Raap, M., 2011. The impact of Mixed Oxide Fuel use on Accident consequences at Fukushima Daiichi.
- Buesseler, K., 2014. Fukushima and Ocean Radioactivity. *Oceanography* 27, 92–105.
- Buesseler, K.O.K., Jayne, S.R.S., Fisher, N.S., Rypina, I.I., Baumann, H., Baumann, Z., Breier, C.F., Douglas, E.M., George, J., Macdonald, A.M., Miyamoto, H., Nishikawa, J., Pike, S.M., Yoshida, S., 2012. Fukushima-derived radionuclides in the ocean and biota off Japan. *Proc. Natl. Acad. Sci. U. S. A.* 5984-5988, 1–7.
- Bunn, S.E., Abal, E.G., Greenfield, P.F., Tarte, D.M., 2007. Making the connection between healthy waterways and healthy catchments: South East Queensland, Australia, in: *Water Science and Technology: Water Supply*. pp. 93–100.
- Burns, P.C., Ewing, R.C., Navrotsky, A., 2012. Nuclear fuel in a reactor accident. *Science* 335, 1184–8.
- Chartin, C., Evrard, O., Onda, Y., Patin, J., Lefèvre, I., Ottlé, C., Ayrault, S., Lepage, H., Bonté, P., 2013. Tracking the early dispersion of contaminated sediment along rivers draining the Fukushima radioactive pollution plume. *Anthropocene* 1, 23–34.
- Chelet, Y., 2006. *La radioactivité - Manuel d'initiation*, Nucléon. ed.
- Chino, M., Nakayama, H., Nagai, H., 2011. Preliminary estimation of release amounts of <sup>131</sup>I and <sup>137</sup>Cs accidentally discharged from the Fukushima Daiichi nuclear power plant into the atmosphere. *J. Nucl. ...* 48, 1129–1134.
- Collins, A. L., Walling, D.E., Leeks, G.J.L., 1997. Source type ascription for fluvial suspended sediment based on a quantitative composite fingerprinting technique. *Catena* 29, 1–27.
- Collins, A. L., Walling, D.E., Webb, L., King, P., 2010. Apportioning catchment scale sediment sources using a modified composite fingerprinting technique incorporating property weightings and prior information. *Geoderma* 155, 249–261.
- Collins, A., Walling, D., 2002. Selecting fingerprint properties for discriminating potential suspended sediment sources in river basins. *J. Hydrol.* 261, 218–244.
- Delvaux, B., Kruyts, N., Maes, E., Smolders, E., 2000. Fate of Radiocesium in Soil and Rhizosphere, in: *Trace Elements in the Rhizosphere*. Press, CRC, pp. 61–91.
- Des rivières et des Hommes, 2015. [https://www.france-universite-numerique-mooc.fr/courses/grenobleinp/19001/Trimestre\\_4\\_2014/about](https://www.france-universite-numerique-mooc.fr/courses/grenobleinp/19001/Trimestre_4_2014/about) (Dernier accès Juillet 2015)
- Devereux, O.H., Prestegard, K.L., Needelman, B.A., Gellis, A.C., 2010. Suspended-sediment sources in an urban watershed, Northeast Branch Anacostia River, Maryland. *Hydrol. Process.* 24, 1391–1403.

- Dunne, T., Moore, T.R., Taylor, C.H., 1975. Recognition and Prediction of Runoff-Producing Zones in Humid Regions. *Hydrol. Sci. Bull.* XX, 305–327.
- Economic Planning Agency, 1972. Scale 1:200,000 Fundamental Land Classification Survey in Fukushima (soil map). <http://nrb-www.mlit.go.jp> (Dernier accès Juillet 2015).
- Ekern, P.C. 1950. Raindrop impact as the force initiating soil erosion. *Soil Sci. Soc. Amer. Proc.*, 15: 7-10.
- Endo, S., Kajimoto, T., Shizuma, K., 2013. Paddy-field contamination with  $^{134}\text{Cs}$  and  $^{137}\text{Cs}$  due to Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident and soil-to-rice transfer coefficients. *J. Environ. Radioact.* 116, 59–64.
- Ensign, S.H., Mallin, M.A., 2001. Stream water quality changes following timber harvest in a coastal plain swamp forest. *Water Res.* 35, 3381-3390.
- Estournel, C., Bosc, E., Bocquet, M., Ulses, C., Marsaleix, P., Winiarek, V., Osvath, I., Nguyen, C., Duhaut, T., Lyard, F., Michaud, H., Auclair, F., 2012. Assessment of the amount of cesium-137 released into the Pacific Ocean after the Fukushima accident and analysis of its dispersion in Japanese coastal waters. *J. Geophys. Res.* 117, C11014.
- Evrard, O., Vandaele, K., Biélers, C., Van Wesemael, B., 2008. Seasonal evolution of runoff generation on agricultural land in the Belgian loess belt and implications for muddy flood triggering. *Earth Surf. Process. Landforms* 1301, 1285–1301.
- Evrard, O., Némery, J., Gratiot, N., Duvert, C., Ayrault, S., Lefèvre, I., Poulenard, J., Prat, C., Bonté, P., Esteves, M., 2010. Sediment dynamics during the rainy season in tropical highland catchments of central Mexico using fallout radionuclides. *Geomorphology* 124, 42–54.
- Evrard, O., Navratil, O., Ayrault, S., Ahmadi, M., Némery, J., Legout, C., Lefèvre, I., Poirel, A., Bonté, P., Esteves, M., 2011. Combining suspended sediment monitoring and fingerprinting to determine the spatial origin of fine sediment in a mountainous river catchment. *Earth Surf. Process. Landforms* 36, 1072–1089.
- Evrard, O., Van Beek, P., Gateuille, D., Pont, V., Lefèvre, I., Lansard, B., Bonté, P., 2012. Evidence of the radioactive fallout in France due to the Fukushima nuclear accident. *J. Environ. Radioact.* 114, 54–60.
- Evrard, O., Chartin, C., Onda, Y., Patin, J., Lepage, H., Lefèvre, I., Ayrault, S., Otlé, C., Bonté, P., 2013. Evolution of radioactive dose rates in fresh sediment deposits along coastal rivers draining Fukushima contamination plume. *Sci. Rep.* 3, 3079.
- Evrard, O., Pointurier, F., Onda, Y., Chartin, C., Hubert, A., Lepage, H., Pottin, A.-C., Lefèvre, I., Bonté, P., Laceby, J.P., Ayrault, S., 2014. Novel Insights into Fukushima Nuclear Accident from Isotopic Evidence of Plutonium Spread along Coastal Rivers. *Environ. Sci. Technol.* 48, 9334–9340.
- Evrard, O., Laceby, J.P., Lepage, H., Onda, Y., Cerdan, O., Ayrault, S., 2015. Radiocesium transfer from hillslopes to the Pacific Ocean after the Fukushima Nuclear Power Plant accident: A review. *J. Environ. Radioact.* 148, 92–110.
- Fan, Q., Tanaka, K., Sakaguchi, A., Kondo, H., Watanabe, N. and Takahashi, Y., 2014a. Factors controlling radiocesium distribution in river sediments: Field and laboratory studies after the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident. *Applied Geochemistry*, 48: 93-103.
- Foster, I.D.L., Lees, J.A., 2000. Tracers in geomorphology: theory and applications in tracing fine particulate sediments, in: *Tracers in Geomorphology*. pp. 3–20.
- Fuller, A.J., Shaw, S., Ward, M.B., Haigh, S.J., Mosselmans, J.F.W., Peacock, C.L., Stackhouse, S., Dent, A.J., Trivedi, D., Burke, I.T., 2015. Caesium incorporation and retention in illite interlayers. *Appl. Clay Sci.* 108, 128-134.
- Fumiko Tajima, Jim Mori, Brian L.N. Kennett, A review of the 2011 Tohoku-Oki earthquake (Mw 9.0): Large-scale rupture across heterogeneous plate coupling, *Tectonophysics*, Volume 586, 26 February 2013, Pages 15-34, ISSN 0040-1951, <http://dx.doi.org/10.1016/j.tecto.2012.09.014>.
- Garrels, R.M. et Mackenzie, F.T., 1971. *Evolution of sedimentary rocks*. W. W. Norton and Company Inc., New York, 397 p.
- Gellis, A.C., Hupp, C.R., Pavich, M.J., Landwehr, J.M., Banks, W.S.L., Hubbard, B.E., Langland, M.J., Ritchie, J.C., Reuter, J.M., 2009. Sources, transport, and storage of sediment in the Chesapeake Bay Watershed: U.S. Geological Survey Scientific Investigations Report 2008–5186, 95 p.

- Geological Survey of Japan, 2012. Seamless digital geological map of Japan 1: 200,000. Jul 3, 2012 version. Research Information Database DB084, Geological Survey of Japan, National Institute of Advanced Industrial Science and Technology (Dernier accès Juillet 2015).
- Geospatial Information Authority of Japan, 2015. Digital Elevation Model, Japanese Ministry of Land, Infrastructure, Transport and Tourism, <http://www.gsi.go.jp> (Dernier accès Juillet 2015).
- German Hydrogen and Fuel Cell Association (DWV), Berlin, Editor: Dr. Ulrich Schmidtchen, Press Release No. 2/2011, Hydrogen in nuclear accidents - What is the role of the gas in Fukushima?
- Gillon Luc (1979). *Le nucléaire en question*, Gembloux Duculot, édition française, 240 p.
- Govers, G., 1985. Selectivity and transport capacity of thin flows in relation to rill erosion. *Catena*, 12(1): 35-49.
- Greenberg, R.R., Bode, P., De Nadai Fernandes, E. a., 2011. Neutron activation analysis: A primary method of measurement. *Spectrochim. Acta Part B At. Spectrosc.* 66, 193–241.
- Groëll, J., Quélo, D., Mathieu, A., 2012. Sensitivity analysis of the modelled deposition of  $^{137}\text{Cs}$  on the Japanese land following the Fukushima accident: preliminary results. *harmo.org* 1–5.
- Guegueniat, P., Boust, D., 1985. Distribution de 40 éléments à l'état de traces dans les suspensions de la Seine. Utilisation du lanthane pour étudier les processus sédimentaires dans l'estuaire et. *La Baie Seine*. 840, 24–26.
- Haddadchi, A., Olley, J., Laceby, P., 2014. Accuracy of mixing models in predicting sediment source contributions. *Sci. Total Environ.* 497-498, 139–152.
- Haddadchi, A., Ryder, D.S., Evrard, O., Olley, J., 2013. Sediment fingerprinting in fluvial systems: review of tracers, sediment sources and mixing models. *Int. J. Sediment Res.* 28, 560–578.
- Hashimoto, S., Matsuura, T., Nanko, K., Linkov, I., Shaw, G., Kaneko, S., 2013. Predicted spatio-temporal dynamics of radiocesium deposited onto forests following the Fukushima nuclear accident. *Sci. Rep.* 3, 2564.
- Hashimoto, S., Ugawa, S., Nanko, K., Shichi, K., 2012. The total amounts of radioactively contaminated materials in forests in Fukushima, Japan. *Sci. Rep.* 2, 416.
- He, Q., Walling, D., 1996. Interpreting particle size effects in the adsorption of  $^{137}\text{Cs}$  and unsupported  $^{210}\text{Pb}$  by mineral soils and sediments. *J. Environ. Radioact.* 30, 117–137.
- Horton, R.E., 1933. The role of infiltration in the hydrological cycle. *Trans. Am. Geophys. Union* 14, 446–460.
- Hudson, N., 1993. Field measurement of soil erosion and runoff, *Food & Agriculture Org.* 68.
- Hughes, A.O., Olley, J.M., Croke, J.C., McKergow, L. a., 2009. Sediment source changes over the last 250 years in a dry-tropical catchment, central Queensland, Australia. *Geomorphology* 104, 262–275.
- IAEA, 2005. Environmental consequences of the Chernobyl accident and their remediation: Twenty years of experience, at International Conference Chernobyl: Looking Back to Go Forwards.
- IAEA, 2008. INES, Echelle internationale des événements nucléaires et radiologiques, Manuel de l'utilisateur, Edition 2008.
- IAEA, 2009. Reactors in operations, 31 décembre 2009, [www-pub.iaea.org](http://www-pub.iaea.org) (Dernier accès Juillet 2015).
- IAEA, 2011. International fact finding expert mission of the Fukushima Dai-ichi NPP accident following the great East Japan. IAEA. Fukushima Daiichi Status Report, 28 June 2012.
- Imaya, A., Morisada, K., Ohta, S., 2002. Chemical properties and classification of Japanese brown forest soils derived from various parent materials. 17th World Congr. Soil Sci. 1–10.
- IRSN, 2012. Fukushima 1 an après : Premières analyses de l'accident et de ses conséquences.
- Ivanov, Y., Lewyckyj, N., Levchuk, S., 1997. Migration of  $^{137}\text{Cs}$  and  $^{90}\text{Sr}$  from Chernobyl fallout in Ukrainian, Belarussian and Russian soils. *J. Environ. Radioact.* 35.
- Iwasaki, T., Nabi, M., Shimizu, Y. and Kimura, I., 2015. Computational modeling of  $^{137}\text{Cs}$  contaminant transfer associated with sediment transport in Abukuma River. *J. Environ. Radioact.* 139: 416–426.
- Japanese Meteorological Agency (JMA), 2015. <http://www.jma.go.jp/jma/indexe.html> (Dernier accès Juillet 2015)
- Kamei-Ishikawa, N., Uchida, S., Tagami, K., 2008. Distribution coefficients for  $^{85}\text{Sr}$  and  $^{137}\text{Cs}$  in Japanese agricultural soils and their correlations with soil properties. *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 277, 433–439.

- Katata, G., Ota, M., Terada, H., Chino, M., Nagai, H., 2012. Atmospheric discharge and dispersion of radionuclides during the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident. Part I: Source term estimation and local-scale atmospheric dispersion in early phase of the accident. *J. Environ. Radioact.* 109, 103–13.
- Kato, H., Onda, Y., Gomi, T., 2012. Interception of the Fukushima reactor accident-derived  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{134}\text{Cs}$  and  $^{131}\text{I}$  by coniferous forest canopies. *Geophys. Res. Lett.* 39, 20.
- Kawamura, H., Kobayashi, T., Furuno, A., In, T., Ishikawa, Y., 2011. Fukushima NPP Accident Related Preliminary Numerical Experiments on Oceanic Dispersion of  $^{131}\text{I}$  and  $^{137}\text{Cs}$  Discharged into the Ocean because of the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant Disaster 48, 1349–1356.
- Kim, J.K., Onda, Y., Kim, M.S., Yang, D.Y., 2014. Plot-scale study of surface runoff on well-covered forest floors under different canopy species. *Quat. Int.* 1–11.
- Kinoshita, N., Sueki, K., Sasa, K., Kitagawa, J., Ikarashi, S., Nishimura, T., Wong, Y.-S., Satou, Y., Handa, K., Takahashi, T., Sato, M., Yamagata, T., 2011. Assessment of individual radionuclide distributions from the Fukushima nuclear accident covering central-east Japan. *Proc. Natl. Acad. Sci. U. S. A.* 108, 19526–9.
- Kinouchi, T., Yoshimura, K., Omata, T., 2015. Modeling radiocesium transport from a river catchment based on a physically-based distributed hydrological and sediment erosion model. *J. Environ. Radioact.* 139, 407–415.
- Kitamura, A., Yamaguchi, M., Kurikami, H., Yui, M., Onishi, Y., 2014. Predicting sediment and cesium-137 discharge from catchments in eastern Fukushima. *Anthropocene* 1–10.
- Kobayashi, T., Nagai, H., Chino, M., Kawamura, H., 2013. Source term estimation of atmospheric release due to the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident by atmospheric and oceanic dispersion simulations. *J. Nucl. Sci. Technol.* 37–41.
- Koiter, A. J., Owens, P.N., Petticrew, E.L., Lobb, D. A., 2013. The behavioural characteristics of sediment properties and their implications for sediment fingerprinting as an approach for identifying sediment sources in river basins. *Earth-Science Rev.* 125, 24–42.
- Koiwa, N., Kasai, M., Kataoka, S., Isono, T., 2014. Examination of relation with tsunami behavior reconstructed from on-site sequence photographs, topography, and sedimentary deposits from the 2011 Tohoku-oki tsunami on the Kamikita Plain, Japan. *Mar. Geol.* 358, 107-119.
- Koizumi, A., Niisoe, T., Harada, K., 2013.  $^{137}\text{Cs}$  trapped by biomass within 20 km of the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant. *Environ. Sci. Technol.* 47, 9612–9618.
- Korsakissok, I., Mathieu, a., Didier, D., 2013. Atmospheric dispersion and ground deposition induced by the Fukushima Nuclear Power Plant accident: A local-scale simulation and sensitivity study. *Atmos. Environ.* 70, 267–279.
- Kruyts, N., Delvaux, B., 2002. Soil organic horizons as a major source for radiocesium biorecycling in forest ecosystems. *J. Environ. Radioact.* 58, 175–190.
- Kurikami, H., Kitamura, A., Yokuda, S.T. and Onishi, Y., 2014. Sediment and  $^{137}\text{Cs}$  behaviors in the Ogaki Dam Reservoir during a heavy rainfall event. *J. Environ. Radioact.*, 137: 10-17.
- Kyuma, K., Kawaguchi, K., 1976. Soil material classification for paddy soils in Japan. *Soil Sci. Plant Nutr.* 22, 111–124.
- Lacey, J.P., Olley, J., 2015. A new modelling approach to tracing sediment sources that incorporates distributions and their elemental correlations. *Hydrol. Process.* 29, 1669–1685.
- Land conservation research, 2005, Landuse map, <http://nrb-mlit.go.jp/kokjo/inspect/landclassification/download/index.html> (dernier accès 29/04/2015)
- Le Bissonnais, Y., Galien, E., Kuzucuoglu, C., Montier, C., Peyre, Y. et Guilbault, P., 1996. Les coulées de boue liées à l'érosion des terres agricoles, Dossier national comprenant un document général et un dossier par région, Ministère de l'Environnement et Ministère de l'Agriculture, de la pêche et de l'alimentation, Paris.
- Le Bissonnais, Y., Cerdan, O., Lecomte, V., Benkhadra, H., Souchère, V., Martin, P., 2005. Variability of soil surface characteristics influencing runoff and interrill erosion. *Catena* 62, 111–124.
- Le Petit, G., Douysset, G., Ducros, G., Gross, P., Achim, P., Monfort, M., Raymond, P., Pontillon, Y., Jutier, C., Blanchard, X., Taffary, T., Moulin, C., 2012. Analysis of Radionuclide Releases from the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant Accident Part I. *Pure Appl. Geophys.* 171, 629–644.

- Litschert, S.E., MacDonald, L.H., 2009. Frequency and characteristics of sediment delivery pathways from forest harvest units to streams. *Forest Ecol. Manag* 259, 143-150.
- Malam Issa, O., Bissonnais, Y.L., Planchon, O., Favis-Mortlock, D., Silvera, N. and Wainwright, J., 2006. Soil detachment and transport on field-and laboratory-scale interrill areas: erosion processes and the size-selectivity of eroded sediment. *Earth Surface Processes and Landforms*, 31(8): 929-939.
- Marzo, G. a., 2014. Atmospheric transport and deposition of radionuclides released after the Fukushima Dai-chi accident and resulting effective dose. *Atmos. Environ.* 94, 709–722.
- Masson, O., Baeza, a, Bieringer, J., Brudecki, K., Bucci, S., Cappai, M., Carvalho, F.P., Connan, O., Cosma, C., Dalheimer, a, Didier, D., Depuydt, G., De Geer, L.E., De Vismes, a, Gini, L., Groppi, F., Gudnason, K., Gurriaran, R., Hainz, D., Halldórsson, Ó., Hammond, D., Hanley, O., Holeý, K., Homoki, Z., Ioannidou, a, Isajenko, K., Jankovic, M., Katzlberger, C., Kettunen, M., Kierepko, R., Kontro, R., Kwakman, P.J.M., Lecomte, M., Leon Vintro, L., Leppänen, a-P., Lind, B., Lujanienne, G., Mc Ginnity, P., Mc Mahon, C., Malá, H., Manenti, S., Manolopoulou, M., Mattila, a, Muring, a, Mietelski, J.W., Møller, B., Nielsen, S.P., Nikolic, J., Overwater, R.M.W., Pálsson, S.E., Papastefanou, C., Penev, I., Pham, M.K., Povinec, P.P., Ramebäck, H., Reis, M.C., Ringer, W., Rodriguez, a, Rulík, P., Saey, P.R.J., Samsonov, V., Schlosser, C., Sgorbati, G., Silobritiene, B. V, Söderström, C., Sogni, R., Solier, L., Sonck, M., Steinhauer, G., Steinkopff, T., Steinmann, P., Stoulos, S., Sýkora, I., Todorovic, D., Tooloutalaie, N., Tositti, L., Tschiersch, J., Ugron, a, Vagena, E., Vargas, a, Wershofen, H., Zhukova, O., 2011. Tracking of airborne radionuclides from the damaged Fukushima Dai-ichi nuclear reactors by European networks. *Environ. Sci. Technol.* 45, 7670–7.
- Mathieu, A., Korsakissok, I., Quélo, D., Groëll, J., Tombette, M., Didier, D., Quentric, E., Saunier, O., Benoit, J.P., 2012. Assessment of atmospheric dispersion and radiological consequences for the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident.
- Matsuda, N., Mikami, S., Shimoura, S., Takahashi, J., Nakano, M., Shimada, K., Uno, K., Hagiwara, S., Saito, K., 2014. Depth profiles of radioactive cesium in soil using a scraper plate over a wide area surrounding the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant, Japan. *J. Environ. Radioact.* 139, 427-434.
- MEXT, 2011b. Map of Radioactive Cesium Concentration in Soil. [http://radioactivity.nsr.go.jp/en/contents/5000/4165/24/1750\\_083014.pdf](http://radioactivity.nsr.go.jp/en/contents/5000/4165/24/1750_083014.pdf)
- MEXT, U.S. Department of Energy, 2011a. Results of Airborne Monitoring.
- Meybeck, M., 1986. Composition chimique des ruisseaux non pollués français. *Sciences Géologiques*: 73.
- Meybeck, M., 1987. Global chemical weathering of surficial rocks estimated from river dissolved loads. *American Journal of Science*, 287: 401-428.
- Meyer-Peter, Eugen, and R. Müller, 1948. Formulas for bed-load transport. *Proceedings, Second Congress IAHR, Stockholm, Sweden.*
- Minoura K, Yamada T, Hirano S-i, Sugihara S. 2014. Movement of radiocaesium fallout released by the 2011 Fukushima nuclear accident. *Nat Hazards*, 73: 1843-1862. DOI: 10.1007/s11069-014-1171-y.
- Mizoguchi, M., 2013. Remediation of Paddy Soil Contaminated by Radiocesium in Iitate Village in Fukushima Prefecture. *Agric. Implic. Fukushima Nucl.* 131–142.
- Monnier, G., Boiffin, J., Papy, F., n.d. Réflexions sur l'érosion hydrique en conditions climatiques et topographiques modérées. *Cah. ORSTOM, Série Pédologie*, Vol. XXII, 121–131.
- Mori, K., Tada, K., Tawara, Y., Ohno, K., Asami, M., Kosaka, K. and Tosaka, H., 2014. An Integrated Watershed Modeling to Assess the Long-term Fate of Fukushima-Derived Radionuclides. In: D.P. Ames, N.W.T. Quinn and A.E. Rizzoli (Editors), *International Environmental Modelling and Software Society (iEMSs) 7th Intl. Congress on Env. Modelling and Software*, San Diego, CA, USA.
- Mori, N., T. Takahashi, T. Yasuda, and H. Yanagisawa, 2011. Survey of 2011 Tohoku earthquake tsunami inundation and run-up, *Geophys. Res. Lett.*, 38, L00G14, doi:10.1029/2011GL049210.
- Mori, N., Takahashi, T., 2012. Nationwide post event survey and analysis of the 2011 Tohoku Earthquake. *Coast. Eng. J.*, 54, 1250001.
- Motha, J., Wallbrink, P., 2002. Tracer properties of eroded sediment and source material. *Hydrol. Process.* 16, 1983–2000.

- Mouri, G., Golosov, V., Shiiba, M. and Hori, T., 2014. Assessment of the caesium-137 flux adsorbed to suspended sediment in a reservoir in the contaminated Fukushima region in Japan. *Environmental Pollution*, 187: 31–41.
- Nagao, S., Kanamori, M., Ochiai, S., Tomihara, S., Fukushi, K., Yamamoto, M., 2013. Export of <sup>134</sup>Cs and <sup>137</sup>Cs in the Fukushima river systems at heavy rains by Typhoon Roke in September 2011. *Biogeosciences* 10, 6215–6223.
- Nakao, A., Funakawa, S., Tsukada, H., Kosaki, T., 2012. The fate of caesium-137 in a soil environment controlled by immobilization on clay minerals. *An Environ. J. Glob. Community* 6, 17–29.
- Nakao, A., Ogasawara, S., Sano, O., Ito, T., Yanai, J., 2014. Radiocesium sorption in relation to clay mineralogy of paddy soils in Fukushima, Japan. *Sci. Total Environ.* 468-469, 523–9.
- Nakao, A., Thiry, Y., Funakawa, S., Kosaki, T., 2008. Characterization of the frayed edge site of micaceous minerals in soil clays influenced by different pedogenetic conditions in Japan and northern Thailand. *Soil Sci. Plant Nutr.* 54, 479–489.
- Nasa, 2011. <http://www.jpl.nasa.gov/news/news.php?release=2011-374> (Dernier accès Juillet 2015).
- National Police Agency of Japan, 2013. Damage situation and police countermeasure associated with 2011 Tohoku district off the Pacific Ocean earthquake – 23 January 2013. [http://www.npa.go.jp/archive/keibi/biki/higaijokyo\\_e.pdf](http://www.npa.go.jp/archive/keibi/biki/higaijokyo_e.pdf)
- Nemoto, K., Abe, J., 2013. Agricultural Implications of the Fukushima Nuclear Accident 19–27.
- New Scientist, 2015. <http://www.newscientist.com/special/japanquake> (Dernier accès Juillet 2015)
- NIAES, 1996. Classification of cultivated soils in Japan: third approximation, Classification Committee of Cultivated Soils.
- NOAA, 2014. Modeled Movement of the Marine Debris Generated by the March 2011 Japan Tsunami. [http://marinedebris.noaa.gov/sites/default/files/JTMD\\_Visualization\\_April.pdf](http://marinedebris.noaa.gov/sites/default/files/JTMD_Visualization_April.pdf)
- Ohmura, Y., Matsukura, K., Abe, J.P., Hosaka, K., Tamaoki, M., Dohi, T., Kakishima, M., Seaward, M.R.D., 2015. <sup>137</sup>Cs concentrations in foliose lichens within Tsukuba-city as a reflection of radioactive fallout from the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident. *J. Environ. Radioact.* 141, 38–43.
- Olley, J., Brooks, A., Spencer, J., Pietsch, T., Borombovits, D., 2013. Subsoil erosion dominates the supply of fine sediment to rivers draining into Princess Charlotte Bay, Australia. *J. Environ. Radioact.* 124, 121–9.
- Onda, Y., Gomi, T., Mizugaki, S., 2010. An overview of the field and modelling studies on the effects of forest devastation on flooding and environmental issues. *Hydrol.* 534, 527–534.
- Owens, P.N., Walling, D.E., Leeks, G.J.L., 2000. Tracing fluvial suspended sediment sources in the catchment of the River Tweed, Scotland using composite fingerprints and a numerical mixing model, in: *Tracers in Geomorphology*. pp. 291–308.
- Papaefthymiou, H., Papatheodorou, G., Christodoulou, D., Geraga, M., Moustakli, a., Kapolos, J., 2010. Elemental concentrations in sediments of the Patras Harbour, Greece, using INAA, ICP-MS and AAS. *Microchem. J.* 96, 269–276.
- Patin, J., Mouche, E., Ribolzi, O., Chaplot, V., Sengtahevanghoun, O., Latsachak, K.O., Souleleuth, B., Valentin, C., 2012. Analysis of runoff production at the plot scale during a long-term survey of a small agricultural catchment in Lao PDR. *J. Hydrol.* 426–427, 79–92.
- Pontillon, Y., Ducros, G., Malgouyres, P.P., 2010. Behaviour of fission products under severe PWR accident conditions VERCORS experimental programme—Part 1: General description of the programme. *Nucl. Eng. Des.* 240, 1843–1852.
- Pratama, M.A., Yoneda, M., Shimada, Y., Matsui, Y. and Yamashiki, Y., 2015. Future projection of radiocesium flux to the ocean from the largest river impacted by Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant. *Scientific reports*, 5.
- Qiao, F., Wang, G., Zhao, W., Zhao, J., Dai, D., Song, Y., Song, Z., 2011. Predicting the spread of nuclear radiation from the damaged Fukushima Nuclear Power Plant. *Chinese Sci. Bull.* 56, 1890–1896.

- Ravisankar, R., Manikandan, E., Dheenathayalu, M., Rao, B., Seshadreesan, N.P., Nair, K.G.M., 2006. Determination and distribution of rare earth elements in beach rock samples using instrumental neutron activation analysis (INAA). *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. with Mater. Atoms* 251, 496–500.
- Regalla, C., Kirby, E., Fisher, D., Bierman, P., 2013. Active forearc shortening in Tohoku, Japan: Constraints on fault geometry from erosion rates and fluvial longitudinal profiles. *Geomorphology* 195, 84–98.
- Rijn, Leo C. van. "Sediment transport, part II: suspended load transport." *Journal of hydraulic engineering* 110.11 (1984): 1613-1641.
- Ritchie, J.C., McHenry, J.R., 1990. Application of Radioactive Fallout Cesium-137 for Measuring Soil Erosion and Sediment Accumulation Rates and Patterns: A Review. *J. Environ. Qual.*
- Robert, M., 1996. *Le sol : interface dans l'environnement, ressource pour le développement*. Masson, Paris, Milan, Barcelonne, 244 p.
- Romkens M.J.M., Luk S.H., Poesen J.W.A. et Mermut T A.R., 1995. Rain infiltration into loess soils from different geographic regions. *Catena*, 25, 21-32.
- Saigusa, M., Shoji, S., Kato, T., 1978. Origin and nature of halloysite in Ando soils from Towada tephra, Japan. *Geoderma* 20, 115–129.
- Sakaguchi, A., Tanaka, K., Iwatani, H., Chiga, H., Fan, Q., Onda, Y. and Takahashi, Y., 2015. Size distribution studies of  $^{137}\text{Cs}$  in river water in the Abukuma Riverine system following the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident. *J. Environ. Radioact.*, 139: 379–389.
- Sano, D., Ito, T., Ando, T., Nanzyo, M., Saito, G., Saigusa, M., 2010. Clay mineralogical composition of representative paddy soils in southern part of north-eastern Japan. *Pedologist* 54, 83–92.
- Saunier, O., Mathieu, a., Didier, D., Tombette, M., Quélo, D., Winiarek, V., Bocquet, M., 2013. An inverse modeling method to assess the source term of the Fukushima Nuclear Power Plant accident using gamma dose rate observations. *Atmos. Chem. Phys.* 13, 11403–11421.
- Sawhney, B., 1972. Selective sorption and fixation of cations by clay minerals: a review. *Clays Clay Miner.* 20, 93–100.
- Sevón, T., 2015. A MELCOR model of Fukushima Daiichi Unit 3 accident. *Nucl. Eng. Des.* 284, 80–90.
- Shinomiya, Y., Tamai, K., Kobayashi, M., Ohnuki, Y., Shimizu, T., Iida, S.i., Nobuhiro, T., Sawano, S., Tsuboyama, Y. and Hiruta, T., 2014. Radioactive cesium discharge in stream water from a small watershed in forested headwaters during a typhoon flood event. *Soil Science and Plant Nutrition*, 60(6): 765-771.
- Shozugawa, K., Nogawa, N., Matsuo, M., 2012. Deposition of fission and activation products after the Fukushima Dai-ichi nuclear power plant accident. *Environ. Pollut.* 163, 243–7.
- Simons, M., Minson, S.E., Sladen, A., Ortega, F., Jiang, J., Owen, S.E., Meng, L., Ampuero, J.-P., Wei, S., Chu, R., Helmlberger, D. V., Kanamori, H., Hetland, E., Moore, A.W., Webb, F.H., 2011. The 2011 magnitude 9.0 Tohoku-Oki earthquake: mosaicking the megathrust from seconds to centuries. *Science* 332, 1421–5.
- Smith, H.G., Blake, W.H., 2014. Sediment fingerprinting in agricultural catchments: A critical re-examination of source discrimination and data corrections. *Geomorphology* 204, 177–191.
- Sprott, D., 2015. <https://www.flickr.com/photos/dugspr/> (Dernier accès Juillet 2015)
- Steinhauser, G., Brandl, A., Johnson, T.E., 2014. Comparison of the Chernobyl and Fukushima nuclear accidents: a review of the environmental impacts. *Sci. Total Environ.* 470-471, 800–17.
- Steinhauser, G., Löffler, G., Adunka, R., 2012. The possible discovery of neutron activation in 1910. *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 296, 157–163.
- Stohl, A., Seibert, P., Wotawa, G., Arnold, D., Burkhart, J.F., Eckhardt, S., Tapia, C., Vargas, A., Yasunari, T.J., 2011. Xenon-133 and caesium-137 releases into the atmosphere from the Fukushima Dai-ichi nuclear power plant: determination of the source term, atmospheric dispersion, and deposition. *Atmos. Chem. Phys.* 11, 28319–28394.
- Tagami, K., Uchida, S., 2015a. Effective half-lives of  $^{137}\text{Cs}$  from persimmon tree tissue parts in Japan after Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident. *J. Environ. Radioact.* 141, 8–13.

- Tajima, F., Mori, J., Kennett, B.L.N., 2013. A review of the 2011 Tohoku-Oki earthquake (Mw 9.0): Large-scale rupture across heterogeneous plate coupling. *Tectonophysics* 586, 15–34.
- Takahashi, J., Tamura, K., Suda, T., Ryo, M., Onda, Y., 2014. Vertical distribution and temporal changes of <sup>137</sup>Cs in soil profiles under various land uses after the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident. *J. Environ. Radioact.* 139, 351–361.
- Tanaka, K., Iwatani, H., Sakaguchi, A., Fan, Q. and Takahashi, Y., 2015. Size-dependent distribution of radiocesium in riverbed sediments and its relevance to the migration of radiocesium in river systems after the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident. *J. Environ. Radioact.*, 139: 390–397.
- Tanaka, K., Iwatani, H., Sakaguchi, A., Takahashi, Y. and Onda, Y., 2014. Relationship between particle size and radiocesium in fluvial suspended sediment related to the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry.* 301(2), 607–613.
- Tanaka, K., Iwatani, H., Takahashi, Y., Sakaguchi, A., Yoshimura, K., Onda, Y., 2013. Investigation of spatial distribution of radiocesium in a paddy field as a potential sink. *PLoS One* 8, e80794.
- Tazoe, H., Hosoda, M., Sorimachi, a, Nakata, a, Yoshida, M. a, Tokonami, S., Yamada, M., 2012. Radioactive pollution from Fukushima Daiichi nuclear power plant in the terrestrial environment. *Radiat. Prot. Dosimetry* 152, 198–203.
- Température Fukushima (1890 – 2014) :  
[http://www.data.jma.go.jp/obd/stats/etrn/view/monthly\\_s3\\_en.php?block\\_no=47595&view=1](http://www.data.jma.go.jp/obd/stats/etrn/view/monthly_s3_en.php?block_no=47595&view=1)
- Ten Hoeve, J.E., Jacobson, M.Z., 2012. Worldwide health effects of the Fukushima Daiichi nuclear accident. *Energy Environ. Sci.* 5, 8743.
- TEPCO, 2011, Result of the investigation on Tsunami at Fukushima Daiichi Nuclear Power Station – Appendix 1
- TEPCO, 2012. Estimation of Radioactive Material Released to the Atmosphere during the Fukushima Daiichi NPS Accident.
- Terada, H., Katata, G., Chino, M., Nagai, H., 2012. Atmospheric discharge and dispersion of radionuclides during the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident. Part II: verification of the source term and analysis of regional-scale atmospheric dispersion. *J. Environ. Radioact.* 112, 141–54.
- Teramage, M.T., Onda, Y., Kato, H., Gomi, T., 2014. The role of litterfall in transferring Fukushima-derived radiocesium to a coniferous forest floor. *Sci. Total Environ.* 490, 435–439.
- Tessier, L., 2003. Transport et caractérisation des matières en suspension dans le bassin versant de la Seine: Identification de signatures naturelles et anthropiques.
- Tsuboi, J., Abe, S., Fujimoto, K., Kaeriyama, H., Ambe, D., Matsuda, K., Enomoto, M., Tomiya, A., Morita, T., Ono, T., Yamamoto, S., Iguchi, K., 2015. Exposure of a herbivorous fish to <sup>134</sup>Cs and <sup>137</sup>Cs from the riverbed following the Fukushima disaster. *J. Environ. Radioact.* 141, 32–37.
- Tsuji, H., Yasutaka, T., Kawabe, Y., Onishi, T., Komai, T., 2014. Distribution of dissolved and particulate radiocesium concentrations along rivers and the relations between radiocesium concentration and deposition after the nuclear power plant accident in Fukushima. *Water Res.* 60C, 15–27.
- Tsukada, H., Takeda, A., Nakao, A., 2012. Vertical distribution and physicochemical form of fallout <sup>137</sup>Cs in an allophanic andisol acidified by long-term fertilizer application. *Pedologist* 435–441.
- Tsumune, D., Tsubono, T., Aoyama, M., Hirose, K., 2012. Distribution of oceanic <sup>137</sup>Cs from the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant simulated numerically by a regional ocean model. *J. Environ. Radioact.* 111, 100–8.
- Tsutsumi, Y., Ohtomo, Y., Horie, K., Nakamura, K., Yokoyama, K., 2010. Granitoids with 300 Ma in the Joban coastal region, east of Abukuma Plateau, northeast Japan. *J. Mineral. Petrol. Sci.* 105, 320–327.
- Ueda, S., Hasegawa, H., Kakiuchi, H., Akata, N., Ohtsuka, Y., Hisamatsu, S., 2013. Fluvial discharges of radiocaesium from watersheds contaminated by the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident, Japan. *J. Environ. Radioact.* 118, 96–104.
- Uematsu, S., Smolders, E., Sweeck, L., Wannijn, J., Van Hees, M., Vandenhove, H., 2015. Predicting radiocaesium sorption characteristics with soil chemical properties for Japanese soils. *Sci. Total Environ.* 524–525, 148–156.

- UNEP, 2012. Managing Post-disaster Debris: the Japan Experience. Available online at: [http://www.unep.org/pdf/UNEP\\_Japan\\_post-tsunami\\_debris.pdf](http://www.unep.org/pdf/UNEP_Japan_post-tsunami_debris.pdf) (accessed Aug. 2013).
- University of Tokyo, [http://worldmap.harvard.edu/data/geonode:mergedtsunamilines\\_2lh](http://worldmap.harvard.edu/data/geonode:mergedtsunamilines_2lh)
- UNSCEAR, 2008. Sources of ionizing radiation
- UNSCEAR, 2013. Levels and effects of radiation exposure due to the nuclear accident after the 2011 great east-Japan earthquake and tsunami I.
- Valentin, C., Poesen, J., Li, Y., 2005. Gully erosion: Impacts, factors and control, in: Catena. pp. 132–153.
- Van Rijn, Leo C. Sediment transport, part I: bed load transport. *Journal of Hydraulic Engineering* 110.10 (1984): 1431-1456.
- Van Rijn, Leo C. Sediment transport, part III: bed forms and alluvial roughness. *Journal of Hydraulic Engineering* 110.12 (1984): 1733-1754.
- Vandebroek, L., Van Hees, M., Delvaux, B., Spaargaren, O., Thiry, Y., 2012. Relevance of Radiocaesium Interception Potential (RIP) on a worldwide scale to assess soil vulnerability to <sup>137</sup>Cs contamination. *J. Environ. Radioact.* 104, 87–93.
- Wakahara, T., Onda, Y., Kato, H., Sakaguchi, A., & Yoshimura, K. (2014). Radiocaesium discharge from paddy fields with different initial scrapings for decontamination after the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident. *Environmental Science: Processes & Impacts*, 16(11), 2580-2591.
- Wakita, K., 2013. Geology and tectonics of Japanese islands: A review – The key to understanding the geology of Asia. *J. Asian Earth Sci.* 72, 75–87.
- Walling, D.E., 2005. Tracing suspended sediment sources in catchments and river systems. *Sci. Total Environ.* 344, 159–84.
- Walling, D.E., 2013. The evolution of sediment source fingerprinting investigations in fluvial systems. *J. Soils Sediments* 13, 1658–1675.
- Walling, D.E., Collins, A.L., Stroud, R.W., 2008. Tracing suspended sediment and particulate phosphorus sources in catchments. *J. Hydrol.* 350, 274–289.
- Walling, D.E., Woodward, J.C., 1992. Use of radiometric fingerprints to derive information on suspended sediment sources, in: *Erosion and Sediment Transport Monitoring Programmes in River Basin*. IAHS Publ, vol. 210. Wallingford: IAHS Press; 1992. p. 153–64
- Wikipedia, 2015a. [https://commons.wikimedia.org/wiki/File:Fukushima\\_I\\_Nuclear\\_Powerplant\\_site\\_close-up\\_%28wotext%29.PNG](https://commons.wikimedia.org/wiki/File:Fukushima_I_Nuclear_Powerplant_site_close-up_%28wotext%29.PNG) (Dernier accès Juillet 2015)
- Wikipedia, 2015b. <https://fr.m.wikipedia.org/wiki/Fichier:BoilingWaterReactor-fr.svg> (Dernier accès Juillet 2015)
- Wikipedia, 2015c. [https://commons.wikimedia.org/wiki/File:Rbmk\\_fuel\\_rod.png?uselang=ru](https://commons.wikimedia.org/wiki/File:Rbmk_fuel_rod.png?uselang=ru) (Dernier accès Juillet 2015)
- Wikipedia, 2015d. [https://commons.wikimedia.org/wiki/File:Fukushima\\_I\\_Powerplant\\_%28Tsunami\\_hight%29.PNG](https://commons.wikimedia.org/wiki/File:Fukushima_I_Powerplant_%28Tsunami_hight%29.PNG) (Dernier accès Juillet 2015)
- Wikipedia, 2015e. [https://fr.wikipedia.org/wiki/Fichier:Fukushima\\_16-mar.svg](https://fr.wikipedia.org/wiki/Fichier:Fukushima_16-mar.svg) (Dernier accès Juillet 2015)
- Wikipedia, 2015f. <https://fr.wikipedia.org/wiki/Fichier:Diagramme-de-hjulstrom.png> (Dernier accès Juillet 2015)
- Winiarek, V., Bocquet, M., Saunier, O., Mathieu, A., 2012. Estimation of errors in the inverse modeling of accidental release of atmospheric pollutant: Application to the reconstruction of the cesium-137 and iodine-131 source terms from the Fukushima Daiichi power plant. *J. Geophys. Res.* 117, D05122.
- Wischmeier, W., Johnson, C., Cross, B., 1971. A soil erodibility nomograph for farmland and construction sites. *J. Soil Water Conserv.* 189–193.
- Wischmeier, W.H. and Smith, D.D., 1958. Rainfall energy and its relationship to soil loss. *Transactions American Geophysical Union*, 39(2): 285-291.

- Wischmeier, W.H., Smith, D.D., 1960. A universal soil-loss equation to guide conservation farm planning. *Trans. 7th int. Congr. Soil Sci.* 1, 418–425.
- Wong, Miguel, and Gary Parker. "Reanalysis and correction of bed-load relation of Meyer-Peter and Müller using their own database." *Journal of Hydraulic Engineering* 132.11 (2006): 1159-1168.
- Yagi, Y., Fukahata, Y., 2011. Rupture process of the 2011 Tohoku-oki earthquake and absolute elastic strain release. *Geophysical Research Letters* 38, L19307. <http://dx.doi.org/10.1029/2011GL048701>.
- Yamada, S., Kitamura, A., Kurikami, H., Yamaguchi, M., Malins, A. and Machida, M., 2015. Sediment and <sup>137</sup>Cs transport and accumulation in the Ogaki Dam of eastern Fukushima. *Environmental Research Letters*, 10(1): 014013.
- Yamaguchi, M., Kitamura, A., Oda, Y. and Onishi, Y., 2014. Predicting the long-term <sup>137</sup>Cs distribution in Fukushima after the Fukushima Dai-ichi nuclear power plant accident: a parameter sensitivity analysis. *J. Environ. Radioact.*, 135: 135-146.
- Yamamoto, T., 2013. Quantitative re-description of tephra units since 0.3 Ma in the Tochigi-Ibaraki region, NE Japan. *Bull. Geol. Surv. JAPAN* 64, 251–304.
- Yamasaki, S., Takeda, A., Nunohara, K., Tsuchiya, N., 2013. Red soils derived from limestone contain higher amounts of trace elements than those derived from various other parent materials 692–699.
- Yamashiki, Y., Onda, Y., Smith, H.G., Blake, W.H., Wakahara, T., Igarashi, Y., Matsuura, Y. and Yoshimura, K., 2014. Initial flux of sediment-associated radiocesium to the ocean from the largest river impacted by Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant. *Scientific Reports*, 4.
- Yoshida, N., Kanda, J., 2012. Geochemistry. Tracking the Fukushima radionuclides. *Science* 336, 1115–6.
- Yoshihara, T., Matsumura, H., Tsuzaki, M., Wakamatsu, T., Kobayashi, T., Hashida, S.-N., Nagaoka, T., Goto, F., 2014. Changes in radiocesium contamination from Fukushima in foliar parts of 10 common tree species in Japan between 2011 and 2013. *J. Environ. Radioact.* 138C, 220–226.
- Yoshikawa, N., Obara, H., Ogasa, M., Miyazu, S., Harada, N., Nonaka, M., 2014. <sup>137</sup>Cs in irrigation water and its effect on paddy fields in Japan after the Fukushima nuclear accident. *Sci. Total Environ.* 481, 252–259.
- Yoshimura, K., Onda, Y., Kato, H., 2015a. Evaluation of radiocaesium wash-off by soil erosion from various land uses using USLE plots. *J. Environ. Radioact.* 139, 362–9.
- Yoshimura, K., Onda, Y., Sakaguchi, A., Yamamoto, M., Matsuura, Y., 2015b. An extensive study of the concentrations of particulate/dissolved radiocaesium derived from the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident in various river systems and their relationship with catchment inventory. *J. Environ. Radioact.* 139, 370–378.
- Yu, W., He, J., Lin, W., Li, Y., Men, W., Wang, F., Huang, , 2015. Distribution and risk assessment of radionuclides released by Fukushima nuclear accident at the northwest Pacific. *J. Environ. Radioact.* 142, 54–61.
- Zachar, D., 1982. *Soil Erosion*. Elsevier, *Developments in Soil Science* 10.
- Zhao, D., 2015. The 2011 Tohoku earthquake (Mw 9.0) sequence and subduction dynamics in Western Pacific and East Asia. *J. Asian Earth Sci.* 98, 26–49.
- Zhen Shao, Huang, 1997. *Speed of the Continental Plates*. The Physics Factbook.
- Zheng, J., Tagami, K., Bu, W., Uchida, S., Watanabe, Y., Kubota, Y., Fuma, S., Ihara, S., 2014. <sup>135</sup>Cs/<sup>137</sup>Cs isotopic ratio as a new tracer of radiocesium released from the Fukushima nuclear accident. *Environ. Sci. Technol.* 48, 5433–8.
- Zingg A.W. 1940. Degree and length of land slope as it affects soil loss and runoff. *Agric. Eng.* 21: 59-64.
- Zobeck, T.M., 1989. Fast-Vac – a vacuum system to rapidly sample loose granular material. *Trans. ASAE* 32, 1316–1318.





# CHAPITRE II



# CHAPITRE II – PRESENTATION DU SITE D’ETUDE ET DE LA METHODOLOGIE

---

## Sommaire

<b>CARACTERISTIQUES DE LA ZONE D’ETUDE</b>	<b>66</b>
CONTAMINATION DES BASSINS VERSANTS COTIERS	66
CARACTERISTIQUES DES BASSINS VERSANTS	67
GÉOLOGIE DU SITE D’ÉTUDE	69
PÉDOLOGIE DU SITE D’ÉTUDE	70
Andosol	71
Cambisol	72
Gleyic Fluvisol	73
Gleysol	73
Histosol	74
Regosol	74
CONNECTIVITE SEDIMENTAIRE	75
<b>ECHANTILLONNAGES DES SEDIMENTS ET DES SOURCES POTENTIELLES</b>	<b>77</b>
<b>METHODES D’ANALYSE</b>	<b>81</b>
ANALYSE PAR SPECTROMETRIE GAMMA	81
La spectrométrie gamma	81
Fonctionnement du détecteur	82
Les détecteurs Fukushima	84
Préparation des échantillons	85
Paramètres de mesure	86
Choix des pics et radionucléides mesurés	87
ANALYSE PAR ACTIVATION NEUTRONIQUE	88
Principe de l’activation neutronique	89
Irradiation des échantillons de Fukushima	90
Analyse par spectrométrie gamma des échantillons irradiés	92
Standards	94
Validation de la teneur élémentaire des échantillons irradiés	94
ANALYSES COMPLEMENTAIRES	96
Diffraction des rayons X	96
Granulométrie	96
Carbone organique total	97
<b>CONCLUSION DU CHAPITRE II</b>	<b>98</b>
<b>REFERENCES</b>	<b>99</b>

# PRESENTATION DU SITE D'ETUDE ET DE LA METHODOLOGIE

Le travail mené au cours de cette thèse a pour but de tracer la dispersion des sédiments contaminés dans les bassins versants côtiers. Dans cette perspective, les travaux suivants ont été réalisés :

- Collecte de sols (n=95) et de sédiments (n=271) lors de campagnes d'échantillonnage couvrant l'ensemble des bassins versants côtiers et réalisées après les principaux événements érosifs (crues printanières et typhons),
- Analyse par spectrométrie gamma de tous les échantillons pour connaître l'activité des principaux émetteurs gamma ( $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{110\text{m}}\text{Ag}$ ...),
- Analyse par activation neutronique (*Instrumental Neutron Activation Analysis*, INAA) d'une sélection d'échantillons (54 sols et 101 laisses) permettant l'identification d'une trentaine d'éléments chimiques.

L'objet de ce chapitre est de présenter les différentes méthodes mises en œuvre au cours de ces travaux.

## II - 1 CARACTERISTIQUES DE LA ZONE D'ETUDE

### II - 1.1 CONTAMINATION DES BASSINS VERSANTS COTIERS

L'étude se concentre sur plusieurs bassins versants côtiers situés au Nord de la centrale (Mano, Niida et Ota), fortement impactés par les dépôts de contamination (Figure II - 1-1). Dans ces bassins versants qui drainent la partie la plus contaminée du panache de pollution radioactive, étudier la dispersion de la contamination est un enjeu crucial notamment via à vis de la population installée sur la plaine côtière comme à Minamisoma (Figure II - 1-1), ville japonaise d'environ 60 000 habitants, qui est directement impactée par la dispersion de la contamination (Chartin et al., 2013).

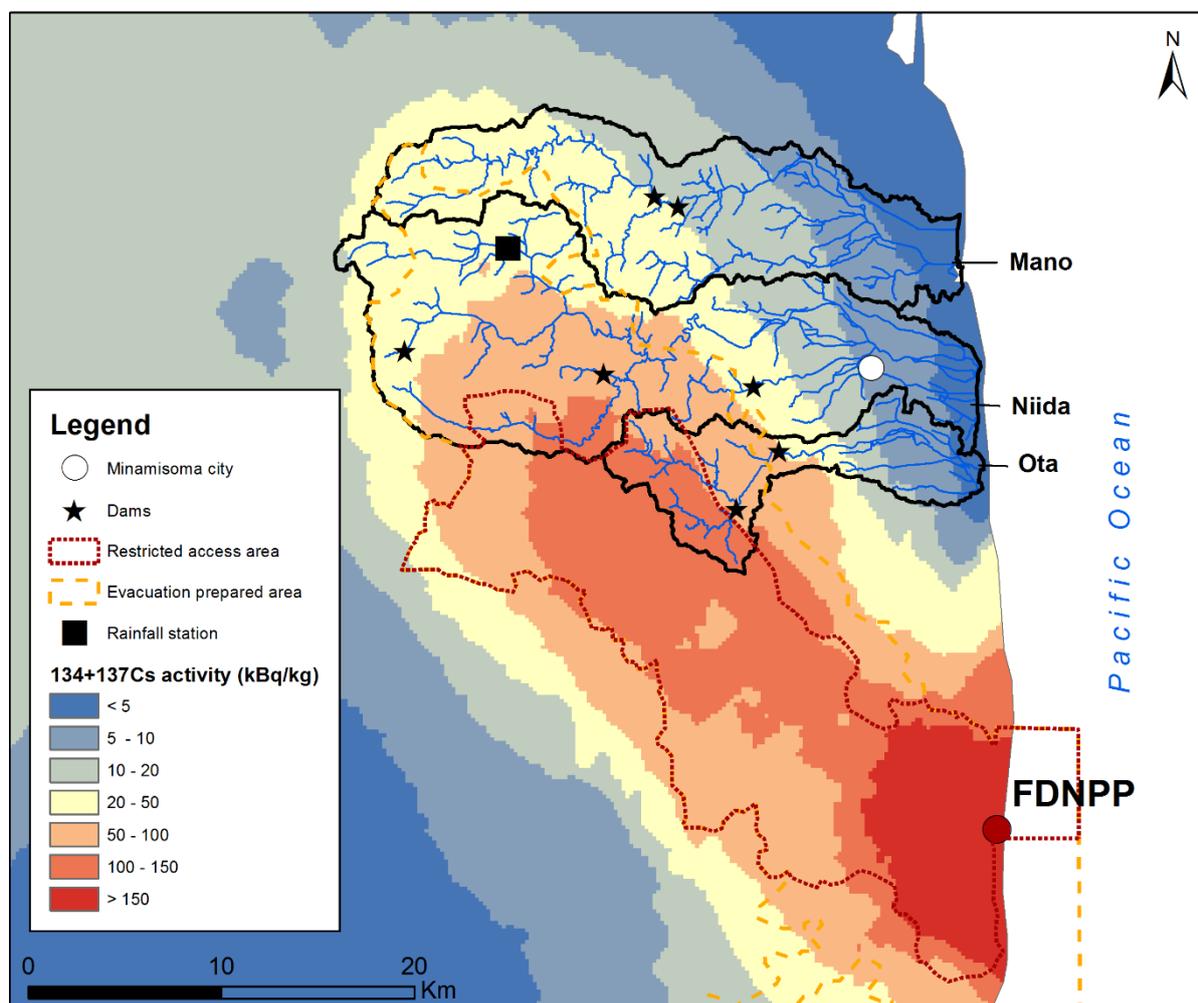


Figure II - 1-1 - Contamination massique en radiocésium dans les bassins versants côtiers corrigée de la décroissance au 14 juin 2011 d'après les travaux du MEXT (MEXT, 2011b).

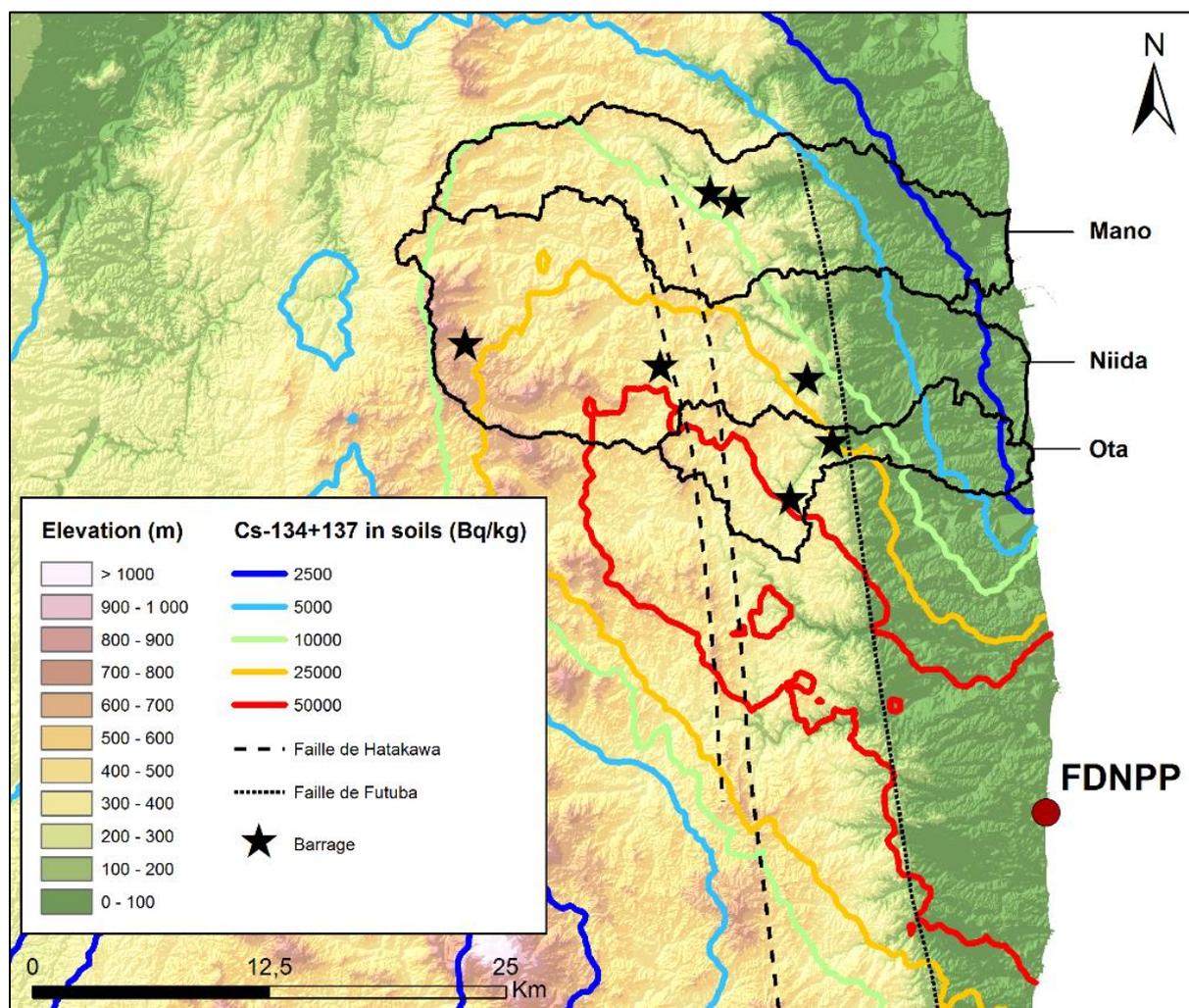
## II - 1.2 CARACTÉRISTIQUES DES BASSINS VERSANTS

Les caractéristiques de contamination des trois bassins versants sont présentées dans le tableau suivant.

**Tableau II - 1-1 - Caractéristiques de contamination initiale des bassins versants côtiers.**

BV	Taille	Contamination totale (TBq = $10^{12}$ Bq)	Contamination surfacique (TBq/km <sup>2</sup> )
<b>Mano</b>	175km <sup>2</sup>	78,1	0,46
<b>Niida</b>	270km <sup>2</sup>	283,4	1,07
<b>Ota</b>	80km <sup>2</sup>	111,0	1,44

Le bassin versant de la Mano a été le moins impacté par les retombées (Figure II - 1-2 - Tableau II - 1-1). Il possède un barrage (capacité de 36 200 000m<sup>3</sup>) qui sépare la zone montagneuse, plus contaminée, de la zone côtière (Figure II - 1-2).



**Figure II - 1-2 - Topographie des bassins versants (Geospatial Information Authority of Japan).**

Les barrages sont connus pour stocker les sédiments et éventuellement les disperser à nouveau lors de lâchers (Kurikami et al., 2014). Il est donc primordial d'analyser l'impact de ce type d'ouvrage sur la dispersion de la contamination. C'est aussi le cas du bassin de l'Ota qui est équipé de deux barrages (capacités de 6 000 000m<sup>3</sup> et 13 000 000m<sup>3</sup>). Le stockage des sédiments dans les barrages dépend en partie de la taille de ces particules (Yamada et al., 2015). Ainsi, Kitamura et al. (2015) ont montré que 100% des particules de sable, 95% des limons mais seulement 50% des argiles étaient retenus par un barrage. Or, ce sont ces argiles qui fixent et transportent préférentiellement le <sup>137</sup>Cs.

Les différentes études menées dans les bassins versants de la Mano et de l'Ota montrent une dispersion constante de la contamination durant les deux premières années qui ont suivi l'accident (Chartin et al., 2013, Evrard et al., 2013).

Le bassin de la Niida est le plus grand de ceux qui ont été étudiés. Sa partie montagneuse (Figure II - 1-2) est caractérisée par une importante activité agricole avec l'implantation de nombreuses rizières le long des cours d'eau (Figure II - 1-3). Les trois barrages que l'on voit sur la figure précédente sont situés sur des affluents mineurs et n'impactent pas le cours d'eau principal.

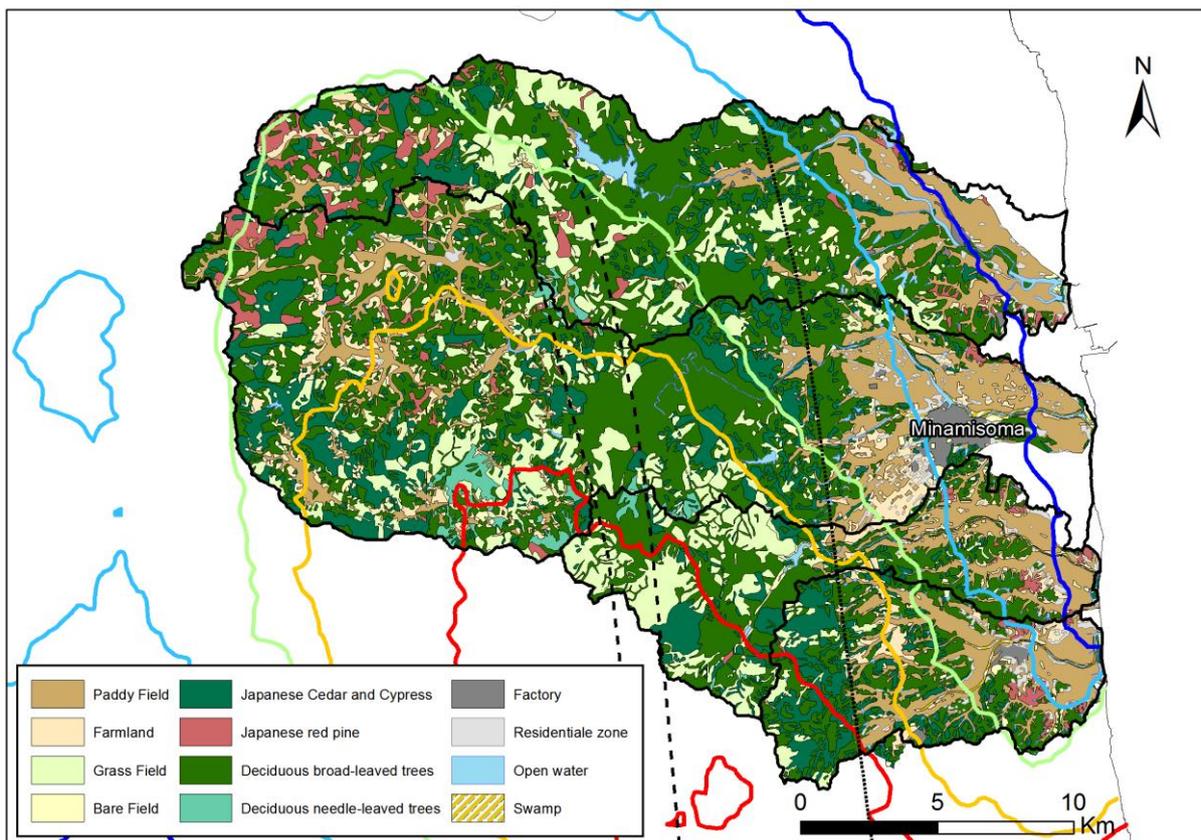


Figure II - 1-3 - Utilisation des sols dans les bassins versants étudiés (Land conservation research, 2005).

Au Japon, la culture du riz débute courant avril avec le puddling, une action qui consiste à mélanger la couche supérieure du sol avec de l'eau (Wakahara et al., 2014). Le riz est ensuite planté et les rizières sont irriguées plusieurs fois au cours de l'année jusqu'à septembre où le riz est récolté (Natuhara, 2013).

Les rizières sont généralement des parcelles de sols entourées de petites berges (10 à 30 cm) et le niveau d'eau lors de l'irrigation est compris entre 5 et 10 cm (Wakahara et al., 2014). Au moment de l'accident et des premiers dépôts, les rizières étaient caractérisées par l'absence de couvert végétal et étaient recouvertes d'une couche de neige. La contamination a ainsi pu pénétrer dans les sols au printemps (Takahashi et al., 2014).

### II - 1.3 GÉOLOGIE DU SITE D'ÉTUDE

Du point de vue de la géologie, les bassins versants sont caractérisés par la présence de granites et de granodiorites dans la zone amont (Figure II - 1-4), un mélange de schistes et de roches sédimentaires du Permien dans la zone à fort gradient de pente en milieu de bassin et, enfin, un mélange de roches sédimentaires dans la zone côtière (Geological Survey of Japan, 2012). On note également la présence d'une couche de roches volcaniques dans le bassin versant de la Mano.

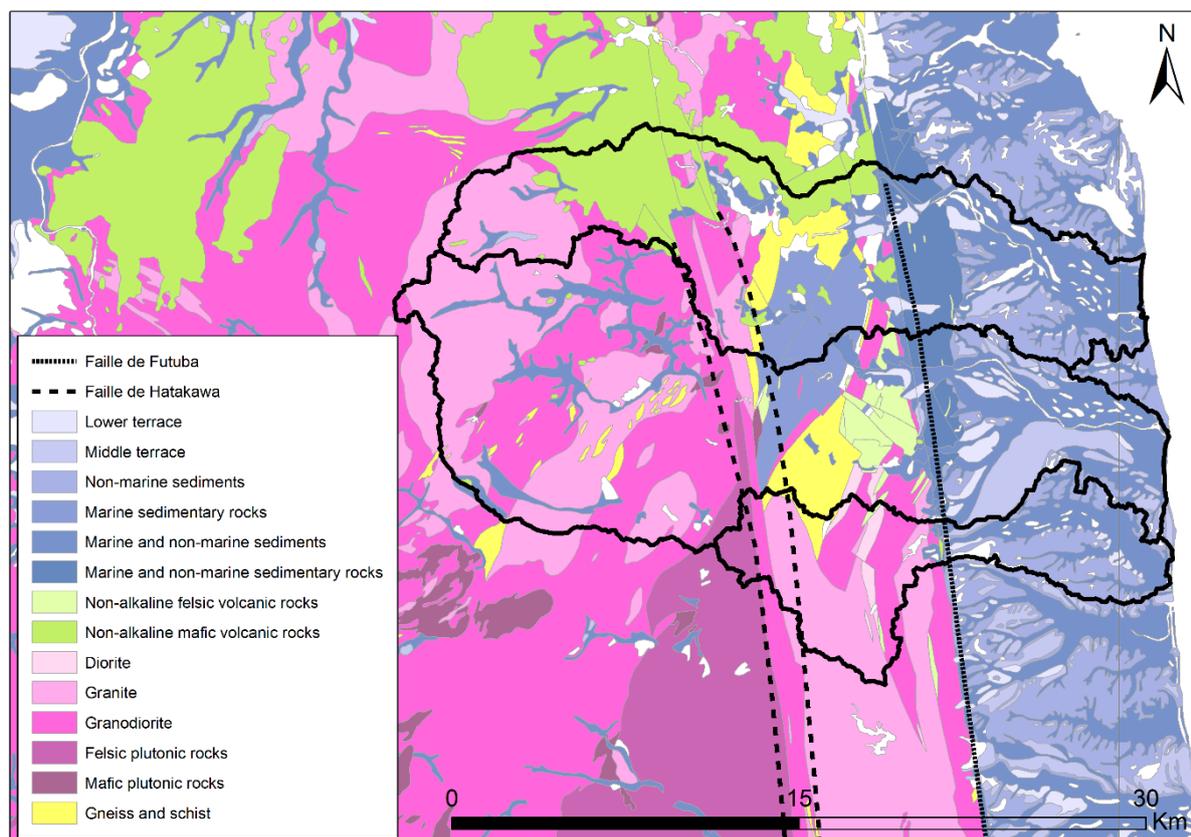


Figure II - 1-4 - Géologie des bassins versants étudiés (Geological Survey of Japan, 2012).

## II - 1.4 PÉDOLOGIE DU SITE D'ÉTUDE

L'obtention de la carte des sols de la zone d'étude fut plus compliquée que celle de la carte géologique. En effet, il existe 3 cartes des sols dans la zone étudiée (Tableau II - 1-2).

Tableau II - 1-2 - Caractéristiques des cartes des sols de la Préfecture de Fukushima

Reference	Année	Résolution
Fundamental Land Classification Survey in Fukushima (Economic Planning Agency, 1972)	1972	1 : 200 000
Soil Map of Japan (Nagatsuka & Okazaki, 1990)	1990	1 : 2 000 000
Agricultural soil map* of Fukushima Prefecture (Geographical Survey Institute, 2002)	2002	1 : 25 000

\* Ne donne que le type de sol des parcelles agricoles (soit <20% de la surface totale des bassins versants).

Nous avons choisi d'utiliser la carte de 1972 pour nos études car celle-ci est complète tout en ayant une meilleure résolution que la carte des sols de 1990.

Sur cette carte (Figure II - 1-5), outre la présence de Cambisols, on remarque la présence marquée de sols développés sur des cendres volcaniques. Ces Andosols sont surtout présents dans la partie montagneuse de la Mano et de la Niida. Cependant, quelques différences ont été observées dans la partie amont de la Niida entre la carte de 1972 et celle de 2002. Sur cette dernière, de nombreux Fluvisols recouvrent cette zone. Cette différence devra être prise en compte lors de l'interprétation des résultats de traçage.

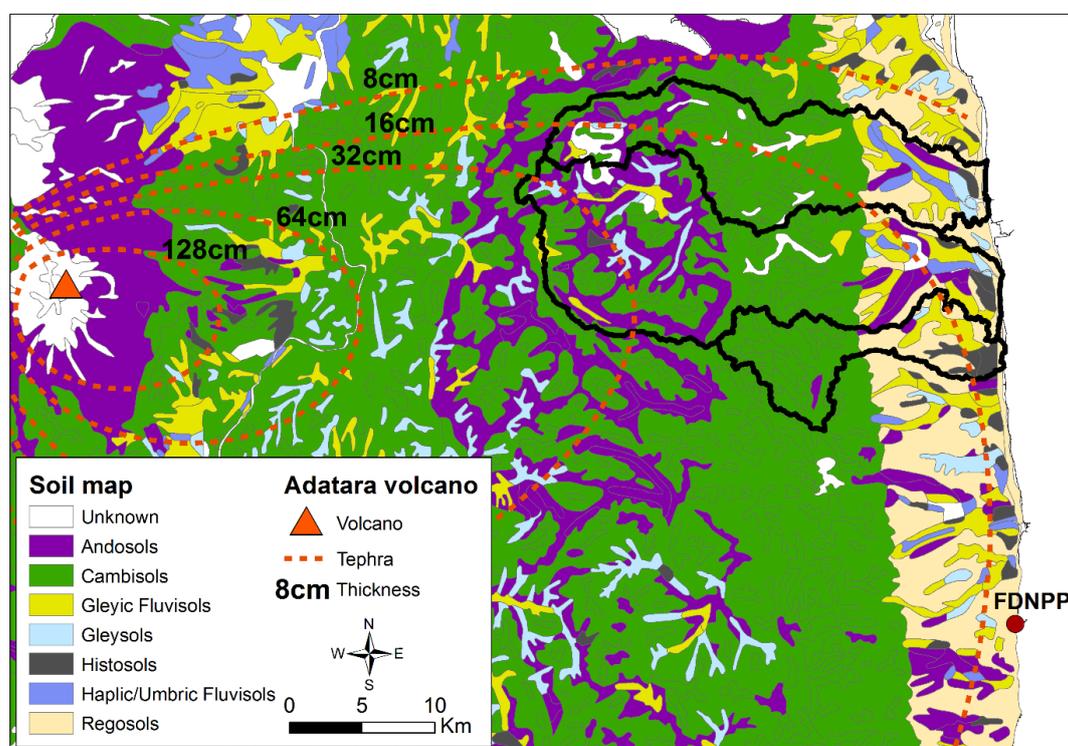
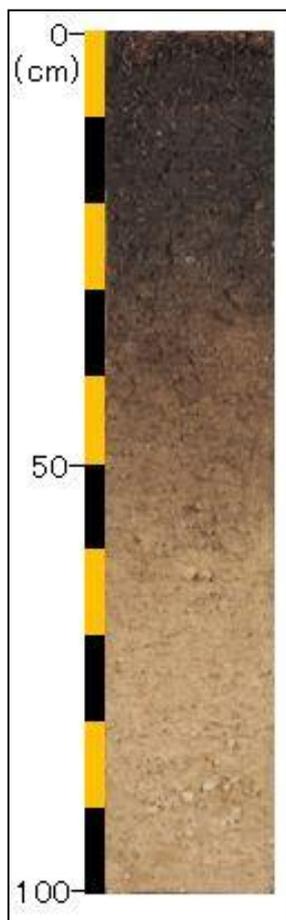


Figure II - 1-5 – Carte des sols des bassins versants étudiés (Economic Planning Agency, 1972) et dépôts de téphras (principalement des cendres volcaniques) issus du volcan Adatara (Yamamoto, 2013).

Les principaux types de sol rencontrés dans les bassins étudiés sont décrits succinctement ci-dessous.

---

#### II - 1.4.1 ANDOSOL :



**Figure II - 1-6 - Profil d'un Andosol**  
(Geographical Survey Institute, 2002).

Les Andosols japonais sont étudiés depuis de nombreuses années, et ils se forment à partir de cendres volcaniques (Mizota et al., 1982; Hirai and Hamazaki, 2004; Takeda et al., 2008). Matsuzaka (1977) estimait que 12% des rizières au Japon étaient composées d'Andosols.

Les Andosols sont caractérisés par une couche supérieure sombre d'une épaisseur comprise entre 25 et 50cm et dont la teneur en carbone organique peut atteindre 10% (NIAES, 1996 ; Takeda et al., 2004 ; Kamei-Ishikawa et al., 2008; Geographical Survey Institute, 2002). Ainsi, Koarashi et al. (2012) estimaient que la teneur en carbone organique dans les Andosols de la Préfecture de Fukushima était d'environ 59gC/kg (5,9%). Enfin, leur densité varie entre 0,5 et 0,8g/cm<sup>3</sup>, la rétention d'eau y est forte et ces sols sont facilement érodés (NIAES, 1996 ; Geographical Survey Institute, 2002).

Takeda et al. (2004) ont étudié la composition élémentaire d'environ 500 sols japonais et leurs résultats montrent que les Andosols présentent un excès en C, N, Mg, Al et P, mais qu'ils contiennent par contre moins de Li, Si, K, Rb, Nb, Sn, Sb, Cs, Ce, Ta, W, Th, U que les autres types de sol.

Dans la Préfecture de Fukushima, on trouve principalement ce type de sol dans les rizières (Endo et al., 2013; Nakao et al., 2014; Takeda et al., 2014). C'est un sol connu pour présenter un pourcentage de fixation du <sup>137</sup>Cs plus faible que les autres sols (Kamei-Ishikawa et al., 2008; Vandebroek et al., 2012). Cette particularité provient du fait qu'il contient des minéraux amorphes (allophane) qui retiennent peu le <sup>137</sup>Cs (Fontes et al., 2004 ; Vandebroek et al., 2012).

Ce faible taux de fixation a été mis en évidence par la détermination du Potentiel d'Interception du Radiocésium (*Radiocesium Interception Potential* — RIP), qui caractérise la capacité d'un sol à adsorber le radiocésium sur les sites de bordures (FES). Ainsi, Vandebroek et al. (2012) ont estimé le RIP des Andosols dans le monde entre 0,32 et 1,78 mol.kg<sup>-1</sup> (à titre de comparaison les Cambisols présentent un RIP compris entre 3 et 8 mol.kg<sup>-1</sup>). Toutefois, les Andosols de la Préfecture de Fukushima ont été caractérisés par des RIP pouvant être plus élevés que ceux des autres pays. Ainsi, le RIP des Andosols de Fukushima varie de 2,22 à 7,10 mol.kg<sup>-1</sup> (Fan et al., 2014). Cette différence peut s'expliquer par le fait que les proportions de minéraux qui composaient initialement les sols des rizières ont été modifiées par l'apport d'autres minéraux lors de l'irrigation (Nemoto et al., 2013). En effet, cette hypothèse est confirmée par la Préfecture de Fukushima citée par Takahashi et al. (2014).

## II - 1.4.2 CAMBISOL

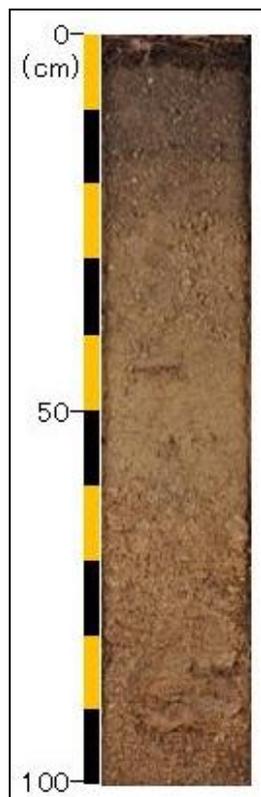
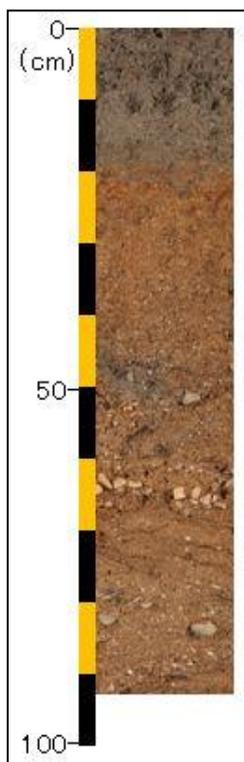


Figure II - 1-7 - Profil d'un Cambisol (Geographical Survey Institute, 2002).

Ce type de sol se retrouve principalement sous les forêts (Imaya et al., 2002; Hirai and Hamazaki, 2004; Hashimoto et al., 2013; Matsuda et al., 2014) et dans les zones à forts gradients de pente (Geographical Survey Institute, 2002). Il contient environ 15% de graviers, 40% d'argiles et entre 2 et 6% de CaCO<sub>3</sub>. On note également la présence de 32% de kaolonite, 21% d'illite et environ 10% de montmorillonite, trois minéraux susceptibles de fixer fortement le <sup>137</sup>Cs (Funakawa, 1993; Abakumov et al., 2009). Selon Fukuyama et al. (2005), ce sol est formé à partir de gneiss. Parmi les sols japonais, sa composition élémentaire ne montre pas de tendance particulière, les teneurs sont similaires à celle des autres types de sol (Takeda et al., 2004).

II - 1.4.3 GLEYIC FLUVISOL



**Figure II - 1-8 - Profil d'un Fluvisol**  
(Geographical Survey Institute, 2002).

Les Fluvisols sont principalement issus de sédiments alluviaux et distribués le long des plaines alluviales (Food Agricultural Organisation, 2014). On retrouve ainsi de nombreux Fluvisols dans les rizières (NIAES, 1996 ; Hirai and Hamazaki, 2004; Koarashi et al., 2012; Geographical Survey Institute, 2002)

Aussi, Koarashi et al. (2012) n'ont pas trouvé de différence dans la mobilité du  $^{137}\text{Cs}$  en profondeur dans les Andosols et les Fluvisols dans la Préfecture de Fukushima.

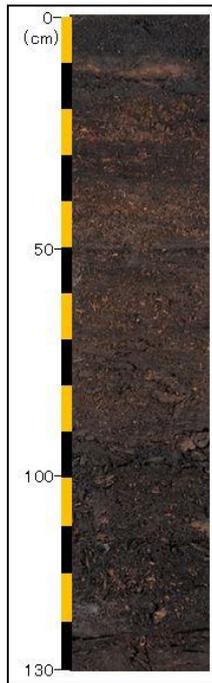
II - 1.4.4 GLEYSOL



**Figure II - 1-9 - Profil d'un Gleysol**  
(Geographical Survey Institute, 2002).

Les Gleysols sont similaires aux Fluvisols et sont issus des sédiments alluviaux (Geographical Survey Institute, 2002). Ces sols se trouvent généralement proches des marais, de la plaine côtière et des deltas (NIAES, 1996).

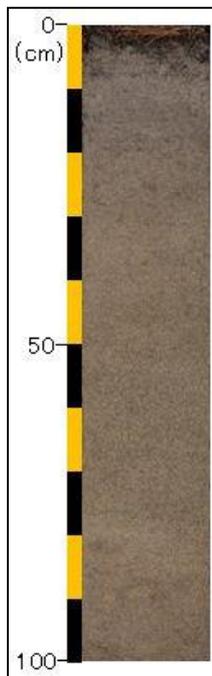
---

 II - 1.4.5 HISTOSOL


**Figure II - 1-10 - Profil d'un Histosol**  
(Geographical Survey Institute, 2002).

Ces sols ont la particularité d'être très organiques (teneur en carbone organique total > 40 %) à défaut de ne pas être sous forêt (Takeda et al., 2004). On le retrouve sous la dénomination de *Peat Soil* au Japon (NIAES, 1996). Ces sols sont considérées comme appauvris en éléments minéraux (Liu et al., 2015). Ce type de sol est issu de l'accumulation de débris végétaux dans les sols et on le trouve principalement dans les plaines alluviales (Geographical Survey Institute, 2002). En raison de l'importante quantité de matière organique qu'il contient, la rétention en eau est fortement marquée dans ce type de sol (densité =  $0,3 \text{ g/cm}^3$ ).

---

 II - 1.4.6 REGOSOL


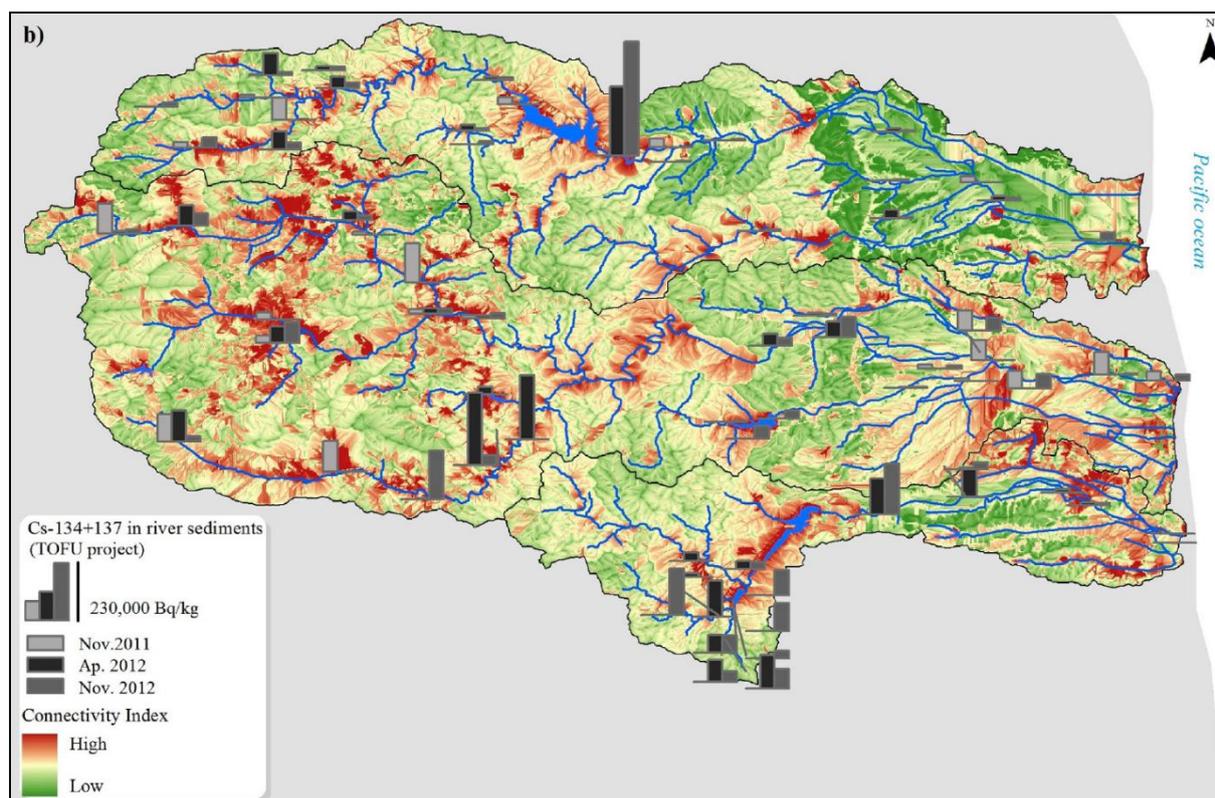
**Figure II - 1-11 - Profil d'un Régosol**  
(Geographical Survey Institute, 2002).

On trouve principalement ce type de sol dans les plaines côtières, notamment lorsqu'il y a des dunes de sables. C'est donc un sol sableux qui provient de dépôts marins ou éoliens. Les horizons sont faiblement marqués le long des profils et on retrouve ces sols le long des côtes japonaises. On les utilise parfois pour cultiver des fruits, des légumes et des fleurs (NIAES, 1996).

## II - 1.5 CONNECTIVITÉ SEDIMENTAIRE

La connectivité sédimentaire est un terme utilisé pour décrire les liens entre les sédiments érodés par des processus de ruissellement sur les versants et les zones de stockage (réservoirs, lacs, exutoire...) (Borselli et al., 2008). Ce terme est donc directement lié à l'environnement des bassins versants et c'est un paramètre qui varie en fonction du temps et de l'espace. Pour le calculer, on utilise des données spatialisées sur l'utilisation des sols, ou encore le relief. Ce terme permet en outre d'obtenir des informations sur le transfert de sédiments lorsque les paramètres permettant d'étudier l'érosion ne sont pas connus (taux d'érosion, flux de matière en suspension...).

A partir de ces informations récupérées sur les bassins versants étudiés, Chartin et al. (2013) ont calculé un indice de connectivité sédimentaire des versants vers les zones de stockage (Figure II - 1-12). Cet indice met en évidence les connexions potentielles entre les versants érodés et les zones de stockage (ou l'exutoire) dans les bassins versants.



**Figure II - 1-12 - Indice de connectivité sédimentaire versants – zones de stockages dans les bassins versants étudiés (Chartin et al., 2013)**

Les résultats montrent que les rizières situées à l'amont des bassins de la Mano et de la Niida sont fortement connectées et constituent donc l'une des principales sources potentielles de particules contaminées pour les rivières (Chartin et al., 2013).

Dans la plaine côtière, les parcelles agricoles sont moins connectées. Dans le bassin de l'Ota, l'utilisation des sols est dominée par des forêts caduques associées à des pentes à fort gradient (Figure II - 1-13a). Ces versants sous forêts présentent donc un indice de connectivité plus élevé que celui des forêts de conifères des autres bassins (Figure II - 1-13b).



**Figure II - 1-13 - a) Forêt d'arbres caducs sur une pente à fort gradient dans le bassin de l'Ota, et b) forêt de conifère avec une litière dense et épaisse qui couvre le sol dans le bassin de la Mano – Source : H. Lepage.**

Dans le cadre de ces travaux de thèse, nous nous sommes appuyés sur cette carte pour concentrer les prélèvements dans les zones des versants les plus connectées aux rivières et, donc, les plus susceptibles de constituer des sources de particules contaminées pour les rivières.

## II - 2 ECHANTILLONNAGES DES SEDIMENTS ET DES SOURCES POTENTIELLES

Lorsqu'il n'y a pas de prélèvement en continu des matières en suspension (MES) dans les rivières, de nombreuses études ont proposé de prélever des laisses de crues comme matrice intégratrice des sédiments déposés lors des derniers événements érosifs (Olley and Caitcheon, 2000; Wallbrink, 2004; Olley et al., 2013). Olley et al. (2013) ont montré que les résultats de traçage obtenus dans un bassin versant australien sur des échantillons de laisses étaient identiques à ceux obtenus sur des échantillons de MES. De plus, la collecte de laisses est particulièrement adaptée pour l'étude de rivières drainant des zones fortement érosives où la charge particulaire est élevée pendant les crues (Evrard et al., 2011).

Pour étudier la dispersion spatiale de la contamination, nous avons donc collecté des laisses de crues sur l'ensemble des bassins versants sélectionnés (Figure II - 2-1), après chaque période érosive, et en ré-échantillonnant systématiquement les mêmes sites :

- Crues printanières => missions d'avril 2012, de mai 2013 et mai 2014
- Saison des typhons => missions de novembre 2011, novembre 2012 et novembre 2013

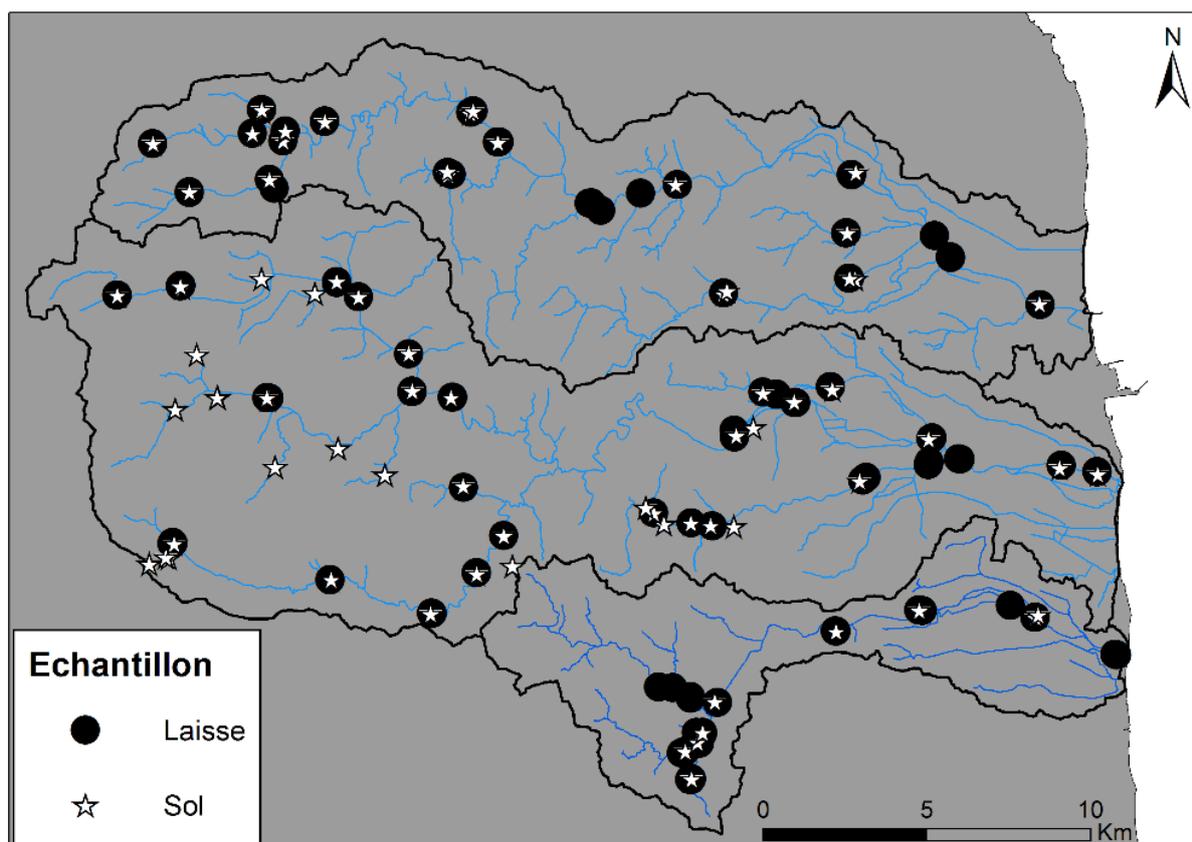


Figure II - 2-1 – Localisation des sites d'échantillonnage où des laisses de crue ont été prélevées entre novembre 2011 et mai 2014.

**Remarque importante :**

Les échantillons de laisses de crues collectées fournissent des données ponctuelles et permettent donc d'obtenir des informations sur les matières déposées à la fin du dernier événement érosif (majeur) à un moment donné. Avec de telles données, il n'est donc pas possible de reconstruire directement le flux de matière transportée par la rivière à cet endroit.

Les campagnes de novembre 2011 et d'avril 2012 ont été réalisées avant le début de cette thèse. Cependant, les échantillons collectés lors de ces missions ont été utilisés dans le cadre de cette thèse et seront donc présentés dans la suite du manuscrit.

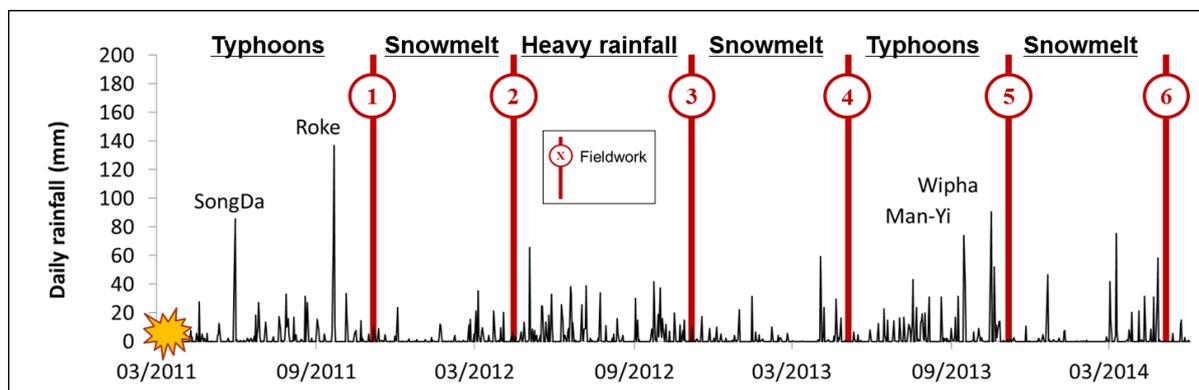
Comme les laisses de crues sont utilisées comme matrice intégratrice des sédiments déposés lors des derniers événements érosifs, les prélever directement après les événements majeurs nous permet de caractériser les matériaux transportés par ces événements. Au total, 271 échantillons de laisses de crues et 95 échantillons de sols ont ainsi été collectés (Tableau II - 2-1 – Annexe 1).

**Tableau II - 2-1 - Nombre d'échantillons de laisses de crues et de sols collectés dans chaque bassin versant et pour chaque campagne de prélèvement.**

Campagne	Nombre d'échantillons prélevés - laisses/sols		
	Mano	Niida	Ota
Novembre 2011	7/5	19/10	0/0*
Avril 2012	11/5	17/10	7/2
Novembre 2012	19/10	21/11	13/6
Mai 2013	19/0	22/2	12/2
Novembre 2013	19/2	22/20	12/2
Mai 2014	18/2	21/6	12/0
<b>Total</b>	<b>93/24</b>	<b>122/59</b>	<b>56/12</b>

\* L'accès à ce bassin était interdit jusqu'en avril 2012 car il était encore très fortement contaminé.

Dans ces bassins versants caractérisés par l'occurrence de typhons, le cumul des précipitations a atteint 3300mm de novembre 2011 à mai 2014. L'occurrence de 4 typhons a notamment été observée pendant ces trois années dans les bassins versants côtiers (Figure II - 2-2).



**Figure II - 2-2 - Précipitations journalières dans le bassin de la Niida d'après les données de l'Agence Météorologique Japonaise (2014), avec indication de l'occurrence des quatre typhons et des campagnes de prélèvements.**

Pour la collecte des échantillons de sols, nous avons utilisé l'ensemble des cartes disponibles pour orienter nos choix de sites de prélèvement. Pour discriminer les sols de la zone amont de ceux de la zone aval, nous avons utilisé la carte géologique qui présentait des différences de lithologie très marquées entre ces deux zones (granite/granodiorite à l'amont, roches sédimentaires à l'aval). Cependant, les observations de terrain nous ont rapidement conduits à utiliser la carte des sols plutôt que la carte géologique pour caractériser les sources potentielles de sédiments. Les échantillons de sols consistent en un composite de 5 à 10 sous-échantillons prélevés au sein d'une surface de 10 m<sup>2</sup> autour du site de prélèvement. Nous collectons la surface du sol (sur 2 à 5 cm) à l'aide d'une spatule en plastique, car ce sont ces particules qui sont les plus susceptibles d'être érodées et qui concentrent le plus de césium. Les sous-échantillons sont collectés dans un sachet plastique de type zip et identifiés par un code spécifique à l'échantillon et par la date d'échantillonnage.

Les laisses de crues sont collectées dans le lit mineur de la rivière à l'endroit où elles se sont déposées récemment. Pour chaque point de prélèvement, 5 à 10 sous-échantillons susceptibles de s'être déposés lors de la dernière crue sont collectés. Les particules sont prélevées à l'aide d'une spatule en plastique, jusqu'à la couche de graviers grossiers situés en-dessous. Elles sont ensuite placées dans un sac plastique de la même manière que les sols (Figure II - 2-3).



Figure II - 2-3 - Identification d'un prélèvement de laisse de crue – Source : H. Lepage



Figure II - 2-4 - Mesure du débit de dose au niveau d'un sol de la Préfecture de Fukushima – Source : O. Evrard

De plus, au niveau de chaque point de prélèvement, plusieurs mesures de débits de dose ont été réalisées à l'aide d'un radiamètre (LB123 D-H10, Berthold Technologies). La sonde de mesure était placée à quelques centimètres du sol, et pour être représentative, le débit de dose était mesuré à 5 endroits différents pour chacun des sites. Ce débit de dose, exprimé en microsievert par heure ( $\mu\text{Sv/h}$ ), est directement lié à la radioactivité puisqu'il est proportionnel aux rayonnements émis par les radionucléides. Sur le terrain, cette mesure permet d'obtenir rapidement des informations sur la radioactivité des sols et des laisses de crues (Figure II - 2-4). Ainsi, en comparant le débit de dose au niveau des laisses de crues avec celui des sols voisins, on peut obtenir des informations sur l'origine des sédiments. Ainsi, par exemple, lorsque le débit de dose des laisses de crue est beaucoup plus élevé que celui des sols adjacents, on peut considérer que ce matériel provient d'une zone plus contaminée, localisée en amont de ce point de prélèvement.

Cette mesure a notamment fait l'objet de deux publications qui confirment la dispersion de la contamination et le rôle majeur que jouent les typhons sur cette dispersion (Evrard et al., 2013; Evrard et al., 2014).

Evrard, O., Chartin, C., Onda, Y., Patin, J., **Lepage, H.**, Lefèvre, I., Ayrault, S., Otlé, C., Bonté, P., 2013. Evolution of radioactive dose rates in fresh sediment deposits along coastal rivers draining Fukushima contamination plume. *Sci. Rep.* 3, 3079. doi:10.1038/srep03079

Evrard, O., Chartin, C., Onda, Y., **Lepage, H.**, Cerdan, O., Lefèvre, I., Ayrault, S., 2014. Renewed soil erosion and remobilisation of radioactive sediment in Fukushima coastal rivers after the 2013 typhoons. *Sci. Rep.* 4, 4574. doi:10.1038/srep04574

## II - 3 MÉTHODES D'ANALYSE

Comme expliqué au début du chapitre 2, deux méthodes d'analyse vont être utilisées au cours de cette thèse :

- La première, basée sur le rayonnement gamma des échantillons (**spectrométrie gamma**), est une méthode de mesure physique ne nécessitant pas de préparation chimique. Les résultats donnent des informations cruciales sur la radioactivité des échantillons car ils permettent de quantifier l'activité massique du  $^{137}\text{Cs}$ .
- La seconde méthode est basée sur la composition (chimique) élémentaire des échantillons (**analyse instrumentale par activation neutronique**).

---

### II - 3.1 ANALYSE PAR SPECTROMÉTRIE GAMMA

---

#### II - 3.1.1 LA SPECTROMÉTRIE GAMMA

Dans la section I - 1.3.2.1 du chapitre 1, nous avons vu que lors de la désintégration radioactive, une particule était émise (ex :  $\alpha$ ,  $\beta$ , X). Dans la majorité des cas, en plus de cette particule, un photon (particule gamma  $\gamma$ ) est également émis (Chelet., 2006). Si on regarde à nouveau le schéma de désintégration du  $^{137}\text{Cs}$  (Figure I - 1-10), on remarque l'émission de cette particule lors du changement d'état du  $^{137\text{m}}\text{Ba}$  en  $^{137}\text{Ba}$ . De manière générale, lorsqu'un radio-isotope possède un excès d'énergie (comme le  $^{137\text{m}}\text{Ba}$ ), il va émettre une ou plusieurs particules gamma pour se décharger de cet excès.

Chaque particule gamma ainsi émise est caractérisée par une énergie d'émission spécifique. Ainsi, en détectant les particules gamma et en mesurant leur énergie, il est possible de connaître l'activité du radio-isotope. Illustrons cela avec le cas simple du  $^{137}\text{Cs}$  (Figure I - 1-10). Celui-ci, lors de sa désintégration, a une probabilité de 94,6% de produire le  $^{137\text{m}}\text{Ba}$ , isotope qui se trouve dans un état excité qui va émettre une particule gamma d'énergie  $E_\gamma = 662 \text{ keV}$  (probabilité 85,1%) pour retourner dans un état stable ( $^{137}\text{Ba}$ ). En mesurant le nombre de photons gamma d'énergie 662keV, on peut déterminer l'activité massique du  $^{137}\text{Cs}$  (cela nécessite toutefois la mesure d'un standard pour calibrer les énergies mesurées).

La détection du rayonnement gamma est fondée sur les phénomènes d'interaction de celui-ci avec la matière. Ce phénomène permet de transformer l'énergie d'un rayonnement en un courant électrique qui peut ensuite être quantifié à l'aide d'un système électronique approprié.

## II - 3.1.2 FONCTIONNEMENT DU DÉTECTEUR

Dans le cadre de cette thèse, les détecteurs utilisés sont de type GeHP (Germanium Hyper Pur) dont on retrouve le schéma complet dans la figure ci-dessous.

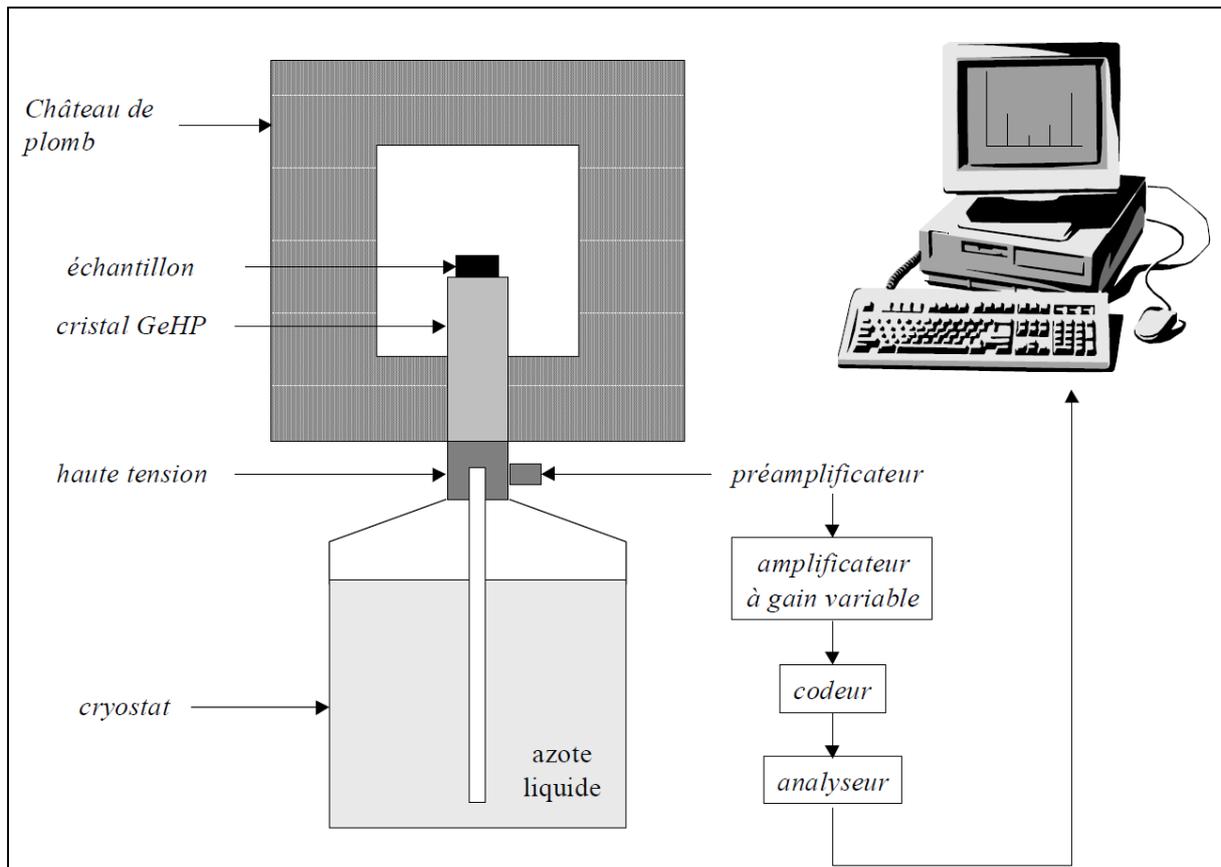


Figure II - 3-1 - Schéma de la chaîne d'analyse par spectrométrie gamma (Tessier, 2003).

Le détecteur est composé de deux ensembles (Tessier, 2003) :

1. Un ensemble de capture composé d'une enceinte contenant de l'azote liquide pour refroidir la sonde de mesure, de la haute tension qui polarise le cristal de germanium et d'une enceinte de protection en plomb archéologique ainsi qu'un blindage en cuivre  $\text{CuC}_2$  pour arrêter la majorité des rayonnements extérieurs et ainsi diminuer le bruit de fond.
2. Un ensemble de traitement électronique qui permet de transformer le signal électrique reçu par la sonde en une information numérique (spectre). Lors de l'interaction du rayonnement, les impulsions générées sont traitées par un préamplificateur puis un amplificateur. Cet amplificateur permet de transformer les impulsions en un signal analogique dont les amplitudes sont proportionnelles à l'énergie des particules gamma. Ce signal est ensuite converti en signal numérique par le codeur, puis l'analyseur permet le lien avec l'ordinateur.

Les spectres ainsi obtenus sont dans un état brut, c'est-à-dire que les énergies associées aux pics d'impulsions ne sont pas encore définies. Pour y parvenir, le détecteur est calibré à l'aide de standards dont les activités en radionucléides sont connues. On utilise généralement des standards contenant les radionucléides que l'on cherche à mesurer (par exemple à Fukushima, on s'intéresse au  $^{137}\text{Cs}$ ). Les standards utilisés au cours de cette thèse sont détaillés dans la section II - 3.1.5.

Toutefois, un certain nombre d'effets « parasites » ont lieu lors des analyses et peuvent impacter le spectre (Chelet, 2006 - Figure II - 3-2) :

- Effet Compton : collision entre un photon et un électron au cours de laquelle la particule gamma n'est pas complètement absorbée par la matière. Le photon est dévié et perd une partie de son énergie.
- Effet photoélectrique : ce phénomène intervient surtout aux faibles énergies et correspond à la perte totale de l'énergie du photon lorsqu'il entre en contact avec un électron périphérique d'un atome.
- Production de paires : le photon disparaît complètement et son énergie engendre la formation d'un électron positif et d'un électron négatif.

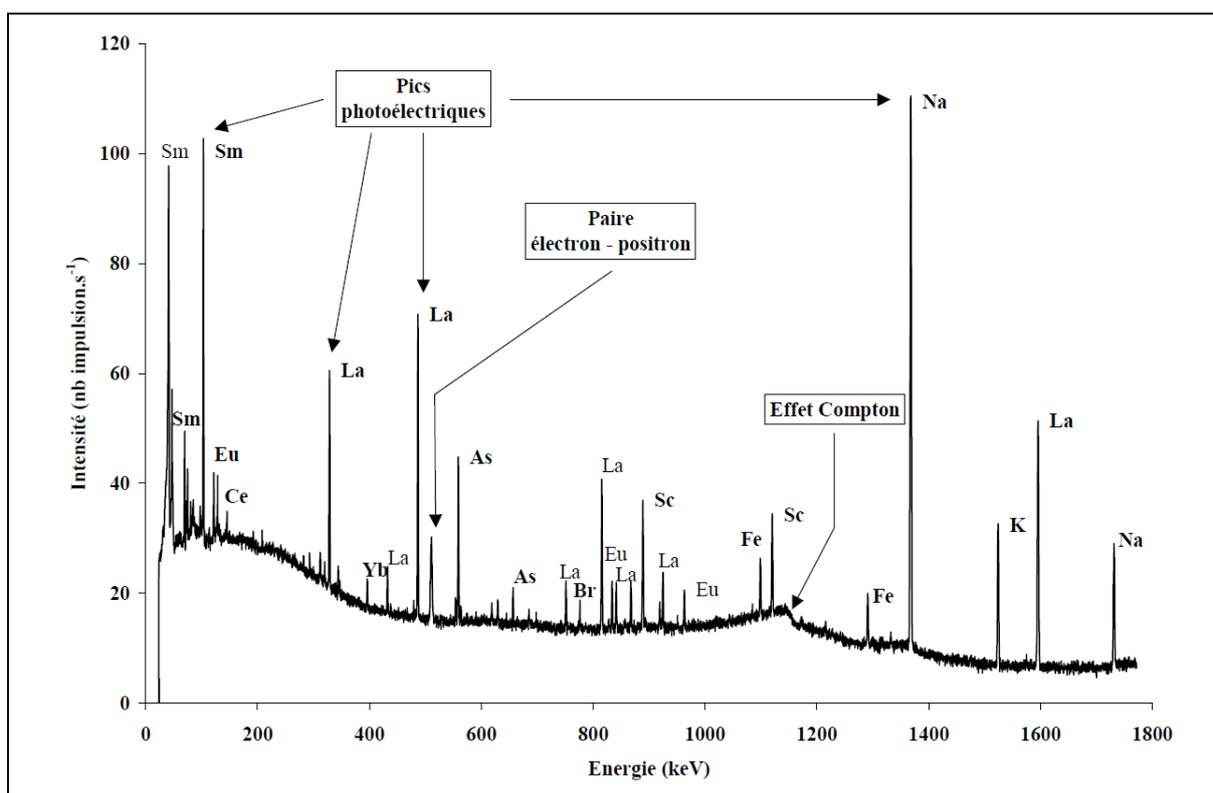


Figure II - 3-2 – Visualisation de l'impact des phénomènes parasites sur un spectre gamma (Tessier, 2003).

De nombreux rayonnements secondaires peuvent également impacter le signal. En effet, au sein de l'enceinte du détecteur, de nombreuses interactions peuvent avoir lieu (Figure II - 3-3). Cependant, l'utilisation de standards d'activité similaire à celle des échantillons permet de s'affranchir de tels problèmes.

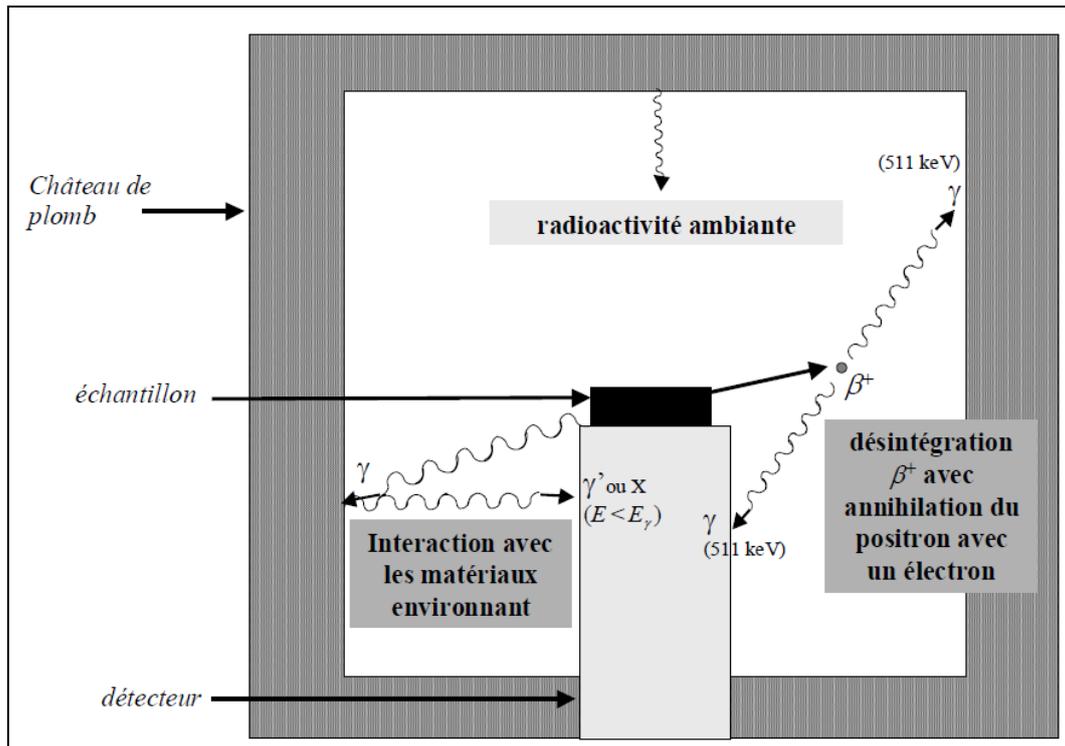


Figure II - 3-3 - Rayonnements secondaires interférant lors de la mesure d'un échantillon (Tessier, 2003).

### II - 3.1.3 LES DÉTECTEURS FUKUSHIMA

Au cours de cette thèse, cinq détecteurs ont été utilisés et sont caractérisés dans le tableau suivant. Ces détecteurs ont été utilisés selon leur disponibilité pour analyser les échantillons dans les délais les plus rapides possible.

Tableau II - 3-1 – Caractéristiques des détecteurs utilisés pour la spectrométrie gamma.

Détecteur	Type	Fournisseur	Efficacité (à 1332 keV)
Dupond	P	Ortec	55,90%
GG	N	Eurisys	43,00%
Milou	N	Eurisys	50,00%
NN	N	Eurisys	32,00%
Tintin	P	Ortec	47,50%

Selon le dopage (on introduit des impuretés dans le cristal pour accroître la conductivité), le type de porteur majoritaire du semi-conducteur peut être les électrons (type N) ou les trous (type P). Selon le type du détecteur, c'est la couche P ou la couche N qui se trouve en surface (et l'autre au milieu ou en bas du cristal). La variation d'efficacité entre ces détecteurs est principalement due à leur date de mise en fonctionnement. L'évolution technologique, des cristaux de Germanium notamment, a permis d'améliorer cette efficacité au fil des années.

#### II - 3.1.4 PREPARATION DES ÉCHANTILLONS

L'ensemble des échantillons de laisses et de sols ont été mesurés par spectrométrie gamma, en ayant subi la même préparation, en respectant des consignes de radioprotection (utilisation d'une boîte à gants, ports de gants en latex, de masques FFP3, de blouses...):

1. Les échantillons ont été séchés à 40°C pendant au moins 48h,
2. Puis ils ont été tamisés à 2 mm (Figure II - 3-4),
3. Ils ont été ensuite broyés en une poudre fine (pour améliorer le rendement de détection en augmentant la masse de l'échantillon pour un même volume),
4. En fonction de leur densité, entre 5 et 30 g de chaque échantillon ont été placés dans une boîte scellée de 15 ml en polyéthylène adaptée et calibrée pour les détecteurs gamma,
5. Chaque boîte a ensuite été placée dans un sachet plastique individuel pour éviter une éventuelle propagation de la contamination dans le détecteur notamment, en cas d'ouverture de la boîte.



Figure II - 3-4 - Tamisage d'un échantillon de Fukushima (ABC Catalyst, 2015).

## II - 3.1.5 PARAMETRES DE MESURE

Comme les échantillons étaient dans l'ensemble fortement contaminés, les durées d'analyse étaient généralement comprises entre 12 et 24h (contre 24 à 48h pour un échantillon environnemental non-contaminé par les retombées de Fukushima pour détecter le  $^{137}\text{Cs}$ ). Ce sont principalement les échantillons des quatre premières campagnes (novembre 2011 à mai 2013) qui ont été analysés plus longtemps (24h max) afin d'obtenir l'activité de l'argent-110 métastable. En effet, le pic d'énergie à 884.7 keV, caractéristique de ce radio-isotope, est en partie masqué par le fond Compton généré par l'ensemble des émissions gamma (notamment à cause des isotopes du césium). Comme  $^{110\text{m}}\text{Ag}$  était caractérisé par une période radioactive courte (249 jours) et un taux d'émission bien inférieur à celui du  $^{137}\text{Cs}$ , son activité était généralement  $<1000\text{Bq/kg}$  et sa détection était très difficile à partir de mai 2013. Les standards utilisés pour étalonner les détecteurs sont décrits dans le Tableau II - 3-2.

**Tableau II - 3-2 – Caractéristiques des standards utilisés pour calibrer les détecteurs.**

Standard	Eléments certifiés	Date de référence
<b>AIEA RGTh-1</b>	Th, U	01/01/2001
<b>AIEA RGU-1</b>	Th, U	01/01/2001
<b>AIEA-312 Ra226 - soil</b>	$^{226}\text{Ra}$ , Th et U	30/01/1988
<b>AIEA-313 - stream sediment</b>	$^{226}\text{Ra}$ , Th et U	30/01/1988
<b>AIEA-372 - Grass Chernobyl</b>	$^{137}\text{Cs}$ , K40	01/06/2006
<b>AIEA-375</b>	U, Ra, Th, K, Cs	31/12/1991
<b>AIEA-444 - Sol Chinois</b>	$^{134}\text{Cs}$ , $^{137}\text{Cs}$ , Am, Co	15/10/2007
<b>AIEA-447 - Moss soil</b>	$^{137}\text{Cs}$ , $^{210}\text{Pb}$ , $^{212}\text{Pb}$ , $^{228}\text{Ac}$ , $^{241}\text{Am}$	15/11/2009
<b>IRSN - S25153*</b>	$^{137}\text{Cs}$ - $^{134}\text{Cs}$ et $^{125}\text{Sb}$	07/01/2011
<b>IRSN- Multi-gamma S25154-5-6</b>	Am-Cd-Co-Cr-Sn-Sr-Cs-Y	22/04/2013

\* Ce standard a été conçu spécialement pour les échantillons de Fukushima. Ainsi, les activités des radionucléides sont très élevées pour être similaires à celles des échantillons prélevés dans les bassins versants côtiers (Activités au 07/01/2011 :  $^{134}\text{Cs}$  = 327,8 kBq/kg ;  $^{137}\text{Cs}$  = 155,4 kBq/kg et  $^{125}\text{Sb}$  = 20,9 kBq/kg).

Le logiciel utilisé pour l'acquisition est Maestro (Ametek) et celui pour le dépouillement des spectres (l'obtention de l'activité de chaque radionucléide) est GammaVision (Ametek). Un exécutable développé par l'équipe est également utilisé pour le dépouillement.

Enfin, pour pouvoir comparer les échantillons des différentes campagnes entre eux, nous devons calculer leurs activités à une date de référence. Dans le cadre de cette thèse, nous avons choisi le 14 mars 2011 car il correspond au jour des premiers et principaux dépôts de contamination (Kinoshita et al., 2011; Shozugawa et al., 2012).

II - 3.1.6 CHOIX DES PICS ET RADIONUCLÉIDES MESURES

De nombreux radionucléides ont pu être mesurés dans les échantillons de Fukushima. Cependant, nous nous intéresserons uniquement à 3 d'entre eux ( $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  et  $^{110\text{m}}\text{Ag}$ ) dont les caractéristiques de détection sont présentées dans le tableau suivant.

Tableau II - 3-3 - Caractéristiques de détection des radionucléides étudiés.

Radionucléides	Energie des pics utilisés (keV)	Intensité des pics (probabilité) en %	Erreur de mesure moyenne
$^{134}\text{Cs}$	604	97,63	5%
	795	85,52	
$^{137}\text{Cs}$	661	84,99	5%
$^{110\text{m}}\text{Ag}$	885	74,00	10%

Le comportement du  $^{137}\text{Cs}$  a été présenté dans le chapitre précédent, c'est le radionucléide artificiel le plus abondant dans l'environnement contaminé et son suivi est très important. Le  $^{134}\text{Cs}$  possède les mêmes propriétés chimiques que le  $^{137}\text{Cs}$  dans l'environnement. Cependant, avec une demi-vie de 2 ans, il se désintègre beaucoup plus rapidement que l'autre isotope du césium. L'intérêt de le mesurer, outre connaître son activité, réside dans le fait qu'il permet de déterminer si la contamination mesurée en  $^{137}\text{Cs}$  est bien issue de l'accident. En effet, on retrouve du  $^{137}\text{Cs}$  sur l'ensemble de la surface du globe terrestre suite aux essais atmosphériques des bombes nucléaires et/ou à l'accident de Tchernobyl (Adam et al., 2005; Steinhäuser et al., 2014), et sa présence pourrait donc être attribuée à tort aux retombées de l'accident de Fukushima. Pour valider son origine, on utilise le ratio  $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ , car il est spécifique à l'accident de Fukushima et il est caractérisé par la composition des combustibles des réacteurs (Evrard et al., 2012). Ainsi, dans la Préfecture de Fukushima, le ratio était proche de 1 à la date de l'accident (Kato et al., 2012; Endo et al., 2013). On peut donc, en le calculant, déterminer la proportion de  $^{137}\text{Cs}$  qui provient de FDNPP.

L' $^{110\text{m}}\text{Ag}$  est un isotope possédant une demi-vie de moins d'un an (249 jours), il est donc difficile de l'étudier dans l'environnement d'autant plus qu'il n'existe pas à l'état naturel. Il s'agit d'un produit d'activation du  $^{109}\text{Ag}$  (stable) que l'on retrouve dans certaines gaines des réacteurs nucléaires (Calmon and Garnier-Laplace, 2002). Le choix de le mesurer sera détaillé dans le chapitre 4 de la thèse (IV - 1.2). Le  $^{110\text{m}}\text{Ag}$  est l'isotope dans un état métastable (m) du  $^{110}\text{Ag}$ . Parfois, le noyau excité (ici le  $^{110}\text{Ag}$ ) ne retourne pas vers son état fondamental mais vers un état excité de plus faible énergie ayant une durée de vie suffisamment longue pour être mesurable (le  $^{110\text{m}}\text{Ag}$ ), on parle alors d'état métastable.

L'ensemble des données de spectrométrie gamma sont dans l'Annexe B.1.

## II - 3.2 ANALYSE PAR ACTIVATION NEUTRONIQUE

De nombreuses méthodes existent pour déterminer la teneur en éléments chimiques dans des échantillons de sols et de sédiments. Dans le cadre de ce travail, nous avons décidé d'utiliser l'analyse par activation neutronique (*Instrumental Neutron Activation Analysis* - INAA), notamment pour deux raisons :

1. Les échantillons analysés sont contaminés (notamment en  $^{137}\text{Cs}$ ) et imposent un contrôle radiologique peu compatible avec les manipulations nécessaires à la préparation des échantillons pour leur analyse par ICP-MS, la technique la plus utilisée dans ce type d'approche de « fingerprinting » (Evrard et al., 2011 ; Wilkinson et al., 2013),
2. En mode instrumental, l'activation neutronique ne nécessite aucune préparation des échantillons et évite donc la perte d'élément soluble lors d'une mise en solution (ex : Fe, Cr...). Compte-tenu de la géologie du site d'étude, on pouvait s'attendre à ce que ces éléments soient discriminants.

L'ensemble des précautions prises lors des manipulations et surtout l'absence de tout traitement chimique limitent considérablement les risques de contamination et de pertes. C'est certainement l'un des avantages majeurs de la méthode par rapport à l'analyse par spectrométrie de masse à plasma (*Inductively coupled plasma mass spectrometry* — ICP-MS). De manière générale, les teneurs mesurées par AAN sont similaires à celles déterminées par ICP-MS (Papaefthymiou et al., 2010 ; Greenberg et al., 2011).

L'irradiation présente d'autres avantages mais aussi des inconvénients, listés dans le tableau suivant.

**Tableau II - 3-4 - Avantages et inconvénients de l'analyse par activation neutronique**

Avantages	Inconvénients
Sensible ( $10^{-12}\text{g}$ )	Nécessite un réacteur nucléaire
Multi élémentaire	Produit des déchets radioactifs
Sans préparation	Certains éléments sont non dosés (ex : Pb)
Précis	
Ne nécessite pas beaucoup de matière (50 mg)	

### II - 3.2.1 PRINCIPE DE L'ACTIVATION NEUTRONIQUE

La première manifestation écrite de l'activation neutronique remonte à 1910 au cours d'une des expériences du chimiste Carl Auer von Welsbach (Steinhauser et al., 2012) mais l'analyse par activation neutronique (AAN) n'a été découverte qu'en 1936 par Hevesy et Levi (Greenberg et al., 2011). C'est une méthode utilisée dans de nombreux domaines comme la biologie, l'environnement ou la géologie (Guéguéniat & Boust, 1985; Joron et al., 1997; Ayrault, 2005; Ravisankar et al., 2006; Greenberg et al., 2011).

L'analyse par activation est fondée sur l'identification et la mesure des rayonnements des radionucléides formés par une réaction nucléaire. Cette technique consiste à soumettre un échantillon à un flux de neutrons afin de produire des isotopes radioactifs émettant des rayonnements gamma (Greenberg et al., 2011; Figure II - 3-5). Cette émission de photons  $\gamma$  correspond au retour à l'état fondamental du noyau ainsi produit et il peut être mesuré par spectrométrie gamma comme décrit dans la section précédente.

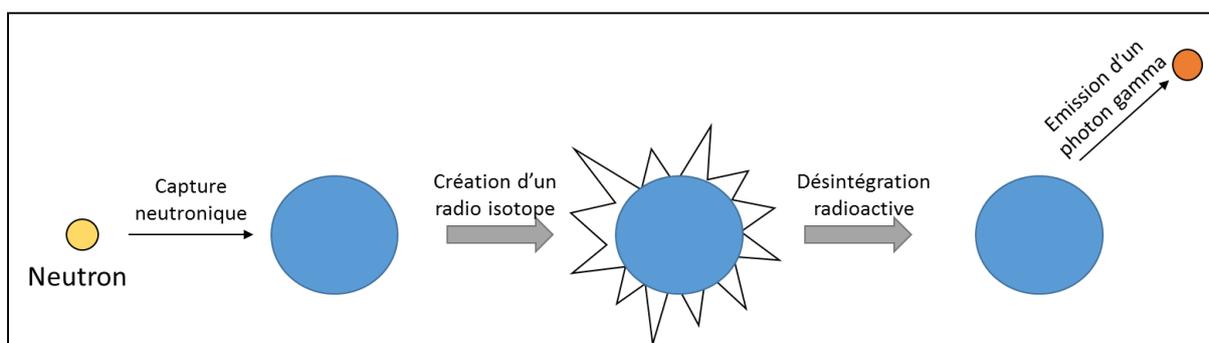
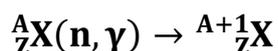


Figure II - 3-5 - Schéma de principe de l'analyse par activation neutronique (adapté de NAA, 2015).

L'interaction d'un neutron avec le noyau d'un isotope conduit à la réaction suivante :



Dans la majorité des cas, l'isotope ainsi produit est radioactif, entraînant sa désintégration progressive. La radioactivité (Bq/kg) du radio-isotope A est donnée par la formule :

$$A = \lambda_B * N_{Bt} = N_A * \sigma_{AB} * \phi * (1 - e^{-\lambda_B t})$$

Avec  $\lambda_B$  la constante radioactive du radio-isotope produit B,  $N_{Bt}$  le nombre d'atomes du radio-isotope produit B après t secondes d'irradiation,  $N_A$  le nombre d'atomes de la cible A par  $\text{cm}^2$ ,  $\sigma_{AB}$  la section efficace de capture en  $\text{cm}^2$  et  $\phi$  le flux de projectiles en particules. $\text{cm}^{-2}.\text{sec}^{-1}$ .

Comme les paramètres  $\phi$  et  $\sigma$  sont difficiles à déterminer, il est difficile d'employer cette formule pour déterminer l'activité. Dans cette étude, nous avons choisi d'utiliser la méthode qui consiste à comparer l'activité produite dans l'échantillon à l'activité produite dans un matériel de référence certifié (de préférence avec une matrice et une composition proche des échantillons analysés) qui sert d'étalon et dont les teneurs en éléments sont connues. En effet, lorsque l'on mesure un autre échantillon, les paramètres  $\phi$  et  $\sigma$  sont les mêmes pour tous les échantillons irradiés en même temps.

On utilise donc la formule suivante pour déterminer les teneurs dans l'échantillon :

$$C_{\text{ech}} = \frac{N_{\text{ech}} * m_s * t_{c_s} * C_s * e^{-\lambda(t_s - t_{\text{ech}})}}{N_s * m_{\text{ech}} * t_{c_{\text{ech}}}}$$

C : concentration d'un élément dans l'échantillon (e) et dans le standard (s),

N : nombre de coups détectés pour un pic d'absorption donné,

m : masse de l'échantillon (e) et du standard (s),

t<sub>c</sub> : temps d'analyse de l'échantillon (e) et du standard (s),

t : temps de décroissance de l'activité de l'élément considéré issu de l'échantillon (e) et du standard (s) entre la fin de l'irradiation et le début de l'analyse,

λ : constante radioactive de l'isotope mesuré.

## II - 3.2.2 IRRADIATION DES ECHANTILLONS DE FUKUSHIMA

Dans le cadre de cette thèse, les irradiations ont été réalisées sur les réacteurs Orphée et Osiris du CEA de Saclay. Si les deux réacteurs ont des caractéristiques différentes, et donc des capacités d'irradiation différentes (Tableau II - 3-5), leur utilisation simultanée a permis d'analyser un plus grand nombre d'échantillons. ORPHEE, réacteur à eau lourde, délivre un flux de neutrons thermiques alors qu'OSIRIS, réacteur à eau légère, fournit des neutrons ayant une distribution en énergie beaucoup plus large avec une composante rapide (dont l'énergie est assez élevée pour provoquer des réactions « à seuil ») du flux neutronique non négligeable. Au final, les radio-isotopes formés lors de l'irradiation dans l'un ou l'autre des réacteurs sont différents.

Tableau II - 3-5 - Caractéristiques des deux réacteurs (Tessier, 2003).

Réacteur	Osiris		Orphée
Modérateur	Eau légère		Eau lourde
Canal	α1	β1	P4
Flux de neutrons thermiques (en n.cm <sup>-2</sup> .s <sup>-1</sup> )	0,9.10 <sup>14</sup>	1,2.10 <sup>14</sup>	2,3.10 <sup>13</sup>
Flux de neutrons épithermiques (en n.cm <sup>-2</sup> .s <sup>-1</sup> )	2,7.10 <sup>12</sup>	4,0.10 <sup>12</sup>	4,0.10 <sup>10</sup>
Proportion de neutrons thermiques (en %)	97,1	96,8	99,8
Proportion de neutrons épithermiques (en %)	2,9	3,2	0,2

Le transfert des navettes (= conteneur à échantillons - Figure II - 3-6) se fait par le biais de l'ex Laboratoire Pierre Süe (CEA/DSM/IRAMIS/NIMBE) qui est directement relié aux deux réacteurs par l'intermédiaire de canaux hydrauliques (OSIRIS) ou pneumatiques (ORPHEE).

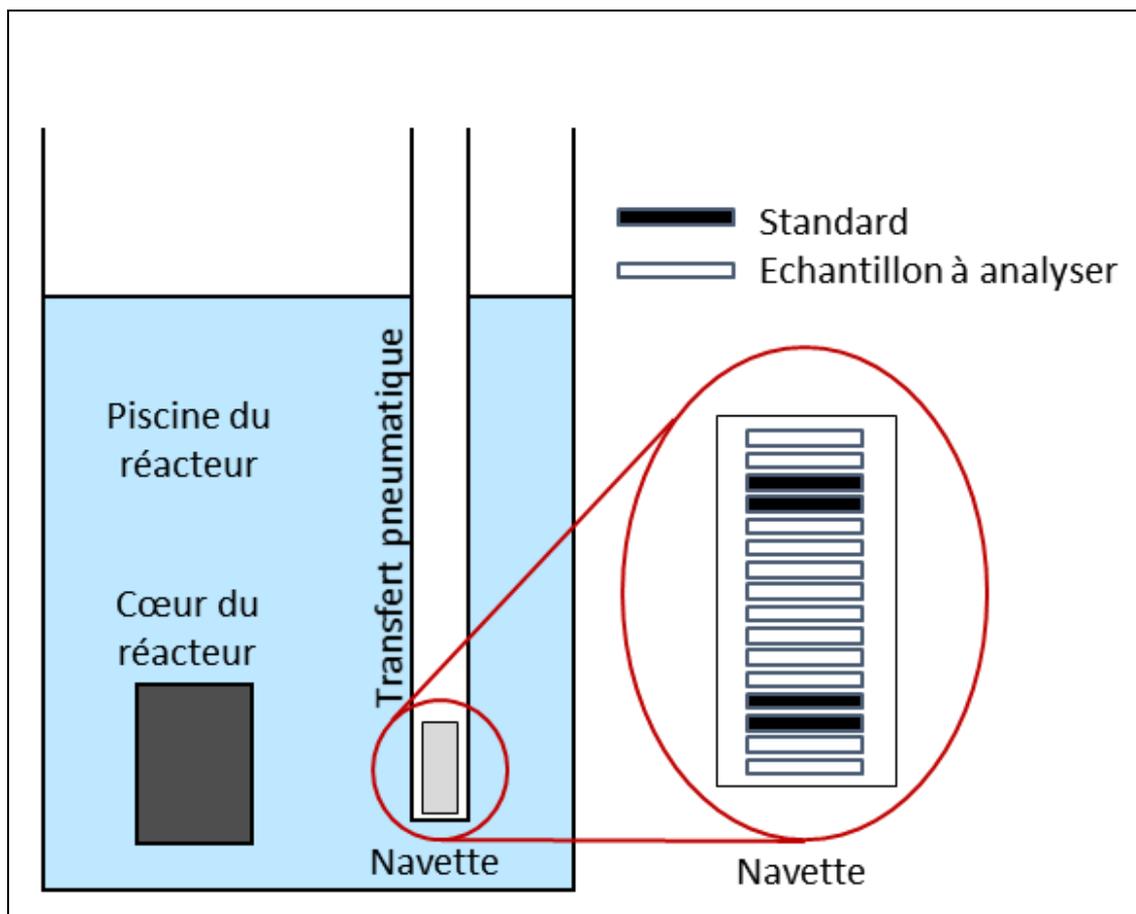


Figure II - 3-6 - Cœur du réacteur lors de l'irradiation d'une navette. La disposition des échantillons et des standards peut varier en fonction de leur nombre (figure adaptée et traduite de [Kim et al., 2013](#)).

Pour l'irradiation sur le réacteur Orphée et pour chaque navette, entre 15 et 20 échantillons sont irradiés, dont 2 standards (SL-1 et Soil7). Pour chaque échantillon, 50mg de matière sèche sont emballés dans deux petits sachets en polyéthylène soudés puis l'ensemble des échantillons sont eux même placés dans une couche de polyéthylène. On utilise alors de l'aluminium pour maintenir l'ensemble et lui permettre de tenir dans une navette d'irradiation. L'irradiation dans le réacteur Orphée dure 30 minutes.

Pour l'irradiation sur le réacteur Osiris, on parle d'irradiation sous cadmium ([Joron, 1974](#)), 15 échantillons et 7 standards (3 GSN, 1 BEN, 1 ACE, 1 GXR4 et 1 LPS4) sont disposés dans un pot de cadmium en suivant la même préparation que celle expliquée ci-dessus. La navette est irradiée pendant 8 heures dans le réacteur OSIRIS.

Après irradiation, les navettes étant fortement radioactives ( $> 200\mu\text{sv/h}$ ), il est nécessaire d'attendre la décroissance des éléments présentant de courtes demi-vies pour la manipuler. Pour une irradiation dans Orphée, il faut attendre 4 jours, tandis que le temps d'attente est porté à 7 jours pour Osiris. On peut ensuite procéder aux mesures par spectrométrie gamma.

Au total, 57 sols et 114 laisses de crues ont ainsi pu être irradiés.

## II - 3.2.3 ANALYSE PAR SPECTROMETRIE GAMMA DES ECHANTILLONS IRRADIES

Pour ces analyses, on utilise le même principe que la spectrométrie gamma décrite dans la partie précédente, en l'adaptant car tous les éléments ne peuvent être mesurés en une fois. En effet, la mesure des éléments étant directement liée à la demi-vie des isotopes radioactifs créés lors de l'irradiation, certains éléments, présentant des demi-vies courtes, masqueront les raies des isotopes avec des demi-vies plus longues. Ceux-ci seront mesurables lorsque les isotopes à courtes demi-vies auront disparu. Pour mesurer l'ensemble des éléments, il est alors nécessaire d'effectuer plusieurs mesures, réparties sur deux mois, en fonction de leurs demi-vies (Figure II - 3-7).

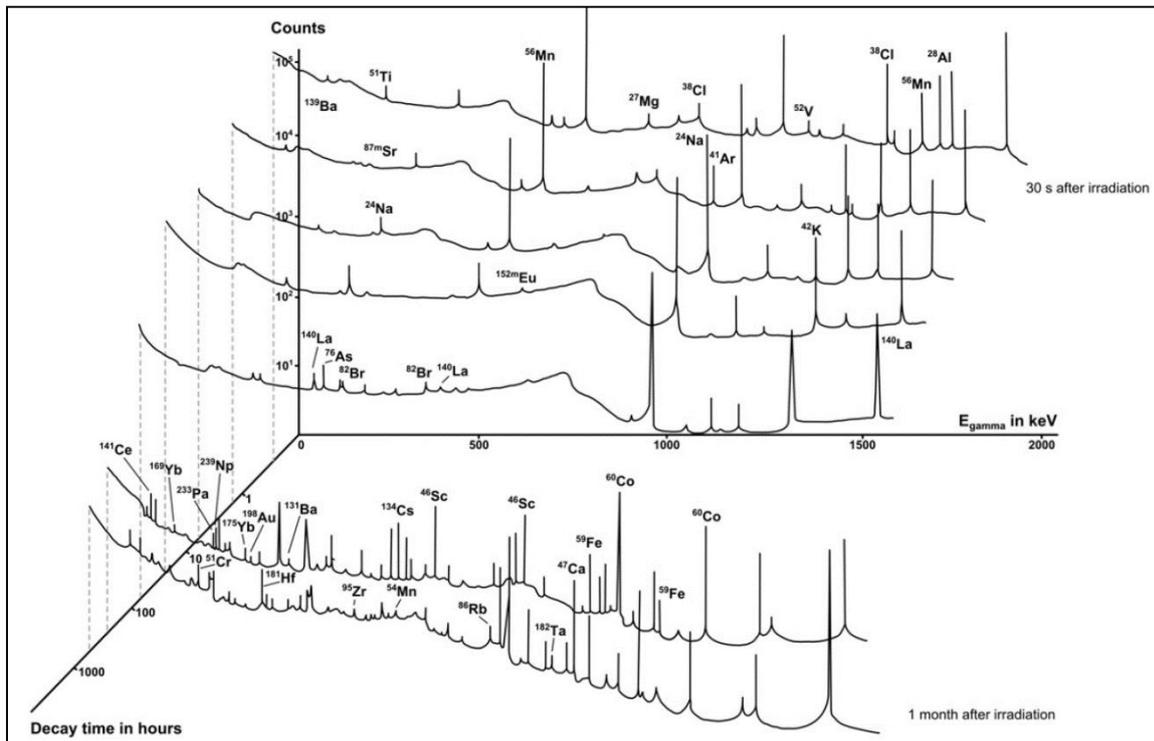


Figure II - 3-7 - Exemple de spectres de raies Gamma mesurés à différentes périodes après irradiation (Greenberg et al., 2011). On note que les éléments qui ressortent ne sont pas les mêmes.

Ainsi, pour les irradiations dans le réacteur Orphée, quatre séries de mesures sont réalisées (Tableau II - 3-6) pour mesurer 25 éléments (Tableau II - 3-7). Le choix des périodes et des temps d'analyses sont basés sur les travaux de thèse de Laure Tessier (Tessier, 2003).

Tableau II - 3-6 – Séries de mesures sur les échantillons irradiés

Série	Jours après irradiation	Temps d'analyse (s)
A	4	600
B	6-7	5400
C	8-16	10 800
D	16-30	36 000

Pour les échantillons irradiés dans Osiris, seules deux séries de mesures sont réalisées. La première intervient 7 jours après irradiation et l'analyse dure 3000s (éléments mesurés : U, Br, As, Mo Na, La, Sm, Au, W), la seconde est réalisée 1 mois après irradiation pour une mesure de 20 000—40 000 s (Joron, 1973; Joron et al., 1997) (éléments mesurés : Th, Hf, Zr, Ta, Ba, Sr, Cs, Rb, Sb, Cr, Co, Ni, Sc, Fe, Zn, Ce, Nd, Eu, Tb, Yb, Ag).

**Tableau II - 3-7 - Caractéristiques des pics photoélectriques sélectionnés et des séries correspondantes pour chaque élément.**

Elément	Isotope	Demi-vie	Série	Energie (keV)
<b>As</b>	<sup>76</sup> As	1,08 j	A	559,1
<b>Ba</b>	<sup>131</sup> Ba	12 j	C	496,3
<b>Br</b>	<sup>82</sup> Br	1,47 j	A	776,5
<b>Ce</b>	<sup>141</sup> Ce	32,51 j	D	145,5
<b>Co</b>	<sup>60</sup> Co	5,27 ans	D	1173,2 1332,5
<b>Cr</b>	<sup>51</sup> Cr	27,70 j	D	320,1
<b>Cs</b>	<sup>134</sup> Cs	2,07 ans	D	604,7 795,8
<b>Eu</b>	<sup>152</sup> Eu	13,52 ans	D	344,3 1408,1
<b>Fe</b>	<sup>59</sup> Fe	44,49 j	D	1099,2 1291,6
<b>Hf</b>	<sup>181</sup> Hf	42,5 j	D	133,1 482,2
<b>K</b>	<sup>42</sup> K	12,36 h	A	1524,7
<b>La</b>	<sup>140</sup> La	1,68 j	B	487,0
<b>Lu</b>	<sup>177</sup> Lu	6,65 j	C	208,4
<b>Na</b>	<sup>24</sup> Na	14,96 h	A	1368,4
<b>Nd</b>	<sup>147</sup> Nd	10,98 j	D	91,1
<b>Rb</b>	<sup>86</sup> Rb	18,64 j	D	1076,6
<b>Sb</b>	<sup>122</sup> Sb	2,70 j	D	564,1
<b>Sc</b>	<sup>46</sup> Sc	83,79 j	D	889,3 1691,0
<b>Sm</b>	<sup>153</sup> Sm	1,93 j	C	103,2
<b>Ta</b>	<sup>182</sup> Ta	114,43 j	D	1221,4
<b>Tb</b>	<sup>160</sup> Tb	72,1 j	D	879,4
<b>Th</b>	<sup>233</sup> Th ( <sup>233</sup> Pa)	22,15 min (26,98 j)	D	311,9
<b>Yb</b>	<sup>169</sup> Yb	32,02 j	D	177,0 198,0
<b>Zn</b>	<sup>65</sup> Zn	244,01 j	D	1115,5
<b>Zr</b>	<sup>95</sup> Zr	64,03 j	D	756,7

---

### II - 3.2.3.1 Standards

---

Comme expliqué précédemment, les matériaux de référence certifiés, que l'on appellera ici « standards » ne sont pas les mêmes selon le réacteur.

Pour les irradiations dans Orphée, deux standards sont placés dans chaque navette, SL-1 (AIEA), un sédiment de lac qui est utilisé comme standard référent et Soil7 (AIEA) un sol utilisé comme simple échantillon pour vérifier les valeurs obtenues (Annexe C). Lors des mesures de spectrométrie gamma, les standards sont analysés en début de série et en fin de série.

Pour les irradiations dans Osiris, 7 standards sont utilisés (Joron et al., 1997). Les trois standards GSN (Centre de Recherches Pétrographiques et Géochimiques — CRPG — de Nancy) sont utilisés comme références pour déterminer les teneurs élémentaires. Un standard interne (LPS4) est utilisé pour certains éléments spécifiques (As, Mo, Br et Ag). Les standards ACE et BEN (CRPG Nancy) sont utilisés pour vérifier les résultats des GSN et GXR4 (USGS) pour vérifier les résultats obtenus avec LPS4. Ils servent également d'étalon pour Au.

Pour déterminer l'incertitude sur la détermination de chaque teneur, nous utilisons les écarts obtenus entre la valeur référence du standard Soil7 et la valeur mesurée de Soil7. Lorsqu'il y a deux mesures de Soil7, nous utilisons la moyenne des mesures pour déterminer l'incertitude. Cette incertitude englobe donc les incertitudes liées aux pesées, aux mesures gamma, à la certification des standards etc.

### II - 3.2.3.2 Validation de la teneur élémentaire des échantillons

---

L'analyse par spectrométrie gamma des 171 échantillons irradiés a permis de déterminer la teneur de 26 éléments comprenant des éléments majeurs (Ca, Fe, K et Na), des terres rares (Ce, Eu, La, Lu, Nd, Sm, Tb et Yb) et des éléments traces (As, Ba, Br, Co, Cr, Cs, Hf, Rb, Sb, Sc, Ta, Th, Zn et Zr).

Nous avons réalisé une série d'étapes pour valider les valeurs ainsi obtenues, notamment en utilisant les standards pour vérifier les résultats (Annexe C).

Finalement, nous avons retenu 12 éléments (Tableau II - 3-8), 54 sols et 101 laisses pour la suite de l'étude. Ceci conduit à la construction d'une base de **1860 données validées**, chaque teneur étant assortie de son incertitude (Annexe B.2)

Tableau II - 3-8 - Synthèse des tests (Annexe D), les valeurs en gras indiquent l'étape de rejet de l'élément

Elément	Série	Détection systématique	Moyenne des écarts de SL1	Moyenne des écarts de Soil7	Différence irradiation classique et sous cadmium avant tri	Différence irradiation classique et sous cadmium après tri
As	A	<b>Non</b>				
Ba	C	<b>Non</b>				
Br	A	<b>Non</b>				
Ca	C	<b>Non</b>				
Ce	D	Oui	<15%	<15%	<15%	<15%
Co	D	Oui	<15%	<15%	<15%	<15%
Cr	D	Oui	<15%	<15%	<b>22%</b>	
Cs	D	Oui	<15%	<15%	<15%	<15%
Eu	D	Oui	<15%	<15%	<b>19%</b>	
Fe	D	Oui	<15%	<15%	<15%	<15%
Hf	D	Oui	<15%	<15%	<15%	<15%
K	A	<b>Non</b>				
La	B	Oui	<15%	<15%	<15%	<15%
Lu	C	Oui	<15%	<b>26%</b>		
Na	A	Oui	<15%	<15%	<15%	<15%
Nd	D	Oui	<15%	<b>22%</b>		
Rb	D	<b>Non</b>				
Sb	D	<b>Non</b>				
Sc	D	Oui	<15%	<15%	<15%	<15%
Sm	C	Oui	<15%	<15%	<15%	<15%
Ta	D	<b>Non</b>				
Tb	D	<b>Non</b>				
Th	D	Oui	<15%	<15%	<15%	<15%
Yb	D	Oui	<15%	<15%	<15%	<15%
Zn	D	Oui	<15%	<15%	<15%	<15%
Zr	D	<b>Non</b>				

---

## II - 3.3 ANALYSES COMPLÉMENTAIRES

Afin d'obtenir plus d'informations sur les échantillons de sols et de laisses, plusieurs analyses complémentaires ont été réalisées.

---

### II - 3.3.1 DIFFRACTION DES RAYONS X

Une analyse des minéraux a été réalisée sur une trentaine de sols (Annexe B.3) pour obtenir des informations sur la présence ou l'absence de minéraux qui fixent le  $^{137}\text{Cs}$  (notamment les micas : muscovite, biotite... et les argiles : illite, smectite, kaolinite, chlorite...) (Francis & Brinkley, 1976; Nakao et al., 2008).

Cette analyse a été réalisée par diffraction des rayons X (DRX). Cette technique consiste à envoyer des rayons X sur l'échantillon à analyser pour produire un phénomène de diffraction, décrit par la loi de Bragg. En mesurant le signal diffracté, on peut déterminer la composition minéralogique de l'échantillon.

Les analyses par DRX ont été réalisées au Laboratoire de Mesure et de Modélisation de la Migration des Radionucléides (L3MR, CEA Saclay) sous l'encadrement de Chrtistelle Latrille. Le diffractomètre à rayon X utilisé au cours de la thèse est de la marque INEL XRG 3000 (L3MR, Saclay). Il est composé d'un générateur X et d'un monochromateur (Co  $K\alpha$ ) fixes et d'un détecteur courbe qui permet l'acquisition simultanée des pics de diffractions de  $1.5^\circ$  à  $110^\circ$   $2\theta$ . Les canaux du détecteur sont calibrés en domaine angulaire à partir de poudre de bécéate d'argent ( $< 20^\circ$ ) et d'oxyde d'yttrium ( $\theta > 20^\circ$ ). Conditions d'émission: 30 kV et 30 mA.

L'interprétation de spectres est faite à l'aide du logiciel MATCH et de la base de données PDF2 (fichier JCPDS). Cette base de données comprend les caractéristiques de diffraction (indexation des pics de diffraction) de minéraux parfaitement caractérisés.

---

### II - 3.3.2 GRANULOMÉTRIE

L'analyse de la taille des particules a également été réalisée sur la plupart des échantillons des 3 premières campagnes ( $n = 207$ ) à l'université de Tsukuba (Annexe B.5). Les échantillons séchés ont préalablement été tamisés à 2mm et 450 $\mu\text{m}$  puis chaque fraction a été pesée. La fraction  $< 450\mu\text{m}$  a ensuite été mesurée sur l'appareil SALD-3100 Laser (Shimadzu Co., Ltd., Kyoto, Japan) en suivant les procédures standards d'utilisation (vitesse de pompe = 4, ultrason en fonctionnement). Les particules ont ainsi été classées en 42 classes allant de 0,05 jusqu'à 450 $\mu\text{m}$ .

La surface spécifique a été déterminée en utilisant la densité du quartz ( $2.65 \text{ g cm}^{-3}$ ) et en faisant l'hypothèse que les particules étaient sphériques (Santamarina and Klein, 2002). Finalement, les classes ont été corrigées en ajoutant les données de tamisage et regroupées suivant la norme AFNOR X 316107 (argile  $< 2 \mu\text{m}$ ,  $2 \mu\text{m} < \text{limon} < 50 \mu\text{m}$ ,  $50 \mu\text{m} < \text{sable} < 2 \text{ mm}$ ).

---

### II - 3.3.3 CARBONE ORGANIQUE TOTAL

Enfin, la teneur en carbone organique total de certains échantillons (n= 65) a été mesurée (Annexe B.4) au Laboratoire d'Analyses et des Moyens Expérimentaux (LAME, IRSN, Fontenay-aux-Roses) par Aurélie Ritt et Anthony Julien, en se basant sur la méthode HTCO (*High Temperature and Catalytic Oxidation*) sur l'appareil VarioTOC de chez Elementar. Il s'agit d'une oxydation catalytique qui transforme le carbone des échantillons en CO<sub>2</sub> dans un four à très haute température (950°C) contenant un catalyseur (oxyde de cuivre). Le CO<sub>2</sub> dégagé au cours de l'oxydation est ensuite mesuré par un détecteur infrarouge (IR).

L'échantillon solide est débarrassé de son Carbone Inorganique Total (CIT) hors de l'appareil par ajout d'acide chlorhydrique peu concentré (1 %). Le CIT se dégage sous forme de CO<sub>2</sub> et il ne reste dans l'échantillon que le COT non-volatil. Un passage à l'étuve est nécessaire afin de mesurer le poids sec de l'échantillon. Le COT restant est alors dosé dans le four par la méthode HTCO.

## II - 4 CONCLUSION DU CHAPITRE II

Les travaux de cette thèse se concentrent sur plusieurs bassins versants côtiers, dont la partie amont a été fortement impactée par les retombées radioactives de l'accident de Fukushima Dai-Ichi. Certains de ces bassins versants sont caractérisés par la présence d'un ou plusieurs barrages qui peuvent directement impacter le transfert de la contamination vers l'Océan Pacifique. Pour étudier l'impact des événements érosifs majeurs (crues printanières et typhons) sur celui-ci, nous avons collecté de nombreux échantillons de sols ( $n=95$ ) et de laisses de crue ( $n=271$ ) au sein de ces bassins versants.

Différents paramètres ont ensuite été mesurés sur ces échantillons. Ainsi, l'activité des principaux radionucléides ( $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  et  $^{110\text{m}}\text{Ag}$ ) de l'ensemble des sols et des laisses de crues a été mesurée par spectrométrie gamma, et la teneur en 12 éléments chimiques a également été déterminée sur 54 sols et 101 laisses de crue par l'analyse par activation neutronique. De plus, des mesures complémentaires (DRX, analyse du COT, granulométrie) ont été réalisées sur certains échantillons dans le but de mieux les caractériser.

Avant de caractériser et de quantifier la dispersion des particules contaminées dans les rivières de Fukushima, il convient néanmoins de s'assurer que le  $^{137}\text{Cs}$  est effectivement peu mobile dans les sols étudiés et notamment dans les rizières qui peuvent être implantées sur des Andosols, où la rétention du  $^{137}\text{Cs}$  est souvent considérée comme étant plus faible que dans d'autres types de sol.

## II - 5 REFERENCES

- Abakumov, E., Fujitake, N., Kosaki, T., 2009. Humus and Humic Acids of Luvisol and Cambisol of Jiguli Ridges, Samara Region, Russia. *Appl. Environ. Soil Sci.*
- ABC Catalyst, 2015. Communication personnel, <http://www.abc.net.au/catalyst> (Dernier accès Juillet 2015)
- Adam, C., Germain, P., Garnier-Laplace, J., Roussel-Debet, S., 2005. Fiche radionucléide : Césium 137 et environnement.
- Ayrault, S., 2005. Multi-element analysis of plant and soil samples. *Trace Ultratrace Elem. Plants Soil* 1–32.
- Borselli, L., Cassi, P., Torri, D., 2008. Prolegomena to sediment and flow connectivity in the landscape: A GIS and field numerical assessment. *Catena* 75, 268–277.
- Calmon, P., Garnier-Laplace, J., 2002. Fiche radionucléide e Argent-110m et environnement. IRSN, p. 15.
- Chartin, C., Evrard, O., Onda, Y., Patin, J., Lefèvre, I., Ottlé, C., Ayrault, S., Lepage, H., Bonté, P., 2013. Tracking the early dispersion of contaminated sediment along rivers draining the Fukushima radioactive pollution plume. *Anthropocene* 1, 23–34.
- Chelet, Y., 2006. La radioactivité - Manuel d'initiation, Nucléon. ed.
- Economic Planning Agency, 1972. Scale 1:200,000 Fundamental Land Classification Survey in Fukushima (soil map). <http://nrb-www.mlit.go.jp/kokjo/inspect/landclassification/download/index.html> (Dernier accès Juillet 2015).
- Endo, S., Kajimoto, T., Shizuma, K., 2013. Paddy-field contamination with <sup>134</sup>Cs and <sup>137</sup>Cs due to Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident and soil-to-rice transfer coefficients. *J. Environ. Radioact.* 116, 59–64.
- Evrard, O., Navratil, O., Ayrault, S., Ahmadi, M., Némery, J., Legout, C., Lefèvre, I., Poirel, A., Bonté, P., Esteves, M., 2011. Combining suspended sediment monitoring and fingerprinting to determine the spatial origin of fine sediment in a mountainous river catchment. *Earth Surf. Process. Landforms* 36, 1072–1089.
- Evrard, O., Van Beek, P., Gateuille, D., Pont, V., Lefèvre, I., Lansard, B., Bonté, P., 2012. Evidence of the radioactive fallout in France due to the Fukushima nuclear accident. *J. Environ. Radioact.* 114, 54–60.
- Evrard, O., Chartin, C., Onda, Y., Patin, J., Lepage, H., Lefèvre, I., Ayrault, S., Ottlé, C., Bonté, P., 2013. Evolution of radioactive dose rates in fresh sediment deposits along coastal rivers draining Fukushima contamination plume. *Sci. Rep.* 3, 3079.
- Evrard, O., Chartin, C., Onda, Y., Lepage, H., Cerdan, O., Lefèvre, I., Ayrault, S., 2014. Renewed soil erosion and remobilisation of radioactive sediment in Fukushima coastal rivers after the 2013 typhoons. *Sci. Rep.* 4, 4574.
- Fan, Q., Yamaguchi, N., Tanaka, M., Tsukada, H., Takahashi, Y., 2014. Relationship between the adsorption species of cesium and radiocesium interception potential in soils and minerals: an EXAFS study. *J. Environ. Radioact.* 138C, 92–100.
- Fontes, J.C., Gonçalves, M.C., Pereira, L.S., 2004. Andosols of Terceira, Azores: Measurement and significance of soil hydraulic properties, in: *Catena*. pp. 145–154.
- Food and Agriculture Organisation, 2014. World reference base for soil resources 2014.
- Francis, C.W., Brinkley, F.S., 1976. Preferential adsorption of <sup>137</sup>Cs to micaceous minerals in contaminated freshwater sediment. *Nature*.
- Fukuyama, T., Takenaka, C., Onda, Y., 2005. <sup>137</sup>Cs loss via soil erosion from a mountainous headwater catchment in central Japan. *Sci. Total Environ.* 350, 238–47.
- Funakawa, S., 1993. Soil-forming processes under natural forest in Northern Kyoto.
- Geographical Survey Institute, 2002, Fundamental Geospatial Data. Agricultural Soil map of Fukushima Prefecture. (Dernier accès Juillet 2015).
- Geological Survey of Japan, 2012. Seamless digital geological map of Japan 1: 200,000. Jul 3, 2012 version. Research Information Database DB084, Geological Survey of Japan, National Institute of Advanced Industrial Science and Technology (Dernier accès Juillet 2015).

- Geospatial Information Authority of Japan, Japanese Ministry of Land, Infrastructure, Transport and Tourism. Digital Elevation Model, <http://www.gsi.go.jp> (Dernier accès Juillet 2015).
- Guegueniat, P., Boust, D., 1985. Distribution de 40 éléments à l'état de traces dans les suspensions de la Seine. Utilisation du lanthane pour étudier les processus sédimentaires dans l'estuaire et la Baie Seine. 840, 24–26.
- Hirai, H., Hamazaki, T., 2004. Historical aspects of soil classification in Japan. *Soil Sci. Plant Nutr.* 50, 611–622.
- Imaya, A., Morisada, K., Ohta, S., 2002. Chemical properties and classification of Japanese brown forest soils derived from various parent materials. 17th World Congr. Soil Sci. 1–10.
- Japanese Meteorological Agency:  
[http://www.data.jma.go.jp/obd/stats/etrn/view/annually\\_a.php?prec\\_no=36&block\\_no=1150&year=2013&month=4&day=&view=](http://www.data.jma.go.jp/obd/stats/etrn/view/annually_a.php?prec_no=36&block_no=1150&year=2013&month=4&day=&view=), last access: 28 July 2014 (in Japanese)
- Joron, J.L. 1974. Contribution à l'analyse des éléments en traces dans les roches et les minéraux par activation neutronique. Application à la caractérisation d'objets archéologiques. Thèse de doctorat non publiée. Paris : Université Paris Sud
- Joron, J.L., Treuil, M., Raimbault, L., 1997. Activation analysis as a geochemical tool: Statement of its capabilities for geochemical trace element studies, in: *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*. pp. 229–235.
- Kamei-Ishikawa, N., Uchida, S., Tagami, K., 2008. Distribution coefficients for  $^{85}\text{Sr}$  and  $^{137}\text{Cs}$  in Japanese agricultural soils and their correlations with soil properties. *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 277, 433–439.
- Kato, H., Onda, Y., Gomi, T., 2012. Interception of the Fukushima reactor accident-derived  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{134}\text{Cs}$  and  $^{131}\text{I}$  by coniferous forest canopies. *Geophys. Res. Lett.* 39, n/a–n/a.
- Kim, I.J., Lee, K.S., Hwang, E., Min, H.S., Yim, Y.H., 2013. Accurate measurement of bromine contents in plastic samples by instrumental neutron activation analysis. *Anal. Chim. Acta* 769, 22–9.
- Kinoshita, N., Sueki, K., Sasa, K., Kitagawa, J., Ikarashi, S., Nishimura, T., Wong, Y.-S., Satou, Y., Handa, K., Takahashi, T., Sato, M., Yamagata, T., 2011. Assessment of individual radionuclide distributions from the Fukushima nuclear accident covering central-east Japan. *Proc. Natl. Acad. Sci. U. S. A.* 108, 19526–9.
- Kitamura, A., Kurikami, H., Yamaguchi, M., Oda, Y., Saito, T., Kato, T., Onishi, Y., 2015. Mathematical modeling of radioactive contaminants in the Fukushima environment. *Nucl. Sci. Eng.* 179, 105–119.
- Koarashi, J., Atarashi-Andoh, M., Matsunaga, T., Sato, T., Nagao, S., Nagai, H., 2012. Factors affecting vertical distribution of Fukushima accident-derived radiocesium in soil under different land-use conditions. *Sci. Total Environ.* 431, 392–401.
- Kurikami, H., Kitamura, A., Yokuda, S.T. and Onishi, Y., 2014. Sediment and  $^{137}\text{Cs}$  behaviors in the Ogaki Dam Reservoir during a heavy rainfall event. *J. Environ. Radioact.*, 137: 10-17.
- Land conservation research, 2005, Landuse map, <http://nrb-www.mlit.go.jp/kokjo/inspect/landclassification/download/index.html> (dernier accès 29/04/2015).
- Liu, K.B., McCloskey, T.A., Ortego, S., Maiti, K., 2015. Sedimentary signature of Hurricane Isaac in a Taxodium swamp on the western margin of Lake Pontchartrain, Louisiana, USA. *Proc. Int. Assoc. Hydrol. Sci.* 367, 421–428.
- Matsuzaka, Y., 1969. Study on the classification of paddy soil. in Japan. *Bull. Nati. Inst. Agr. Sci.* 20, 155–350.
- Matsuzaka, Y., 1977. Major soil groups in Japan. *Proc. Int. Semin. Soil Environ. Fertil. Manag. Intensive Agric.* 89–95.
- MEXT, 2011b. Map of Radioactive Cesium Concentration in Soil. [http://radioactivity.nsr.go.jp/en/contents/5000/4165/24/1750\\_083014.pdf](http://radioactivity.nsr.go.jp/en/contents/5000/4165/24/1750_083014.pdf)
- Mizota, C., Carrasco, M., Wada, K., 1982. Clay mineralogy and some chemical properties of Ap horizons of Ando soils used for paddy rice in Japan. *Geoderma* 27, 225–237.
- NAA, 2015. <http://www.naa-online.net/wp-content/uploads/Fig01.jpg> (Dernier accès Juillet 2015)
- Nagatsuka, S., Okazaki, M., 1990. Soil Map of Japan. Central Japan, 1:2000000. [http://eussoils.jrc.ec.europa.eu/esdb\\_archive/eudasm/asia/maps/JP2002\\_2SO.htm](http://eussoils.jrc.ec.europa.eu/esdb_archive/eudasm/asia/maps/JP2002_2SO.htm)

- Nakao, A., Ogasawara, S., Sano, O., Ito, T., Yanai, J., 2014. Radiocesium sorption in relation to clay mineralogy of paddy soils in Fukushima, Japan. *Sci. Total Environ.* 468-469, 523–9.
- Nakao, A., Thiry, Y., Funakawa, S., Kosaki, T., 2008. Characterization of the frayed edge site of micaceous minerals in soil clays influenced by different pedogenetic conditions in Japan and northern Thailand. *Soil Sci. Plant Nutr.* 54, 479–489.
- Natuhara, Y., 2013. Ecosystem services by paddy fields as substitutes of natural wetlands in Japan. *Ecol. Eng.* 56, 97–106.
- Nemoto, K., Abe, J., 2013. Agricultural Implications of the Fukushima Nuclear Accident 19–27.
- NIAES, 1996. Classification of cultivated soils in Japan: third approximation, Classification Committee of Cultivated Soils.
- Olley, J., Brooks, A., Spencer, J., Pietsch, T., Borombovits, D., 2013. Subsoil erosion dominates the supply of fine sediment to rivers draining into Princess Charlotte Bay, Australia. *J. Environ. Radioact.* 124C, 121–129.
- Olley, J.M., Caitcheon, G., 2000. Major element chemistry of sediments from the Darling ± Barwon River and its tributaries : implications for sediment and phosphorus sources Abstract : 1175, 1159–1175.
- Santamarina, J., Klein, K., 2002. Specific surface: determination and relevance. *Can. Geotech.* 241, 233-241.
- Shozugawa, K., Nogawa, N., Matsuo, M., 2012. Deposition of fission and activation products after the Fukushima Dai-ichi nuclear power plant accident. *Environ. Pollut.* 163, 243–7.
- Steinhauser, G., Brandl, A., Johnson, T.E., 2014. Comparison of the Chernobyl and Fukushima nuclear accidents: a review of the environmental impacts. *Sci. Total Environ.* 470-471, 800–17.
- Takahashi, J., Tamura, K., Suda, T., Matsumura, R., Onda, Y., 2014. Vertical distribution and temporal changes of <sup>137</sup>Cs in soil profiles under various land uses after the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident. *J. Environ. Radioact.* 139, 351-361.
- Takeda, A., Kimura, K., Yamasaki, S., 2004. Analysis of 57 elements in Japanese soils, with special reference to soil group and agricultural use. *Geoderma* 119, 291–307.
- Takeda, A., Tsukada, H., Yamaguchi, N., Takeuchi, M., Sato, M., Nakao, A., Hisamatsu, S., 2014. Relationship between the radiocesium interception potential and the transfer of radiocesium from soil to soybean cultivated in 2011 in Fukushima Prefecture, Japan. *J. Environ. Radioact.* 137, 119–124.
- Tessier, L., 2003. Transport et caractérisation des matières en suspension dans le bassin versant de la Seine: Identification de signatures naturelles et anthropiques.
- Vandebroek, L., Van Hees, M., Delvaux, B., Spaargaren, O., Thiry, Y., 2012. Relevance of Radiocaesium Interception Potential (RIP) on a worldwide scale to assess soil vulnerability to <sup>137</sup>Cs contamination. *J. Environ. Radioact.* 104, 87–93.
- Wakahara, T., Onda, Y., Kato, H., 2013. Estimation of radionuclide discharge from paddy fields in two experimental plots with different initial scrapings after the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident 1–3.
- Wallbrink, P.J., 2004. Quantifying the erosion processes and land-uses which dominate fine sediment supply to Moreton Bay, Southeast Queensland, Australia, in: *J. Environ. Radioact.* pp. 67–80.
- Wilkinson, S.N., Hancock, G.J., Bartley, R., Hawdon, A. a., Keen, R.J., 2013. Using sediment tracing to assess processes and spatial patterns of erosion in grazed rangelands, Burdekin River basin, Australia. *Agric. Ecosyst. Environ.* 180, 90–102.
- Yamada, S., Kitamura, A., Kurikami, H., Yamaguchi, M., Malins, A., Machida, M., 2015. Sediment and <sup>137</sup>Cs transport and accumulation in the Ogaki Dam of eastern Fukushima. *Environ. Res. Lett.* 10, 014013.
- Yamamoto, T., 2013. Quantitative re-description of tephra units since 0.3 Ma in the Tochigi-Ibaraki region, NE Japan. *Bull. Geol. Surv. JAPAN* 64, 251–304.





# CHAPITRE III



# CHAPITRE III – ETUDE DE LA MIGRATION DU $^{137}\text{Cs}$ DANS LE SOL DES RIZIERES IMPACTEES PAR LES RETOMBEES RADIOACTIVES DE FUKUSHIMA

---

## **Sommaire**

DEPTH DISTRIBUTION OF CESIUM-137 IN PADDY FIELDS ACROSS THE FUKUSHIMA POLLUTION PLUME IN 2013	108
INFORMATIONS COMPLEMENTAIRES	120
CONCLUSION DU CHAPITRE III	123
REFERENCES	124

# ETUDE DE LA MIGRATION DU $^{137}\text{Cs}$ DANS LE SOL DES RIZIERES IMPACTEES PAR LES RETOMBEES RADIOACTIVES DE FUKUSHIMA

Au cours des chapitres précédents, nous avons montré que les rizières étaient fortement sensibles à l'érosion (travaux sur la connectivité sédimentaire de [Chartin et al., 2013](#)) et qu'il s'agissait de l'occupation des sols présentant le plus fort taux d'érosion ([Yoshimura et al., 2015](#)). Cependant, nous avons également constaté que de nombreuses rizières étaient constituées d'Andosols, qui pourraient être caractérisés par un faible taux de fixation du  $^{137}\text{Cs}$  ([Vandebroek et al., 2012](#)). Dans les rizières, le  $^{137}\text{Cs}$  pourrait donc migrer rapidement en profondeur, ce qui réduirait la quantité de contamination dans les premiers centimètres du sol et limiterait l'apport potentiel de particules contaminées en  $^{137}\text{Cs}$  aux rivières par l'érosion des versants. Il est donc indispensable d'étudier la migration du  $^{137}\text{Cs}$  dans la profondeur des sols des rizières.

Les résultats de ces travaux ont été publiés dans *Journal of Environmental Radioactivity* et sont présentés dans la section suivante :

**Lepage, H., Evrard, O., Onda, Y., Lefèvre, I., Laceby, J.P., Ayrault, S., 2015. Depth distribution of cesium-137 in paddy fields across the Fukushima pollution plume in 2013. *J. Environ. Radioact.* 147, 157 – 164.**

### III - 1 DEPTH DISTRIBUTION OF CESIUM-137 IN PADDY FIELDS ACROSS THE FUKUSHIMA POLLUTION PLUME IN 2013

Hugo Lepage<sup>a,\*</sup>, Olivier Evrard<sup>a</sup>, Yuichi Onda<sup>b</sup>, Irène Lefèvre<sup>a</sup>, J. Patrick Lacey<sup>a</sup>, Sophie Ayrault<sup>a</sup>

<sup>a</sup> Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement (LSCE/IPSL), Unité Mixte de Recherche 8212 (CEA, CNRS, UVSQ), 91198, Gif-sur-Yvette Cedex, France

<sup>b</sup> Center for Research in Isotopes and Environmental Dynamics (CRIED), University of Tsukuba, 1-1-1 Tennodai, Tsukuba, Ibaraki 305-8572, Japan

\* Corresponding author.

E-mail address: hugo.lepage@lsce.ipsl.fr (H. Lepage).

#### Résumé

Des quantités importantes de radiocésium se sont déposées sur une zone de 3000 km<sup>2</sup> située au nord-ouest de la centrale de Fukushima Dai-ichi nucléaire après l'accident de mars 2011. Bien que de nombreuses études se soient intéressées au devenir du <sup>137</sup>Cs dans les sols au cours des mois qui ont suivi l'accident, la distribution en profondeur de ce contaminant radioactif dans les rizières nécessite un examen plus approfondi 2 ans plus tard, après l'occurrence de typhons dans cette région. Les résultats de ces études permettront de minimiser la potentielle exposition humaine à la radioactivité dans les rizières. Les activités en radionucléides émetteurs gamma, la teneur en matière organique et la taille des particules ont été analysés dans 10 carottes de sols prélevées dans des rizières en novembre 2013, à 20 km au nord de la centrale de Fukushima. Nos résultats montrent que la migration du <sup>137</sup>Cs en profondeur du sol est limitée et que l'on retrouve la grande majorité de l'inventaire de ce radionucléide dans les couches supérieures des sols (<5 cm). Ainsi, plus de 30 mois après l'accident, entre 46,8 et 98,7 % de l'inventaire de <sup>137</sup>Cs total ont été observés dans les 5 premiers cm de la surface du sol, malgré des précipitations cumulées totalisant 3300 mm. En outre, aucune corrélation significative n'a été observée entre la distribution en profondeur du <sup>137</sup>Cs et les autres paramètres testés. Nous avons attribué la pénétration maximale du <sup>137</sup>Cs en profondeur du sol à la tonte de l'herbe (de 73,6 à 98,5% du <sup>137</sup>Cs dans les 5 cm supérieurs du sol) et aux travaux agricoles (labour — de 46,8 à 51,6% de <sup>137</sup>Cs dans les 5 cm supérieurs du sol). Comme cette zone est exposée à des événements pluvieux érosifs, les travaux de décontamination en cours peuvent augmenter l'érodabilité du sol. Nous recommandons donc le décapage rapide de la couche superficielle contaminée du sol, rapidement après la coupe de la végétation pour éviter l'érosion des matériaux contaminés pendant les événements de précipitations consécutifs. Une analyse approfondie est nécessaire pour améliorer la compréhension des impacts de l'érosion sur la redistribution du césium radioactif dans les sols de l'ensemble de la Préfecture de Fukushima.

## Abstract

Large quantities of radiocesium were deposited across a 3000 km<sup>2</sup> area northwest of the Fukushima Dai-ichi nuclear power plant after the March 2011 accident. Although many studies have investigated the fate of  $^{137}\text{Cs}$  in soil in the months following the accident, the depth distribution of this radioactive contaminant in rice paddy fields requires further examination after the typhoons that occurred in this region. Such investigations will help minimize potential human exposure in rice paddy fields. Radionuclide activity concentrations, organic content and particle size were analysed in 10 soil cores sampled from paddy fields in November 2013, 20 km north of the Fukushima power plant. Our results demonstrate limited depth migration of  $^{137}\text{Cs}$  with the majority concentrated in the uppermost layers of soils (<5 cm). More than 30 months after the accident, between 46.8 to 98.7% of the total  $^{137}\text{Cs}$  inventories was found within the top 5 cm of the soil surface, despite cumulative rainfall totalling 3300 mm. Furthermore, there were no significant correlations between  $^{137}\text{Cs}$  depth distribution and the other parameters. We attributed the maximum depth penetration of  $^{137}\text{Cs}$  to grass cutting (73.6-98.5% of  $^{137}\text{Cs}$  in the upper 5 cm) and farming operations (tillage – 46.8-51.6% of  $^{137}\text{Cs}$  in the upper 5 cm). As this area is exposed to erosive events, ongoing decontamination works may increase soil erodibility. We therefore recommend the rapid removal of the uppermost – contaminated – layer of the soil after removing the vegetation to avoid erosion of contaminated material during the subsequent rainfall events. Further analysis is required to thoroughly understand the impacts of erosion on the redistribution of radiocesium throughout the Fukushima Prefecture.

## 1. Introduction

The Tohoku earthquake and the subsequent tsunami on March 11, 2011 resulted in the Fukushima Dai-Ichi Nuclear Power Plant (FDNPP) accident and the significant corresponding atmospheric release of radionuclides, such as  $^{137}\text{Cs}$  ( $T_{1/2} = 30$  years) (Saunier et al., 2013). Approximately 80% of the release was transported over the Pacific Ocean with the remainder predominantly deposited on Fukushima Prefecture soils as a result of wet atmospheric fallout (Kawamura et al., 2011). Estimations of  $^{137}\text{Cs}$  total activity in the Fukushima Prefecture soils range between 10 PBq and 50 PBq, with deposition characterized by strong spatial heterogeneities (Koo et al., 2014). The highest activities are concentrated within a 70 km long radioactive plume where initial  $^{137}\text{Cs}$  contamination exceeded 300 kBq.m<sup>-2</sup> covering an area of 3000 km<sup>2</sup>. Therefore it is crucial to understand and monitor the fate of the initial radioactive deposits in order to protect the local population against exposure to high dose rates due to gamma radiation that may prevail in areas accumulating contamination.

In the coastal catchments affected by the FDNPP accident, Chartin et al. (2013) showed that paddy fields are one of the major sources of  $^{137}\text{Cs}$  mobilization and export by soil erosion. A significant proportion of paddy fields are located in the upstream area of the contaminated catchments and they were shown to supply large quantities of contaminated sediment to rivers during typhoons and snowmelt events (Evrard et al., 2013; Evrard et al., 2014). Dispersion of contamination originating from paddy fields along the rivers of the region could therefore contaminate downstream areas that were affected to a limited extent by the initial fallout.

In this region, background levels of  $^{137}\text{Cs}$  from fallout from atmospheric nuclear weapons testing were estimated to be under  $100\text{Bq.kg}^{-1}$  (Fukuyama et al., 2005). Several studies have shown that  $^{137}\text{Cs}$  has a low mobility in most soils (Beck 1966, Ivanov et al., 1997) and is rapidly fixed to fine particles, especially clay minerals (Sawhney, 1972; He & Walling, 1996). These findings were confirmed in the vicinity of the main contamination plume in the Fukushima Prefecture where Saito et al. (2014) reported that  $^{137}\text{Cs}$  was concentrated in the silt and clay fractions. Also, it was reported that the majority of  $^{137}\text{Cs}$  remained in the first centimetre of the soil profile (Fujiwara et al., 2012; Kato et al., 2012; Koarashi et al., 2012; Lepage et al., 2014). However, it was also shown that in soils with high levels of organic matter, radiocesium may migrate down the soil profile as organic matter may reduce its affinity with clay minerals (Staunton et al., 2002; Szenknect et al., 2003; Kamei-Ishikawa et al., 2008; Koarashi et al., 2012;). Koarashi et al. (2012) analysed several soil profiles sampled in the vicinity of Fukushima City and showed that clay content and Total Organic Carbon (TOC) were the main factors controlling radiocesium depth migration. They also found a strong negative correlation ( $r = -0.79$ ,  $p < 0.005$ ) between TOC content divided by clay content (TOC/Clay) and the percentage of retention of  $^{137}\text{Cs}$  suggesting that the presence of organic matter inhibits the adsorption of  $^{137}\text{Cs}$  on clay minerals.

Thirty months after the accident, it is important to investigate the depth distribution of  $^{137}\text{Cs}$  in a selection of paddy fields located within the main contamination plume of Fukushima Prefecture. The concentration of  $^{137}\text{Cs}$  in the uppermost layers of the soil could make it available for erosion and delivery to nearby rivers. This investigation of  $^{137}\text{Cs}$  depth distribution in paddy fields is particularly timely in the current post-accidental phase characterised by the implementation of large-scale remediation efforts targeting paddy fields. The implications of these findings for potential soil erosion will be specifically discussed.

## 2. Materials and methods

### a. Study area

The study was conducted in Fukushima Prefecture, located in North-Eastern Japan, 30 km northwest of FDNPP (Fig. 1). We focused our work on two coastal catchments (i.e. Mano and Niida River catchments -  $450\text{km}^2$ ) draining the main part of the radioactive plume. These catchments extend from the coastal mountain range (approximately 30 km from the coast) to the Pacific Ocean, and their elevation ranges from 0 to 900 m. Mean annual rainfall was 1320 mm according to Japanese Meteorological Agency (2014) measured over 37 years at the rainfall station located in the upper part of the Nitta catchment (Fig. 1). Our study was conducted in November 2013 and cumulative rainfall reached 3300mm ( $\text{max} = 35\text{mm.h}^{-1}$ ) between the accident and our field survey (32 months) with the occurrence of 4 typhoons (Songda and Roke in 2011, Man-Yi and Wipha in 2013). In these catchments, paddy fields are predominantly located along the rivers (Tanaka et al., 2013).

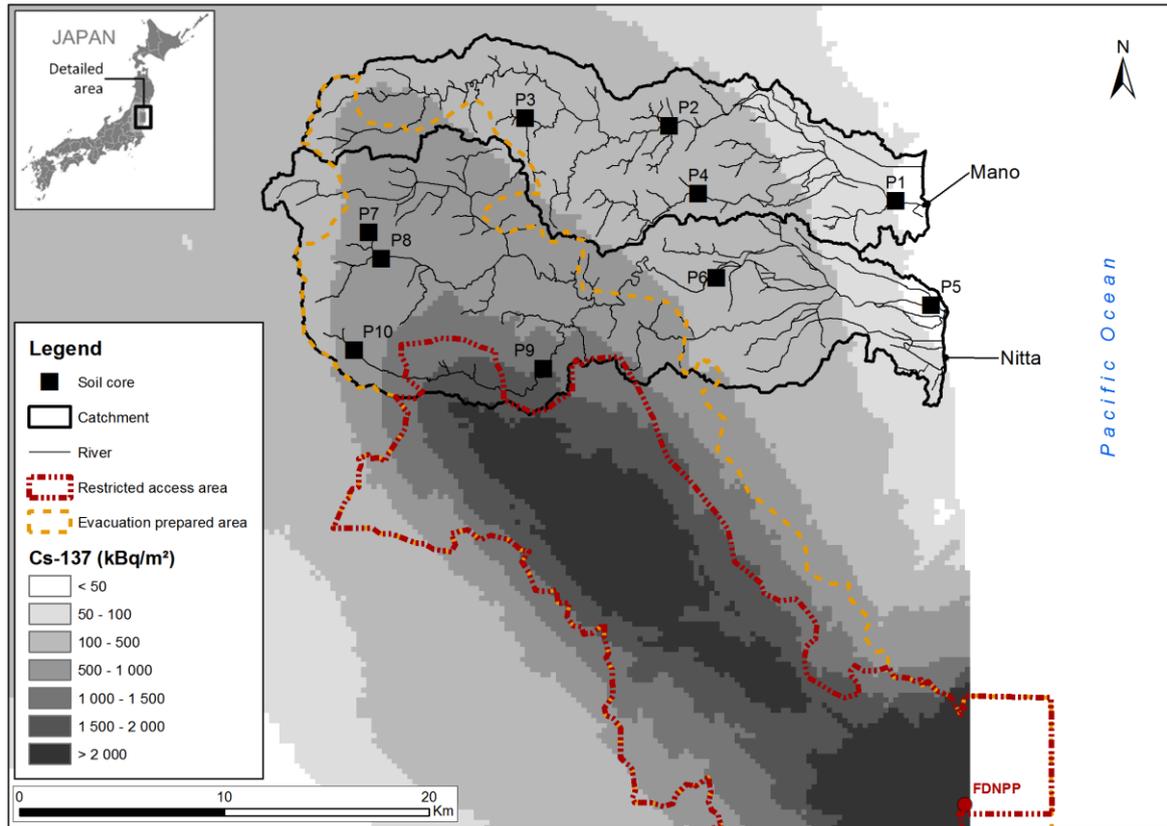


Figure 1. Map of the study area with location of the soil cores collected within Mano and Nitta River catchments including  $^{137}\text{Cs}$  soil inventory decay corrected to the date of 14 June 2011 based on the Japanese Ministry of Education, Culture, Sports, Science and Technology data (MEXT, 2012) and April 2014 restricted access areas delineated by Ministry of Economy, Trade and Industry (METI, 2014).

Remediation works implemented since July 2012 under the supervision of the Japanese Ministry of Environment, Government of Japan (MOE, 2012a; MOE, 2013) are concentrated in upper parts of the Nitta River catchment and consist of removing the five uppermost centimetres of the soil (Mizoguchi, 2013; Sakai et al., 2014) to decrease the radioactive dose level in order to avoid exceeding the permissible level ( $1 \text{ mSv y}^{-1}$ ) determined by Japanese authorities (MOE, 2012b).

#### b. Sample collection and preparation

A radiameter (LB123 D-H10, Berthold Technologies, France) was used to measure radiation dose rates at the ground level in the paddy fields (Table 1).

To be representative, dose levels were measured at 5 different locations on each field within  $10 \text{ m}^2$ . The formula Eq. (1) proposed by the Ministry of Environment MOE (2012b) was then applied to convert these data into annual dose rates.

$$D_{an} = \frac{(D_{amb} - 0.04) * (8 + 16 * 0.4) * 365}{1000} \quad (1)$$

Where  $D_{amb}$  is the ambient dose rate, and  $D_{an}$  is the annual dose rates.

**Table 1.** Location of investigated soil cores and ambient radioactive dose rates measured at the ground level. Annual dose rates exceeding the permissible level of 1 mSv.y<sup>-1</sup> are indicated in bold (MOE, 2012b).

Latitude	Longitude	Core label	Dose rate (μSv.h <sup>-1</sup> )	Annual dose rate (mSv.y <sup>-1</sup> )	Japanese soil type (WRB)*
37.688264	140.995708	P1	0.2	0.8	Unknown
37.721432	140.870119	P2	0.4	<b>1.9</b>	Gray lowland soil (Gleyic Fluvisol)
37.724665	140.790469	P3	1.2	<b>6.1</b>	Gray lowland soil (Gleyic Fluvisol)
37.691504	140.886210	P4	0.5	<b>2.4</b>	Gray lowland soil (Gleyic Fluvisol)
37.642013	141.015405	P5	0.1	0.3	Unknown
37.654186	140.896448	P6	1.5	<b>7.7</b>	Gray lowland soil (Gleyic Fluvisol)
37.674029	140.703817	P7	2.7	<b>14.0</b>	Peat soil (Histosol)
37.662245	140.710906	P8	2.3	<b>11.9</b>	Gray lowland soil (Gleyic Fluvisol)
37.613850	140.800832	P9	5.5	<b>28.7</b>	Gray lowland soil (Gleyic Fluvisol)
37.621797	140.695852	P10	2.5	<b>12.9</b>	Gley soil (Gleysol)

\* Determined using National Institute for Agro-Environmental Sciences (NIAES) cropland soil map (NIAES, 1996; NIAES)

Soil cores (Table 1) were collected in paddy fields across the two selected catchments (Fig 1). We selected the fields to cover a range of dose rates (low, medium and high) in order to investigate migration of <sup>137</sup>Cs in fields with different levels of contamination (Table 1).

A soil auger (diameter 45 mm) was used to sample soil cores to a depth of 10 cm from 10 fields. The soil cores were sub-sectioned into 1 cm increments for the uppermost 5 cm (0-1; 1-2; 2-3; 3-4; 4-5 cm) and an additional 5 cm increment was taken from 5 cm to 10 cm (5-10 cm). Because of the very high radioactive dose rate measured at the location where core P9 was sampled (5.5 μSv.h<sup>-1</sup>), two additional layers were sampled at greater depths (10-15 cm and 15-20 cm). Density of the soil was determined by dividing the dry soil mass in each layer by its volume determined from the diameter of the soil auger and the thickness of the layer. Mean compaction in the cores was estimated to be 13% using soil density. Soil TOC content was measured with the dry combustion method (VarioTOC, Elementar, LAME, IRSN, Fontenay aux Roses, France) and clay content (particle size < 10μm) of the samples was measured using a laser diffraction system (Mastersizer 2000, Malvern, UK) coupled to a liquid dispersing unit (Hydro 2000G, University of Paris Sud, Orsay, France). XRD measurement were performed on a diffractometer (INEL XRG 3000, L3MR, CEA, Saclay, France) equipped with a curved position sensitive detector CPS 120 and radiation were produced at 30 kV and 30 mA.

### c. Gamma spectrometry measurements

Before measurement, samples were dried in an oven at 40°C for ~48 h, sieved to 2 mm, ground to a fine powder in an agate mortar, and then packed into 15 mL polyethylene specimen containers. Cesium-137 activities were determined by gamma spectrometry using low-background coaxial N- and P-types HPGe detectors (Canberra/Ortec, France). Counting times of samples varied between 80 000 s and 150 000 s. The <sup>137</sup>Cs activities were measured at the 661 keV emission peak. Counting efficiencies and energy calibration were monitored using

internal, national (IRSN) and certified International Atomic Energy Agency (IAEA) reference materials (i.e., IAEA-135, IAEA-375, IAEA-CU-2006-03, IAEA-Soil-6, RGU-1, and RGTh-1) prepared in the same specimen containers as the samples. Uncertainties were estimated by combining counting statistics and calibration uncertainties. Summing and self-absorption effects were taken into account by measuring reference materials with similar densities and characteristics as the collected samples. All activities were decay corrected to the date of 14 March 2011 corresponding to the date of the main radionuclide deposits on soils (Kinoshita et al., 2011; Shozugawa et al., 2012).

d. Distribution of  $^{137}\text{Cs}$  with depth

Radiocesium profiles in undisturbed soils are expected to display an exponential decline with depth (He & Walling, 1997; Walling & He, 1999), which can be described by the following function (Beck, 1966):

$$C(x) = C_0 \cdot \exp^{-\alpha \cdot x} \quad (2)$$

Where  $C(x)$  is the concentration activity of a radionuclide in  $\text{Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$  at the depth  $x$  (cm) and  $C_0$  at  $x=0$ , and  $\alpha$  ( $\text{cm}^{-1}$ ) is a coefficient representing the characteristics of the radionuclide distribution and depends on different characteristics of the soil (e.g. pH, CEC, TOC, clay content).

In addition, a more specific model can be used to describe  $^{137}\text{Cs}$  mobility in soils (Miller et al., 1990; Kato et al., 2012; Koarashi et al., 2012;):

$$I(x) = I_t (1 - \exp^{-z/h_0}) \quad (3)$$

Where  $I(z)$  is the  $^{137}\text{Cs}$  inventory ( $\text{Bq} \cdot \text{m}^{-2}$ ) at the  $z$  ( $\text{kg} \cdot \text{m}^{-2}$ ) depth,  $I_t$  is the total  $^{137}\text{Cs}$  inventory and  $h_0$  is the relaxation mass depth ( $\text{kg} \cdot \text{m}^2$ ), an index characterising the  $^{137}\text{Cs}$  penetration in the soil. The greater the value of the relaxation mass depth  $h_0$ , the deeper the  $^{137}\text{Cs}$  penetrates into the soil profile (Kato et al., 2012).

In order to use this formula, we calculated the  $^{137}\text{Cs}$  inventory using  $^{137}\text{Cs}$  activities ( $\text{Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$ ) (Lee et al., 2013) at the successive ( $x$ ) depths (Eq. 4):

$$I(x) = \rho(x) \cdot h(x) \cdot A(x) \quad (4)$$

Where  $\rho$  is the dry bulk density ( $\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ ),  $h$  is the thickness (cm) of the layer and  $A$  the activity ( $\text{Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$ ) of this layer.

### 3. Results and discussion

#### a. Depth distribution

Based on the distribution of  $^{137}\text{Cs}$  activity with depth, soil cores were classified into four groups (undisturbed, decontaminated, tilled and managed) (Table 2 - Fig 2):

- Undisturbed: distribution show an exponential decrease of  $^{137}\text{Cs}$  activity with depth (Fig 3),
- Decontaminated: very low level of  $^{137}\text{Cs}$  activity in all layers,
- Tilled: similar level of  $^{137}\text{Cs}$  activity in each layer,
- Managed: similar level of contamination in the upper 2-3cm then exponential decrease with depth of the  $^{137}\text{Cs}$  activity.

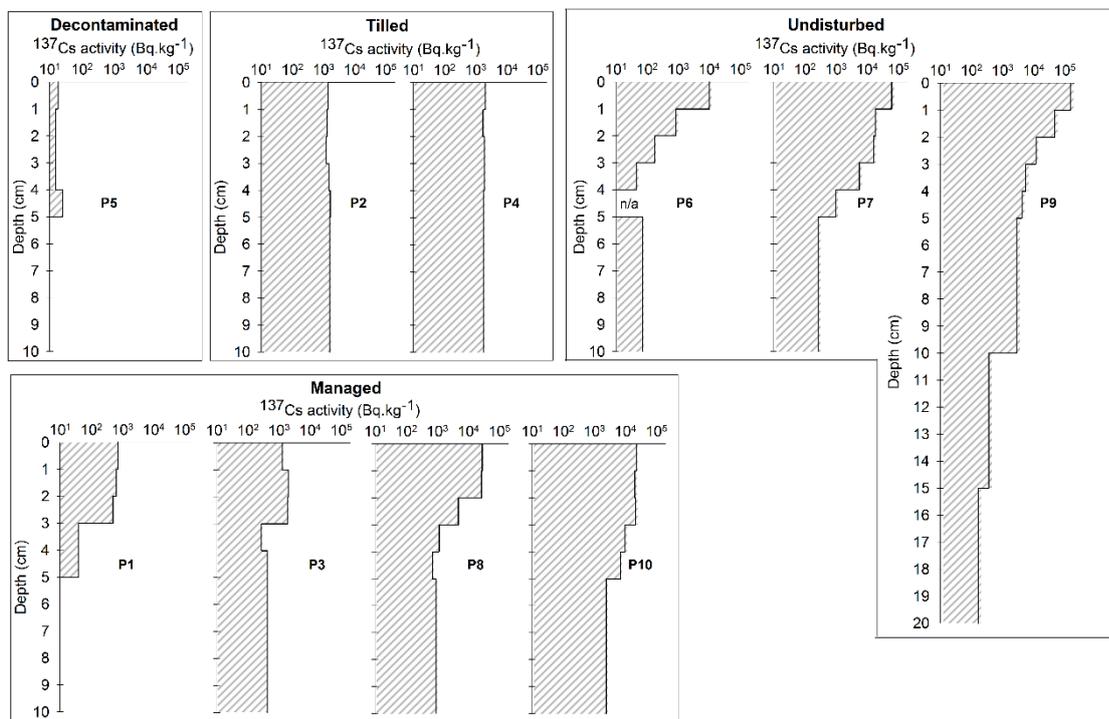


Figure 2. Depth distribution of  $^{137}\text{Cs}$  activity in soil cores. Data on the 4-5 cm layer for P6 were not available (n/a).

Table 2. Characteristics of the soil cores calculated for the uppermost 5 cm incremental layers. More detail is provided in the Supplementary material

Core	Class	$^{137}\text{Cs}$ inventory (%)	Bulk density ( $\text{g.cm}^{-3}$ )	$h_0$ ( $\text{kg.m}^{-2}$ )	$\alpha$ ( $\text{cm}^{-1}$ )	Mean TOC (%)	Clay (%) $d < 10\mu\text{m}$
P1	Managed	98.5	$1.3 \pm 0.3$	20.4	0.87	$1.0 \pm 0.1$	$14.1 \pm 1.1$
P2	Tilled	46.8	$1.2 \pm 0.2$	n/a	n/a	$1.5 \pm 0.2$	$8.2 \pm 0.2$
P3	Managed	73.6	$0.8 \pm 0.2$	17.4	0.42	$4.5 \pm 0.2$	$10.6 \pm 0.9$
P4	Tilled	51.6	$0.8 \pm 0.2$	n/a	n/a	$1.5 \pm 0.1$	$11.9 \pm 2.3$
P5	Decontaminated	72.9	$1.2 \pm 0.2$	n/a	n/a	n/a	n/a
P6	Undisturbed	97.1	$1.2 \pm 0.1$	6.3	1.78	$1.6 \pm 0.3$	$13.7 \pm 2.3$
P7	Undisturbed	98.7	$0.9 \pm 0.2$	8.3	0.94	$2.3 \pm 0.2$	$10.8 \pm 1.1$
P8	Managed	92.9	$1.1 \pm 0.2$	10.4	1.05	$2.1 \pm 0.4$	$8.3 \pm 0.2$
P9	Undisturbed	92.8	$0.7 \pm 0.1$	5.4	0.93	$8.5 \pm 0.3$	$14.6 \pm 1.2$
P10	Managed	87.1	$0.8 \pm 0.1$	16.8	0.31	$4.2 \pm 0.4$	$16.2 \pm 0.6$

n/a : not available

The group of undisturbed fields (P6, P7 and P9) remained abandoned by the end of 2013 as they were protected by a dense grass cover (Fig 4a) and they showed an exponential decrease of  $^{137}\text{Cs}$  activities with depth (Fig 3). Furthermore, our results on relaxation mass depths  $h_0$  in undisturbed soils (Table 2) varied from 5.4 to 8.3 and remained in the same range as previous results found for soils collected in this area (Table 3). Although this result indicates a limited migration of  $^{137}\text{Cs}$ , contamination from the FDNPP accident could still be found at the 10-15 cm and 15-20 cm layers in P9 (respectively 370 and 170  $\text{Bq.kg}^{-1}$ , Fig 2). This is likely due to the natural migration of  $^{137}\text{Cs}$  as this soil core was heavily contaminated ( $155 \text{ kBq.kg}^{-1}$ ) and contained 8.5% of TOC. Nevertheless, level of contamination corresponded to less than 10% of total contamination of P9, as observed in the other undisturbed soil cores.

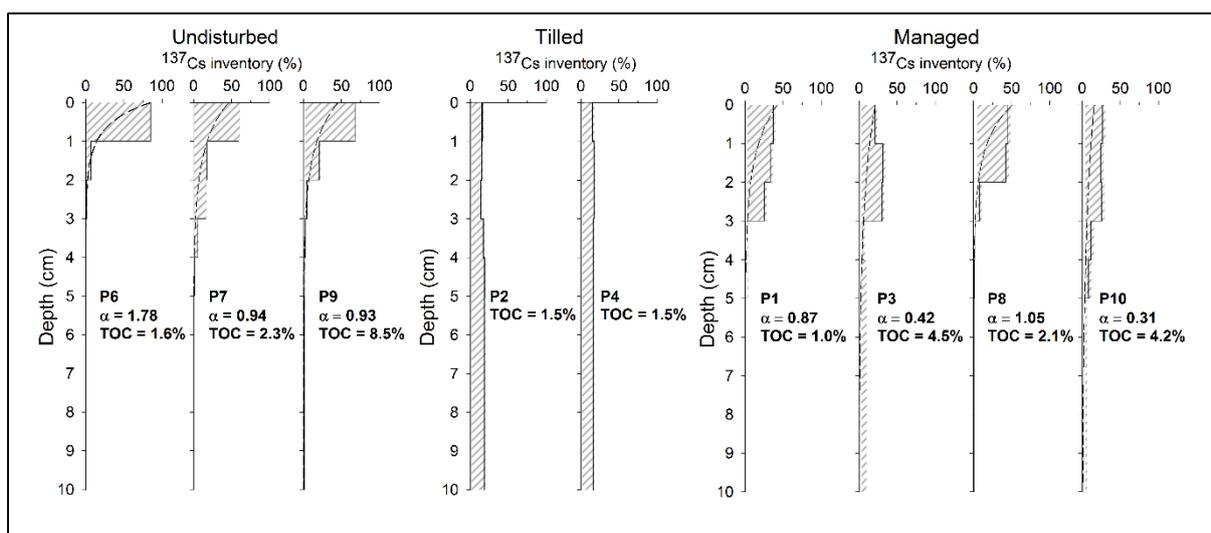


Figure 3. Depth distribution of  $^{137}\text{Cs}$  inventory in the different groups of contaminated soil cores.

The core P5 did not show evidence of additional contamination of  $^{137}\text{Cs}$  due to Fukushima accident (Fig 2) as at this site the  $^{137}\text{Cs}$  concentration levels remained similar to pre-accident conditions, which were estimated not to exceed  $100 \text{ Bq.kg}^{-1}$  in Japanese soils (Fukuyama et al., 2005). However, the detection of  $^{134}\text{Cs}$  confirms that this field was contaminated by the Fukushima fallout and subsequently decontaminated by remediation efforts (i.e. removal of the uppermost 5 to 10 cm) (Fig 4b - Mizoguchi, 2013; Sakai et al., 2014).

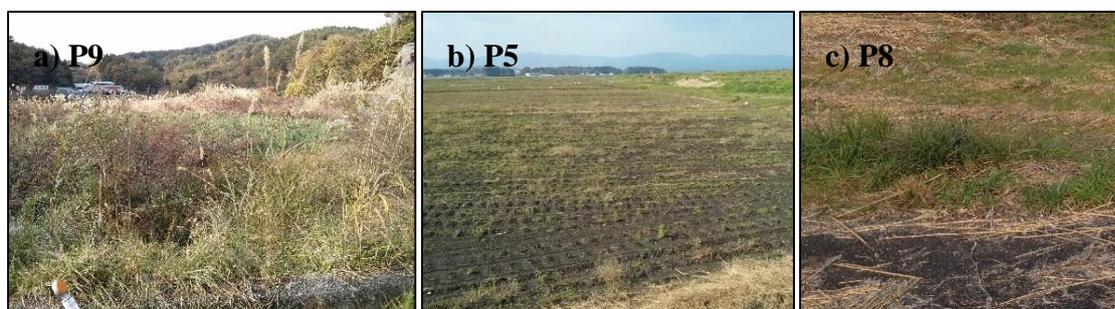


Figure 4. Pictures taken during the sampling campaign (November 2013) and illustrating the difference of land management practices in the field, a) P9 - dense cover of grass on the field showed an absence of land management, b) P5 – land management in the field showed by tractor tracks and c) P8 - grass recently cut and presence of straw residues on the field.

P2 and P4 were disturbed after the initial radionuclide deposition, resulting in a homogenization of activities in successive soil layers (Fig 2; Fig 3). These fields were most likely tilled by farmers (Yamaguchi et al., 2012; Endo et al., 2013; Matsunaga et al., 2013) and now around 51% of the total contamination inventory is found deeper in the soil (i.e. 5-10 cm) (Table 2). This percentage could be higher ( $\approx 66\%$ ) as tilled soils generally showed a similar level of contamination until 15 cm (Yamaguchi et al., 2012; Endo et al., 2013). Thus, a greater sampling depth (at least 15 cm) should be considered for future investigations on  $^{137}\text{Cs}$  migration in Fukushima soils. The ongoing farming operations in this area can be explained by the fact that those fields are not located in the evacuation-prepared area and that cultivation is allowed (Fig 1).

In contrast, managed fields (P1, P3, P8 and P10) showed a similar level of contamination in the upper 2-3 centimetres and then a decrease (Fig 2). These four fields have been continuously managed since the accident, as illustrated by our field observations during previous campaigns (Nov. 2011, April 2012 and May 2013). Grass was cut each year using heavy machinery (Fig 4c), which may explain the mixing of soil and associated  $^{137}\text{Cs}$  in these fields due to the compaction of the first few centimetres of the soil (Matsunaga et al., 2013; Jagercikova et al., 2014). Takahashi et al. (2014) also reported the same migration in the uppermost 3-centimetres and concluded that it was caused by the repeated formation and melting of needle ice in the surface soil during winter and spring. Further investigation is required to clarify the process involved in this migration. However, our results demonstrated that 73.6 to 98.5% of the  $^{137}\text{Cs}$  contamination was concentrated in the upper 5 cm (Table 2).

Contrary to the results obtained by Koarashi et al. (2012), no significant correlation was found between TOC, clay content, TOC/Clay and both the  $\alpha$  coefficient and the relaxation mass depth  $h_0$  (Table 4) in both managed and undisturbed soils (number of samples = 7). As the depth distribution of  $^{137}\text{Cs}$  in soils does not vary with the soil parameters, the different  $^{137}\text{Cs}$  migration observed between undisturbed and managed fields is most likely explained by the type and frequency of farming operations carried out between the nuclear accident and the sampling campaign. The limited migration of  $^{137}\text{Cs}$  could be attributed to the presence of phyllosilicate minerals as identified by XRD analyses (data not presented). These results confirm those found for undisturbed soils located under different land uses in the vicinity of the FDNPP by previous studies (Table 3). Most of these studies concluded that  $^{137}\text{Cs}$  was exclusively found in the upper 5 cm for undisturbed soil in forests (mean of  $^{137}\text{Cs}$  inventory =  $94.8 \pm 2.5\%$ ) and in fields ( $98.7 \pm 1.8\%$ ). Our results on tilled soils are also consistent with those from previous publications (Koarashi et al., 2012; Endo et al., 2013; Matsunaga et al., 2013; Tanaka et al., 2013).

To complement the published research conducted a few months after the accident (Fig 5 – Table 4), our results showed that even more than 30 months after the accident and after the occurrence of several typhoons (Fig 5), the depth migration of  $^{137}\text{Cs}$  was very limited with the majority (73.6 – 98.7%) of this radionuclide still found in the upper 5 centimetres of undisturbed and managed soils. These results are complementary with the study of Matsunaga et al. (2013) who concluded that radiocesium did not migrate with depth even after rainfall events, 5 months after the accident. Tilling is the main contributor of the migration of radiocesium in soil as the main part of contamination is under the first 5 cm (48.4 – 53.2%) in tilled fields (Table 3).

### Chapitre III – Etude de la migration du $^{137}\text{Cs}$ dans le sol des rizières impactées par les retombées radioactives de Fukushima

**Table 3. Literature review of studies investigating evolution of radiocesium activities with depth in soils contaminated by FDNPP radioactive fallout.**

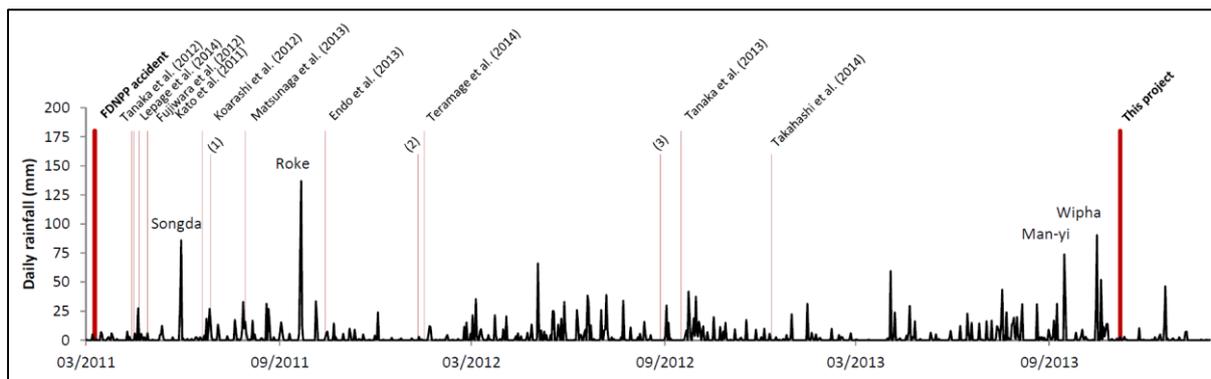
Shape	Reference	Sampling period (mm/yy)	Number of samples	Type of land use investigated	Mean of % upper 5 cm	$\alpha$ ( $\text{cm}^{-1}$ )	$h_0$ ( $\text{kg}\cdot\text{m}^{-2}$ )
Disturbed (Tilled)	Endo et al. (2013)	10/11	3	Paddy field	≈50	n/a	n/a
	Koarashi et al. (2012)	06/11	6	Croplands (with one paddy field)	81	n/a	n/a
	Matsunaga et al. (2013)	07/11	6	Croplands (with one paddy field)	80	n/a	n/a
	Tanaka et al. (2013)	09/12	3	Cultivated paddy field	55	n/a	n/a
	This study	11/13	2	Paddy field	49	n/a	n/a
Disturbed (managed, grazing)	Takahashi et al. (2014)	06/11	2	Land	99	0.3	n/a
			3	Field	98	1.0	n/a
		01/12	2	Land	99	0.5	n/a
			3	Field	98	0.6	n/a
		08/12	2	Land	100	0.7	n/a
			3	Field	94	0.5	n/a
			2	Land	98	0.4	n/a
			3	Field	88	0.6	n/a
			2	Land	98	0.4	n/a
			3	Field	88	0.6	n/a
	This study	11/13	4	Paddy field	88	0.7	18.2
Undisturbed	Fujiwara et al. (2012)	04/11	1	Brown forest soil	n/a	0.7	n/a
			1	Fluvisol	n/a	0.9	n/a
			1	Vegetable field	n/a	2	n/a
	Kato et al. (2011)	04/11	1	Cultivated soil (home garden)	99	1.2	9.1
			6	Croplands (with one paddy field)	99	1.3	5.3
	Koarashi et al. (2012)	06/11	4	Grassland	99	1.2	4.9
			5	Forest	97	0.6	8.4
	Lepage et al. (2014)	04/11	1	Cropland	n/a	1,9	7.1
			6	Croplands (with one paddy field)	99	n/a	n/a
	Matsunaga et al. (2013)	07/11	4	Grassland	99	n/a	n/a
			5	Forest	97	n/a	n/a
			3	Forest	98	0.7	n/a
	Takahashi et al. (2014)	06/11	2	Land	100	2.0	n/a
			3	Forest	92	0.6	n/a
			2	Land	100	1.7	n/a
			3	Forest	96	0.7	n/a
			2	Land	100	1.4	n/a
			3	Forest	94	0.7	n/a
			2	Land	100	1.3	n/a
	Tanaka et al. (2012)	04/11	2	Field	95	n/a	n/a
2			Fruit trees field	92	n/a	n/a	
Teramage et al. (2014)	01/12	1	Coniferous forest	92	0.6	11.1	
	This study	11/13	3	Paddy field	96	1.2	6.7

n/a : not available

**Table 4. Correlation coefficients (r) obtained between the vertical distribution parameters and soil properties measured in samples collected in both undisturbed and managed fields**

	$\alpha$	$h_0$	TOC (%)	Clay (%)	TOC/Clay
$\alpha$	1				
$h_0$	0.66	1			
TOC (%)	0.35	0.30	1		
Clay (%)	0.11	0.13	0.30	1	
TOC/Clay	0.38	0.29	0.95*	-0.01	1

\* Significant at the 0.01 probability level



**Figure 5. Daily rainfall between FDNPP accident and this sampling campaign. Occurrence of typhoons is indicated on the graph. Timing of sampling campaigns of previous studies dealing with <sup>137</sup>Cs migration in soils is also indicated. Takahashi et al. (2014) also sampled at (1) (2) and (3).**

b. Implications for contamination redistribution across the catchments

In most of the investigated soil cores, contamination was concentrated in the upper layers of the soils and is therefore potentially available for soil erosion (Walling & Woodward, 1992; Motha & Wallbrink, 2002). However, in abandoned fields, the dense grass cover will protect the soil against erosion as soil erodibility is mainly controlled by the vegetation cover, surface roughness and crusting characteristics (Le Bissonnais et al., 2005; Evrard et al., 2008). During decontamination operations, the grass is cut and vegetation is removed leaving the soil bare and exposed to the erosive impact of intense rainfall. The specific supply of contaminated sediment from fields where remediation efforts were concentrated to nearby rivers was demonstrated by Evrard et al. (2014) who showed an increase of radioactive dose rates in recent sediment drape deposits collected in the upper parts of the Nitta River catchment after the heavy typhoons that occurred during summer in 2013.

In this context, we recommend rapidly removing the first few centimetres of the soil immediately after removing the vegetation to avoid erosion of contaminated material during the subsequent rainfall events. Alternatively, remediation efforts could be concentrated before July or after October, when typhoons are unlikely to occur. We do not recommend mixing soil with water (puddling) in contaminated fields, as this could export the contamination contained in the uppermost layers of the soil (Wakahara et al., 2013).

Furthermore, contaminated soils that have been eroded and transported by the river could be deposited on top of already decontaminated soil (Sakai et al. 2014). To avoid this recontamination, we recommend to start the decontamination works in the catchment headwaters and to proceed downstream.

#### 4. Concluding remarks

Depth distributions of  $^{137}\text{Cs}$  investigated in 10 paddy fields varied with land management. The maximum depth penetration of  $^{137}\text{Cs}$  collected in November 2013 was attributed to maintenance and farming operations in paddy fields contaminated after the FDNPP accident (March 2011). In tilled fields, the contamination showed a similar level in each layer (0-10cm) while in managed field, where vegetation was removed, contamination only migrated down the first 2-3 cm. In undisturbed soils,  $^{137}\text{Cs}$  inventory decreased with depth following an exponential function. Our results confirm the overall limited migration of  $^{137}\text{Cs}$  concentrated in the first few centimetres (<5 cm) of soil in undisturbed and managed paddy fields located within the main Fukushima contamination plume.

### III - 2 INFORMATIONS COMPLÉMENTAIRES

Les résultats montrent que la migration en profondeur du  $^{137}\text{Cs}$  est très faible dans les sols sous rizière à l'exception de celles qui sont labourées. Nous avons au préalable vu que les Andosols, qui sont généralement considérés comme contenant des minéraux amorphes (allophane), pouvaient être différents dans la Préfecture de Fukushima, car ils contiendraient également des minéraux qui fixent le  $^{137}\text{Cs}$  comme des micas et des argiles (Nakao et al., 2012; Takahashi et al., 2014). Deux hypothèses peuvent expliquer cela.

- La première concerne l'irrigation des rizières par les rivières qui peut apporter des minéraux issus de l'érosion des montagnes en amont (Nemoto et al., 2013; Yamasaki et al., 2013). Dans nos bassins versants, ces minéraux peuvent provenir des roches granitiques situées dans la zone montagneuse (Geological Survey of Japan, 2012). En effet, Masui (1954) a montré la présence de micas (notamment de la biotite) et de minéraux argileux (montmorillonite, kaolinite et illite) dans les granodiorites de la Préfecture de Fukushima.
- La deuxième est en lien avec l'apport éolien de poussières provenant des régions arides et semi-arides de Chine (Eguchi et al., 2013). En effet, les mesures du rapport isotopique de l'oxygène ( $\delta^{18}\text{O}$ ) ont montré que le quartz contenu dans les andosols provenait de ces régions de Chine (Mizota et al., 1990). Ainsi, Eguchi et al. (2013) ont montré que les argiles (vermiculite et smectite) avaient pour origine ces dépôts éoliens.

De plus, la carte des sols de 2002 (Geographical Survey Institute, 2002) montre une proportion plus faible d'Andosols dans les rizières que sur la carte de 1972 (Economic Planning Agency, 1972). Des études récentes confirment que les Andosols de la Préfecture de Fukushima contiennent bien des minéraux qui peuvent fixer le  $^{137}\text{Cs}$  (Fan et al., 2014; Takahashi et al., 2014).

Pour confirmer ces hypothèses, nous avons réalisé une série de mesures par Diffraction des Rayons X (DRX - Figure III - 2-1) sur 29 échantillons de sol provenant de différents environnements (rizières, champs, forêts...) et de différents types de sol selon la carte de 1972 (Economic Planning Agency, 1972).

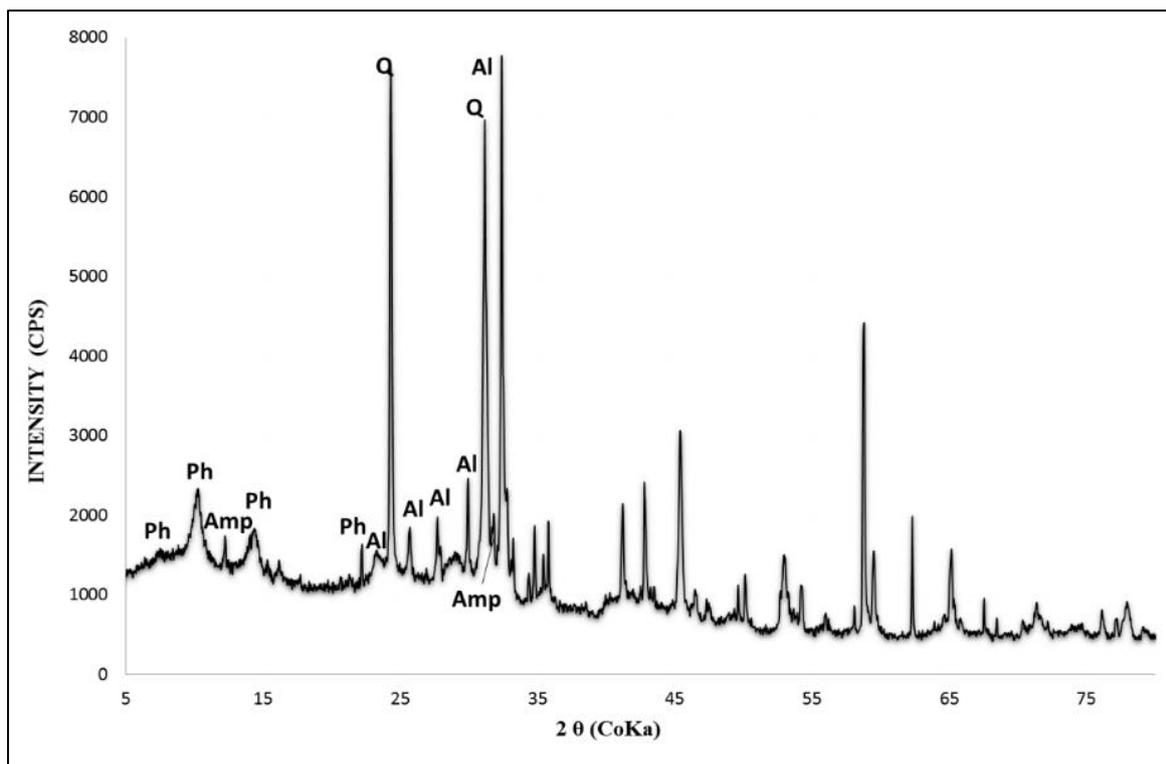


Figure III - 2-1 - Diffractogramme d'un échantillon collecté dans une rizière (type de sol : Andosol). Ph : phyllosilicate, Amp : amphibole, Q : quartz et Al : albite.

L'analyse des diffractogrammes obtenus par les analyses par DRX (Tableau III - 2-1) montrent que l'ensemble des échantillons sont caractérisés par la présence de quartz, mais surtout de minéraux connus pour fixer le  $^{137}\text{Cs}$ , comme certains types d'argiles (chlorite, kaolinite, montmorillonite) et les micas. Ces résultats confirment donc l'hypothèse énoncée dans le corps de ce chapitre et explique la forte rétention du  $^{137}\text{Cs}$  dans la couche superficielles des sols.

Dans certains échantillons, la présence simultanée de chlorite, de smectite, de mica, de kaolinite et d'amphibole est très surprenante (Annexe B.3). Ce mélange peut en partie être associé aux travaux de décontamination des sols de la zone montagneuse (Kawasaki, 2011; Nakano & Yong, 2013), et à l'impact du tsunami et aux dépôts qu'il a engendrés dans la zone côtière (Mori et al., 2012).

Tableau III - 2-1 - Synthèse des minéraux détectés dans les principaux types de sols des bassins étudiés.

Type de sol	Nb ech.	Albite	Amphibole	Anorthite	Biotite	Chamosite	Chlorite	Clinochlore	Imogolite
<b>Andosols</b>	<b>9</b>	7	2	3	3	5	2	0	0
<b>Cambisols</b>	<b>6</b>	3	1	2	1	3	2	1	?
<b>Fluvisol</b>	<b>5</b>	3	2	1	1	2	1	1	1
<b>Fluvisol/Gleysol</b>	<b>7</b>	6	4	4	2	3	3	0	0
<b>Regosols</b>	<b>2</b>	2	0	1	0	2	0	0	0
Type de sol	Nb ech.	Kaolinite	Labradorite	Mica	Montmorillonite	Muscovite	Orthoclase	Quartz	Tremolite
<b>Andosols</b>	<b>9</b>	4	1	0	4	6	3	9	6
<b>Cambisols</b>	<b>6</b>	1	1	1	1	4	1	6	2
<b>Fluvisol</b>	<b>5</b>	?	2	0	0	3	0	5	1
<b>Fluvisol/Gleysol</b>	<b>7</b>	2	0	0	2	6	0	7	0
<b>Regosols</b>	<b>2</b>	?	0	1	?	1	0	2	1

### III - 3 CONCLUSIONS DU CHAPITRE III

Dans ce chapitre, nous avons analysé la distribution du  $^{137}\text{Cs}$  en profondeur dans les sols de 10 rizières, implantées sur des Andosols selon la carte des sols de 1972. Ces dix sites sont représentatifs de l'état des rizières dans la Préfecture de Fukushima : certaines sont labourées, d'autres ont été tondues mais pas cultivées depuis l'accident et les dernières ont été abandonnées.

Trente mois après l'accident, et malgré un cumul de pluie important (3300 mm), nos résultats montrent que le  $^{137}\text{Cs}$  reste majoritairement à la surface du sol et que sa présence en profondeur n'est pas corrélée avec la teneur du sol en carbone organique ni avec le pourcentage d'argile. Les résultats montrent que la distribution du  $^{137}\text{Cs}$  est directement liée aux activités agricoles (labour, tonte, passage d'engins...). Ainsi, entre 46 et 52 % de l'inventaire du radionucléide se trouvent dans les 5 premiers cm des sols labourés, et plus de 73 % dans les rizières tondues et abandonnées. La faible migration de cet isotope est en partie due à la présence de minéraux qui l'adsorbent fortement comme certaines argiles (montmorillonite, kaolinite...) détectées lors des analyses par DRX. Ces minéraux, qui ne sont pourtant pas typiques des Andosols et qui étaient absents à l'origine des dépôts de cendres volcaniques, pourraient avoir été apportés lors de l'irrigation des rizières. En effet, l'eau utilisée pour cette irrigation provient principalement des rivières qui ont pu éroder différents minéraux présents dans les montagnes des bassins, notamment les granodiorites qui contiennent des micas (biotite) et des argiles (montmorillonite, kaolinite, illite).

Comme les rizières sont fortement connectées au réseau hydrographique, l'érosion de la couche superficielle du sol pourrait exporter ces particules enrichies en  $^{137}\text{Cs}$  vers les rivières et conduire à la dispersion de la contamination radioactive. En outre, le  $^{137}\text{Cs}$  adsorbé aux particules est susceptible d'être transporté par les rivières lors d'évènements érosifs comme les typhons jusqu'aux plaines côtières et, *in fine*, jusqu'à l'Océan Pacifique. Cependant, le sol et le  $^{137}\text{Cs}$  qu'il contient peuvent être protégés contre l'érosion par le couvert végétal, d'autant plus que certaines rizières sont abandonnées depuis l'accident et que la végétation n'a cessé d'y pousser. Il est donc important d'éviter de réaliser les travaux de décontamination lors de la saison des typhons, et de rapidement retirer la couche superficielle après la tonte si c'est le cas.

Au cours des six campagnes de prélèvements, nous avons pu mettre en évidence la dispersion de cette contamination, en mesurant des niveaux de radioactivité plus élevés dans les sédiments par rapport aux sols voisins dans la plaine côtière. Pour réduire l'impact de cette dispersion, il est donc important d'obtenir des informations sur l'origine spatiale des sédiments contaminés. Pour y parvenir, nous allons à présent mettre en œuvre plusieurs méthodes de traçage afin d'obtenir des informations spatiales et temporelles sur la dispersion de ces particules contaminées dans les rivières de Fukushima.

## III - 4 REFERENCES

- Beck, H.L., 1966. Environmental gamma radiation from deposited fission products. *Health Phys.* 12, 313.
- Chartin, C., Evrard, O., Onda, Y., Patin, J., Lefèvre, I., Otlé, C., Ayrault, S., Lepage, H., Bonté, P., 2013. Tracking the early dispersion of contaminated sediment along rivers draining the Fukushima radioactive pollution plume. *Anthropocene* 1, 23–34.
- Economic Planning Agency, 1972. Scale 1:200,000 Fundamental Land Classification Survey in Fukushima (soil map). <http://nrb-www.mlit.go.jp> (Dernier accès Juillet 2015).
- Eguchi, T., Tanaka, R., Maejima, Y., Tamura, K., 2012. The influence of aeolian dust in non-allophanic Andosols on Yakushima Island. *Soil Sci. Plant Nutr.* 58, 191–199.
- Endo, S., Kajimoto, T., Shizuma, K., 2013. Paddy-field contamination with  $^{134}\text{Cs}$  and  $^{137}\text{Cs}$  due to Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident and soil-to-rice transfer coefficients. *J. Environ. Radioact.* 116, 59–64
- Evrard, O., Vandaele, K., Biélders, C., Van Wesemael, B., 2008. Seasonal evolution of runoff generation on agricultural land in the Belgian loess belt and implications for muddy flood triggering. *Earth Surf. Process. Landforms* 1301, 1285–1301.
- Evrard, O., Chartin, C., Onda, Y., Patin, J., Lepage, H., Lefèvre, I., Ayrault, S., Otlé, C., Bonté, P., 2013. Evolution of radioactive dose rates in fresh sediment deposits along coastal rivers draining Fukushima contamination plume. *Sci. Rep.* 3, 3079.
- Evrard, O., Chartin, C., Onda, Y., Lepage, H., Cerdan, O., Lefèvre, I., Ayrault, S., 2014. Renewed soil erosion and remobilisation of radioactive sediment in Fukushima coastal rivers after the 2013 typhoons. *Sci. Rep.* 4, 4574.
- Fan, Q., Tanaka, K., Sakaguchi, A., Kondo, H., Watanabe, N. and Takahashi, Y., 2014a. Factors controlling radiocesium distribution in river sediments: Field and laboratory studies after the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident. *Applied Geochemistry*, 48: 93-103.
- Fujiwara, T., Saito, T., Muroya, Y., 2012. Isotopic ratio and vertical distribution of radionuclides in soil affected by the accident of Fukushima Dai-ichi nuclear power plants. *J. Environ. Radioact.* 113, 37–44.
- Fukuyama, T., Takenaka, C., Onda, Y., 2005.  $^{137}\text{Cs}$  loss via soil erosion from a mountainous headwater catchment in central Japan. *Sci. Total Environ.* 350, 238–47.
- Geographical Survey Institute, 2002, Fundamental Geospatial Data. Agricultural Soil map of Fukushima Prefecture. (Dernier accès Juillet 2015).
- Geological Survey of Japan, 2012. Seamless digital geological map of Japan 1: 200,000. Jul 3, 2012 version. Research Information Database DB084, Geological Survey of Japan, National Institute of Advanced Industrial Science and Technology (Dernier accès Juillet 2015).
- He, Q., Walling, D., 1996. Interpreting particle size effects in the adsorption of  $^{137}\text{Cs}$  and unsupported  $^{210}\text{Pb}$  by mineral soils and sediments. *J. Environ. Radioact.* 30, 117–137.
- He, Q., Walling, D., 1997. The distribution of fallout  $^{137}\text{Cs}$  and  $^{210}\text{Pb}$  in undisturbed and cultivated soils. *Appl. Radiat. Isot.* 48, 677–690.
- Ivanov, Y., Lewyckyj, N., Levchuk, S., 1997. Migration of  $^{137}\text{Cs}$  and  $^{90}\text{Sr}$  from Chernobyl fallout in Ukrainian, Belarussian and Russian soils. *J. Environ. Radioact.* 35.
- Jagercikova, M., Evrard, O., Balesdent, J., Lefèvre, I., Cornu, S., 2014. Modeling the migration of fallout radionuclides to quantify the contemporary transfer of fine particles in Luvisol profiles under different land uses and farming practices. *Soil Tillage Res.* 140, 82–97.
- Japanese Meteorological Agency: <http://www.data.jma.go.jp>. (Dernier accès Juillet 2014) (in Japanese)
- Kamei-Ishikawa, N., Uchida, S., Tagami, K., 2008. Distribution coefficients for  $^{85}\text{Sr}$  and  $^{137}\text{Cs}$  in Japanese agricultural soils and their correlations with soil properties. *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 277, 433–439.
- Kato, H., Onda, Y., Teramage, M., 2012. Depth distribution of  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{134}\text{Cs}$ , and  $^{131}\text{I}$  in soil profile after Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant Accident. *J. Environ. Radioact.* 111, 59–64.
- Kawamura, H., Kobayashi, T., Furuno, A., In, T., Ishikawa, Y., Nakayama, T., Shima, S., Awaji, T., 2011. Preliminary numerical experiments on oceanic dispersion of  $^{131}\text{I}$  and  $^{137}\text{Cs}$  discharged into the ocean because of the Fukushima Daiichi nuclear power plant. *J. Nucl. Sci. Technol.* 48, 1349–1356.

- Kawasaki, K., 2011. Current Status of Municipal Planning Activities for the Revitalization of Fukushima Prefecture: Special Focus on Non-statutory Municipal Decontamination Plans. In Proceedings of One Year after 2011 Great East Japan Earthquake: International Symposium on Engineering Lessons Learned from the Giant Earthquake, 1680–1691.
- Kinoshita, N., Sueki, K., Sasa, K., Kitagawa, J., Ikarashi, S., Nishimura, T., Wong, Y.-S., Satou, Y., Handa, K., Takahashi, T., Sato, M., Yamagata, T., 2011. Assessment of individual radionuclide distributions from the Fukushima nuclear accident covering central-east Japan. *Proc. Natl. Acad. Sci. U. S. A.* 108, 19526–9.
- Koarashi, J., Atarashi-Andoh, M., Matsunaga, T., Sato, T., Nagao, S., Nagai, H., 2012. Factors affecting vertical distribution of Fukushima accident-derived radiocesium in soil under different land-use conditions. *Sci. Total Environ. Environ.* 431, 392–401.
- Koo, Y.-H., Yang, Y.-S., Song, K.-W., 2014. Radioactivity release from the Fukushima accident and its consequences: A review. *Prog. Nucl. Energy* 74, 61–70.
- Le Bissonnais, Y., Cerdan, O., Lecomte, V., Benkhadra, H., Souchère, V., Martin, P., 2005. Variability of soil surface characteristics influencing runoff and interrill erosion. *Catena* 62, 111–124.
- Lee, S.H., Oh, J.S., Lee, J.M., Lee, K.B., Park, T.S., Lujanienė, G., Valiulis, D., Sakalys, J., 2013. Distribution characteristics of  $^{137}\text{Cs}$ , Pu isotopes and  $^{241}\text{Am}$  in soil in Korea. *Appl. Radiat. Isot.* 81, 315–20.
- Lepage, H., Evrard, O., Onda, Y., Patin, J., Chartin, C., Lefèvre, I., Bonté, P., Ayrault, S., 2014. Environmental mobility of  $^{110\text{m}}\text{Ag}$ : lessons learnt from Fukushima accident (Japan) and potential use for tracking the dispersion of contamination within coastal catchments. *J. Environ. Radioact.* 130, 44–55.
- Masui, J., 1954. Studies on the genesis of clay minerals in soil II. The clay minerals in the soil derived from granodiorite at Ogoe, Fukushima prefecture, Japan. *Tohoku J. Agric. Res.* 5, 71–91.
- Matsunaga, T., Koarashi, J., Atarashi-Andoh, M., Nagao, S., Sato, T., Nagai, H., 2013. Comparison of the vertical distributions of Fukushima nuclear accident radiocesium in soil before and after the first rainy season, with physicochemical and mineralogical interpretations. *Sci. Total Environ.* 447, 301–14.
- Miller, K.M., Kuiper, J.L., Heifer, I.K., 1990.  $^{137}\text{Cs}$  Fallout Depth Distributions in Forest Versus Field Sites: Implications for External Gamma Dose Rates. *J. Environ. Radioact.* 12, 23–47.
- Ministry of Economy, Trade and Industry (METI), 2014. Areas to which evacuation orders have been issued (April 1, 2014), <http://www.meti.go.jp/english/earthquake/nuclear/roadmap/pdf/140401MapOfAreas.pdf> (Dernier accès Juillet 2015)
- Ministry of Education, Culture, Sports, Science and Technology (MEXT), 2012. MEXT, Japan [http://radioactivity.nsr.go.jp/ja/contents/7000/6289/24/203\\_0928.pdf](http://radioactivity.nsr.go.jp/ja/contents/7000/6289/24/203_0928.pdf) (In Japanese)
- Ministry of the Environment, Government of Japan (MOE), 2012a, <http://josen.env.go.jp/en/>
- Ministry of the Environment, Government of Japan (MOE), 2012b, [http://josen.env.go.jp/osen/osen\\_05.html](http://josen.env.go.jp/osen/osen_05.html)
- Ministry of the Environment, Government of Japan (MOE), 2013. Progress on Off-site Cleanup efforts in Japan. [http://josen.env.go.jp/en/documents/pdf/workshop\\_july\\_17-18\\_2013\\_01.pdf](http://josen.env.go.jp/en/documents/pdf/workshop_july_17-18_2013_01.pdf)
- Mizoguchi, M., 2013. Remediation of Paddy Soil Contaminated by Radiocesium in Iitate Village in Fukushima Prefecture. *Agric. Implic. Fukushima Nucl.* 131–142.
- Mizota, C., Kusakabe, M., Noto, M., 1990. Oxygen isotope composition of quartz in soils developed on late Quaternary volcanic ashes in Japan. *Geoderma* 46, 319–327.
- Mori, N., Takahashi, T., 2012. Nationwide post event survey and analysis of the 2011 Tohoku Earthquake. *Coast. Eng. J.*, 54.
- Motha, J., Wallbrink, P., 2002. Tracer properties of eroded sediment and source material. *Hydrol. Process.* 16, 1983–2000.
- Nakano, M., Yong, R.N., 2013. Overview of rehabilitation schemes for farmlands contaminated with radioactive cesium released from Fukushima power plant. *Eng. Geol.* 155, 87–93.
- Nakao, A., Funakawa, S., Tsukada, H., Kosaki, T., 2012. The fate of caesium-137 in a soil environment controlled by immobilization on clay minerals. *An Environ. J. Glob. Community* 6, 17–29.
- National Institute for Agro-Environmental Sciences (NIAES), 1996. Classification of cultivated soils in Japan: third approximation, Classification Committee of Cultivated Soils.

- National Institute for Agro-Environmental Sciences (NIAES), digital cropland soil map of the Fukushima prefecture. [http://agrimesh.dc.affrc.go.jp/soil\\_db/map\\_select\\_figure.phtml](http://agrimesh.dc.affrc.go.jp/soil_db/map_select_figure.phtml) (Dernier accès janvier 2015)
- Nemoto, K., Abe, J., 2013. Agricultural Implications of the Fukushima Nuclear Accident 19–27.
- Saito, T., Makino, H., Tanaka, S., 2014. Geochemical and grain-size distribution of radioactive and stable cesium in Fukushima soils: implications for their long-term behavior. *J. Environ. Radioact.* 138C, 11–18.
- Sakai, M., Gomi, T., Nunokawa, M., Wakahara, T., Onda, Y., 2014. Soil removal as a decontamination practice and radiocesium accumulation in tadpoles in rice paddies at Fukushima. *Environ. Pollut.* 187, 112–5.
- Saunier, O., Mathieu, a., Didier, D., Tombette, M., Quélo, D., Winiarek, V., Bocquet, M., 2013. An inverse modeling method to assess the source term of the Fukushima Nuclear Power Plant accident using gamma dose rate observations. *Atmos. Chem. Phys.* 13, 11403–11421.
- Sawhney, B., 1972. Selective sorption and fixation of cations by clay minerals: a review. *Clays and Clay Minerals.* 20, 93–100.
- Shozugawa, K., Nogawa, N., Matsuo, M., 2012. Deposition of fission and activation products after the Fukushima Dai-ichi nuclear power plant accident. *Environ. Pollut.* 163, 243–7.
- Staunton, S., Dumat, C., Zsolnay, A., 2002. Possible role of organic matter in radiocaesium adsorption in soils. *J. Environ. Radioact.* 58, 163–73.
- Szenknect, S., Gaudet, J.P., Dewiere, L., 2003. Evaluation of distribution coefficients for the prediction of strontium and cesium migration in a natural sand at different water contents. *J. Phys. IV* 107, 1279–1282.
- Takahashi, J., Tamura, K., Suda, T., 2014. Vertical distribution and temporal changes of  $^{137}\text{Cs}$  in soil profiles under various land uses after the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident. *J. Environ. Radioact.* 139, 351–361.
- Tanaka, K., Iwatani, H., Takahashi, Y., Sakaguchi, A., Yoshimura, K., Onda, Y., 2013. Investigation of spatial distribution of radiocesium in a paddy field as a potential sink. *PLoS One* 8, e80794.
- Tanaka, K., Takahashi, Y., Sakaguchi, A., 2012. Vertical profiles of iodine-131 and cesium-137 in soils in Fukushima prefecture related to the Fukushima Daiichi Nuclear Power Station accident. *Geochem. J.* 46, 73–76.
- Teramage, M.T., Onda, Y., Patin, J., Kato, H., Gomi, T., Nam, S., 2014. Vertical distribution of radiocesium in coniferous forest soil after the Fukushima nuclear power plant accident. *J. Environ. Radioact.* 137, 37–45.
- Vandebroek, L., Van Hees, M., Delvaux, B., Spaargaren, O., Thiry, Y., 2012. Relevance of Radiocaesium Interception Potential (RIP) on a worldwide scale to assess soil vulnerability to  $^{137}\text{Cs}$  contamination. *J. Environ. Radioact.* 104, 87–93.
- Wakahara, T., Onda, Y., Kato, H., Sakaguchi, A., & Yoshimura, K., 2014. Radiocesium discharge from paddy fields with different initial scrapings for decontamination after the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident. *Environmental Science: Processes & Impacts*, 16(11), 2580–2591.
- Walling, D.E., He, Q., 1999. Improved models for estimating soil erosion rates from cesium-137 measurements. *J. Environ. Qual.* 28, 611–622.
- Walling, D.E., Woodward, J.C., 1992. Use of radiometric fingerprints to derive information on suspended sediment sources, in: *Erosion and Sediment Transport Monitoring Programmes in River Basin*. IAHS Publ, vol. 210. Wallingford: IAHS Press; 1992. p. 153–64
- Yamaguchi, N., Eguchi, S., Fujiwara, H., Hayashi, K., Tsukada, H., 2012. Radiocesium and radioiodine in soil particles agitated by agricultural practices: field observation after the Fukushima nuclear accident. *Sci. Total Environ.* 425, 128–34.
- Yamasaki, S., Takeda, A., Nunohara, K., Tsuchiya, N., 2013. Red soils derived from limestone contain higher amounts of trace elements than those derived from various other parent materials 692–699.
- Yoshimura, K., Onda, Y., Kato, H., 2015. Evaluation of radiocaesium wash-off by soil erosion from various land uses using USLE plots. *J. Environ. Radioact.* 139, 362–9.



# CHAPITRE IV



# CHAPITRE IV – TRAÇAGE DE LA DISPERSION DE LA CONTAMINATION RADIOACTIVE : UTILISATION DE L'EMPREINTE RADIOACTIVE DES REJETS DE LA CENTRALE

---

## Sommaire

<b>UTILISATION DU RAPPORT D'ACTIVITE <math>^{110m}\text{Ag}/^{137}\text{Cs}</math> POUR TRACER LA DISPERSION DE LA CONTAMINATION</b>	<b>133</b>
ENVIRONMENTAL MOBILITY OF $^{110m}\text{Ag}$ : LESSONS LEARNT FROM FUKUSHIMA ACCIDENT (JAPAN) AND POTENTIAL USE FOR TRACKING THE DISPERSION OF CONTAMINATION WITHIN COASTAL CATCHMENTS	134
UTILISATION DU RAPPORT D'ACTIVITE $^{110m}\text{Ag}/^{137}\text{Cs}$	156
Dépôt de l'argent-110 metastable	156
Modèle de mélange	157
Résultats	158
Limite de cette méthode	159
<b>TRACKING THE ORIGIN AND DISPERSION OF CONTAMINATED SEDIMENTS TRANSPORTED BY RIVERS DRAINING THE FUKUSHIMA RADIOACTIVE CONTAMINANT PLUME</b>	<b>160</b>
<b>TRACAGE DE LA DISPERSION EN UTILISANT L'ACTIVITE EN <math>^{137}\text{CS}</math></b>	<b>169</b>
<b>CONCLUSIONS DU CHAPITRE IV</b>	<b>171</b>
<b>REFERENCES</b>	<b>173</b>

# TRAÇAGE DE LA DISPERSION DE LA CONTAMINATION RADIOACTIVE : UTILISATION DE L'EMPREINTE RADIOACTIVE DES REJETS DE LA CENTRALE

Le chapitre précédent montre que la migration du  $^{137}\text{Cs}$  en profondeur dans les sols est très faible. Ainsi, plus de 73% de la contamination se trouvaient toujours dans les premiers 5 cm du sol, 30 mois après l’accident. De ce fait, les particules contaminées sont susceptibles d’être transportées lors d’évènements érosifs. Plusieurs études ont pu confirmer et caractériser la dispersion de cette contamination (Nagao et al., 2013; Kurikami et al., 2014; Yamaguchi et al., 2014; Yamashiki et al., 2014). Ainsi, pour deux affluents de la section amont de la Niida, Ueda et al. (2013) ont estimé que 0,045 TBq ( $0,045 \times 10^{12}$  Bq) et 0,020 TBq de radiocésium avaient été exportés entre le 15 mars 2011 ( $\approx$  jour de dépôt des retombées) et le 31 décembre 2011. Ces exportations correspondent respectivement à 0,5 % et 0,3 % de l’inventaire total de la contamination initiale des sols drainés par ces affluents. De plus, ces auteurs ont montré que 90 % de cet export sont intervenus lors du seul typhon Roke (septembre 2011). Cependant, ces études portent généralement sur des périodes ou des sections de rivière limitées, ce qui ne permet pas d’extrapoler ces résultats à l’échelle de l’ensemble des bassins versants côtiers qui drainent le panache de contamination radioactive.

Pour y parvenir, nous avons étudié la dispersion de la contamination pendant les trois années qui ont suivi l’accident et, ce, à l’échelle des bassins de la Mano et de la Niida. Une première approche a consisté à utiliser les mesures d’activité des radionucléides émetteurs gamma dans les sols et les laisses de crues. En effet, suite à l’accident, le dépôt de certains radionucléides s’est révélé être hétérogène dans l’espace (Figure I - 1-16). La variabilité spatiale des retombées radioactives a généré une empreinte caractéristique qui peut permettre de tracer la dispersion de la contamination initiale par l’érosion des sols et le transfert des particules érodées dans les rivières des bassins versants drainant le panache de Fukushima.

---

Dans ce chapitre, trois méthodes complémentaires vont être présentées :

1. La première méthode est basée sur le calcul du **rapport d'activité**  $^{110m}\text{Ag}/^{137}\text{Cs}$  dans les sols et les laisses de crue prélevés dans le bassin de la Niida. En effet, la valeur de ce rapport d'activités varie dans les sols de l'amont et de l'aval de ce bassin, et ces variations permettent de calculer le pourcentage de contribution de chacune de ces deux sources aux sédiments prélevés dans les rivières en utilisant un modèle de mélange binaire. Les résultats de ces travaux ont été publiés par Chartin et al. (2013)<sup>1</sup>. Ce travail n'a pu être appliqué que pour le bassin de la Niida où la signature des sols variait significativement au sein des bassins. Cependant, pour appuyer la pertinence de l'utilisation de ce rapport d'activité comme traceur, nous avons préalablement analysé et comparé le comportement des deux radionucléides dans les sols et les sédiments. Ces travaux ont fait l'objet d'une publication : *Lepage, H., Evrard, O., Onda, Y., Patin, J., Chartin, C., Lefèvre, I., Bonté, P., Ayrault, S., 2014. Environmental mobility of  $^{110m}\text{Ag}$ : lessons learnt from Fukushima accident (Japan) and potential use for tracking the dispersion of contamination within coastal catchments. J. Environ. Radioact. 130, 44–55.*
2. Ensuite, la caractérisation de l'activité du  $^{137}\text{Cs}$  dans les sols et les laisses de crue a permis de calculer un **facteur d'enrichissement** qui correspond au rapport de l'activité du  $^{137}\text{Cs}$  dans les laisses sur l'activité du  $^{137}\text{Cs}$  dans les sols avoisinants. Cette méthode permet de mettre en évidence la dispersion de la contamination initiale et l'impact des typhons sur celle-ci, mais elle reste qualitative. Ces travaux ont fait l'objet d'une publication dans le Redbook édité lors de la conférence *Sediment Dynamics from the Summit to the Sea* organisée par l'IAHS : *Lepage, H., Evrard, O., Onda, Y., Chartin, C., Lefèvre, I., Ayrault, S., A., Bonté, P., 2014. Tracking the origin and dispersion of contaminated sediments transported by rivers draining the Fukushima radioactive contaminant plume, in: Sediment Dynamics from the Summit to the Sea. pp. 237–243.*
3. Enfin, afin de quantifier cette dispersion, un modèle de mélange binaire a été utilisé, basé sur les **distributions de l'activité du  $^{137}\text{Cs}$**  dans les sols des sections amont et des plaines côtières des bassins versants. Ce modèle a permis de calculer la contribution relative de ces deux zones aux sédiments prélevés dans les plaines côtières. Ces travaux font l'objet d'une publication en préparation en vue d'une soumission à la revue *Anthropocene* : *Tracing sediment dynamics in coastal catchments affected by the Fukushima Dai-Ichi Nuclear Accident.*

---

<sup>1</sup> Chartin, C., Evrard, O., Onda, Y., Patin, J., Lefèvre, I., Otlé, C., Ayrault, S., **Lepage, H.**, Bonté, P., 2013. Tracking the early dispersion of contaminated sediment along rivers draining the Fukushima radioactive pollution plume. *Anthropocene* 1, 23–34.

## IV - 1 UTILISATION DU RAPPORT D’ACTIVITE $^{110m}\text{Ag}/^{137}\text{Cs}$ POUR TRACER LA DISPERSION DE LA CONTAMINATION

L’argent-110m est un radionucléide produit dans les centrales nucléaires en conditions normales et/ou accidentelles. C’est un produit d’activation de l’argent-109 que l’on retrouve dans certaines gaines des réacteurs nucléaires ou alors il est produit par fission de noyaux plus lourds (Chelet al., 2006). Il est ainsi produit en continu et il peut être mesuré dans l’environnement proche de ces centrales, à des taux très faibles et majoritairement inférieurs aux limites de détection (Calmon et Garnier-Laplace, 2002). Cependant, lors d’un accident nucléaire, il peut être émis en plus grande quantité, ce qui est le cas dans la Préfecture de Fukushima, où son activité massique a parfois atteint plus de 1000 Bq/kg dans des échantillons de sols. Le MEXT a ainsi détecté du  $^{110m}\text{Ag}$  dans 345 échantillons de sols (Chartin et al., 2013).

De plus, la répartition spatiale du rapport d’activité  $^{110m}\text{Ag}/^{137}\text{Cs}$  a permis de caractériser deux zones dans le bassin de la Niida où les sols sont caractérisés par des valeurs significativement différentes de ce rapport d’activités. Cette différence peut ainsi être utilisée pour déterminer la contribution de chaque source dans les sédiments.

Cependant, le  $^{110m}\text{Ag}$  est un radionucléide peu étudié et les informations sur son comportement dans les sols et les sédiments sont plutôt rares. Pourtant, pour pouvoir utiliser le rapport  $^{110m}\text{Ag}/^{137}\text{Cs}$  à des fins de traçage, il est impératif que les deux radionucléides aient un comportement similaire.

C’est pourquoi nous avons décidé d’étudier le comportement du  $^{110m}\text{Ag}$  et de le comparer systématiquement à celui du  $^{137}\text{Cs}$ , à travers une série d’expériences menée sur des échantillons contaminés par l’accident de Fukushima.

IV - 1.1 ENVIRONMENTAL MOBILITY OF  $^{110m}\text{Ag}$ : LESSONS LEARNT FROM FUKUSHIMA ACCIDENT (JAPAN) AND POTENTIAL USE FOR TRACKING THE DISPERSION OF CONTAMINATION WITHIN COASTAL CATCHMENTS

*Lepage, H., Evrard, O., Onda, Y., Patin, J., Chartin, C., Lefèvre, I., Bonté, P., Ayrault, S., 2014. Environmental mobility of  $^{110m}\text{Ag}$ : lessons learnt from Fukushima accident (Japan) and potential use for tracking the dispersion of contamination within coastal catchments. J. Environ. Radioact. 130, 44–55.*

Hugo Lepage<sup>a,\*</sup>, Olivier Evrard<sup>a</sup>, Yuichi Onda<sup>b</sup>, Jeremy Patin<sup>b</sup>, Caroline Chartin<sup>a</sup>, Irène Lefèvre<sup>a</sup>, Philippe Bonté<sup>a</sup>, Sophie Ayrault<sup>a</sup>

<sup>a</sup> Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement (LSCE/IPSL), Unité Mixte de Recherche 8212 (CEA, CNRS, UVSQ), 91198, Gif-sur-Yvette Cedex, France

<sup>b</sup> Center for Research in Isotopes and Environmental Dynamics (CRIED), University of Tsukuba, 1-1-1 Tennodai, Tsukuba, Ibaraki 305-8572, Japan

\* Corresponding author.

E-mail address: hugo.lepage@lsce.ipsl.fr (H. Lepage).

## Résumé

L'argent-110 métastable ( $^{110m}\text{Ag}$ ) a été beaucoup moins étudié que les autres radionucléides artificiels, malgré son potentiel d'accumulation dans les plantes et les tissus animaux. Ce radionucléide est produit en continu par les centrales nucléaires dans des conditions normales d'utilisation, mais son émission en quantités beaucoup plus importantes lors d'un accident permet de mieux le détecter, offrant ainsi l'opportunité d'étudier son comportement dans l'environnement. Nous avons analysé le  $^{110m}\text{Ag}$  dans des sols et des laisses de crues collectés dans les bassins versants côtiers contaminés dans la Préfecture de Fukushima (Japon) après l'accident de la centrale de Fukushima Dai-ichi qui a eu lieu le 11 mars 2011. Plusieurs expériences de terrain et de laboratoire ont été menées pour analyser le comportement d'  $^{110m}\text{Ag}$  dans l'environnement terrestre, avec une comparaison systématique avec celui du  $^{137}\text{Cs}$ , qui est beaucoup plus documenté. Les résultats montrent une mobilité similaire et faible pour les deux éléments dans le sol et une forte affinité avec la fraction argileuse. Les mesures effectuées sur des séquences de sédiments accumulés dans les réservoirs tendent à confirmer le dépôt comparable de ces radionucléides même après leur redistribution lors de processus d'érosion et de dépôt. Par conséquent, nous avons pu justifier la pertinence de l'utilisation des variations spatiales du rapport d'activité initial  $^{110m}\text{Ag}:^{137}\text{Cs}$  dans les sols de la région pour tracer la dispersion des sédiments contaminés du panache de pollution radioactive principal généré par l'accident de FDNPP.

## Abstract

Silver-110 metastable ( $^{110m}\text{Ag}$ ) has been far less investigated than other anthropogenic radionuclides, although it has the potential to accumulate in plants and animal tissues. It is continuously produced by nuclear power plants in normal conditions, but emitted in much larger quantities in accidental conditions facilitating its detection, which allows the investigation of its behaviour in the environment. We analysed  $^{110m}\text{Ag}$  in soil and river drape sediment (i.e., mud drapes deposited on channel-bed sand) collected within coastal catchments contaminated in Fukushima Prefecture (Japan) after the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident that occurred on 11 March 2011. Several field experiments were conducted to document radiosilver behaviour in the terrestrial environment, with a systematic comparison to the more documented radiocesium behaviour. Results show a similar and low mobility for both elements in soils and a strong affinity with the clay fraction. Measurements conducted on sediment sequences accumulated in reservoirs tend to confirm a comparable deposition of those radionuclides even after their redistribution due to erosion and deposition processes. Therefore, as the  $^{110m}\text{Ag}:^{137}\text{Cs}$  initial activity ratio varied in soils across the area, we justified the relevance of using this tool to track the dispersion of contaminated sediment from the main inland radioactive pollution plume generated by FDNPP accident.

### 1. Introduction

Silver-110 metastable ( $^{110m}\text{Ag}$ ) is a radioisotope with a rather short half-life of 249 days produced in nuclear power plants (NPP) as an activation product of  $^{109}\text{Ag}$ . In NPP, natural silver (which contains 48% of  $^{109}\text{Ag}$ ) is found in control rods or in the alloy used to seal the head of the reactor (Calmon and Garnier-Laplace 2002; Chelet 2006; IAEA 1998). In addition,  $^{109}\text{Ag}$  may also be a fission product from uranium and plutonium (Chelet, 2006).  $^{110m}\text{Ag}$  can be measured by spectrometry gamma (with the main peak at 658 keV, and secondary peaks at 885 and 937 keV).

Le Petit et al. (2012) described the  $^{110m}\text{Ag}$  as a volatile fuel particle displaying some common characteristics with semi-volatile substances, due to its well-known strong retention within the reactor core structures. Even though  $^{110m}\text{Ag}$  is produced by NPP in normal operational conditions, its release into the environment remains limited (Ciffroy et al., 2005; Eyrolle et al., 2012) (Table 1), and research on this radionuclide has mainly gained interest after Chernobyl and Fukushima Dai-ichi accidents when it was emitted in much larger quantities, which facilitated its measurement.

**Table 1 Literature compilation of radiosilver activities measured in samples collected in the environment in normal and post-accidental conditions.**

	Normal conditions				Post-accidental conditions			
	Sample description	Mean (number of samples)	Max	Source	Samples description	Mean (number of samples)	Max	Source
SPM (Bq.kg <sub>dry</sub> <sup>-1</sup> )	Routine monitoring in France (from 2009 to 2012)	<2 (893)	28	(T.Boissieux, IRSN/LS3E, personal communication)	Not investigated to our knowledge			
	Rhone River, France (from 2005 to 2008)	1 (≈10)	<10	Eyrolle et al. (2012)				
Sediment (Bq.kg <sub>dry</sub> <sup>-1</sup> )	Routine monitoring in France (from 2009 to 2012) (Bottom sediment)	<1 (279)	<2.75	(T.Boissieux, IRSN/LS3E, personal communication)	In Fukushima Prefecture (14 March 2011) (Sediment drape deposits)	2 – 2390 (162)	2390	Chartin et al. (2013)
Soil (Bq.kg <sub>dry</sub> <sup>-1</sup> )	Not reported in the literature				In Fukushima Prefecture (11 March 2011)	280 (7)	520	Tazoe et al. (2012)
					In Miyagi Prefecture (26 April 2011)	12 (15)	49	Wanatabe et al. (2012)

SPM : Suspended Particulate Matters

LS3E: Laboratoire de Surveillance de l'Environnement et d'Expertise par Echantillonnage

FDNPP : Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant

A search of the Web of Knowledge citation index (July 2013) shows that the number of publications about  $^{110m}\text{Ag}$  increased significantly after Chernobyl accident (Fig. 1). A similar increase in attention has already been observed shortly after Fukushima accident.

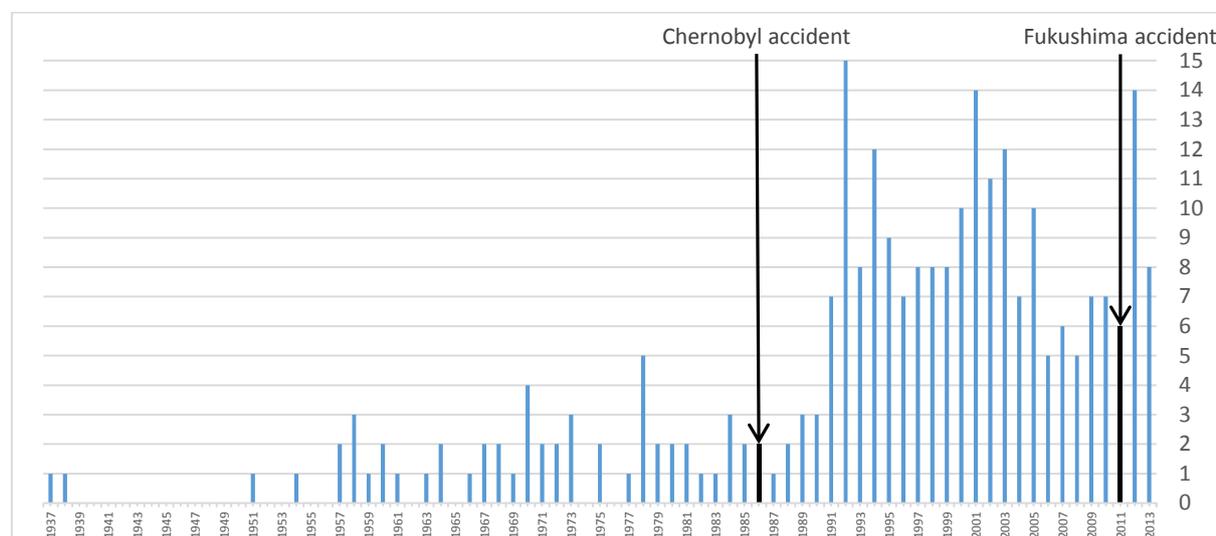


Figure 1. Number of publications per year between 1937 and 2013 based on a search in the Web of Knowledge citation index, using “radiosilver” (or “Ag-110m” » or “ $^{110m}\text{Ag}$ ”) and “environment” as topic keywords (22 July 2013).

Few information are available on the environmental mobility of  $^{110m}\text{Ag}$ , and most of the studies regarding this radioisotope were conducted in laboratory (Calmon and Garnier-Laplace 2002) because the conditions necessary to conduct field experiments were rarely met, as samples should be collected within the months following a release. They should alternatively be recovered in large quantities and analysed with high sensitivity detectors during relatively long counting times. Still, it remains important to better understand its behaviour in the environment, as it has been demonstrated that silver is one of the most toxic metals (Bryan, 1971; Ratte, 1999) and that  $^{110m}\text{Ag}$  may be transferred from the soils to the plants (Handl et al., 2000; Shang and Leung, 2003), and accumulated in animal tissues (Adam et al., 2001; Beresford et al., 1998; Bryan and Langston, 1992; Khangarot and Ray, 1987; Martin and Holdich, 1986; Oughton, 1989). It can also contaminate natural silver (isotopic contamination) used for photographic industry and jewellery manufacturing (Vuković, 2002).

Besides this interest to better understand the radioecology of  $^{110m}\text{Ag}$ , it has been shown that this radioisotope was emitted by the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant (FDNPP) accident and subsequently detected in the environment (Fukuda et al., 2013; MEXT, 2011; Tazoe et al., 2012; Watanabe et al., 2012). It is estimated that 20% of the radionuclides emitted were deposited on the soils of Fukushima Prefecture as a result of wet and dry atmospheric fallout, creating a contamination plume extending up to 70 km to the northwest of the FDNPP site (Kinoshita et al., 2011; Yasunari et al., 2011). It was estimated that between 7 and 36 PBq of  $^{137}\text{Cs}$  ( $T_{1/2} = 30.17\text{y}$ ) were released (Chino et al., 2011; Stohl et al., 2012; Winiarek et al., 2012), and  $^{110m}\text{Ag}$  release rate represented about 11% of the  $^{137}\text{Cs}$  rate (Petit et al., 2012).

Depending on the behaviour of the radionuclides and their affinity with the fine mineral particles and the associated organic matter fraction, they may subsequently be redistributed across hillslopes as a consequence of runoff and soil erosion processes and be delivered to downstream rivers that may finally supply them to the ocean (Tanaka et al., 2012; Tateda et al., 2013; Ueda et al., 2013). Even though the bulk of initial marine contamination originated from atmospheric deposition, erosion processes may have partly supplied the  $^{110m}\text{Ag}$  that was detected in zooplankton in the Pacific Ocean shortly after the accident (Buessler et al., 2012).

In order to document this transfer, Chartin et al. (2013) showed that the spatial patterns of  $^{110m}\text{Ag}:^{137}\text{Cs}$  activity ratio in soils varied across space within the Fukushima contamination plume. They subsequently used this ratio to track the dispersion of contaminated sediment along a coastal river draining a catchment located within the main radioactive plume.

However, to date, most studies conducted in Fukushima post-accidental conditions focused on  $^{134}\text{Cs}$  and  $^{137}\text{Cs}$  behaviour (Inoue et al. 2013; Koarashi et al. 2012; Kato et al. 2012a, 2012b; Matsunaga et al. 2013). Investigations reporting the presence of  $^{110m}\text{Ag}$  in soil did not detail its distribution with depth nor its behaviour (Fukuda et al., 2013; Tazoe et al., 2012; Watanabe et al., 2012). In this context, there is a lack of data collected in this specific post-accidental context to document the relative behaviour of  $^{110m}\text{Ag}$  and  $^{137}\text{Cs}$  in soils and sediment in order to check the relevance of using this ratio to track the dispersion of contaminated material along rivers. Even though both radionuclides are particle-reactive, the  $^{110m}\text{Ag}:^{137}\text{Cs}$  activity ratio in mobilized sediment might not simply reflect the catchment soil average of this ratio.

In this context, this paper aims to compile original experimental data acquired in Fukushima Prefecture during the months that followed the accident to document  $^{110m}\text{Ag}$  behaviour in soils and sediment. This paper will particularly address four issues:

- (1) the affinity of  $^{110m}\text{Ag}$  with different grain size fractions, to check whether there is a different behaviour of  $^{110m}\text{Ag}$  and  $^{137}\text{Cs}$  depending on the particle size;
- (2) the migration of  $^{110m}\text{Ag}$  in the soil, to investigate its potential movement with depth;
- (3) the evolution of  $^{110m}\text{Ag}$  activities within sediment sequences accumulated in reservoirs, to document whether characteristics of contaminated sediments delivered to the reservoir by successive flood events change with time;
- (4) the evolution of  $^{110m}\text{Ag}$  activities within sediment drape deposits, that consist of mud drapes deposited on channel-bed sand (Olley et al., 2013), collected at the same locations along the rivers after a succession of typhoon and snowmelt events to investigate the impact of those events on  $^{110m}\text{Ag}$  redistribution in catchments.

We will systematically compare the radiosilver behaviour to the one of the well documented radiocaesium, and to the literature data. The implications of those results will finally be discussed to decide whether the use of the  $^{110m}\text{Ag}:^{137}\text{Cs}$  activity ratio is relevant to track the dispersion of contaminated sediment from the main radioactive pollution plume generated by FDNPP accident.

## 2. Materials and methods

### a. Study area

The study was conducted in Fukushima Prefecture, located in Northeastern Japan. We focused on several coastal catchments (i.e. Mano, Nitta, Ota and Odaka catchments) (1000 km<sup>2</sup>) draining the main part of the radioactive plume extending to the northwest of FDNPP (Fig. 2). Those catchments extend from the coastal mountain range (at approximately 30-km distance of the coast) to the Pacific Ocean and their elevation ranges from 0 to 900 m.

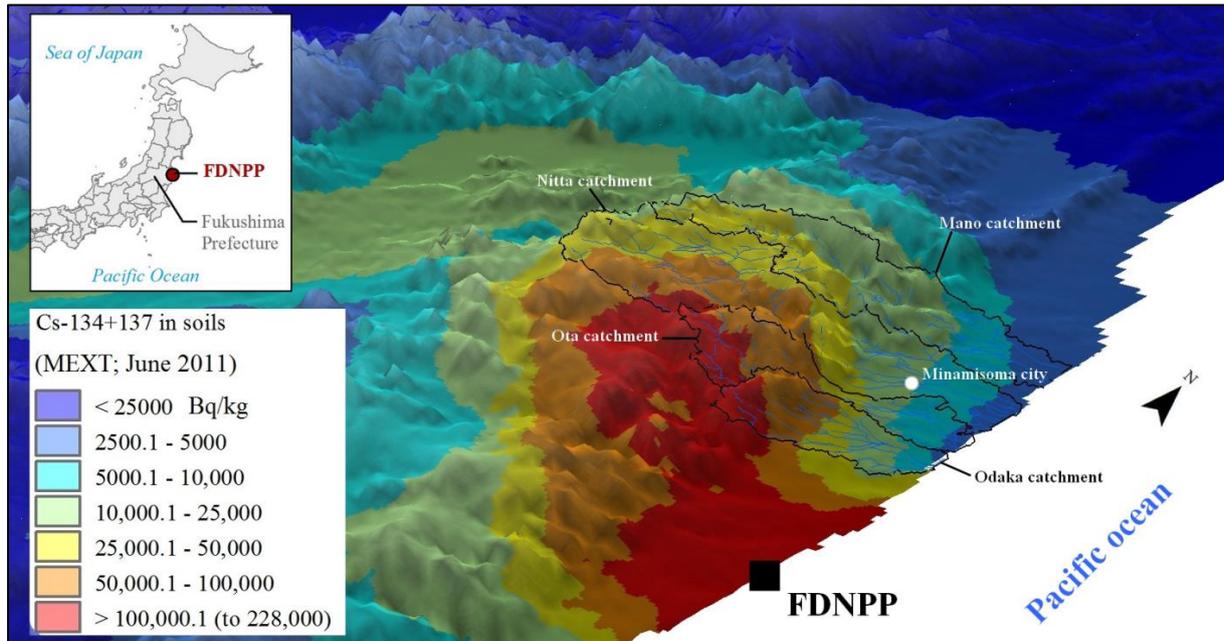


Figure 2. Location of the main radiocaesium (<sup>134</sup>Cs + <sup>137</sup>Cs) contamination plume in Fukushima Prefecture, northeastern Japan (derived from MEXT data decay-corrected to June 2011).

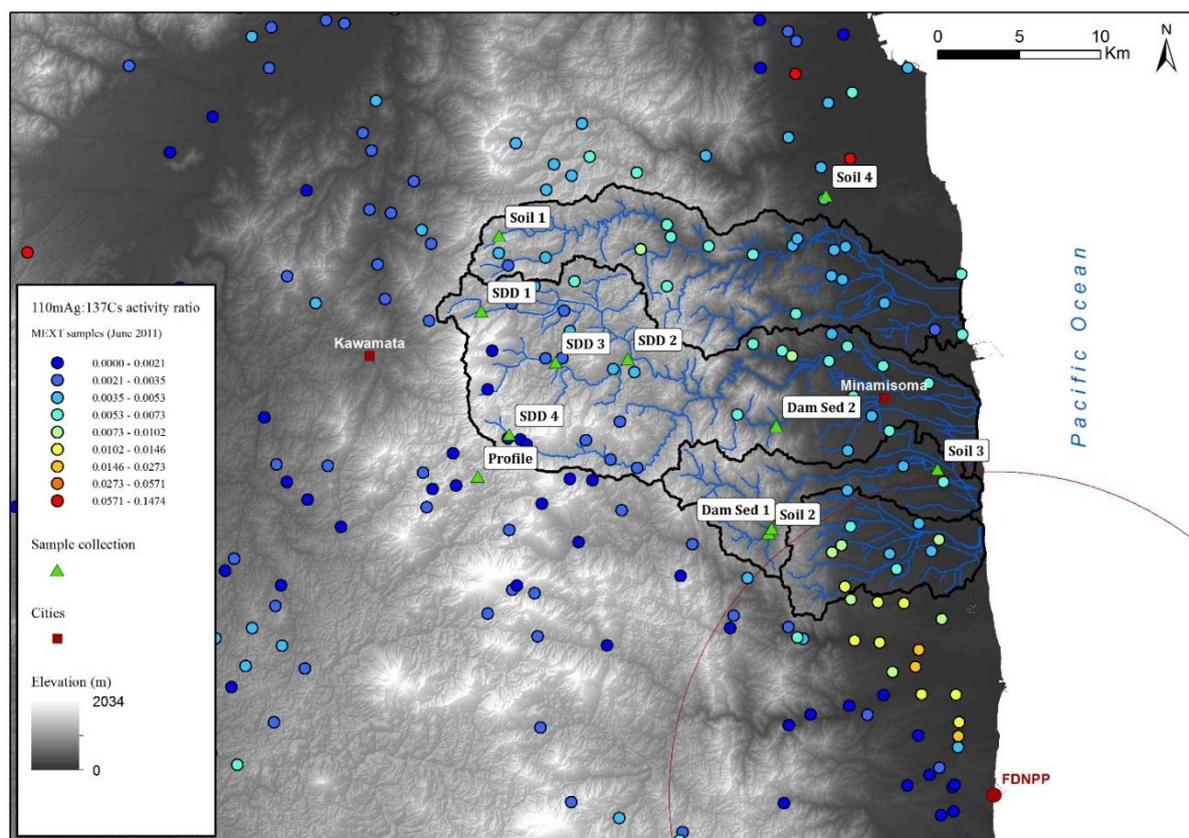
Plateaus on the west consist of Cretaceous granite and granodiorite, evolving into a complex patchwork of volcanic (both intrusive and extrusive), metamorphic (gneiss and schist) and plutonic (granite mainly) rocks. In the middle part of the catchments, marine and continental sedimentary rocks of various ages separated by fault systems are found. In contrast, eastern coastal plains are mainly composed of Tertiary and Quaternary marine and continental sedimentary rocks.

Woodland is the main land use in this area (covering 68–78% of the total surface), followed by cropland (10–13%). The region is exposed to typhoons and spring snowmelt events leading to severe soil erosion and subsequent export of sediment in rivers (Chartin et al., 2013; Evrard et al., 2013). We therefore conducted three sampling campaigns after each of those major hydro-sedimentary events (i.e., Nov. 2011, April 2012, and Nov. 2012).

## b. Sample collection, preparation and description of experiments.

After the accident, the Ministry of Education, Culture, Sports, Science and Technology in Japan (MEXT) supervised the sampling of soils at 2200 sites located within a radius of approximately 100 km around FDNPP in June and July 2011, and the analysis of their activities in several radionuclides contained in their 5-cm upper layer ( $^{110m}\text{Ag}$  activities were only provided for a selection of 345 sites; MEXT 2011).

Based on this dataset, a map of  $^{110m}\text{Ag}:^{137}\text{Cs}$  activity ratio values in soils was drawn (Chartin et al., 2013). Unlike  $^{134}\text{Cs}:^{137}\text{Cs}$  activity ratio, it revealed the presence of different contamination patterns across the area (Fig. 3), with lower values across mountains and higher values in the coastal lowlands.



**Figure 3.** Location of the samples collected across the main contamination plume of Fukushima Prefecture. Background map corresponds to  $^{110m}\text{Ag}:^{137}\text{Cs}$  activity ratio based on data measured in Fukushima Prefecture by MEXT in June 2011 (activities decay-corrected to 14 June 2011). SDD: sediment drape deposits, Dam Sed 1: sediment collected in Tetsuzen dam, Dam Sed 2: sediment collected in Takanokura dam; FDNPP: Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant.

The relatively low abundance of  $^{110m}\text{Ag}$  in soils of the study area in Fukushima (activities ranging between 2 – 2400 Bq kg<sup>-1</sup>) compared to those in  $^{134}\text{Cs}$  and  $^{137}\text{Cs}$  (500 – 1,245,000 Bq kg<sup>-1</sup>) required relatively long counting times and the use of low-background high-resolution detectors to allow its detection. This probably explains why this radioisotope has not been measured more widely during the months that followed the accident. We therefore decided to restrict this study to the main contamination plume (Table 2) in order to minimize uncertainties associated with  $^{110m}\text{Ag}$  measurements.

**Table 2** Date of collection and location of the samples collected in the framework of this study.

Sample	Date of collection	(WGS 1984):	Latitude	Longitude	Experiment
Soil 1	09/11/2012		37.732447	140.688330	1
Soil 2	10/11/2012		37.567039	140.877110	1
Soil 3	10/11/2012		37.602735	140.994663	1
Soil 4	10/11/2012		37.755403	140.916649	1
Profile	avr-12		37.598136	140.673917	2
Dam Sed 1 (Tetsuzen)	10/11/2012		37.569687	140.879102	3
Dam Sed 2 (Takanokura)	08/11/2012		37.626889	140.882307	3
SDD 1	See Table 7		37.690509	140.676251	4
SDD 2	See Table 7		37.664095	140.778413	4
SDD 3	See Table 7		37.662099	140.728151	4
SDD 4	See Table 7		37.621797	140.695852	4

## A. Behaviour of $^{110m}\text{Ag}$ in soils

### *Experiment 1 – Affinity with different grain size fractions*

Four soil samples (~300g/sample – Soil 1 to Soil 4 - Fig. 3) were collected using non-metallic trowels in different parts of the contamination plume where  $^{110m}\text{Ag}$ : $^{137}\text{Cs}$  activity ratio varies from 0.002 to 0.008. After drying at 40°C, samples were dry-sieved to 1mm, 500µm, 250µm and 63µm using an automatic device, in order to measure the respective activities present in the different grain size fractions.

### *Experiment 2 – Migration in soil*

To investigate the potential migration of radionuclides with depth in soil, gamma measurements were conducted on each 2-mm increment of the uppermost 2-cm of a soil profile sampled near Kawamata city (Profile - Fig. 3). Soil layers were collected using a scraper plate composed by a metal frame and a metal plate (Loughran et al., 2002; Kato et al., 2012b) and upgraded by J. Patin (University of Tsukuba). To avoid contamination by top layers, a spray glue was used to fix the sample.

$^{137}\text{Cs}$  concentration in undisturbed Japanese soils is expected to show an exponential decline with depth (Kato et al., 2012b; Koarashi et al., 2012; Matsunaga et al., 2013). Cumulative inventory can be expressed as described in Eq. (1):

$$I(x) = I_t (1 - \exp(-x/h_0)) \quad (1)$$

Where  $I(x)$  is the radiocesium inventory (Bq.m<sup>-2</sup>) at the  $x$  (kg.m<sup>-2</sup>) depth,  $I_t$  is the total radiocesium inventory and  $h_0$  is the relaxation mass depth (kg.m<sup>2</sup>), an index characterising the radiocesium penetration in the soil. In order to use this formula, we calculated the  $^{137}\text{Cs}$  inventory using  $^{137}\text{Cs}$  activities (Bq.kg<sup>-1</sup>) (Lee et al., 2013) at the successive ( $x$ ) depths (Eq. 2):

$$I(x) = \rho(x) * h(x) * A(x) \quad (2)$$

Where  $\rho$  is the dry bulk density (g.m<sup>-3</sup>),  $h$  is the thickness (cm) of the layer and  $A$  the activity (Bq.kg<sup>-1</sup>) of this layer.

## **B. Behaviour of $^{110m}\text{Ag}$ in rivers**

### *Experiment 3 – Activities in sediment sequences accumulated in reservoirs*

During the November 2012 fieldwork campaign, we had the opportunity to collect samples of the different layers representative of the deep sediment sequence that accumulated behind Tetsuzen dam on Ota River (1.6 m) and behind Takanokura dam on Mizunashi River (Nitta catchment) (0.5 m) in order to investigate  $^{110m}\text{Ag}$  behaviour in respectively 9 and 7 different layers (Dam Sed 1 and Dam Sed 2 - Fig. 3). We removed the exposed sediment lateral surface to avoid artificial sample contamination during fieldwork.

Particle size of the samples was measured using a SALD-3100 Laser (Shimadzu Co., Ltd., Kyoto, Japan) using ultrasonic. The particles were classified into 42 size ranges between 0.05 and 450 $\mu\text{m}$ . The surface specific area was estimated using the density of quartz (2.65g cm<sup>-3</sup>) and assuming that particles were spherical (Santamarina and Klein, 2002). Grain size distribution was corrected using sieving data for classes >450 $\mu\text{m}$ , and final classes were reclassified according to the grain-size ranges proposed by AFNOR X 316107 (i.e., clay <2 $\mu\text{m}$ , 2  $\mu\text{m}$  < silt < 50 $\mu\text{m}$ , 50 $\mu\text{m}$  < sand < 2mm).

### *Experiment 4 – Impact of typhoon and snowmelt on activities in river drape sediment*

A last experiment was conducted in upper parts of the Nitta River catchment (with elevation > 400m), where the  $^{110m}\text{Ag}:^{137}\text{Cs}$  activity ratio in soils is low but overall radioactive contamination is high. This area was impacted by summer typhoons and spring snowmelt events that generated soil erosion on hillslopes and led to an increase in river discharge (Fukuyama et al., 2005; Iida et al., 2012; Ueda et al., 2013). Sediment drape deposits (SDD) were selected as an alternative to suspended sediment in order to increase the spatial coverage of the survey within the catchments, and to avoid the logistical problems associated with the collection of suspended sediment in rivers. Olley et al. (2013) demonstrated that sediment source apportionment conducted on SDD and suspended matters showed similar results. To prepare a representative sample, five to ten subsamples that are likely to have deposited after the last major flood were collected at several locations selected randomly down to the underlying coarser cobble or gravel layer across a 10m<sup>2</sup> surface. Sediment drape deposits are likely to integrate deposits of the last hydro-sedimentary events of low to intermediate magnitude (Evrard et al., 2011) even though the occurrence of large floods probably leads to a complete flush of the system justifying the relevance of conducting field surveys to collect sediment drape deposits as frequently as possible.

Activities were measured in four representative SDD samples collected at the same location during the four successive fieldwork campaigns (SDD 1 to SDD 4 - Fig. 3). Grain size measurements were conducted by following the same protocol as described for Experiment 3.

c. Gamma spectrometry measurements

Before measurement, samples were dried at 40°C (105°C for soil), ground to a fine powder and then packed into 15mL polyethylene specimen cups. Radionuclide activities ( $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{110\text{m}}\text{Ag}$ ) in all samples were determined by gamma spectrometry using very low-background coaxial N- and P-types HPGe detectors (Canberra / Ortec). Counting times of soil and sediment samples varied between  $8 \times 10^4$  and  $200 \times 10^4$  s to allow the detection of  $^{110\text{m}}\text{Ag}$ , which was present in much lower activities in the samples (2–2400 Bq.kg<sup>-1</sup>) than  $^{134}\text{Cs}$  and  $^{137}\text{Cs}$  (500–1,245,000 Bq.kg<sup>-1</sup>).

The  $^{137}\text{Cs}$  activities were measured at the 661 keV emission peak. The  $^{134}\text{Cs}$  (T<sub>1/2</sub> = 2y) activities were calculated as the mean of activities derived from measurements conducted at 604 keV and 795 keV ( $^{228}\text{Ac}$  activities being negligible compared to  $^{134}\text{Cs}$  activities) as both peaks are associated with the largest gamma emission intensities of this radionuclide.

The presence of  $^{110\text{m}}\text{Ag}$  was confirmed by the detection of an emission peak at 885 keV (as the peak associated with the largest emission intensity at 658 keV was masked by the 661-keV peak of  $^{137}\text{Cs}$ ). Minimum detectable activities in  $^{110\text{m}}\text{Ag}$  for 24h counting times reached 2 Bq.kg<sup>-1</sup>. Detection of  $^{110\text{m}}\text{Ag}$  was considered relevant when the 885 keV peak was present. Because of their low level, activities in  $^{110\text{m}}\text{Ag}$  were associated with larger uncertainties than activities in  $^{137}\text{Cs}$ . Counting efficiencies and quality assurance were conducted using internal and certified International Atomic Energy Agency (IAEA) reference materials prepared in the same specimen cups as the samples. Uncertainties on results were estimated by combining counting statistics and calibration uncertainties. Summing and self-absorption effects were taken into account by analysing standards with similar densities and characteristics as the collected samples. All radionuclide activities were decay corrected to the date of 14 March 2011 corresponding to the date of the first radionuclide deposits on soils. Most of them were estimated to have deposited on 15 March in Fukushima Prefecture (Kinoshita et al., 2011; Shozugawa et al., 2012).

#### 4. Results and discussion

##### A. Behaviour of $^{110m}\text{Ag}$ in soils

###### *Experiment 1 – Affinity with different grain size fractions (Soil 1 to Soil 4)*

During this experiment,  $^{110m}\text{Ag}$  activities could only be detected in all fractions for two of the four analysed samples (Soil 1 and Soil 2 – Fig. 3) as a result of low  $T_{1/2}$  and low  $^{110m}\text{Ag}$  initial deposition level. Samples were indeed collected in the vicinity of the main contamination plume as access to the most affected area was restricted by Japanese authorities. It was also been detected in the finest fraction of the Soil 4 sample. Fig. 4 describes the distribution of  $^{110m}\text{Ag}$  and  $^{137}\text{Cs}$  radionuclides in the different grain size fractions of Soil 1 and Soil 2 samples.

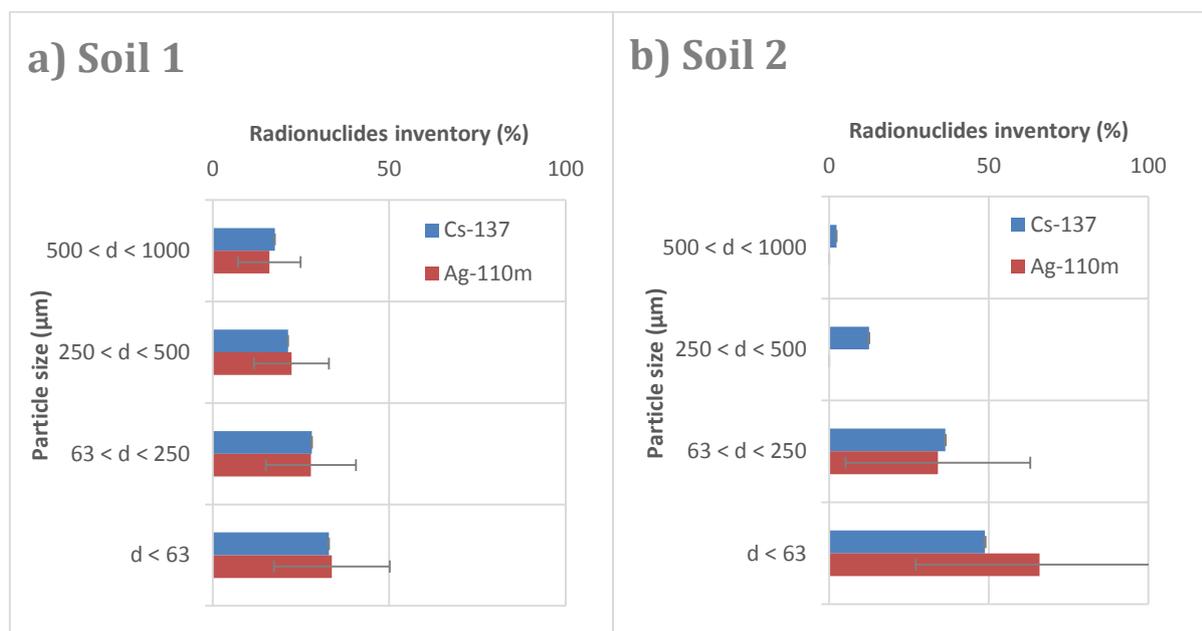


Figure 4. Percentage of total activity in  $^{110m}\text{Ag}$  and  $^{137}\text{Cs}$  in four particle size classes ( $d$  = diameter) for two soil samples (Soil 1 and Soil 2 - see the location of sampling sites on Figure 3).

Activity distribution is similar for both radionuclides and the major part (from 33% to 65%) of their activity was measured in the finest fraction ( $<63\mu\text{m}$ ; Table 3). We could therefore not detect any difference in the particle-size effects of adsorption between both radionuclides.

This finding is crucial in order to use the  $^{110m}\text{Ag}:^{137}\text{Cs}$  activity ratio to track the dispersion of contaminated particles in catchments, as the finest particles are the most susceptible to be eroded and redistributed (Motha et al., 2002).

**Table 3 Distribution of radionuclide activities (Bq.kg<sup>-1</sup>) and weight in four grain size fractions of five soils collected across Fukushima radioactive pollution plume. Total activity (Bq.kg<sup>-1</sup>) is also given for the bulk sample.**

Sample	500 µm < d < 1000 µm			250 µm < d < 500 µm			63 µm < d < 250 µm			d < 63 µm			Bulk sample activity	
	Weight (%)	<sup>137</sup> Cs	<sup>110m</sup> Ag	Weight (%)	<sup>137</sup> Cs	<sup>110m</sup> Ag	Weight (%)	<sup>137</sup> Cs	<sup>110m</sup> Ag	Weight (%)	<sup>137</sup> Cs	<sup>110m</sup> Ag	<sup>137</sup> Cs	<sup>110m</sup> Ag
Soil 1	8*	21 166 ± 50**	83 ± 36	16	25 636 ± 56	116 ± 40	42	33 682 ± 64	145 ± 44	32	39 490 ± 90	175 ± 62	n/a	n/a
Soil 2	11	929 ± 14	< 14	14	5009 ± 32	< 26	27	14 600 ± 80	93 ± 64	29	19 608 ± 66	179 ± 54	9912 ± 64	98 ± 52
Soil 3	8	298 ± 8	< 10	14	425 ± 14	< 10	35	446 ± 10	< 12	39	580 ± 16	< 8	506 ± 12	< 12
Soil 4	17	576 ± 12	< 14	12	787 ± 14	< 16	34	665 ± 12	< 14	37	1484 ± 26	27 ± 25	634 ± 26	< 22

d: diameter

n/a: not available

\* The remainder of the sample mass corresponds to the gravel fraction (>1000 µm)

\*\* Uncertainties on results were estimated by combining counting statistics and calibration uncertainties. Summing and self-absorption effects were taken into account by analysing standards with similar densities and characteristics as the collected samples.

## Experiment 2 – Migration in soil (Profile)

Activities measured in the uppermost part of the soil profile (Fig. 3) confirmed the low mobility of  $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  and  $^{110m}\text{Ag}$  (Table 4). The bulk of their inventories ( $\approx 80\%$ ) were contained in the first layers (0 – 8 mm) and decreased rapidly with depth (Fig. 5).

 Table 4 Depth distribution of  $^{137}\text{Cs}$  and  $^{110m}\text{Ag}$  concentrations in the soil profile.

Depth (mm)	$^{137}\text{Cs}$ (Bq.kg $^{-1}$ )	$^{110m}\text{Ag}$ (Bq.kg $^{-1}$ )	Dry bulk density (g.cm $^{-3}$ )	Mass depth (kg.m $^{-2}$ )
0 – 2	44 698 $\pm$ 74	100 $\pm$ 34	0.19	0.4
2 – 4	47 189 $\pm$ 72	109 $\pm$ 34	0.40	1.2
4 – 6	49 254 $\pm$ 76	101 $\pm$ 38	0.87	2.9
6 – 8	38 335 $\pm$ 64	84 $\pm$ 32	0.73	4.4
8 – 10	31 776 $\pm$ 58	97 $\pm$ 28	0.89	6.2
10 – 12	22 393 $\pm$ 54	32 $\pm$ 24	0.73	7.6
12 – 14	12 575 $\pm$ 38	32 $\pm$ 18	0.92	9.5
14 – 16	7374 $\pm$ 28	20 $\pm$ 14	0.56	10.6
16 – 18	4439 $\pm$ 22	< 12	1.19	13.0
18 – 20	1674 $\pm$ 14	< 16	0.94	14.9
20 - 22	1241 $\pm$ 22	< 16	0.86	16.6

The  $^{137}\text{Cs}$  total inventory reached about 417 kBq.m $^{-2}$  and the relaxation mass depth  $h_0$  was 7.1kg.m $^{-2}$  for  $^{137}\text{Cs}$  (Fig. 6). This value is close to the one found by Kato et al. (2012b) in a cultivated soil (9.1 kg.m $^{-2}$ ) in the vicinity of our sampling site. This value also remained in the same order of magnitude as in several cultivated soils investigated by Ivanov (Ivanov et al., 1997) near the Chernobyl Power Plant (ranging from 5.6 to 9.1 kg.m $^{-2}$ ).

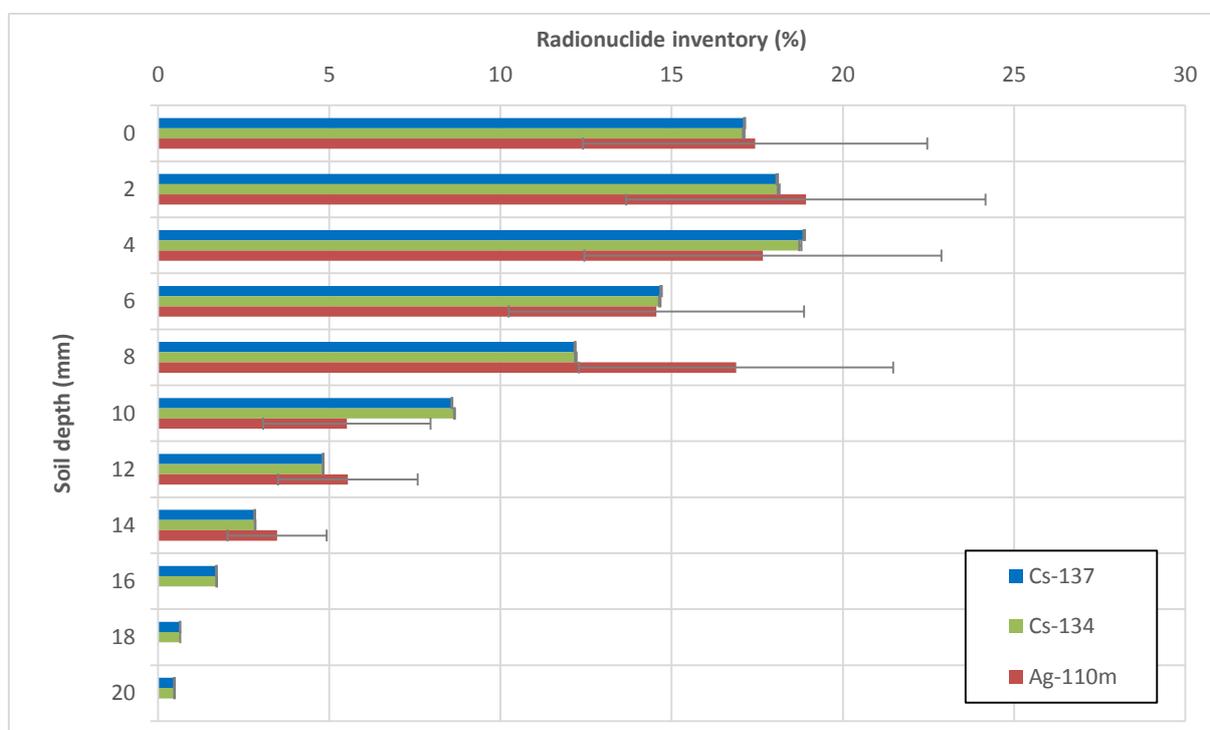


Figure 5. Radionuclide inventory (%) in successive 2-mm increment layers along a bare soil profile (Profile - see the location of sampling sites on Figure 3).

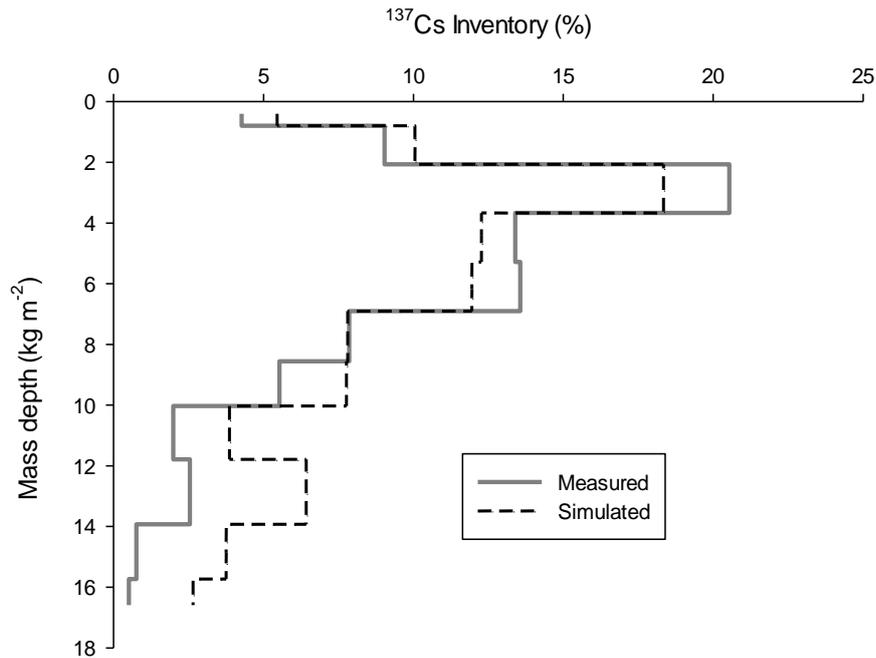


Figure 6. Distribution of <sup>137</sup>Cs inventory (%) in the bare soil profile as measured by gamma spectrometry and fitted using Eq. (1), as a function of mass depth (kg.m-2) (Profile - see the location of sampling sites on Figure 3).

In order to compare the behaviour of both radionuclides, we calculated in the same way the relaxation mass depth for the <sup>110m</sup>Ag and found 7.6 kg.m-2 with a total <sup>110m</sup>Ag inventory value of 1 kBq.m-2, showing that penetration of both radionuclides in the soil was similar.

Our results are consistent with the ones provided by other studies that investigated the behaviour of the same radionuclides in soils. Alloway (1995) showed that <sup>110m</sup>Ag is not mobile as it is the case for <sup>137</sup>Cs (Sawiney, 1972; Spezzano, 2005) and they both remain in the uppermost 5cm of the soil (Handl et al., 2000; Kato et al., 2012b; Shang and Leung, 2003)

We investigated the migration of radionuclides in a profile of bare soil, but the transposition of those results to soils covered with vegetation is not straightforward, as the radionuclide interception and migration processes were reported to play a major role in forested environments (Kato et al., 2012a). Furthermore, Martin et al. (1989) reported that during the first months that followed Chernobyl fallout, <sup>110m</sup>Ag required more time to migrate from grass to soil (50% reduction) than <sup>137</sup>Cs (90% reduction) due to foliar leaching. However, this effect should have remained limited in Fukushima, as most cultivated soils (i.e., paddy fields) were found to be bare when atmospheric fallout occurred in March 2011.

These results confirm the low mobility of <sup>110m</sup>Ag in cultivated soils. As it remained concentrated in the first layers, it could be rapidly redistributed across hillslopes as a consequence of runoff and soil erosion.

## **B. Behaviour of $^{110m}\text{Ag}$ in rivers**

### *Experiment 3 – Activities in sediment sequences accumulated in reservoirs (Dam Sed 1 & 2)*

The pH measured in the four investigated rivers varied between 5.0 and 6.0. It has been demonstrated in the literature that pH plays a major role on  $^{110m}\text{Ag}$  behaviour in both soil and water. Its mobility in soils (Khan et al., 1982; Shang and Leung, 2003) increases when pH raises and its affinity for suspended particulate matter (SPM) rises when pH exceeds 7, to reach maximum values at a pH of 9 (Fukai and Murray, 1974; Murray and Murray, 1972). In contrast,  $^{137}\text{Cs}$  was shown not to be affected by a pH variation (Adam et al., 2001). Because the observed pH values remained significantly lower than 7,  $^{110m}\text{Ag}$  behaviour and  $^{110m}\text{Ag}/^{137}\text{Cs}$  activity ratio were not expected to be affected by pH variations in Fukushima rivers.

Analysis of the two sediment profiles (Dam Sed 1 and 2 – Fig. 3) tends to confirm the similar post-depositional behaviour of the radionuclides (Figs. 7 and 8). Their activities were concentrated in the top of the profile (Tables 5 and 6), and most likely resulted from deposition of sediment eroded after the initial radionuclide fallout in March 2011. Before the FDNPP accident,  $^{137}\text{Cs}$  activities in sediment were generally lower than 100Bq.kg-1 in Japanese soils (Fukuyama et al., 2005), which corresponds to activities found in deeper layers of sediment accumulated behind Tetsuzen dam (Dam Sed 1). Higher contamination in lower layers in the second profile (> 500Bq.kg-1) most likely resulted from cross-contamination originating from upper levels during sampling (scraping). However, this will not impact the conclusions drawn from this experiment as they strictly focus on the observations made on the top layers.

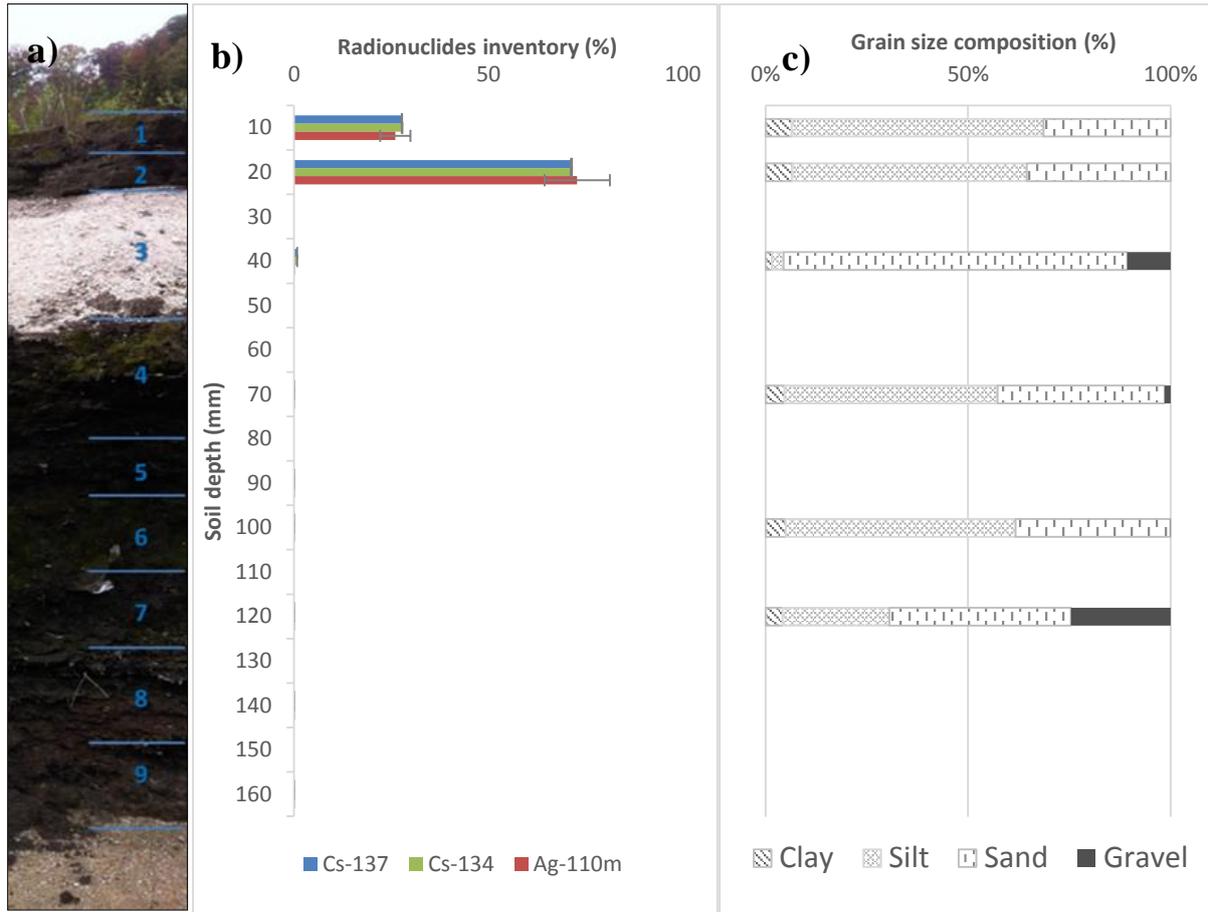


Figure 7. Sediment profile accumulated in Tetsuzen reservoir on the Ota River (Dam Sed 1 – see the location of sampling sites on Figure 3) – a) Picture of the profile: the limits of the numbered sampled layers are represented with horizontal lines - b) Anthropogenic radionuclide inventories (%) in the successive layers of the profile (mm) – c) Grain size composition of the different layers.

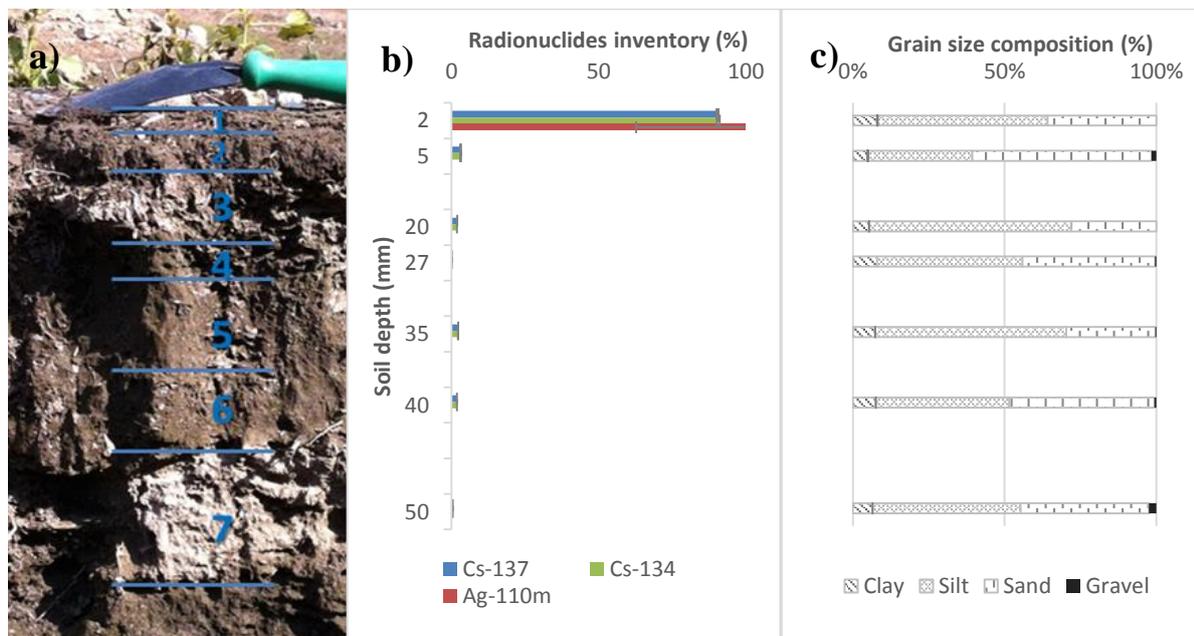


Figure 8. Sediment profile accumulated behind Takanokura dam on the Mizunashi River (Nitta catchment – Dam Sed 2 – see the location of sampling sites on Figure 3) – a) Picture of the profile: the limits of the numbered sampled layers are represented with horizontal lines - b) Activity in anthropogenic radionuclides in the successive layers of the profile – c) Grain size composition of the different layers.

In Tetsuzen dam sediment (Dam Sed 1), a lower activity was measured in the surface layer than in the underlying layer suggesting that a minimum of two significant erosion events had supplied contaminated sediment to the reservoir by November 2012 (Fig. 7; Table 5). Also,  $^{110m}\text{Ag}:^{137}\text{Cs}$  activity ratio remained constant for these layers. Furthermore, a significant difference in particle size between the first two layers and the third layer confirms the occurrence of an intense erosion event, probably during the dam release that was carried out during the period of heavy typhoons that took place during summer in 2011. Based on this information, sedimentation rates were estimated to  $20\text{cm}\cdot\text{yr}^{-1}$  in Tetsuzen dam, and to  $5\text{cm}\cdot\text{yr}^{-1}$  in Takanokura dam.

The similar percentage of radionuclide inventories found in the successive layers and the calculation of constant  $^{110m}\text{Ag}:^{137}\text{Cs}$  activity ratios confirmed that  $^{110m}\text{Ag}$  and  $^{137}\text{Cs}$  have a similar behaviour with regard to their adsorption onto soil particles and sediment. This result was expected owing to the high distribution coefficients reported in the literature for both Cs and Ag (Ciffroy et al., 2001; Fournier-Bidoz and Garnier-Laplace, 1994).  $K_d$  values remaining in the same order of magnitude were estimated for both radionuclides in winter and summer (i.e.  $K_{d\text{Cs-}^{137}\text{Cs}}$ : 0.1-100;  $K_{d\text{Ag-}^{110m}\text{Ag}}$ : 1-100). Ciffroy et al. (2001) also quantified the kinetics of the adsorption and desorption of these radionuclides in freshwater systems, and concluded to their similar behaviour. Fournier-Bidoz and Garnier-Laplace (1994) and Garnier et al. (2006) showed that  $^{110m}\text{Ag}$  has a strong affinity for river SPM and especially for their clay fraction. A large number of studies demonstrated that Cs has the same behaviour (Ojima et al., 1965 in Ancelin et al., 1979; Garnier-Laplace et al., 1994). He and Walling (1996) confirmed that  $^{137}\text{Cs}$  affinity increases with specific surface area in the case of a uniform contamination of the soils. Guéguéniat et al. (1976) reported similar results for  $^{110m}\text{Ag}$ .

Table 5 Depth, radionuclide activities and grain size proportions of the sequence of sediment accumulated behind Tetsuzen Dam (Ota River)

Depth (cm)	Radionuclide activities (Bq.kg <sup>-1</sup> )		Activity ratio	Grain size proportions			
	<sup>137</sup> Cs	<sup>110m</sup> Ag	<sup>110m</sup> Ag: <sup>137</sup> Cs	Clay (%)	Silt (%)	Sand (%)	Gravel (%)
0 - 10	64 195 ± 210	649 ± 142	0.010 ± 0.002	6	62	31	0
10 - 20	165 217 ± 280	1813 ± 196	0.011 ± 0.001	7	58	35	0
20 - 40	1790 ± 24	< 20	n/a	2	3	85	11
40 - 70	146 ± 8	< 18	n/a	5	53	41	2
70 - 85	68 ± 8	<22	n/a	n/a	n/a	n/a	n/a
85 - 100	33 ± 8	< 40	n/a	5	57	38	0
100 - 110	147 ± 20	< 68	n/a	4	26	45	25
110 - 140	26 ± 4	< 14	n/a	n/a	n/a	n/a	n/a
140 - 162	77 ± 10	< 18	n/a	n/a	n/a	n/a	n/a

n/a: not available

Table 6 Depth, radionuclide activities and grain size proportions of the sequence of sediment accumulated behind Takanokura Dam (Nitta River).

Depth (cm)	Radionuclide activities (Bq.kg <sup>-1</sup> )		Activity ratio	Grain size proportions			
	<sup>137</sup> Cs	<sup>110m</sup> Ag	<sup>110m</sup> Ag: <sup>137</sup> Cs	Clay (%)	Silt (%)	Sand (%)	Gravel (%)
0 - 2	28 744 ± 120	246 ± 88	0.0085 ± 0.0030	8	56	36	0
2 - 5	967 ± 30	< 32	n/a	5	34	59	2
5 - 20	616 ± 18	< 18	n/a	5	67	28	0
20 - 27	28 ± 4	< 12	n/a	8	48	44	0
27 - 35	728 ± 16	< 18	n/a	7	63	29	0
35 - 40	592 ± 10	< 12	n/a	8	44	48	1
40 - 50	124 ± 6	< 16	n/a	7	49	42	2

n/a: not available

## Experiment 4 – Impact of typhoon and snowmelt

During the three successive sampling campaigns that followed the succession of snowmelt and typhoon events, the inventories of  $^{110m}\text{Ag}$  and  $^{137}\text{Cs}$  measured in sediment drape deposits collected systematically at four sampling points in the upper part of the Nitta catchment (Fig. 3) showed similar patterns (Fig. 9). As expected, samples collected close to the catchment headwaters (SDD 1 and SDD 4) showed a decrease in contamination throughout time, probably due to the flush of the most contaminated material during high water flows (Table 7). In contrast, the samples collected at the 2 downstream locations (especially SDD 3) were associated with a slight temporal increase in contamination of  $^{137}\text{Cs}$  that may be explained by a supply of upstream – more contaminated – material. This explanation is consistent with the fact that  $^{110m}\text{Ag} : ^{137}\text{Cs}$  activity ratio measured in sediment remained in the same order of magnitude as the ratio measured in soils of this upper part of the Nitta catchment (Table 8).

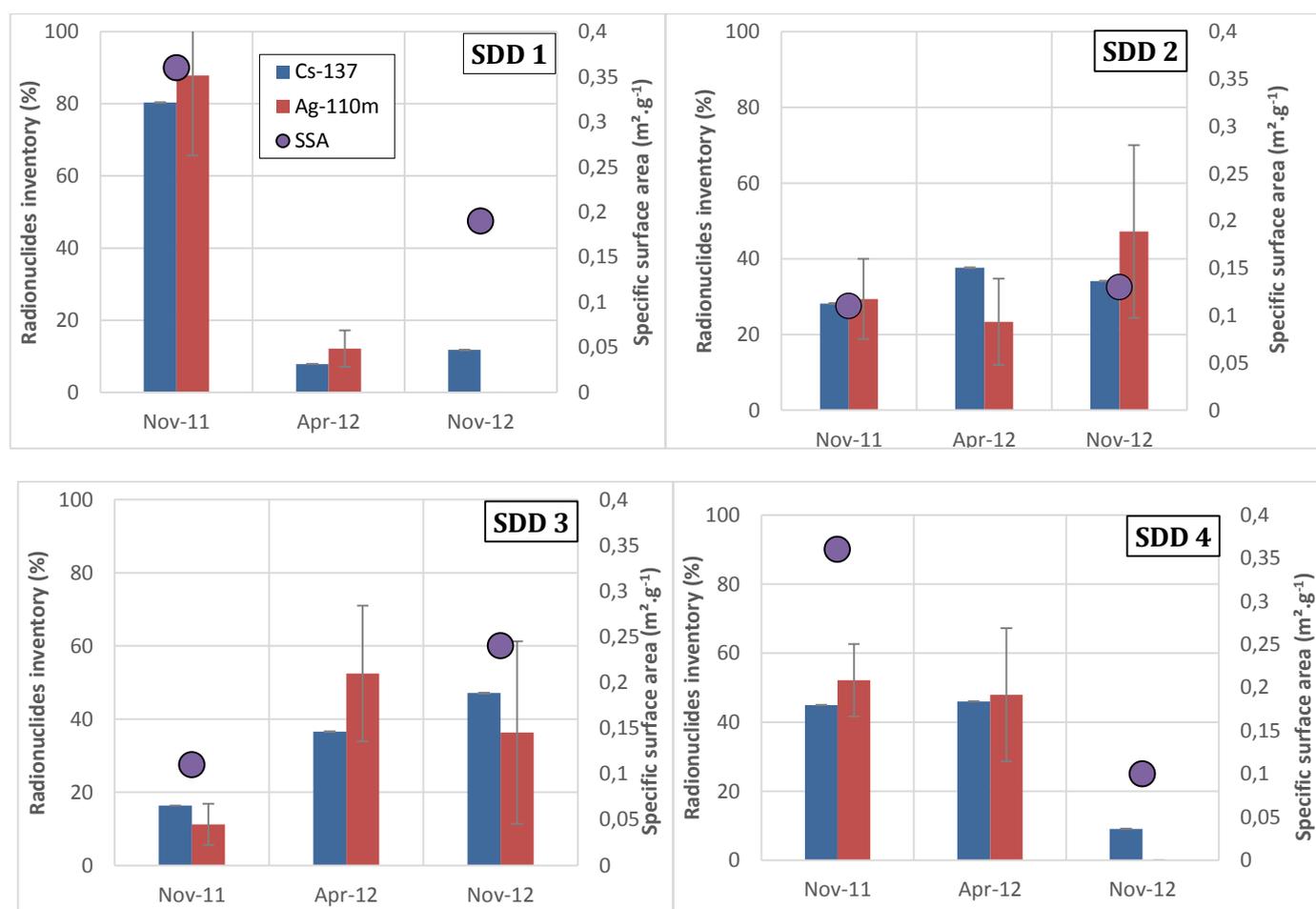


Figure 9. Evolution of the  $^{137}\text{Cs}$  and  $^{110m}\text{Ag}$  contamination inventory (%) and specific surface area (SSA) ( $\text{m}^2 \cdot \text{g}^{-1}$ ) of sediment drape deposits collected in the upper part of the Nitta River catchment during the campaigns of Nov 2011, April 2012 and Nov 2012 (SDD 1 to SDD 4 – see the location of sampling sites on Figure 3).

**Table 7 Characteristics of the riverbed sediment from the upper part of the Nitta River catchment collected at the same locations during the three fieldwork campaigns.**

Sample	Sampling date	$^{137}\text{Cs}$ activity (Bq.kg $^{-1}$ )	$^{110\text{m}}\text{Ag}$ activity (Bq.kg $^{-1}$ )	$^{110\text{m}}\text{Ag}:^{137}\text{Cs}$	SSA (m $^2$ .g $^{-1}$ )	pH
SDD 1	Nov-11	71 014 ± 108	157 ± 30	0.0022 ± 0.0004	0.36	n/a
	Apr-2012	6 939 ± 34	22 ± 16	0.0031 ± 0.0023	n/a	n/a
	Nov-12	10 394 ± 62	< 38	n/a	0.19	6 ± 0.5
SDD 2	Nov-11	10 385 ± 32	29 ± 10	0.0028 ± 0.0010	0.11	n/a
	Apr-2012	13 885 ± 34	23 ± 18	0.0016 ± 0.0013	n/a	n/a
	Nov-12	12 583 ± 48	46 ± 34	0.0036 ± 0.0027	0.13	6 ± 0.5
SDD 3	Nov-11	16 898 ± 66	29 ± 22	0.0017 ± 0.0013	0.11	n/a
	Apr-2012	337 786 ± 72	132 ± 34	0.0035 ± 0.0009	n/a	n/a
	Nov-12	48 680 ± 178	92 ± 55	0.0019 ± 0.0011	0.24	5.5 ± 0.5
SDD 4	Nov-11	64 093 ± 100	175 ± 16	0.0027 ± 0.0002	0.36	n/a
	Apr-2012	65 599 ± 106	161 ± 24	0.0024 ± 0.0004	n/a	n/a
	Nov-12	12 949 ± 74	< 44	n/a	0.1	6

n/a: not available

**Table 8 Comparison of  $^{110\text{m}}\text{Ag}:^{137}\text{Cs}$  activity ratio between soil and sediment drupe deposits collected during the three campaigns in the upper part of the Nitta River catchment. All values were decay-corrected to 14 march 2011.**

$^{110\text{m}}\text{Ag}:^{137}\text{Cs}$ activity ratio	Soil (based on MEXT data)	SDD
Nov-11	0.0023 ± 0.008	0.0023 ± 0.0005
Apr-12		0.0027 ± 0.0008
Nov-12		0.0022 ± 0.0010

SDD: Sediment Drape Deposits

An alternative explanation to the activity increase observed throughout time is that the grain size of particles could have changed from one campaign to the next, explaining the observed differences in contamination. Calculation of surface specific area (SSA) shown in Fig. 9 shows that this might be the case for sample SDD 3 (with an enrichment in fine particles throughout time), but not for sample SDD 2 (SSA remaining constant in time).

Because of different experimental conditions (non-homogeneous fallout deposition and high radionuclide activities), our results plotted on Fig. 10 do not show a power function as found by He and Walling (1996) but they display instead a linear function for both  $^{137}\text{Cs}$  ( $r^2 = 0.89$ ) and  $^{110m}\text{Ag}$  ( $r^2 = 0.91$ ) that is strongly correlated with the SSA.

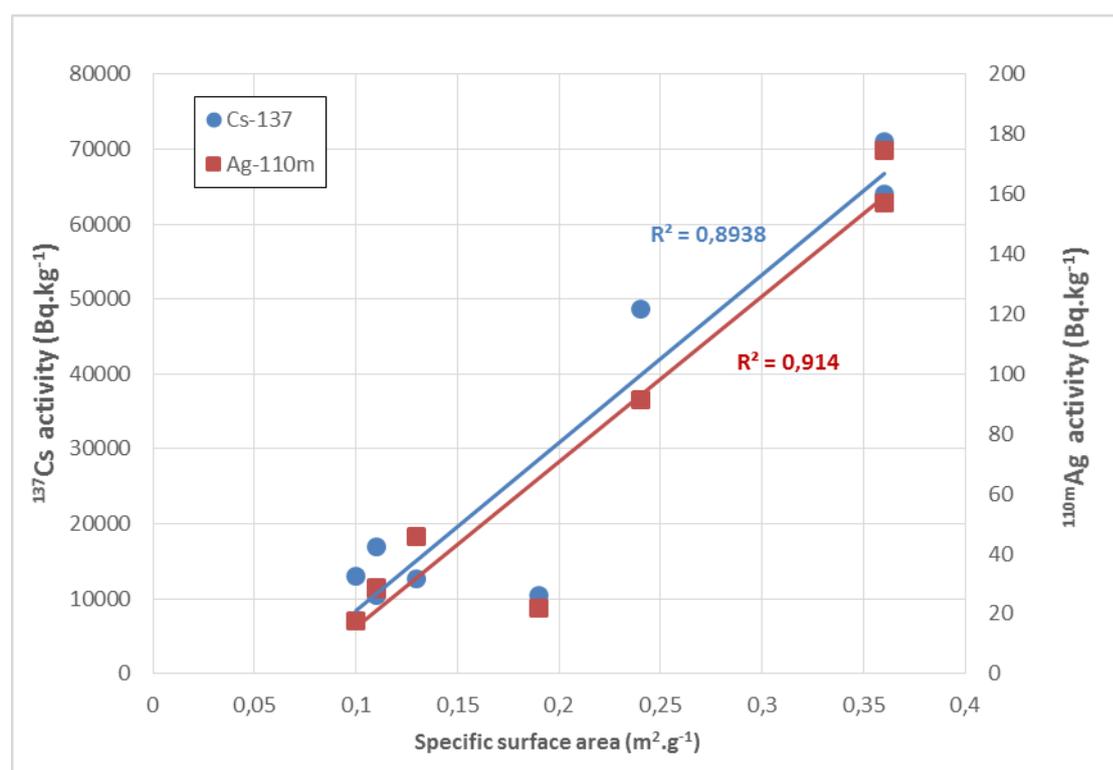


Figure 10. Relationships between  $^{137}\text{Cs}$  and  $^{110m}\text{Ag}$  activities (Bq.kg<sup>-1</sup>) and specific surface area (m<sup>2</sup>.g<sup>-1</sup>) in sediment drape deposits collected in the upper part of the Nitta River catchment during the campaigns of Nov 2011, April 2012 and Nov 2012 (SDD 1 to SDD 4 – see the location of sampling sites on Figure 3).

This tends to confirm the similar behaviour for both radionuclides, although particle-size effects and fractionation could have occurred, given that erosion and transport in rivers are obviously selective to finer particles. Consequently, these results confirmed the relevance of using of  $^{110m}\text{Ag}:^{137}\text{Cs}$  activity ratio to investigate the dispersion and redistribution of contamination along rivers.

## 5. Conclusions

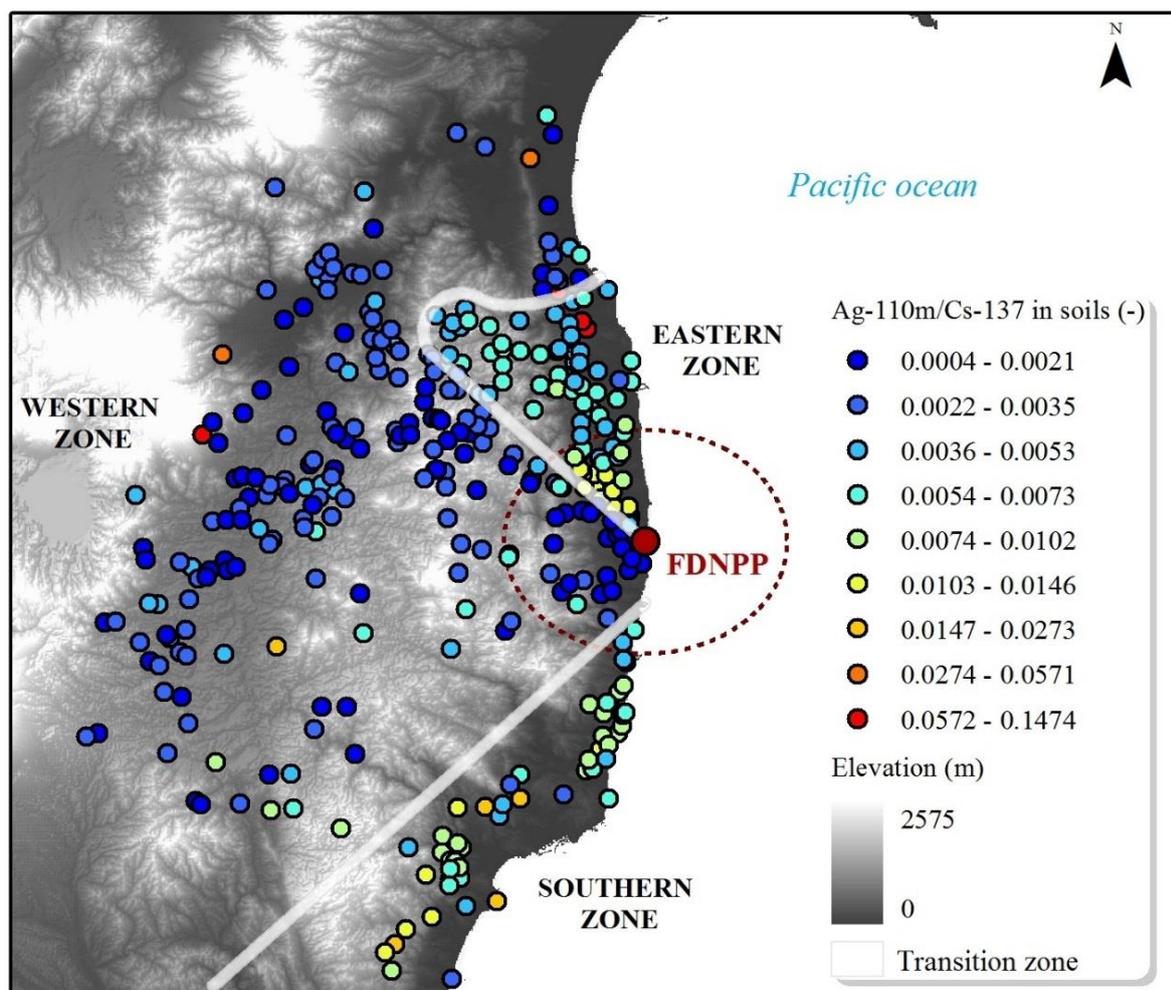
Silver-110m ( $^{110m}\text{Ag}$ ) is an anthropogenic radionuclide that is produced continuously by nuclear power plants (NPP) in normal conditions, but investigations regarding its behaviour in the environment are rare despite the potentially important radioecological implications of its accidental release into the environment. In the Fukushima NPP post-accidental context, the interest to conduct field studies on the behaviour of  $^{110m}\text{Ag}$  was reinforced by the fact that initial deposits displayed  $^{110m}\text{Ag}:$  $^{137}\text{Cs}$  activity ratios that varied across space within the main radioactive contamination plume. This study showed that  $^{137}\text{Cs}$  and  $^{110m}\text{Ag}$  were strongly sorbed by the finest particle fractions (i.e., clay or silt), and that the bulk of their inventory was stored in the uppermost part of soil profiles (i.e., <2 cm), confirming that the in-depth mobility was not significant during the two years following the accident. In addition to this fine particle reactivity, we showed that soil erosion and sediment transport in catchments that mobilize preferentially the finest particle fractions did not induce different fractionation effects for both radionuclides. This study therefore confirmed the relevance of using this ratio to track the dispersion of contaminated material along coastal rivers draining this area. In future, due to the rapid decay of radiosilver and its initially relatively low fallout level, extraction methods could be used in order to measure precisely radiosilver and continue to investigate its behaviour and the dispersion of contaminated sediment along rivers.

#### IV - 1.2 UTILISATION DU RAPPORT D'ACTIVITE $^{110m}\text{Ag}/^{137}\text{Cs}$

Comme nous l'avons vu dans la section précédente, le comportement de ces deux radionucléides est similaire dans les sols et les sédiments. L'analyse de la dispersion de la contamination par l'utilisation de ce rapport a été publiée dans la revue *Anthropocene* par Chartin et al. (2013).

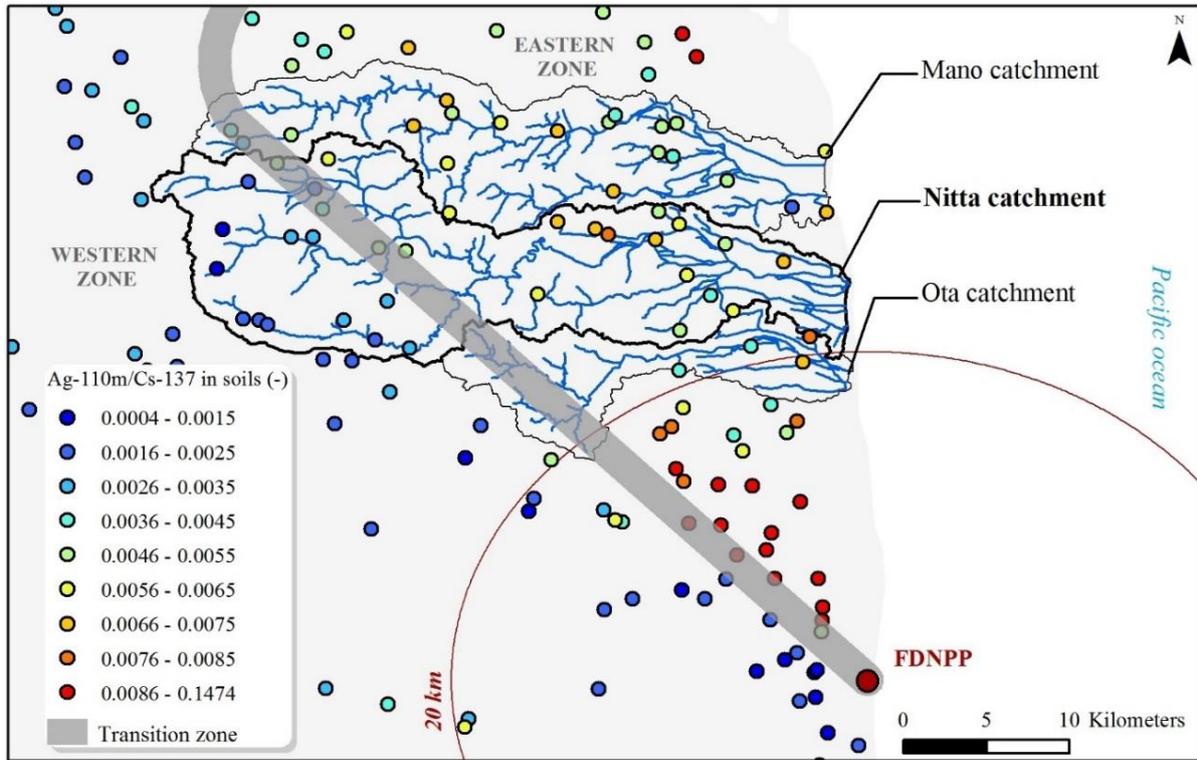
##### IV - 1.2.1 DEPOT DE L'ARGENT-110 METASTABLE

Déjà évoqué dans ce manuscrit, les retombées en  $^{137}\text{Cs}$  n'étaient pas homogènes et formaient différents panaches dont le principal avait impacté la zone Nord-Ouest. C'est également le cas pour le  $^{110m}\text{Ag}$  et, rapidement après l'accident, le MEXT a publié une série de cartes basées sur les mesures d'activités de différents radionucléides dans les sols. Parmi les cartes, l'une d'elle montrait la répartition spatiale du rapport d'activité  $^{110m}\text{Ag}/^{137}\text{Cs}$ , caractérisée par des zones de valeurs différentes (MEXT, 2011), contrairement au rapport d'activité du  $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ . On retrouve en Figure IV - 1-1, une version adaptée de cette carte par Chartin et al. (2013).



**Figure IV - 1-1** - Rapport d'activité  $^{110m}\text{Ag}/^{137}\text{Cs}$  mesuré dans les premiers 5 cm des sols de la Préfecture de Fukushima par le MEXT en juin 2011 et délimitation de trois zones possédant des valeurs différentes (Chartin et al., 2013).

Ces différences de valeurs sont probablement dues aux variations de composition des combustibles des différents réacteurs (Schwantes et al., 2012). Or, comme les retombées sont issues des quatre réacteurs affectés par l’accident, il est logique de retrouver des rapports différents. Ainsi, dans le bassin versant de la Niida, deux zones ont pu être différenciées (Figure IV - 1-2).



**Figure IV - 1-2** - Rapport d’activité  $^{110m}\text{Ag}$ : $^{137}\text{Cs}$  mesuré dans les premiers 5 cm des sols des bassins côtiers (Chartin et al., 2013). Nitta = Niida.

A partir d’une telle répartition, il est alors possible d’utiliser un modèle de mélange binaire pour déterminer la contribution de chaque zone dans les sédiments.

#### IV - 1.2.2 MODELE DE MELANGE

Ce modèle de mélange compare la valeur moyenne du rapport de chaque zone avec la valeur du rapport pour un échantillon de laisses de crue (Chartin et al., 2013) :

$$X_A = \frac{\left(\frac{^{110m}\text{Ag}}{^{137}\text{Cs}}\right)_S - \left(\frac{^{110m}\text{Ag}}{^{137}\text{Cs}}\right)_B}{\left(\frac{^{110m}\text{Ag}}{^{137}\text{Cs}}\right)_A - \left(\frac{^{110m}\text{Ag}}{^{137}\text{Cs}}\right)_B} * 100$$

Avec  $X_a$  la contribution de la source A et  $^{110m}\text{Ag}/^{137}\text{Cs}$  le rapport d’activité moyen de la source A, B, et dans l’échantillon (S). On obtient donc le pourcentage de contribution de la première source, et la contribution de l’autre source peut être facilement calculée en soustrayant  $X_a$  à 100. Les caractéristiques des deux sources sont résumées dans le Tableau IV - 1-1.

Tableau IV - 1-1 - Caractéristiques du rapport d'activité  $^{110m}\text{Ag}/^{137}\text{Cs}$  dans les deux zones du bassin de la Niida.

	Source A (zone Ouest)	Source B (zone Est)
<b>Nombre d'échantillons</b>	12	14
<b>Minimum</b>	0,0010	0,0041
<b>Maximum</b>	0,0035	0,0082
<b>Moyenne</b>	0,0023	0,0059
<b>Ecart type</b>	0,0008	0,0012
<b>Médiane</b>	0,0024	0,0057

On remarque que les zones sont bien définies car la valeur maximale de la zone A est inférieure à la valeur minimale de la zone B.

#### IV - 1.2.3 RESULTATS

Dans l'article publié (Chartin et al., 2013), seules les trois premières campagnes ont été analysées. Cependant, nous avons pu compléter ces résultats en ajoutant la campagne de mai 2014 et ainsi apporter davantage d'informations sur le cycle de dispersion (Figure IV - 1-3).

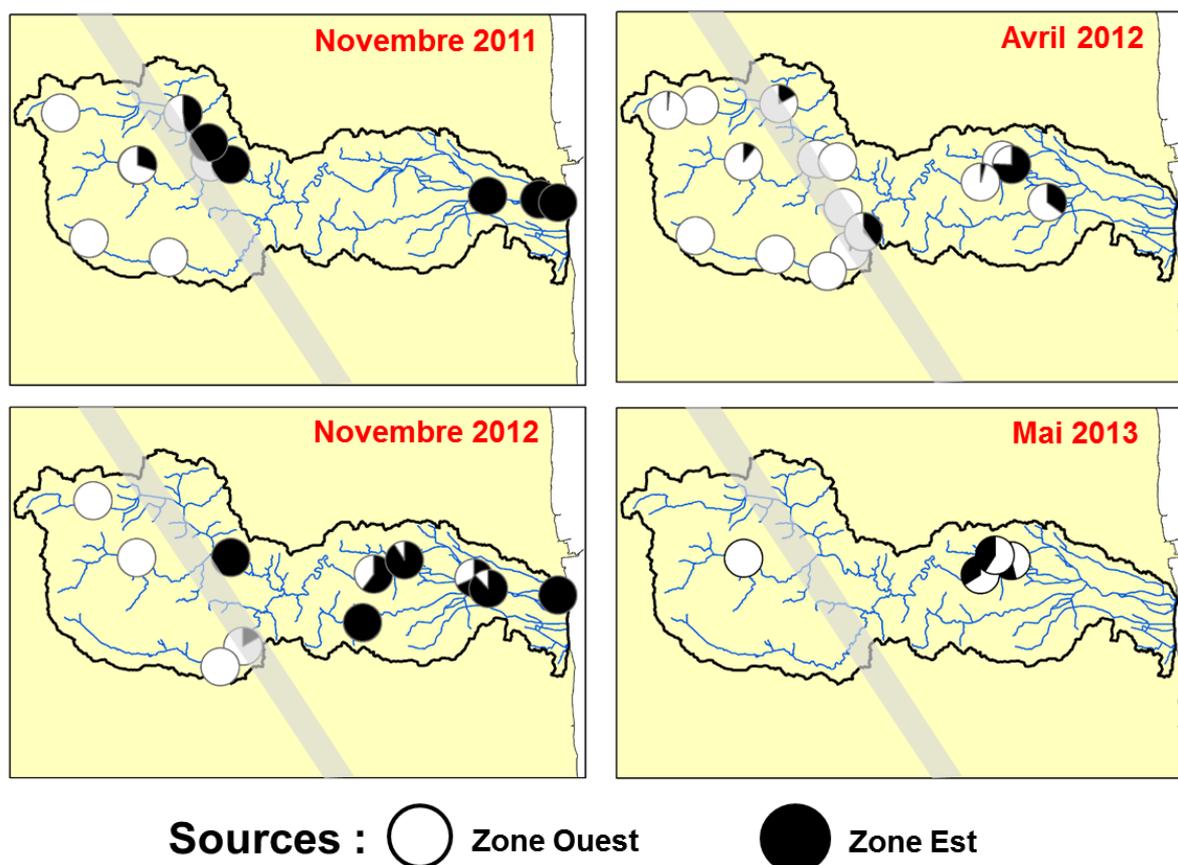


Figure IV - 1-3 – Contribution de chaque source dans le bassin versant de la Niida de novembre 2011 à mai 2013 (adapté de Chartin et al., 2013).

Les résultats de ces quatre campagnes montrent l’existence d’un cycle d’érosion/dispersion. En effet, les résultats exposent que lors des typhons les sédiments sont caractérisés par la signature des sols locaux, tandis que lors des crues printanières, les sédiments de la zone Est sont caractérisés par une contribution majoritaire de particules provenant de la zone Ouest. Il y a donc érosion locale lors des typhons et dispersion lors des crues printanières.

#### IV - 1.2.4 LIMITE DE CETTE METHODE

Cependant, cette méthode est associée à une limite majeure, celui de la courte demi-vie du  $^{110m}\text{Ag}$ . En effet, avec une période de 250 jours, cet isotope était pratiquement indétectable en mai 2013 (Figure IV - 1-4). On peut voir que sur l’ensemble des échantillons collectés pour cette campagne (n = 20), seul le rapport d’activité de 4 d’entre eux a pu être déterminé (Figure IV - 1-5), les valeurs de  $^{110m}\text{Ag}$  des autres échantillons étant inférieures à la limite de détection (LD).

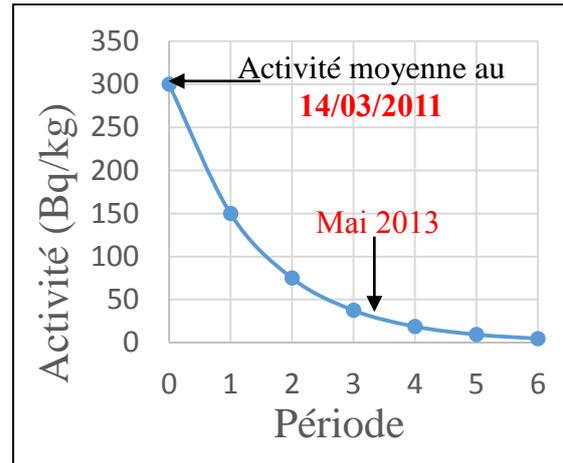


Figure IV - 1-4 - Décroissance radioactive de l’argent-110m depuis l’accident.

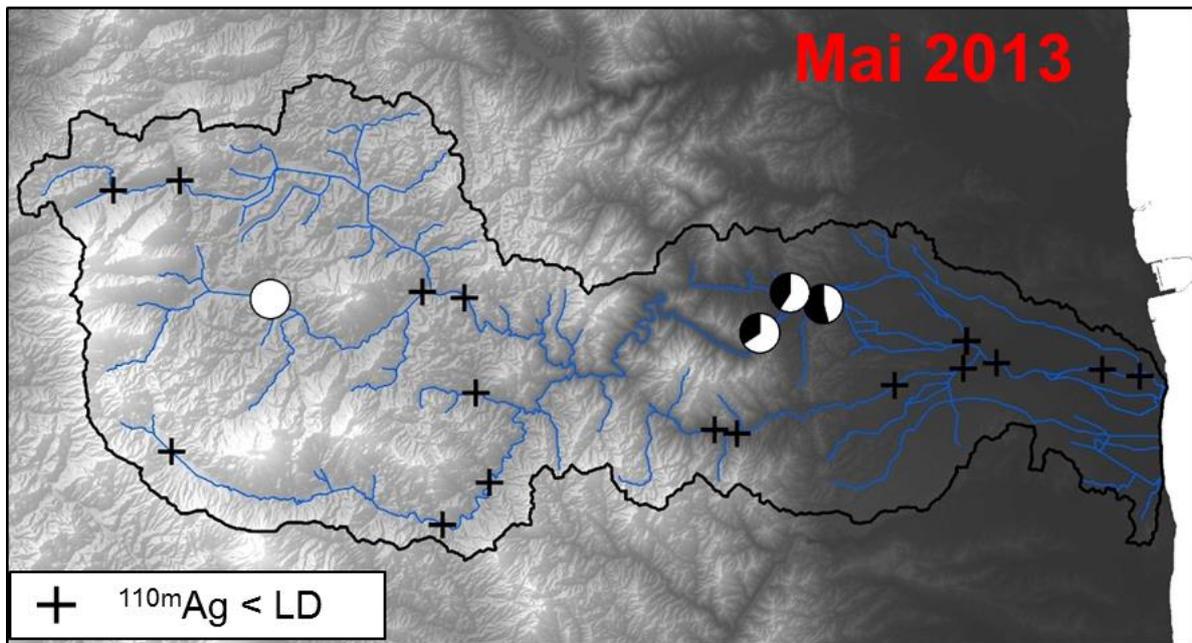


Figure IV - 1-5 - Détection du  $^{110m}\text{Ag}$  dans les échantillons de la Niida en mai 2013.

Pour poursuivre l’analyse de la dispersion et comprendre ce qu’il se passe dans les autres bassins versants, une 2<sup>ème</sup> méthode a été appliquée, basée sur le facteur d’enrichissement en  $^{137}\text{Cs}$ .

IV - 2 TRACKING THE ORIGIN AND DISPERSION OF  
CONTAMINATED SEDIMENTS TRANSPORTED BY RIVERS  
DRAINING THE FUKUSHIMA RADIOACTIVE CONTAMINANT  
PLUME

*Lepage, H., Evrard, O., Onda, Y., Chartin, C., Lefevre, I., Ayrault, S., A., Bonte, P., 2014. Tracking the origin and dispersion of contaminated sediments transported by rivers draining the Fukushima radioactive contaminant plume, in: Sediment Dynamics from the Summit to the Sea. pp. 237–243.*

**HUGO LEPAGE<sup>1</sup>, OLIVIER EVRARD<sup>1</sup>, YUICHI ONDA<sup>2</sup>, CAROLINE CHARTIN<sup>1</sup>, IRENE LEFEVRE<sup>1</sup>, SOPHIE AYRAULT<sup>1</sup> & PHILIPPE BONTE<sup>1</sup>**

<sup>1</sup>Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement (CEA, CNRS, UVSQ), F-91198 Gif-sur-Yvette France

[hugo.lepage@lsce.ipsl.fr](mailto:hugo.lepage@lsce.ipsl.fr)

<sup>2</sup>Center for Research in Isotopes and Environmental Dynamics (CRIED), Tsukuba University, Tsukuba, Japan

## Résumé

Cette étude a été menée dans plusieurs bassins versants qui drainent le panache contaminé principal de la centrale de Fukushima Dai-ichi, dans la Préfecture de Fukushima, au Japon. Nous avons collecté des sols et des laisses de crues (n = 128) et étudié la variation de l'enrichissement de ces laisses en <sup>137</sup>Cs pendant cinq campagnes d'échantillonnage effectuées tous les six mois, après les événements érosifs intenses tels que les typhons et la fonte des neiges. Nous montrons que les sols contaminés en amont sont érodés au cours des typhons d'été (juin-octobre) avant d'être exportés au cours de la fonte des neiges au printemps (mars-avril). Toutefois, ce cycle saisonnier de dispersion des sédiments peut être impacté par l'occurrence de lâchers de barrage susceptibles de libérer de grandes quantités de contaminants dans les plaines côtières au cours des années à venir.

## Abstract

This study was conducted in several catchments draining the main Fukushima Dai-ichi Power Plant contaminant plume in Fukushima prefecture, Japan. We collected soils and sediment drape deposits (n = 128) and investigated the variation in <sup>137</sup>Cs enrichment during five sampling campaigns, conducted every six months, which typically occurred after intense erosive events such as typhoons and snowmelt. We show that upstream contaminated soils are eroded during summer typhoons (June–October) before being exported during the spring snowmelt (March–April). However, this seasonal cycle of sediment dispersion is further complicated by the occurrence of dam releases that may discharge large amounts of contaminants to the coastal plains during the coming years.

## 1. Introduction

The Tohoku earthquake and the subsequent tsunami that occurred on 11 March 2011 impacted the Fukushima Dai-Ichi Nuclear Power Plant (FDNPP) and led to a significant atmospheric release of radionuclides such as  $^{137}\text{Cs}$  ( $T_{1/2} = 30$  years). About 80% of the release was transported out and over the Pacific Ocean, with the rest primarily deposited on the soils of Fukushima Prefecture as a result of wet atmospheric fallout. Estimations of  $^{137}\text{Cs}$  activity, as a result of the fallout, range between 10 PBq and 760 PBq (Koo *et al.* 2014); the deposits formed a radioactive plume covering an area of 3000 km<sup>2</sup> and within which contamination exceeds 300 KBq/m<sup>2</sup>. Radiocaesium is known to have a low mobility in soils and to be rapidly fixed to the finest particles, especially to clay minerals (Sawi-iney 1972; He & Walling, 1996; Kamei-ishikawa *et al.*, 2008; Koarashi *et al.*, 2012). In the vicinity of the main contaminant plume, it was reported that most of the  $^{137}\text{Cs}$  remained in the upper first centimetre of the soil (Fujiwara *et al.*, 2012; Kato *et al.*, 2012; Koarashi *et al.*, 2012; Nakanishi *et al.*, 2013; Lepage *et al.*, 2014).

The Fukushima region is affected by severe erosion events triggered by typhoons or snowmelt, which preferentially erode and supply fine sediment to coastal rivers (Walling & Woodward, 1992; Motha *et al.*, 2002). These events have led to an increase in radiocaesium concentrations measured in suspended matter transiting local rivers (Fukuyama *et al.*, 2005; Nagao *et al.*, 2013; Ueda *et al.*, 2013; Mouri *et al.*, 2014; Yamashiki *et al.*, 2014; Yoshikawa *et al.*, 2014). These catchments display seasonal cycles of sediment dispersion. First, intense rainfall and typhoons taking place during the rainy season (July–October) mainly lead to the local erosion of contaminated soil. Then, the spring snowmelt exports the radioactive material to the coastal plains, especially the finest and the most contaminated particles (Chartin *et al.*, 2013; Evrard *et al.*, 2013). Unfortunately, continuous river monitoring was only operational in part of the area draining the contaminant plume; e.g. in the Abukuma River basin (5172 km<sup>2</sup>). In this area, it was estimated that more than 60% of the total radiocaesium flux was transported during typhoon Roke (September 2011; Yamashiki *et al.*, 2014).

In the absence of continuous monitoring along the coastal rivers draining the most contaminated part of the plume, alternative techniques had to be developed to track the dispersion of radioactive material and their potential supply to the Pacific Ocean. This export to coastal water has been put forward by previous studies (Chartin *et al.*, 2013; Nagao *et al.*, 2013), and may partly explain the constant elevated levels of contamination recorded in various marine species close to the FDNPP. Additionally, the constant liquid releases of radionuclides at FDNPP have also contributed to coastal contamination (Buessler *et al.*, 2012; Tateda *et al.*, 2013)

To document the dispersion of radioactive contamination in these coastal rivers, we collected soils and sediment drape deposits at several locations along these rivers after the main erosive events that occurred between 2011 and 2013, and investigated their impact on the concentration and distribution of radiocaesium.

2. Materials and methods  
a. Study area

The study was conducted in the Fukushima Prefecture, located in Northeastern Japan, 30 km to the northwest of the FDNPP (Fig. 1). We focused our work on three coastal catchments (Mano, Nitta and Ota, 530 km<sup>2</sup>) draining the main part of the radioactive plume. These catchments extend from the coastal mountain range (approximately 30 km from the coast) to the Pacific Ocean, and their elevation ranges from 0 to 900 m. Dams are present along the three catchments but mostly impact the Mano and Ota rivers as the dams in Nitta catchment are not in the main river channel. Dams are present along the three catchments but mostly impact the Mano and Ota rivers as the dams in Nitta catchment are not in the main river channel.

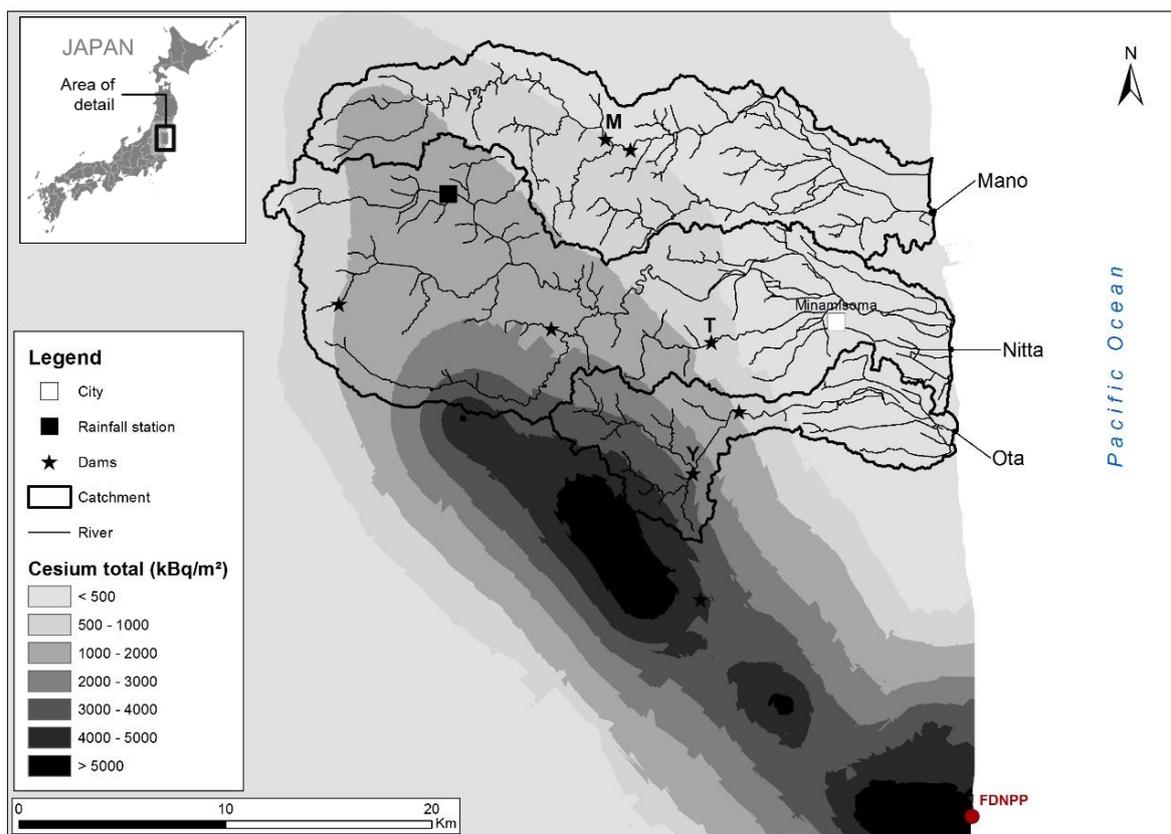


Fig. 1 <sup>134</sup>Cs+<sup>137</sup>Cs soil inventory recalculated to the date of 14 June 2011 based on MEXT data (2012) in the three study catchments (Mano, Nitta and Ota). FDNPP stands for Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant, M for Mano dam, T for Takanokura dam and Y for Yokokawa dam.

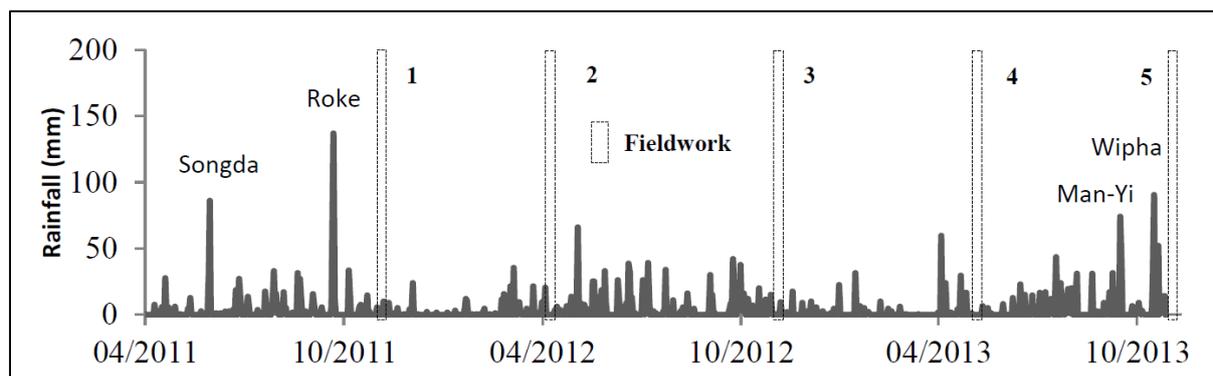
b. Sample collection

Sampling was conducted after the main erosive periods of the year (i.e. summer typhoons and spring snowmelt) between November 2011 and November 2013 (Table 1; Fig. 2).

The soil samples actually represent composites of from five to ten subsamples from randomly selected locations collected using a non-metallic trowel along the three rivers. In addition, sediment drape deposits were collected, as they are likely to integrate sediment from the last hydro-sedimentary events of low to intermediate magnitude (Evrard *et al.*, 2011).

**Table 1 Summary of the fieldwork (FW) campaigns and the rainfall characteristics recorded during the study**

FW	Date	Main erosive event	Rainfall max (mm h <sup>-1</sup> )	Total rainfall until next event (mm)	Soil/sediment collected
1	Nov. 2011	Typhoon (Songda) Typhoon (Roke)	31	920	12/16
2	April 2012	Snowmelt	5	268	17/23
3	Nov. 2012	Strong rainfall	27	945	21/29
4	May 2013	Snowmelt	8	329	5/29
5	Nov. 2013	Tropical storm (Man-Yi) Typhoon (Wipha)	36	845	13/31



**Fig. 2** Rainfall data provided by the Japan Meteorological Agency (JMA) with indication of the main rainfall events and the organization of fieldwork campaigns.

Sediment drape deposits were selected as an alternative to the in-stream sampling of suspended sediment to increase the spatial coverage of the survey within the catchments, and to avoid the logistical problems associated with the collection of suspended sediment in river catchments affected by typhoons. Olley *et al.* (2013) demonstrated that drape deposits and suspended sediment sampled by time-integrated samplers were not significantly different. We randomly collected five to ten subsamples to obtain representative samples that were likely to have been deposited after the last major flood. Sediment drape deposits will be referred to as sediment in the remainder of the text.

### c. Gamma spectrometry measurements

Before measurement, samples were dried at 40°C for a week, ground to a fine powder, and then packed into 15 mL polyethylene specimen cups. <sup>137</sup>Cs activities in all samples were determined by gamma spectrometry using very low-background coaxial N- and P-type HPGe detectors (Canberra/Ortec). Counting times for samples varied between 80 000 s and 150 000 s. The <sup>137</sup>Cs activities were measured at the 661 keV emission peak. Counting efficiencies and quality assurance were monitored using internal and certified International Atomic Energy Agency (IAEA) reference materials prepared in the same specimen cups as the samples. Analytical imprecision was estimated by combining counting statistics and calibration uncertainties. Summing and self-absorption effects were taken into account by analysing standards with similar densities and characteristics as the collected samples. All activities were decay corrected to the date of 14 March 2011, corresponding to the date of the first radionuclide deposits on soils (Kinoshita *et al.*, 2011; Shozugawa *et al.*, 2012).

d. Enrichment factor

The  $^{137}\text{Cs}$  enrichment factor (EF) in sediment was calculated as follows:

$$EF = \frac{{}^{137}\text{Cs activity in riverine sediment (Bq kg}^{-1}\text{)}}{{}^{137}\text{Cs activity in soil (Bq kg}^{-1}\text{)}}$$

Enrichment factors are widely used to calculate the magnitude of metallic contamination compared to the local background signal (Ayrault *et al.*, 2010). In this study, we used it to investigate whether there was an increase or a decrease in  $^{137}\text{Cs}$  contamination in coastal rivers.

3. Results and discussion

Sampling locations situated in the upstream part of the Mano catchment were characterized by a low radiocaesium enrichment factor throughout the entire study period (Fig. 3), reflecting a higher contamination in soil than in sediment. This could be explained by several processes:

- Contaminated sediment was massively exported during the 2011 typhoons;
- As this area is mainly covered by evergreen forests (Fig. 4), erosion processes are limited as litter provides a dense and thick vegetative cover that protected the soils (Koarashi *et al.* 2012; Matsunaga *et al.* 2013). In addition, paddy fields were abandoned and densely covered by vegetative regrowth (Fig. 4) that strongly reduced erosive processes (Valentin *et al.*, 2008; Vasquez-Mendez *et al.*, 2010).
- Bank erosion supplied subsurface material depleted in radiocaesium to the rivers, as confirmed by gamma spectrometry measurements conducted on subsurface material (mean = 50 Bq kg<sup>-1</sup> for 3 samples – not presented in this paper) that diluted the contaminated sediment conveyed by rivers in this area.

The upstream part of the Ota River catchment is mainly covered by broadleaf forests located on steep hillslopes (Fig. 4), so that soils were rapidly eroded, and contaminated particles were exported and stored behind the Yokokawa dam (Fig. 1; Chartin *et al.*, 2013).

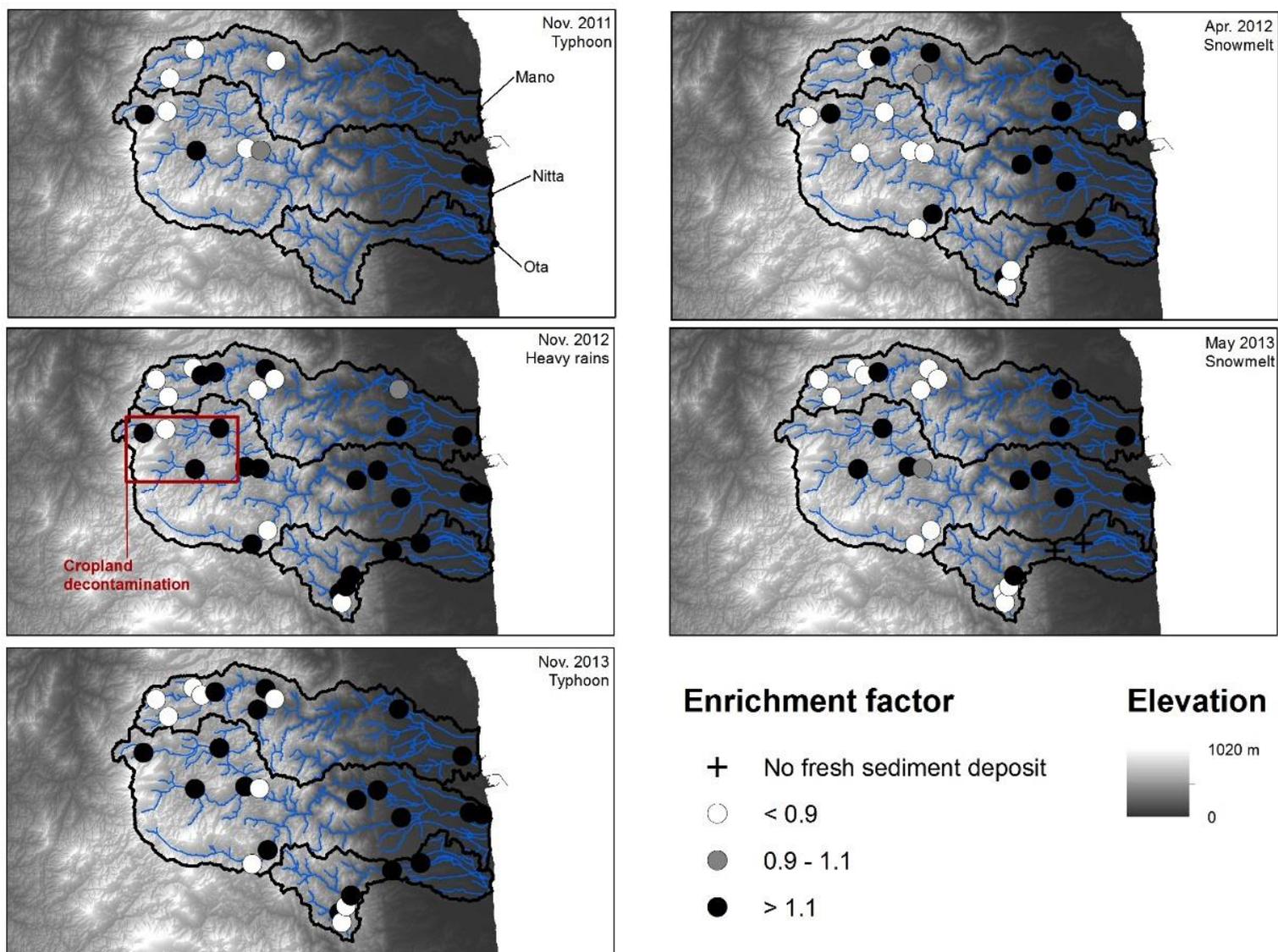
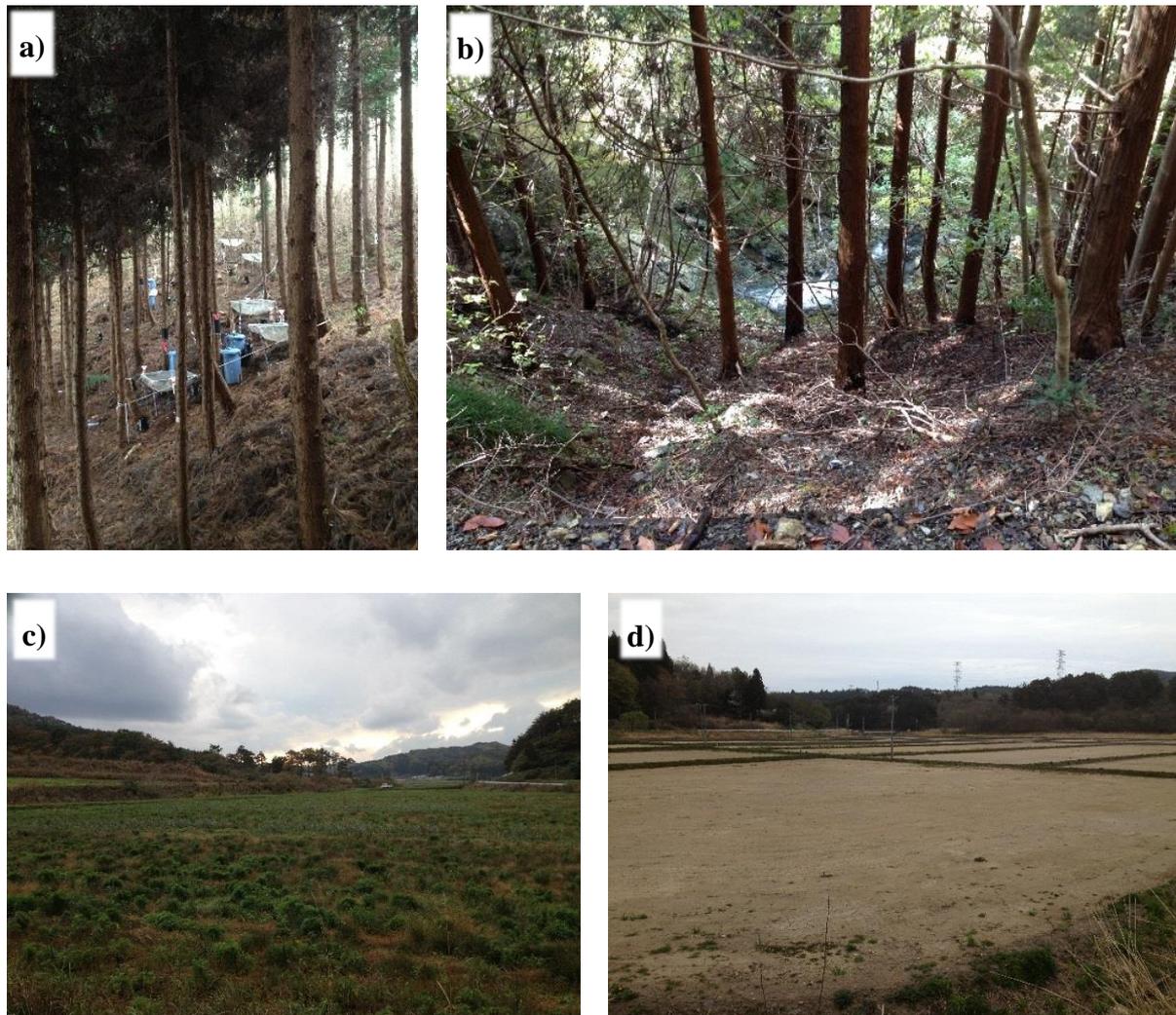


Fig. 3 Evolution of radiocaesium enrichment factor along rivers in the three study catchments during the five fieldwork campaigns. The red square indicates the part of the Nitta catchment where decontamination works were under progress during autumn in 2013.



**Fig. 4** (a) Evergreen forest with thick and dense litter cover of the soil (as observed in upper parts of the Mano catchment), (b) broadleaf forest on steep slopes within the Ota catchment, (c) abandoned paddy field in Mano catchment, and (d) decontaminated paddy field in the Nitta catchment

The erosive behaviour observed in the upper parts of the Nitta catchment was different, as contaminated material was continuously supplied to the rivers; this pattern is reflected in the higher number of monitoring points characterised by  $EF > 1.1$  collected throughout the study (Fig. 3). Remediation efforts, mainly initiated during the autumn of 2013, also may partly explain the almost continuous supply of contaminated soil to the rivers (Fig. 4). However, the results obtained on material collected in the upper part of the Nitta catchment prior to the autumn of 2013 (before decontamination) tended to display  $EFs < 0.9$ .

The succession of typhoons that caused intense soil erosion, and the snowmelt events that led to the export of contamination to the coastal plains, is illustrated in Fig. 5. As previously mentioned, this figure illustrates the increase in the number of sampling sites with  $EFs > 1.1$  after heavy rainfall events (November 2012 and 2013) whereas it also displays a decrease in the number of sampling sites with  $EFs > 1.1$  after snowmelt events that probably reflect occurrences of flushes of radioactive material to the coastal plains (April 2012 and May 2013).

Results obtained in the coastal plains show a different trend – a slow decrease of contamination within the coastal river systems until May 2013 (Fig. 5). This behaviour is likely explained by the progressive and continuous export of radioactive material to the Pacific Ocean. The lower values recorded after snowmelt events (80–89%) as compared to after the typhoons (95–100%) could be explained by a different behaviour, depending on whether the river is dammed (Mano and Ota rivers) or not (Nitta River), as export to the coastal plain is reduced by the dams during snowmelt. Also, the large increase in contaminated material recorded during the November 2013 campaign (Fig. 5) may be explained by the joint occurrence of dam releases (Fukushima River Basin Comprehensive Information System 2013), and large-scale decontamination works in paddy fields located in the upper parts of the free-flowing Nitta River catchment (Fig. 4).

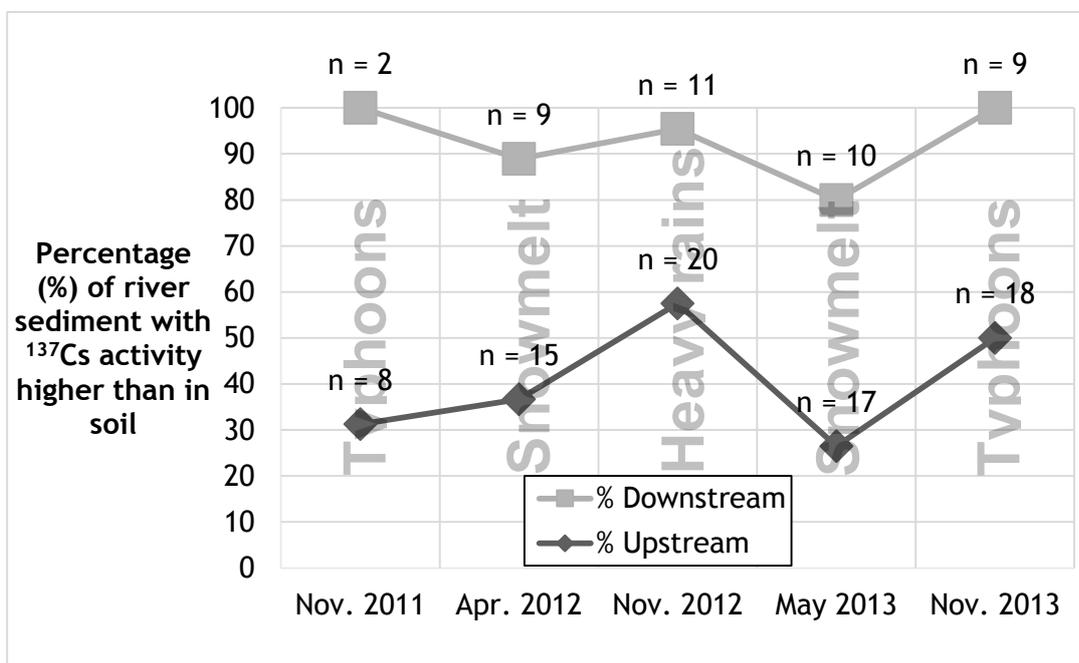


Fig 5 Evolution of the percentage of sampling sites where radiocaesium activities measured in sediment drupe deposits were higher than on nearby soils between November 2011 and November 2013. n stands for number of samples.

## 5. Conclusions

We investigated the dispersion of radioactive material from the main contaminant plume along Fukushima coastal rivers by calculating the evolution in the  $^{137}\text{Cs}$  enrichment factor at different locations within the catchments. We showed that in parts of the upper catchments, the supply of contaminated material to the rivers was controlled by the occurrence of typhoons that led to local soil erosion, and by snowmelt events that exported the contaminants to the coastal plains. In contrast, contamination in downstream parts of these catchments showed a slow decrease, despite the potential for the continuous export of radioactive material to the Pacific Ocean. The joint occurrence of violent typhoons and dam releases in 2013 led to a general increase in the contaminant levels measured across the catchments.

Ongoing and future work will aim to model and quantify the contaminant fluxes to the Ocean, and the respective contributions of typhoons and snowmelt events to the dispersion of contaminated material.

### IV - 3 TRACAGE DE LA DISPERSION EN UTILISANT L’ACTIVITE EN $^{137}\text{Cs}$

L’article qui présente les résultats obtenus par cette méthode contient également les résultats du traçage obtenus à l’aide des mesures géochimiques. Pour faciliter la lecture, l’article a été placé dans le **chapitre suivant** et un résumé des résultats utilisant le  $^{137}\text{Cs}$  comme traceur est présenté ci-dessous.

Il a été soumis à la revue *Anthropocene : Tracing sediment dynamics in coastal catchments affected by the Fukushima Dai-Ichi Nuclear Accident*.

#### Résumé

L’objet de cet article est l’étude de la dispersion et de l’origine spatiale des sédiments contaminés dans deux bassins versants côtiers, ceux de la Mano et de la Niida, situés au Nord-Ouest de la centrale. Des échantillons de sols ( $n=37$ ) et de laisses de crue ( $n=211$ ) ont été collectés lors de six campagnes de prélèvement réalisées tous les six mois après les événements érosifs majeurs (typhons et crues printanières) de mars 2011 à mai 2014. Les activités des principaux radionucléides et les teneurs en éléments chimiques ont été mesurées dans les sols et les sédiments. Ces données ont été utilisées dans des modèles de mélange pour quantifier la contribution des différentes sources potentielles dans les sédiments.

Dans une première approche, les résultats basés sur l’activité en  $^{137}\text{Cs}$  montrent que la contribution de la zone amont, fortement contaminée, dans les sédiments de la plaine côtière, était plus élevée dans la Niida ( $\mu$  47,  $\sigma$  19 %) que la Mano ( $\mu$  19,  $\sigma$  19 %). Dans la Niida, la dispersion de la contamination vers l’Océan Pacifique est continue pendant les typhons et les crues printanières. Au contraire, dans la Mano, cette dispersion est contrôlée par le barrage qui génère une disconnectivité sédimentaire. La contribution des sols de la zone amont dans les sédiments de la zone côtière était la plus élevée en avril 2012 ( $71 \pm 11$  % pour la Niida et  $50 \pm 11$  % pour la Mano). Cette contribution a diminué jusqu’en mai 2013 ( $22 \pm 13$  % pour la Niida et  $13 \pm 12$  % pour la Mano). L’occurrence passage de typhons en octobre 2013 a conduit à une nouvelle augmentation de cette contribution dans le bassin de la Niida ( $66 \pm 10$  %) et celui de la Mano ( $24 \pm 12$  %).

Dans une seconde approche basée sur les signatures géochimiques, les principaux types de sols de cette région (Andosols, Cambisols et Fluvisols) ont été caractérisés par leur composition élémentaire. Les distributions de deux éléments discriminants (Sc et Yb) dans les trois sources ont été utilisées pour modéliser les sources des sédiments. Les résultats démontrent que les Fluvisols ( $\mu$  76,  $\sigma$  14 %) contribuent plus aux sédiments que les Andosols ( $\mu$  21,  $\sigma$  16 %) et les Cambisols ( $\mu$  3,  $\sigma$  4 %). Les Fluvisols se trouvent principalement dans les rizières tandis que les Cambisols sont généralement situés sous les forêts. Par conséquent, les rizières apparaissent comme la source prépondérante de sédiment, donc de radiocésium, pour les rivières drainant le panache de contamination. L’ensemble des résultats montre que la contribution de chaque type de sol reste relativement constante dans le temps.

Dans la Préfecture de Fukushima, l'agriculture est une activité économique importante et les rizières couvrent 70 % de la surface cultivée. Il est donc crucial d'étudier l'impact des travaux de décontamination qui ont actuellement lieu dans ces rizières, sur la dispersion de la contamination dans les rivières.

#### IV - 4 CONCLUSIONS DU CHAPITRE IV

L’utilisation de l’empreinte radioactive de l’accident de Fukushima a permis le développement de différentes méthodes pour étudier la dispersion des sédiments contaminés dans les rivières de la région. Les résultats obtenus avec ces différentes méthodes sont cohérents. Ils montrent qu’il existe un cycle d’érosion et de transport induit par la succession des typhons et des crues printanières. La méthode basée sur le rapport  $^{110m}\text{Ag}/^{137}\text{Cs}$  et celle qui utilise le facteur d’enrichissement montrent que les typhons engendrent plutôt une érosion locale, alors que les crues printanières transportent les particules contaminées déjà présentes dans la rivière vers l’aval des bassins versants. Cette dispersion a d’ailleurs été très forte lors des premières crues printanières de 2012. En effet, en avril 2012, la contribution de la zone amont dans les sédiments de la plaine côtière de la Niida était de 71 % et 70 %, respectivement, pour les méthodes basées sur le rapport  $^{110m}\text{Ag}/^{137}\text{Cs}$  et sur la distribution du  $^{137}\text{Cs}$  dans les sols (Tableau IV - 4-1). Ces résultats s’expliquent par le fait que les rizières étaient faiblement recouvertes de végétation lors du passage du typhon Roke en septembre 2011 (209 mm de pluie en 48 h), augmentant ainsi leur érodabilité.

Tableau IV - 4-1 - Synthèse des résultats obtenus pour les sédiments collectés dans la plaine côtière du bassin de la Niida.

Campagne	Traçage à partir du rapport d’activités $^{110m}\text{Ag}/^{137}\text{Cs}$ : % de contribution de la zone amont* dans les sédiments des plaines côtières*	Traçage à partir des distributions de $^{137}\text{Cs}$ : % de contribution de la zone amont* dans les sédiments des plaines côtières*
Novembre 2011	20 ± 27%	41 ± 12%
Avril 2012	70 ± 34%	71 ± 11%
Novembre 2012	18 ± 17%	46 ± 13%
Mai 2013	57 ± 11%	23 ± 13%

\* Les zones amont et aval étudiées avec les différentes méthodes de traçage ne présentent pas exactement les mêmes contours.

Il ressort également des résultats que le barrage de la Mano a fortement impacté ce transport de contamination, en stockant une importante fraction de celle-ci durant les premières crues. Ainsi, la contribution de la zone amont a baissé de 50 % en avril 2012 à 13 % un an plus tard dans les sédiments de la plaine côtière. Cette zone amont est caractérisée par la présence d’une litière abondante dans les forêts de conifères et la présence d’une végétation dense dans les rizières abandonnées suite à l’interdiction de cultiver ces parcelles, ce qui a considérablement limité l’érosion. Ainsi, le transfert des sols contaminés vers les rivières a fortement diminué et cette contamination a pu être diluée localement par l’érosion des berges qui n’ont pas été exposées aux retombées initiales.

C’est pourquoi les résultats de la méthode basée sur le facteur d’enrichissement montrent que les laisses de crues dans la partie amont de la Mano sont devenues moins contaminées que les

sols ( $FE < 0,9$ ). De même, dans le bassin de la Niida, la contribution de la partie amont aux sédiments de la plaine côtière est passée de 71 % (avril 2012) à 21 % (mai 2013). Cette diminution est en partie due aux travaux de décontamination qui ont eu lieu dans la zone amont de la Niida et qui ont pu commencer à tarir localement la source de radiocésium facilement érodable et à l'absence de typhon en 2012.

Ensuite, en septembre 2013, deux typhons ont à nouveau affecté les deux bassins versants. Un lâcher de barrage a été réalisé sur la Mano, ce qui a eu pour conséquence de disperser à nouveau la contamination. La contribution de la partie amont du bassin est ainsi passée de 13% à 24% de mai 2013 à novembre 2013. La gestion de ces ouvrages est donc très importante car elle permet de réguler la dispersion de la contamination. Dans la Niida, la contribution de la partie amont est, elle, passée de 21 % à 66 %. La contribution plus marquée de la zone amont aux sédiments de la plaine côtière dans le bassin de la Niida s'explique par l'absence de barrage dans ce bassin, conduisant à la dispersion continue de la contamination.

Afin de préciser l'origine spatiale des sédiments, une méthode de traçage visant à discriminer les types de sol de ces bassins versants a été appliquée et sera développée dans le chapitre suivant.

## IV - 5 REFERENCES

- Adam, C., Baudin, J., Garnier-Laplace, J., 2001. Kinetics of  $^{110m}\text{Ag}$ ,  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  and  $^{54}\text{Mn}$  bioaccumulation from water and depuration by the crustacean *Daphnia magna*. *Water. Air. Soil Pollut.* 171–188.
- Ancelin, J., Guéguéniat, P., Germain, P., 1979. *Radioécologie marine, étude du devenir des radionucléides rejetés en milieu marin et application à la radioprotection*, Eyrolles. ed. Paris.
- Ayrault, S., Priadi, C.R., Evrard, O., Lefèvre, I., Bonté, P., 2010. Silver and thallium historical trends in the Seine River basin. *J. Environ. Monit.* 12, 2177–85. doi:10.1039/c0em00153h
- Beresford, N.A., Crout, N.M.J., Mayes, R.W., Howard, B.J., Lamb, C.S., 1998. Dynamic distribution of radioisotopes of cerium, ruthenium and silver in sheep tissues. *J. Environ. Radioact.* 38, 317–338.
- Bryan, G.W., 1971. Effects of heavy metals (other than Mercury) on marine and estuarine organisms. *Proc. R. Soc. Ser. B - Biol. Sci.* 177, 389.
- Bryan, G.W., Langston, W.J., 1992. Bioavailability, accumulation and effects of heavy metals in sediments with special reference to United Kingdom estuaries: a review. *Environ. Pollut.* 76, 89–131.
- Buesseler, K.O., Jayne, S.R., Fisher, N.S., Rypina, I.I., Baumann, H., Baumann, Z., Breier, C.F., Douglas, E.M., George, J., Macdonald, A.M., Miyamoto, H., Nishikawa, J., Pike, S.M., Yoshida, S., 2012. Fukushima-derived radionuclides in the ocean and biota off Japan. *Proc. Natl. Acad. Sci. U. S. A.* 5984-5988, 1–7.
- Buesseler, K.K.O.K., Jayne, S.R.S., Fisher, N.S., Rypina, I.I., Baumann, H., Baumann, Z., Breier, C.F., Douglas, E.M., George, J., Macdonald, A.M., Miyamoto, H., Nishikawa, J., Pike, S.M., Yoshida, S., 2012. Fukushima-derived radionuclides in the ocean and biota off Japan. *Proc.* 5984-5988, 1–7.
- Calmon, P., Garnier-Laplace, J., 2002. Fiche radionucléide - Argent-110m et environnement. IRSN 15.
- Chartin, C., Evrard, O., Onda, Y., Patin, J., Lefèvre, I., Ottlé, C., Ayrault, S., Lepage, H., Bonté, P., 2013. Tracking the early dispersion of contaminated sediment along rivers draining the Fukushima radioactive pollution plume. *Anthropocene* 1, 23-34.
- Chelet, Y., 2006. *La radioactivité - Manuel d’initiation*, Nucléon. ed.
- Chino, M., Nakayama, H., Nagai, H., Terada, H., Katata, G., Yamazawa, H., 2011. Preliminary Estimation of Release Amounts of  $^{131}\text{I}$  and  $^{137}\text{Cs}$  Accidentally Discharged from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant into the Atmosphere. *J. Nucl. Sci. Technol.* 48, 1129–1134.
- Ciffroy, P., Garnier, J.-M., Pham, M.K., 2001. Kinetics of the adsorption and desorption of radionuclides of Co, Mn, Cs, Fe, Ag and Cd in freshwater systems: experimental and modelling approaches. *J. Environ. Radioact.* 55, 71–91.
- Ciffroy, P., Siclet, F., Damois, C., Luck, M., Duboudin, C., 2005. A dynamic model for assessing radiological consequences of routine releases in the Loire river: parameterisation and uncertainty/sensitivity analysis. *J. Environ. Radioact.* 83, 9–48.
- Evrard, O., Navratil, O., Ayrault, S., Ahmadi, M., Némery, J., Legout, C., Lefèvre, I., Poirel, A., Bonté, P., Esteves, M., 2011. Combining suspended sediment monitoring and fingerprinting to determine the spatial origin of fine sediment in a mountainous river catchment. *Earth Surf. Process. Landforms* 36, 1072–1089.
- Evrard, O., Chartin, C., Onda, Y., Patin, J., Lepage, H., Lefèvre, I., Ayrault, S., Ottlé, C., Bonté, P., 2013. Evolution of radioactive dose rates in fresh sediment deposits along coastal rivers draining Fukushima contamination plume. *Sci. Rep.* 3, 3079. doi:10.1038/srep03079
- Evrard, O., Chartin, C., Onda, Y., Lepage, H., Cerdan, O., Lefèvre, I., Ayrault, S., 2014. Renewed soil erosion and remobilisation of radioactive sediment in Fukushima coastal rivers after the 2013 typhoons. *Sci. Rep.* 4, 4574.
- Eyrolle, F., Radakovitch, O., Raimbault, P., Charmasson, S., Antonelli, C., Ferrand, E., Aubert, D., Raccasi, G., Jacquet, S., Gurriaran, R., 2012. Consequences of hydrological events on the delivery of suspended sediment and associated radionuclides from the Rhône River to the Mediterranean Sea. *J. Soils Sediments* 12, 1479–1495.
- Fournier-Bidoz, V., Garnier-laplace, J., 1994. Etude bibliographique sur les échanges entre l’eau les matières en suspension et les sédiments des principaux radionucléides rejetés par les centrales nucléaires, IPSN.

- Fournier-Bidoz, V., Garnier-laplace, J., Baudin, J., 1997. État des connaissances sur les échanges entre l'eau, les matières en suspension et les sédiments des principaux radionucléides rejetés par les centrales nucléaires en eau douce. *Radioprotection* 3, 49–71.
- Fujiwara, T., Saito, T., Muroya, Y., Sawahata, H., Yamashita, Y., Nagasaki, S., Okamoto, K., Takahashi, H., Uesaka, M., Katsumura, Y., Tanaka, S., 2012. Isotopic ratio and vertical distribution of radionuclides in soil affected by the accident of Fukushima Dai-ichi nuclear power plants. *J. Environ. Radioact.* 113, 37–44. doi:10.1016/j.jenvrad.2012.04.007
- Fukai, R., Murray, C., 1974. Environmental behavior of radiocobalt and radiosilver released from nuclear power stations into aquatic systems. *Radioact. Sea* 40, 217–242.
- Fukuda, T., Kino, Y., Abe, Y., Yamashiro, H., Kuwahara, Y., Nihei, H., Sano, Y., Irisawa, A., Shimura, T., Fukumoto, Motoi, Shinoda, H., Obata, Y., Saigusa, S., Sekine, T., Isogai, E., Fukumoto, Manabu, 2013. Distribution of artificial radionuclides in abandoned cattle in the evacuation zone of the Fukushima Daiichi nuclear power plant. *PLoS One* 8, e54312.
- Fukushima River Basin Comprehensive Information System, 2013. <http://kaseninf.pref.fukushima.jp/gis/> (Dernier accès mai 2015)
- Fukuyama, T., Takenaka, C., Onda, Y., 2005.  $^{137}\text{Cs}$  loss via soil erosion from a mountainous headwater catchment in central Japan. *Sci. Total Environ.* 350, 238–47.
- Garnier, J.-M., Ciffroy, P., Benyahya, L., 2006. Implications of short and long term (30 days) sorption on the desorption kinetic of trace metals (Cd, Zn, Co, Mn, Fe, Ag, Cs) associated with river suspended matter. *Sci. Total Environ. Environ.* 366, 350–60.
- Guéguéniat, P., Gandon, R., Hémon, G., Philippot, J.C., 1976. Méthode de mesure d'éléments traces dans l'eau de mer par activation neutronique. Cas particulier des isotopes stables de produits de fission. *Meas. Detect. Control Environ. Pollut. IAEA-SM*, 206/28.
- Handl, J., Kallweit, E., Henning, M., Szwec, L., 2000. On the long-term behaviour of  $^{110}\text{mAg}$  in the soil–plant system and its transfer from feed to pig. *J. Environ. Radioact.* 48, 159–170.
- He, Q., Walling, D., 1996. Interpreting particle size effects in the adsorption of  $^{137}\text{Cs}$  and unsupported  $^{210}\text{Pb}$  by mineral soils and sediments. *J. Environ. Radioact.* 30, 117–137.
- IAEA, 1998. Radiological characterization of shut down nuclear reactors for decommissioning purposes. IAEA, Vienna, Tech. Rep 389, 184.
- Iida, T., Kajihara, A., Okubo, H., Okajima, K., 2012. Effect of seasonal snow cover on suspended sediment runoff in a mountainous catchment. *J. Hydrol.* 428–429, 116–128.
- Ivanov, Y., Lewyckyj, N., Levchuk, S., 1997. Migration of  $^{137}\text{Cs}$  and  $^{90}\text{Sr}$  from chernobyl fallout in Ukrainian, Belarussian and Russian soils. *J. Environ. Qual.* 35, 1–21.
- Kamei-Ishikawa, N., Uchida, S., Tagami, K., 2008. Distribution coefficients for  $^{85}\text{Sr}$  and  $^{137}\text{Cs}$  in Japanese agricultural soils and their correlations with soil properties. *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 277, 433–439.
- Kato, H., Onda, Y., Gomi, T., 2012a. Interception of the Fukushima reactor accident derived  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{134}\text{Cs}$  and  $^{131}\text{I}$  by coniferous forest canopies. *Geophys. Res. Lett.* 39, L20403.
- Kato, H., Onda, Y., Teramage, M., 2012b. Depth distribution of  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{134}\text{Cs}$ , and  $^{131}\text{I}$  in soil profile after Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant Accident. *J. Environ. Radioact.* 111, 59–64.
- Khan, S., Nandan, D., Khan, N.N., 1982. The mobility of some heavy metals through Indian Red Soil. *Environ. Pollut. Ser. B, Chem. Phys.* 4, 119–125.
- Khengarot, B., Ray, P., 1987. Correlation between heavy metal acute toxicity values in *Daphnia magna* and fish. *Bull. Environ. Contam. Toxicol.* 38, 722–726.
- Kinoshita, N., Sueki, K., Sasa, K., Kitagawa, J., Ikarashi, S., Nishimura, T., Wong, Y.-S., Satou, Y., Handa, K., Takahashi, T., Sato, M., Yamagata, T., 2011. Assessment of individual radionuclide distributions from the Fukushima nuclear accident covering central-east Japan. *Proc. Natl. Acad. Sci. U. S. A.* 108, 19526–9.
- Koarashi, J., Atarashi-Andoh, M., Matsunaga, T., Sato, T., Nagao, S., Nagai, H., 2012. Factors affecting vertical distribution of Fukushima accident-derived radiocesium in soil under different land-use conditions. *Sci. Total Environ. Environ.* 431, 392–401.

- Koo, Y.-H., Yang, Y.-S., Song, K.-W., 2014. Radioactivity release from the Fukushima accident and its consequences: A review. *Prog. Nucl. Energy* 74, 61–70. doi:10.1016/j.pnucene.2014.02.013
- Kurikami, H., Kitamura, A., Yokuda, S.T. and Onishi, Y., 2014. Sediment and  $^{137}\text{Cs}$  behaviors in the Ogaki Dam Reservoir during a heavy rainfall event. *J. Environ. Radioact.*, 137: 10-17.
- Le Petit, G., Douysset, G., Ducros, G., Gross, P., Achim, P., Monfort, M., Raymond, P., Pontillon, Y., Jutier, C., Blanchard, X., Taffary, T., Moulin, C., 2012. Analysis of Radionuclide Releases from the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant Accident Part I. *Pure Appl. Geophys.* 171, 629–644.
- Lee, S.H., Oh, J.S., Lee, J.M., Lee, K.B., Park, T.S., Lujanienė, G., Valiulis, D., Sakalys, J., 2013. Distribution characteristics of  $^{137}\text{Cs}$ , Pu isotopes and  $^{241}\text{Am}$  in soil in Korea. *Appl. Radiat. Isot.* In press.
- Lepage, H., Evrard, O., Onda, Y., Patin, J., Chartin, C., Lefèvre, I., Bonté, P., Ayrault, S., 2014. Environmental mobility of  $^{110\text{m}}\text{Ag}$ : lessons learnt from Fukushima accident (Japan) and potential use for tracking the dispersion of contamination within coastal catchments. *J. Environ. Radioact.* 130, 44–55. doi:10.1016/j.jenvrad.2013.12.011
- Martin, C.J., Heaton, B., Thompson, J., 1989. Cesium-137,  $^{134}\text{Cs}$  and  $^{110\text{m}}\text{Ag}$  in lambs grazing pasture in NE Scotland contaminated by Chernobyl fallout. *Health Phys.* 56, 459–64.
- Martin, T.R., Holdich, D.M., 1986. The acute lethal toxicity of heavy metals to peracarid crustaceans. *Water Res.* 20, 1137–1147.
- Matsunaga, T., Koarashi, J., Atarashi-Andoh, M., Nagao, S., Sato, T., Nagai, H., 2013. Comparison of the vertical distributions of Fukushima nuclear accident radiocesium in soil before and after the first rainy season, with physicochemical and mineralogical interpretations. *Sci. Total Environ.* Environ. 447C, 301–314.
- MEXT, 2011. Preparation of Distribution Map of Radiation Doses (Map of Tellure 129 and Silver 110m Concentration in Soil).
- MEXT, 2012. MEXT, Japan [http://radioactivity.nsr.go.jp/ja/contents/7000/6289/24/203\\_0928.pdf](http://radioactivity.nsr.go.jp/ja/contents/7000/6289/24/203_0928.pdf)
- Motha, J., Wallbrink, P., 2002. Tracer properties of eroded sediment and source material. *Hydrol. Process.* 16, 1983–2000.
- Mouri, G., Golosov, V., Shiiba, M., Hori, T., 2014. Assessment of the caesium-137 flux adsorbed to suspended sediment in a reservoir in the contaminated Fukushima region in Japan. *Environ. Pollut.* 187, 31–41. doi:10.1016/j.envpol.2013.12.018
- Murray, C.N., Murray, L., 1972. Adsorption-desorption equilibria of some radionuclides in sediment-fresh-water and sediment-sea water systems. *Radioact. Contam. Mar. Environ.* 105–122.
- Nagao, S., Kanamori, M., Ochiai, S., Tomihara, S., Fukushi, K., Yamamoto, M., 2013. Export of  $^{134}\text{Cs}$  and  $^{137}\text{Cs}$  in the Fukushima river systems at heavy rains by Typhoon Roke in September 2011. *Biogeosciences* 10, 6215–6223. doi:10.5194/bg-10-6215-2013
- Nakanishi, T., Matsunaga, T., Koarashi, J., Atarashi-Andoh, M., 2014.  $^{137}\text{Cs}$  vertical migration in a deciduous forest soil following the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident. *J. Environ. Radioact.* 128, 9–14.
- Olley, J., Brooks, A., Spencer, J., Pietsch, T., Borombovits, D., 2013. Subsoil erosion dominates the supply of fine sediment to rivers draining into Princess Charlotte Bay, Australia. *J. Environ. Radioact.* 124C, 121–129.
- Oughton, D., 1989. The environmental chemistry of radiocaesium and other nuclides. University of Manchester.
- Ratte, H.T., 1999. Bioaccumulation and toxicity of silver compounds: A review. *Environ. Toxicol. Chem.* 18, 89–108.
- Santamarina, J., Klein, K., 2002. Specific surface: determination and relevance. *Can. Geotech.* 241, 233–241.
- Sawi-iney, B., 1972. Selective sorption and fixation of cations by clay minerals: a review. *Clays Clay Miner.* 20, 93–100.
- Schwantes, J.M., Orton, C.R., Clark, R.A., 2012. Analysis of a nuclear accident: fission and activation product releases from the Fukushima Daiichi nuclear facility as remote indicators of source identification, extent of release, and state of damaged spent nuclear fuel. *Environmental Science and Technology* 46, 8621–8627.
- Shang, Z.R., Leung, J.K.C., 2003.  $^{110\text{m}}\text{Ag}$  root and foliar uptake in vegetables and its migration in soil. *J. Environ. Radioact.* 65, 297–307.

- Shozugawa, K., Nogawa, N., Matsuo, M., 2012. Deposition of fission and activation products after the Fukushima Dai-ichi nuclear power plant accident. *Environ. Pollut.* 163, 243–7.
- Stohl, A., Seibert, P., Wotawa, G., Arnold, D., Burkhart, J.F., Eckhardt, S., Tapia, C., Vargas, A., Yasunari, T.J., 2012. Xenon-133 and caesium-137 releases into the atmosphere from the Fukushima Dai-ichi nuclear power plant: determination of the source term, atmospheric dispersion, and deposition. *Atmos. Chem. Phys.* 12, 2313–2343.
- Tanaka, K., Sakaguchi, A., Kanai, Y., Tsuruta, H., Shinohara, A., Takahashi, Y., 2012. Heterogeneous distribution of radiocesium in aerosols, soil and particulate matters emitted by the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident: retention of micro-scale heterogeneity during the migration of radiocesium from the air into ground and river. *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 295, 1927–1937.
- Tateda, Y., Tsumune, D., Tsubono, T., 2013. Simulation of radioactive cesium transfer in the southern Fukushima coastal biota using a dynamic food chain transfer model. *J. Environ. Radioact.* 124, 1–12.
- Tazoe, H., Hosoda, M., Sorimachi, A., Nakata, A., Yoshida, M. a, Tokonami, S., Yamada, M., 2012. Radioactive pollution from Fukushima Daiichi nuclear power plant in the terrestrial environment. *Radiat. Prot. Dosimetry* 152, 198–203.
- Ueda, S., Hasegawa, H., Kakiuchi, H., Akata, N., Ohtsuka, Y., Hisamatsu, S., 2013. Fluvial discharges of radiocaesium from watersheds contaminated by the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident, Japan. *J. Environ. Radioact.* 118, 96–104.
- Valentin, C., et al. 2008. Runoff and sediment losses from 27 upland catchments in Southeast Asia: Impact of rapid land use changes and conservation practices. *Agric. Ecosyst. Environ.* 128, 225–238.
- Vásquez-Méndez, R., Ventura-Ramos, E., Oleschko, K., Hernández-Sandoval, L., Parrot, J.-F., Nearing, M. a., 2010. Soil erosion and runoff in different vegetation patches from semiarid Central Mexico. *Catena* 80, 162–169. doi:10.1016/j.catena.2009.11.003
- Vuković, Ž., 2002. Environmental impact of radioactive silver released from nuclear power plant. *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 254, 637–639.
- Walling, D.E., Woodward, J.C., 1992. Use of radiometric fingerprints to derive information on suspended sediment sources, in: *Erosion and Sediment Transport Monitoring Programmes in River Basin*. IAHS Publ, vol. 210. Wallingford: IAHS Press; 1992. p. 153–64
- Watanabe, T., Tsuchiya, N., Oura, Y., Ebihara, M., 2012. Distribution of artificial radionuclides ( $^{110m}\text{Ag}$ ,  $^{129m}\text{Te}$ ,  $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ) in surface soils from Miyagi Prefecture, northeast Japan, following the 2011 Fukushima Dai-ichi nuclear power. *Geochem. J.* 46, 279–285.
- Winiarek, V., Bocquet, M., Saunier, O., Mathieu, A., 2012. Estimation of errors in the inverse modeling of accidental release of atmospheric pollutant: Application to the reconstruction of the cesium-137 and iodine-131 source terms from the Fukushima Daiichi power plant. *J. Geophys. Res.* 117, 1–16.
- Yamaguchi, M., Kitamura, A., Oda, Y. and Onishi, Y., 2014. Predicting the long-term  $^{137}\text{Cs}$  distribution in Fukushima after the Fukushima Dai-ichi nuclear power plant accident: a parameter sensitivity analysis. *J. Environ. Radioact.*, 135: 135-146.
- Yamashiki, Y., Onda, Y., Smith, H.G., Blake, W.H., Wakahara, T., Igarashi, Y., Matsuura, Y., Yoshimura, K., 2014. Initial flux of sediment-associated radiocesium to the ocean from the largest river impacted by Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant. *Sci. Rep.* 4, 3714. doi:10.1038/srep03714
- Yasunari, T., Stohl, A., Hayano, R.S., Burkhart, J.F., Eckhardt, S., 2011. Cesium-137 deposition and contamination of Japanese soils due to the Fukushima nuclear accident. *Proc. Natl. Acad. Sci. U. S. A.* 108, 19530–4.
- Yoshikawa, N., Obara, H., Ogasa, M., Miyazu, S., Harada, N., Nonaka, M., 2014.  $^{137}\text{Cs}$  in irrigation water and its effect on paddy fields in Japan after the Fukushima nuclear accident. *Sci. Total Environ.* 481, 252–259.



# CHAPITRE V



# CHAPITRE V – ANALYSE DE LA DISPERSION DE LA CONTAMINATION PAR UNE METHODE GEOCHIMIQUE (INAA)

---

## **Sommaire**

TRACING SEDIMENT DYNAMICS IN COASTAL CATCHMENTS AFFECTED BY THE FUKUSHIMA DAI-ICHI NUCLEAR ACCIDENT	182
CAS DE LA CARTE DES SOLS DE 1972	201
CONCLUSIONS SUR LE CHAPITRE V	204
REFERENCES	205

## ANALYSE DE LA DISPERSION DE LA CONTAMINATION PAR UNE METHODE GEOCHIMIQUE (INAA)

Dans le chapitre précédent, nous avons mis en évidence l'existence d'un cycle d'érosion et de transport des particules contaminées lors de la succession des typhons estivaux et des crues printanières. L'analyse de la dispersion des particules contaminées dans le bassin de la Mano a mis en évidence l'impact que pouvait avoir le barrage sur le transfert de sédiments contaminés. Le travail mené avec les facteurs d'enrichissement en  $^{137}\text{Cs}$  et le rapport d'activité  $^{110\text{m}}\text{Ag}/^{137}\text{Cs}$  ont permis de quantifier la contribution de la zone amont aux sédiments de cette rivière. Il reste à caractériser de façon plus précise l'origine spatiale des sédiments contaminés.

Les données sur l'origine spatiale des particules contaminées constituent un prérequis pour pouvoir mettre en place des solutions efficaces de gestion des bassins versants contaminés. Pour ce faire, une nouvelle approche a été adoptée, en tentant de discriminer les particules provenant de types de sols différents dont la distribution spatiale est renseignée sur la carte pédologique de la région. Le choix de retenir la carte des sols à la place de la carte géologique, qui est le plus souvent utilisée dans les études de traçage (Evrard et al., 2011 ; Wilkinson et al., 2013), s'explique par la présence d'Andosols, développés sur des dépôts de cendres volcaniques, qui ne sont pas pris en compte par la carte géologique.

L'activation neutronique a permis de déterminer l'empreinte géochimique des principaux types de sol. Les éléments les plus discriminants pour les trois sources retenues (Andosol, Cambisol et Fluvisol) ont pu être sélectionnés par l'utilisation des tests statistiques de Kruskal-Wallis et de Wilk's Lambda. Ensuite, l'application d'un modèle de mélange, basé sur les distributions des teneurs de ces éléments dans les sources et les sédiments, a permis de calculer la contribution de chaque type de sol et d'obtenir ainsi des informations plus précises sur l'origine spatiale des sédiments. Les résultats font l'objet d'une publication soumise à la revue *Anthropocene : Tracing sediment dynamics in coastal catchments affected by the Fukushima Dai-Ichi Nuclear Accident*.

## V - 1 TRACING SEDIMENT DYNAMICS IN COASTAL CATCHMENTS AFFECTED BY THE FUKUSHIMA DAI-ICHI NUCLEAR ACCIDENT

### Résumé

A la suite de l'accident de la centrale de Fukushima Dai-Ichi, d'importantes quantités de radionucléides se sont déposées dans la Préfecture de Fukushima. Dans les bassins versants drainant le panache de contamination, les événements érosifs peuvent conduire à la dispersion des sols contaminés par le radiocésium dans les plaines côtières densément peuplées. L'objet de cet article est l'étude de la dispersion et de l'origine spatiale des sédiments contaminés dans deux bassins versants côtiers, ceux de la Mano et de la Niida, situés au Nord-Ouest de la centrale. Des échantillons de sols ( $n=37$ ) et de laisses de crue ( $n=211$ ) ont été collectés lors de six campagnes de prélèvement réalisées tous les six mois après les événements érosifs majeurs (typhons et crues printanières) de mars 2011 à mai 2014. Les activités des principaux radionucléides et les teneurs en éléments chimiques ont été mesurées dans les sols et les sédiments. Ces données ont été utilisées dans des modèles de mélange pour quantifier la contribution des différentes sources potentielles dans les sédiments.

Dans une première approche, les résultats basés sur l'activité en  $^{137}\text{Cs}$  montrent que la contribution de la zone amont, fortement contaminée, dans les sédiments de la plaine côtière, était plus élevée dans la Niida ( $\mu 47$ ,  $\sigma 19$  %) que la Mano ( $\mu 19$ ,  $\sigma 19$  %). Dans la Niida, la dispersion de la contamination vers l'Océan Pacifique est continue pendant les typhons et les crues printanières. Au contraire, dans la Mano, cette dispersion est contrôlée par le barrage qui génère une disconnectivité sédimentaire. La contribution des sols de la zone amont dans les sédiments de la zone côtière était la plus élevée en avril 2012 ( $71 \pm 11$  % pour la Niida et  $50 \pm 11$  % pour la Mano). Cette contribution a diminué jusqu'en mai 2013 ( $22 \pm 13$  % pour la Niida et  $13 \pm 12$  % pour la Mano). L'occurrence passage de typhons en octobre 2013 a conduit à une nouvelle augmentation de cette contribution dans le bassin de la Niida ( $66 \pm 10$  %) et celui de la Mano ( $24 \pm 12$  %).

Dans une seconde approche basée sur les signatures géochimiques, les principaux types de sols de cette région (Andosols, Cambisols et Fluvisols) ont été caractérisés par leur composition élémentaire. Les distributions de deux éléments discriminants (Sc et Yb) dans les trois sources ont été utilisées pour modéliser les sources des sédiments. Les résultats démontrent que les Fluvisols ( $\mu 76$ ,  $\sigma 14$  %) contribuent plus aux sédiments que les Andosols ( $\mu 21$ ,  $\sigma 16$  %) et les Cambisols ( $\mu 3$ ,  $\sigma 4$  %). Les Fluvisols se trouvent principalement dans les rizières tandis que les Cambisols sont généralement situés sous les forêts. Par conséquent, les rizières apparaissent comme la source prépondérante de sédiment, donc de radiocésium, pour les rivières drainant le panache de contamination. L'ensemble des résultats montre que la contribution de chaque type de sol reste relativement constante dans le temps. Dans la Préfecture de Fukushima, l'agriculture est une activité économique importante et les rizières couvrent 70 % de la surface cultivée. Il est donc crucial d'étudier l'impact des travaux de décontamination qui ont actuellement lieu dans ces rizières, sur la dispersion de la contamination dans les rivières.

## Abstract

Large quantities of radionuclides were deposited in the Fukushima Prefecture following the Fukushima Dai-Ichi Nuclear Power Plant accident. In the catchments draining the radioactive pollution plume, erosive events could lead to the redistribution of the soils contaminated with radiocesium to inhabited coastal plain. The goal of this paper is to apply sediment fingerprinting techniques to trace the dispersion and the spatial origin of contaminated sediments in two coastal catchments (Mano and Niida Rivers) located to the northwest of the power plant. Soils ( $n=37$ ) and lag deposits ( $n=211$ ) were collected during 6 sampling campaigns, conducted every six months after intense erosive events (typhoons or spring floods). Radionuclide activities and concentrations in chemical elements were measured in soil and sediment samples and used in two mixing models to quantify sediment contributions from different sources.

The first approach based on the distribution of cesium-137 activities in potential sources and in river sediment demonstrates that the contribution of the highly contaminated soils, located in the upstream area, to coastal plain sediments was higher in the Niida catchment ( $\mu$  47,  $\sigma$  19%) than in the Mano catchment ( $\mu$  19,  $\sigma$  19%). In the Niida catchment, dispersion of contaminated material to the Pacific Ocean is continuous during both spring floods and summer typhoons. In contrast, in the Mano catchment, this dispersion is clearly controlled by the dam that generates sediment disconnectivity. The contribution of upstream soils to coastal plain sediment was the highest in April 2012 ( $71 \pm 11\%$  for the Niida and  $50 \pm 11\%$  for the Mano). Although this contribution then decreased until May 2013 ( $22 \pm 13\%$  for the Niida and  $13 \pm 12\%$  for the Mano), the occurrence of typhoons in October 2013 led to a new increase of this contribution in both the Niida ( $66 \pm 10\%$ ) and the Mano ( $24 \pm 12\%$ ) catchments.

In a second approach, the main soil types found in the region (Andosols, Cambisols and Fluvisols) were characterized by their geochemical composition. The distributions of two discriminant elements (Sc and Yb) in the three sources were used to model (the contribution of) sediment sources. Results demonstrate that Fluvisols supplied more sediment to the rivers ( $\mu$  76,  $\sigma$  14%) than Andosols ( $\mu$  21,  $\sigma$  16%) and Cambisols ( $\mu$  3,  $\sigma$  4%). Fluvisols are mainly found in paddy fields whereas Cambisols are typically located under forests. Therefore, paddy fields are likely supplying the most sediment and also the most radiocesium to rivers draining the Fukushima pollution plume. Furthermore, the contribution of the different soil types to river sediment remained constant throughout time. In the Fukushima Prefecture, agriculture is a crucial economic sector, and paddy fields cover 70% of the total agricultural area. It is therefore important to investigate in the future the impact of the ongoing decontamination works conducted in paddy fields on the supply of radioactive contamination to the rivers.

## 1. Introduction

The Fukushima Dai-Ichi Nuclear Power Plant (FDNPP) accident on March 11, 2011 resulted in the deposition of vast quantities of radionuclides over Japanese soils (for a review see: Evrard et al., 2015). Among these radionuclides, cesium-137 ( $^{137}\text{Cs}$   $t_{1/2} = 30.17\text{y}$ ) will be the most serious health risk to the local population for the foreseeable future (Kitamura et al., 2014; Saito et al., 2015).

Cesium is rapidly and almost irreversibly fixated to fine soil particles, particularly clay minerals (Sawhney 1972; He & Walling, 1996; Kamei-ishikawa et al., 2008). Owing to this rapid fixation,  $^{137}\text{Cs}$  is predominantly bound to fine particles in the top 0-5cm of undisturbed soil profiles (Koarashi et al., 2012; Takahashi et al., 2014; Lepage et al., 2015). Importantly, these contaminated fine particles are preferentially eroded (Walling & Woodward, 1992; Motha et al., 2002).

The Fukushima region has an erosive climate, particularly during the typhoon season (July - October)(Lacey et al., in review). During typhoon events, significant volumes of contaminated sediment are transported downstream (Evrard et al., 2013; Kurikami et al., 2014; Lepage et al., 2014b; Yamaguchi et al., 2014). These major events result in elevated  $^{137}\text{Cs}$  concentrations in suspended riverine material (Nagao et al., 2013; Ueda et al., 2013; Yoshikawa et al., 2014). For example, Typhoon Roke (September 2011) transferred 61% (6 TBq) of the total radiocesium load in the Abukuma catchment between August 2011 to May 2012 (Yamashiki et al. 2014). Understanding the climatic influence on radiocesium and sediment fluxes is important.

Only the largest river draining the main radioactive pollution plume of the Fukushima Prefecture, the Abukuma River, has been continuously monitored since the accident (Chartin et al., 2013). Alternative sample-based approaches are therefore required to examine sources of  $^{137}\text{Cs}$ -contaminated sediment in the other coastal rivers (Chartin et al., 2013; Nagao et al., 2013; Lepage et al., 2014a). In lieu of monitoring, sediment fingerprinting techniques provide a direct method to identify and quantify sediment contributions from different areas through analyzing and modelling source soil and sediment properties (Collins and Walling, 2002; Haddadchi et al., 2013).

In this post-accident context, sediment source contributions are quantified with two sediment fingerprinting techniques. First, a  $^{137}\text{Cs}$ -based approach is used to investigate the downstream migration of  $^{137}\text{Cs}$ -contaminated sediment. Here,  $^{137}\text{Cs}$  activities are quantified in two distinct catchment areas: the upstream, highly contaminated region and the coastal plains that received low levels of  $^{137}\text{Cs}$  fallout. The objective of this  $^{137}\text{Cs}$ -based fingerprinting is to examine the source of  $^{137}\text{Cs}$ -contaminated sediment transiting the more densely populated coastal plain.

Second, elemental geochemistry of sediment and three main soil types (Andosols, Cambisols and Fluvisols) is analysed to determine the relative contribution of these soils to  $^{137}\text{Cs}$ -contaminated sediment. Conservative elements are selected for modelling with the Kruskal Wallis H-test and Discriminant Function Analysis (Collins et al., 1997; Collins and Walling 2002, Wilkinson et al., 2013). Distribution models are used to identify sediment sources for both fingerprinting approaches (Lacey and Olley, 2015).

For most of the Fukushima-impacted catchments, the downstream, more densely populated coastal plains were less-affected by the initial fallout. Therefore, it is important to understand the sources of contaminated sediment transiting these coastal plains. This application of sediment fingerprinting techniques improves our knowledge of the sources of  $^{137}\text{Cs}$ -contaminated sediment transiting these coastal plains. This improved understanding will assist the long-term management of radioactive contamination in the Fukushima Prefecture.

## 2. Materials and methods

### a. Study site

This research was conducted in the Mano (175 km<sup>2</sup>) and Niida (275 km<sup>2</sup>) catchments (Fig. 1). The main features of these catchments include an upstream coastal mountain range (<900 m) and a broad, more densely inhabited, coastal plain (Geospatial Information Authority of Japan, 2015). Soils in the upstream areas of these catchments were heavily contaminated, with soil radiocesium ( $^{134}\text{Cs} + ^{137}\text{Cs}$ ) inventories ranging from 20 kBq kg<sup>-1</sup> to 150 kBq kg<sup>-1</sup> (Fig. 1) (Chartin et al., 2013). In contrast, soil radiocesium inventories in the lowland coastal plains were less than 20 kBq kg<sup>-1</sup>.

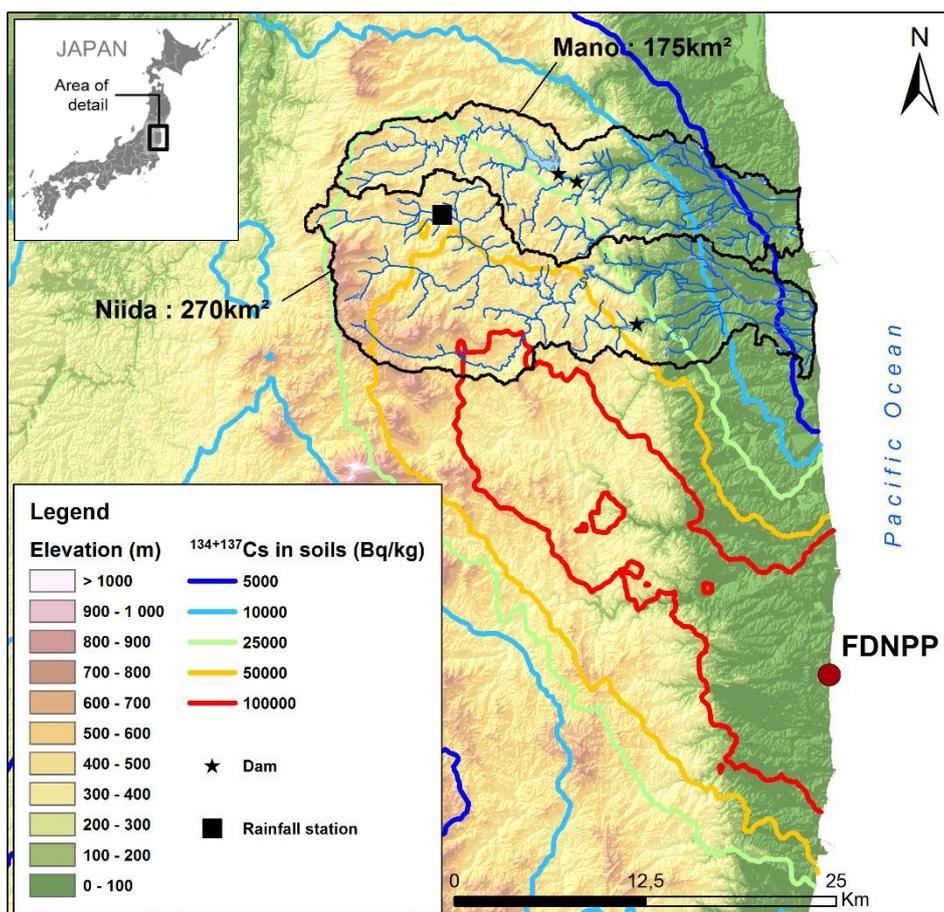


Figure 1 – Elevation map of the investigated catchments within Fukushima Prefecture in Northern Japan (Geospatial Information Authority of Japan, 2015). Location of the main dams and the continuous rainfall monitoring station (Japanese Meteorological Agency, 2014). Initial radiocesium contamination contour lines were derived from Chartin et al. (2013).

An important hydrological distinction between these catchments is the presence of a major dam on the main stem of the Mano River. The only major dam in the Niida River catchment is situated on a tributary (Fig. 1). Catchment land use mainly consists of forest (72%) and cropland (12%) (Land Conservation Research, 2005). Paddy fields constitute the majority of the cropland agriculture, typically cultivated on alluvial soils. Cambisols comprise 59% of the soil types for these two catchments, followed by Andosols (22%) and Fluvisols (7%) (Economic Planning Agency 1972). Cambisols and Andosols are predominantly located in the upper catchment, whereas the Fluvisols are mainly located near the river channel in upstream reaches and are ubiquitous throughout the coastal plain (Fig. 4).

b. Soil and sediment sampling

Six sampling campaigns were conducted between November 2011 and May 2014. Sediment sampling occurred bi-annually: in November after the typhoon season, and in spring, after the snowmelt runoff (Fig. 2). The goal was to sample deposited sediment that was transferred during these main erosive periods. Cumulative rainfall reached 3300 mm at a gauging station in the Niida catchment monitored between March 2011 and May 2014. This monitoring period included three typhoons and one tropical storm. Mean annual rainfall in the Fukushima region is 1387 mm (Lacey et al., in review).

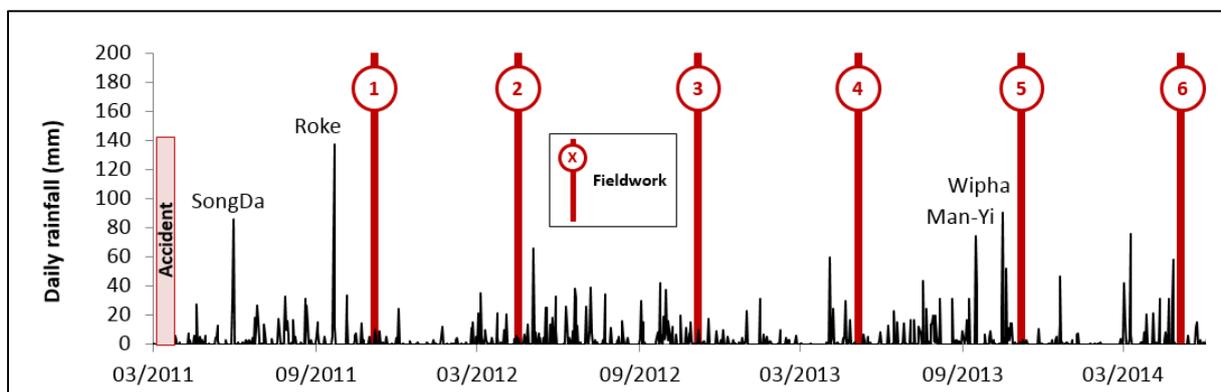


Figure 2 – Rainfall depths (monitored in the Niida catchment) (Japan Meteorological Agency, 2014) with occurrence of major typhoons during the study period and timing of the six sampling campaigns.

To Fine sediment samples (n=211) were taken from material deposited after the last major event at the same sites, during each of the six campaigns (Fig. 3 and Fig. 4). These lag deposit samples are comprised of fine particulate material that settled during the falling limb of the last significant hydro-sedimentary event. In sediment fingerprinting research, lag deposit samples have proven to be comparable to *in-situ* suspended sediment samples (Olley et al., 2013a, Lacey et al., 2015b). Ten subsamples (~5 g per subsample) of lag deposit material was taken with a plastic spatula over a 5 m reach and composited into one sample. Lag deposit samples are referred to as sediment for the remainder of the text.

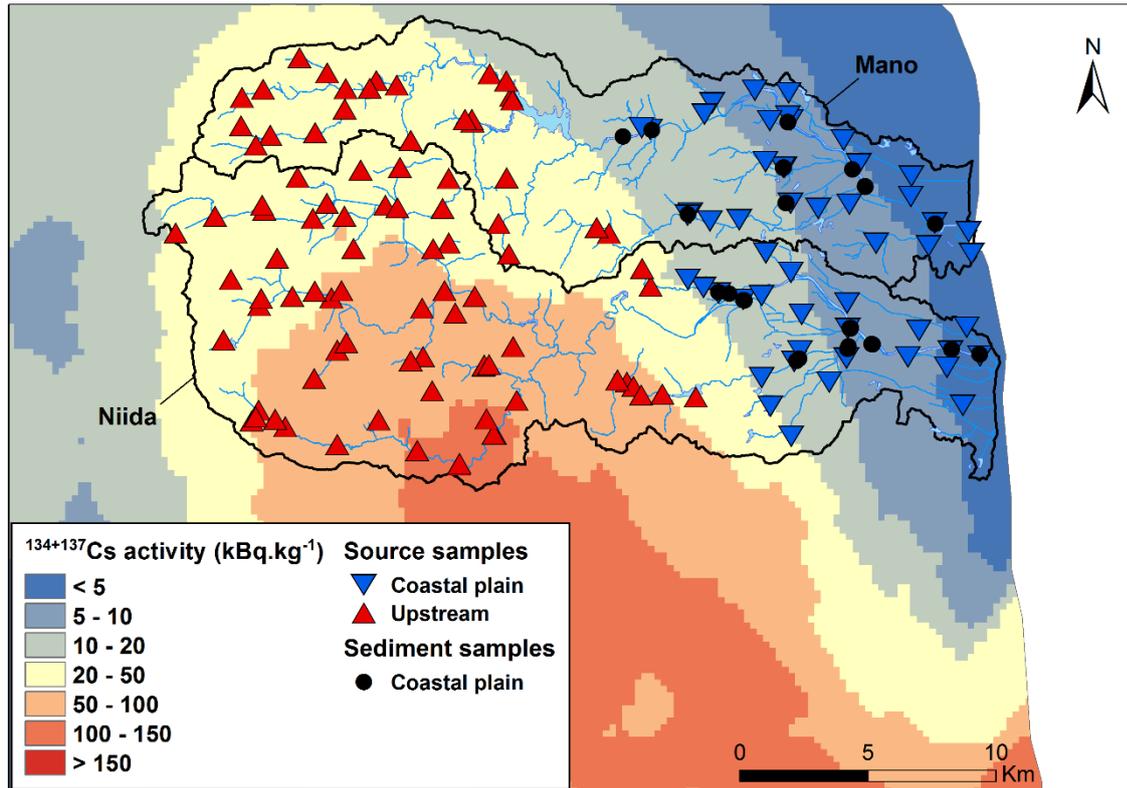


Figure 3 – Source and sediment samples (including MEXT samples - MEXT, 2011) collected and used in the  $^{137}\text{Cs}$  distribution modelling, and initial radiocesium contamination of the investigated catchments (Chartin et al., 2013).

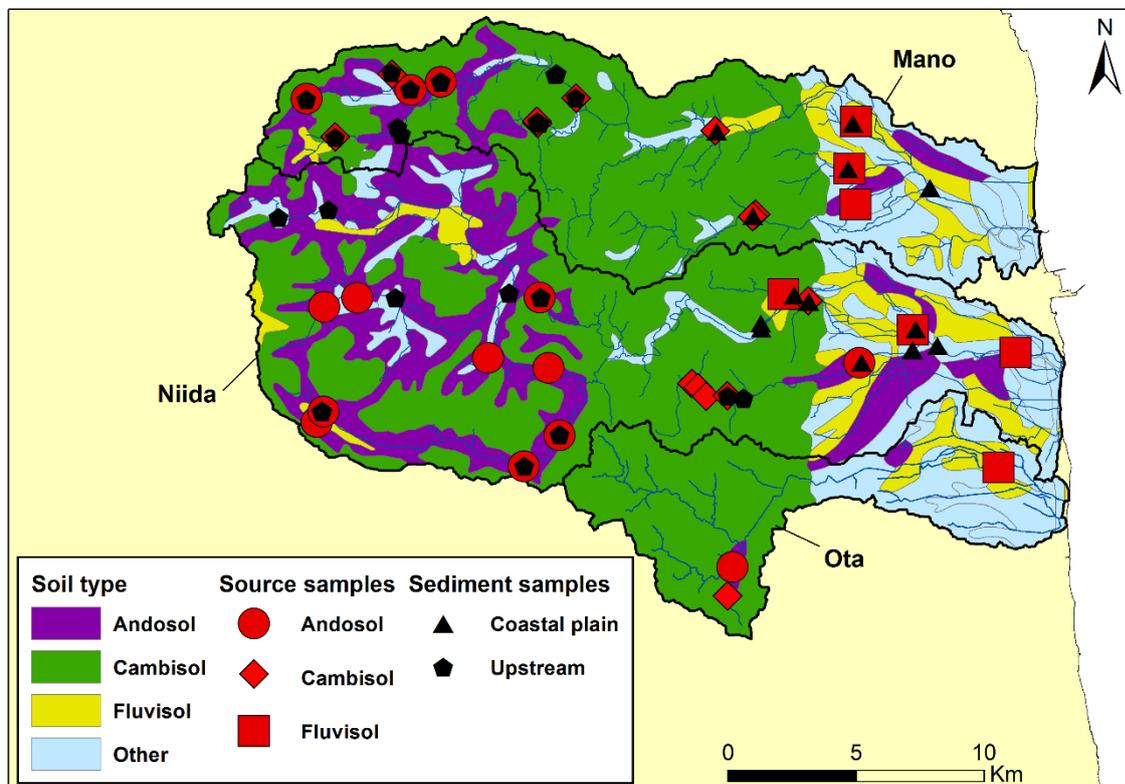


Figure 4 – Soil map (Economic Planning Agency 1972) and location of the source and sediment samples collected in the investigated catchments and used in the distribution modelling based on the soil type.

To investigate the source of  $^{137}\text{Cs}$ -contaminated sediment transiting the coastal plain, the catchments were subdivided into their two inherent, dominant features (the upstream mountainous area and the coastal plain). The fallout from the contamination plume exhibits a somewhat similar upland/lowland pattern, with a radiocesium threshold inventory of  $20 \text{ kBq kg}^{-1}$  delineating these two distinct catchment features (Fig. 3). An elevation threshold of  $\sim 100 \text{ m}$  provides a similar spatial delineation between these upland/lowland features (Fig. 1). As the goal is to trace the movement of  $^{137}\text{Cs}$ -contaminated sediment, the threshold of  $20 \text{ kBq kg}^{-1}$  of radiocesium is used to delineate these two sources.

Two approaches were used to develop a  $^{137}\text{Cs}$  source dataset for modelling. First, soil samples ( $n=37$ ) were collected in locations reported by Chartin et al., (2013) to be highly connected to the stream network. At each of these locations, ten subsamples ( $\sim 5 \text{ g}$  per subsample) were scraped from the soil surface randomly in a  $10 \text{ m}^2$  quadrant using a non-metallic trowel and composited into one sample. Second,  $^{137}\text{Cs}$  activities were included for 99 soil samples collected in these two catchments by the Japanese Ministry of Education, Culture, Sports, Science and Technology (MEXT, 2011)(Fig. 3).

To determine the relative contribution of the different soil types to  $^{137}\text{Cs}$ -contaminated sediment, the highly connected soil samples from soil types that covered  $>5\%$  of the catchment area were selected for elemental analyses. This 5% threshold excludes areas downstream from the lowest sediment sampling point as these soils do not contribute to sediment sampled. In addition, three soil samples were collected in the Ota catchment, south of the Niida catchment (Fig. 4). In total, 15 soil samples were analysed from Andosols, 12 from Cambisols and 7 from Gleyic Fluvisols (Fig. 4). Gleyic Fluvisol are here after referred to as Fluvisols.

c. Laboratory analyses

i. Gamma spectrometry measurements

All samples were dried at  $40^\circ\text{C}$  for  $\sim 48 \text{ h}$ , sieved to  $2 \text{ mm}$ , ground to a fine powder in an agate mortar, and pressed into  $15 \text{ mL}$  polyethylene containers for measurement.  $^{137}\text{Cs}$  activities were determined with gamma spectrometry using coaxial N- and P-type HPGe detectors (Canberra/Ortec).  $^{137}\text{Cs}$  activities were measured at the  $661 \text{ keV}$  emission peak. Counting times for samples varied between  $80,000 \text{ s}$  and  $150,000 \text{ s}$ .

Counting efficiencies and energy calibration were monitored using internal, national and certified International Atomic Energy Agency (IAEA) reference materials prepared in the same containers as the samples. Uncertainties were calculated by combining counting statistics and calibration uncertainties. Summing and self-absorption effects were taken into account by analysing standards with similar densities and characteristics as the collected samples. All activities were decay-corrected to March 14, 2011, the date of the main radionuclide fallout deposition (Kinoshita et al., 2011; Shozugawa et al., 2012).

ii. Neutron activation analysis

Elemental concentrations were measured with instrumental neutron activation analysis (INAA) (Joron et al., 1997). Approximately  $50 \text{ mg}$  of dried soil and sediment was sealed in individual

polyethylene bags and packed in aluminium containers. Due to schedule constraints, irradiation was performed in two different reactors.

First, 8 aluminium containers, each containing approximately 18 samples, with two certified reference materials (CRM) were irradiated for 30 min with a thermal neutron flux of  $2.3 \cdot 10^{13} \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ . These irradiations were performed in the experimental reactor Orphée at the French Alternative Energies and Atomic Energy Commission (CEA, Saclay, France). After a 4 day decay period, the individual polyethylene sample bags were measured 4 times with gamma spectrometry (counting time: 600 – 36,000 s) (Tessier & Bonté, 2002).

Second, in the experimental reactor Osiris at the CEA (Saclay, France), 8 cadmium containers were irradiated for 8 h with a neutron flux of  $2 \cdot 10^{14} \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ . Seven CRM were placed in these containers. Samples were first measured by gamma spectrometry 7 days after the irradiation (counting time: ~3000 s) and again, one month after the irradiation (counting time: 20,000-40,000 s). Additional information on this method can be found in Joron et al. (1997).

To incorporate samples from both irradiation methods, the results obtained for soil and sediment samples ( $n=66$ ) that were irradiated with both methods, were compared. Elemental concentrations that differed in this comparison by an average greater than 15% were removed from further analyses. In total, twelve elements were retained for analysis and modelling (Ce, Co, Cs, Fe, Hf, La, Na, Sc, Sm, Th, Yb, Zn).

#### d. Distribution modelling

Two distinct modelling approaches were employed. The first approach modelled  $^{137}\text{Cs}$  activities to quantify sediment contributions from two sources: the upstream area and the coastal plain. The second approach modelled three sources: Andosols, Cambisols and Fluvisols. Both approaches incorporated a distribution modelling framework (Lacey and Olley, 2015). Modelling distributions throughout the entire modelling framework, including sediment, source, and proportional contribution distributions, reduces model uncertainty (Olley et al., 2013b).

##### The two-source model:

To model distributions for in-stream sediment samples, the lag-deposit samples were first grouped by catchment and then by sampling campaign. As the radiocesium inventories differed in the two catchments, source sample distributions were derived for the upstream and coastal plain areas for each respective catchment. To address the high range of standard deviation in upstream areas ( $^{137}\text{Cs}$  activity ranging from 2 to 78 kBq kg<sup>-1</sup> in soil samples), the median and the median absolute deviation (MAD) were used to model source distributions. These median-based source distributions were modelled to quantify the contribution of upstream sediment to sediment transiting the coastal plain, with:

$$Ax + B(1 - x) = C \quad \text{Eq. 1}$$

where  $A$  and  $B$  are the median-based source distributions (i.e. the upstream and coastal plain areas),  $x$  is the contribution of the source  $A$ , and  $C$  is the median-based distribution of the

sediment group modelled. In this modelling framework,  $x$  is modelled as a truncated normal distribution ( $0 \leq x \leq 1$ ) with a mixture mean ( $\mu_m$ ) and standard deviation ( $\sigma_m$ ) following Caitcheon et al. (2012) and Olley et al. (2013). The model was optimized with the Optquest algorithm in Oracle's Crystal Ball software (2013) as described after the three-source model.

The three-source model:

The optimal elemental suite to discriminate between the soil sources was selected with a three step process. First, conservative behaviour of the elements was examined with a distribution based-approach. Elements were considered to be conservative when the mean of every individual sediment grouping plotted within the distribution source range. The distribution source range boundary was determined as the range between the maximum source mean plus one standard deviation and the minimum source mean minus one standard deviation. This conservativeness test ensures that all sediment grouping means plot within one standard deviation of the source means.

Second, the Kruskal Wallis rank sum test removed elements that did not provide significant source discrimination (i.e.  $p > 0.05$ ) (Collins et al., 1997). Third, a discriminant function analysis (DFA) selected the elements that provide an optimal source discrimination (Collins and Walling, 2002). These statistical tests were performed using R software (version 3.0.0) and the library Rcmdr (version 2.0-3).

A distribution mixing model then quantified the contribution of each source to the sediment sample groupings through minimizing the mixing model difference (MMD) (Lacey and Olley, 2015):

$$MMD = \sum_{i=1}^n \left| \left( C_i - \left( \sum_{s=1}^m P_s S_{Si} \right) \right) / C_i \right| \quad \text{Eq. 2}$$

where  $n$  is the number of elements in the model;  $C_i$  is the sediment group normal distribution of element property ( $i$ );  $m$  is the number of sources in the catchment;  $P_s$  is the source ( $s$ ) contribution mixture distribution;  $S_{Si}$  is the normal distribution of element ( $i$ ) in source ( $s$ ). Similarly to Eq. 1,  $P_s$  is modelled as a truncated normal distribution ( $0 \leq x \leq 1$ ) with a mixture mean ( $\mu_m$ ) and standard deviation ( $\sigma_m$ ). Correlations between elemental concentrations in each source were incorporated into the mixing model to maintain elemental relationships existing within each source (Lacey & Olley, 2015; Cooper et al., 2015).

Modelling parameters:

The Optquest algorithm in Oracle's Crystal Ball software (2013) solved Eq. 1 and 2 within a Monte Carlo style framework. Eq. 1 was solved by minimizing the median difference when subtracting the distributions of both sides of this equation. Eq. 2 was solved by minimizing the median of  $MMD$ . Non-negative constraints were modelled for all source and sediment distributions, and correlations are incorporated directly into the Optquest algorithm. The Optquest algorithm functions similarly to the solver function in Microsoft Excel, with the expanded capability of incorporating Latin Hypercube sampling, correlations, and distributions

throughout the entire modelling framework into a Microsoft Excel based modelling environment. For more details, see Laceby and Olley (2015), Laceby et al., (2015a), or Foucher et al., (2015).

The optimal source contribution ( $x$  or  $P_s$ ) was determined by the solving of these equations with the Optquest algorithm. For an individual simulation, 2500 Latin Hypercube (500 bins) samples were drawn from the source and sediment distributions while solving the equations by varying the mixture mean ( $\mu_m$ ) and standard deviation ( $\sigma_m$ ). This model simulation and solving process was then repeated 2500 times with the median proportional source contribution from these 2500 additional simulations, reported as the contribution of each source.

For each source, model uncertainty (MU) was determined by summing (1) the MAD of the individual source median contribution for the additional 2500 simulations, (2) the modelled standard deviation, and (3) the MAD of this modelled standard deviation for the 2500 model simulations (Laceby et al., 2015a).

### 3. Results

#### a. Downstream migration of radiocesium contaminated soil

Soils in the upstream areas of these catchments were highly contaminated and characterized with a wide range of  $^{137}\text{Cs}$  activities (Niida:  $\mu$  28,  $\sigma$  16 kBq kg<sup>-1</sup>, Mano:  $\mu$  18,  $\sigma$  13 kBq kg<sup>-1</sup>) (Table 1). In both catchments, the coefficients of variation for source  $^{137}\text{Cs}$  activities were greater than 50%. This resulted in poor preliminary model performance with normal distributions. In the Mano River, median  $^{137}\text{Cs}$  activities were 2.7 kBq kg<sup>-1</sup> (MAD 1.2) in the coastal plain and 15.9 kBq kg<sup>-1</sup> (MAD 4.9) in the upstream area (Table 1). In the Niida catchment, median  $^{137}\text{Cs}$  activities were 3.7 kBq kg<sup>-1</sup> (MAD 2.2) in the coastal plain, compared to 27.3 kBq kg<sup>-1</sup> (MAD 9.7) in the upstream area.

**Table 1 – Mean and median of  $^{137}\text{Cs}$  activities (Bq.kg<sup>-1</sup>) in the catchments.**

Catchment	Catchment area	Mean of $^{137}\text{Cs}$ activities	Standard deviation	Coefficient of variation (%)	Median of $^{137}\text{Cs}$ activities	Median absolute deviation	Relative median absolute deviation (%)
Niida	Coastal plain	4560	3738	82	3730	2231	60
	Upstream	28444	15886	56	27347	9719	36
Mano	Coastal plain	3056	2277	74	2721	1187	44
	Upstream	18390	12966	71	15915	4886	31

The relative MAD was lower than the coefficient of variation for each source, with this difference being most pronounced for the upstream source areas (Table 1). Narrowing the distribution widths by modelling median-MAD derived distributions (Fig. 5) is hypothesized to have improved model performance, evident through visibly and statistically improved fit between mixture and in-stream sediment distributions.

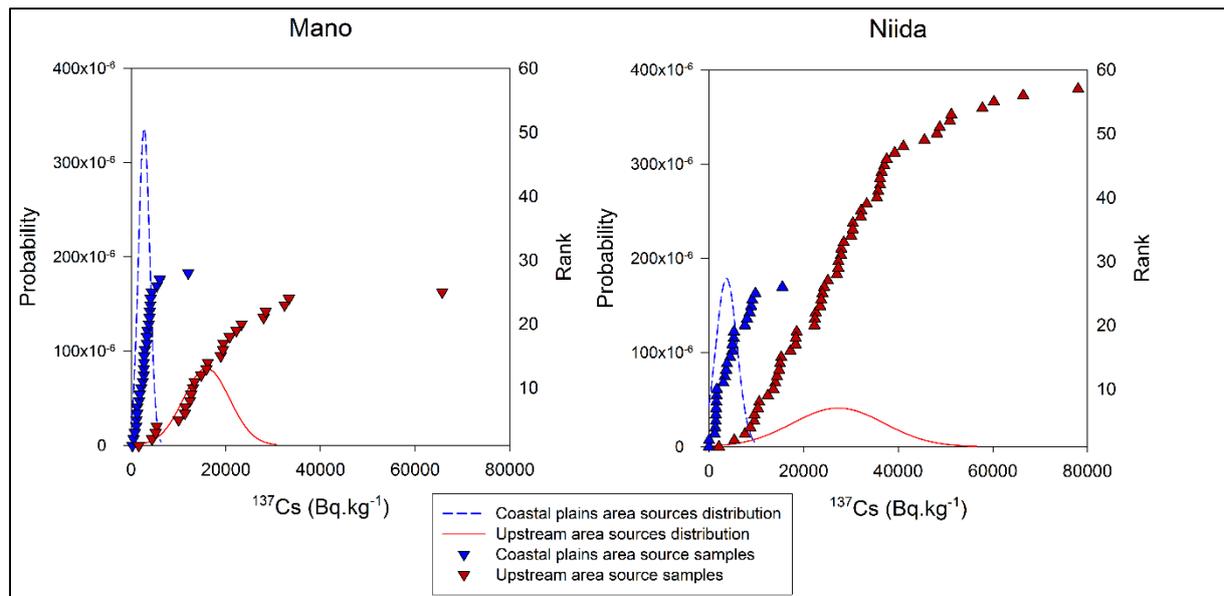


Figure 5 –  $^{137}\text{Cs}$  distribution of the median and the MAD for the sources (coastal plains and upstream) in the two catchments studied and rank plots.

The mean contribution of upstream soils to sediment transiting the coastal plain was 34% ( $\sigma$  24%) for both catchments. The mean upstream contribution for the Niida catchment was more than double ( $\mu$  47,  $\sigma$  19%) the contribution in the Mano catchment ( $\mu$  19,  $\sigma$  19%) (Fig. 6). For the Niida catchment, the highest upstream contribution was  $71 \pm 11\%$  in April 2012 (Table 2). This contribution decreased to  $22 \pm 13\%$  in May 2013, before increasing again in November 2013 ( $66 \pm 10\%$ ). During the last campaign (May 2014), the contribution of the upstream area decreased to  $32 \pm 15\%$ .

**Table 2 – Contribution of upstream and coastal plain areas to sediments transiting the coastal plains of the catchments.**

Catchment	Campaign	Contribution of the upstream area	SD
Mano	April 2012	50%	11%
	November 2012	9%	12%
	May 2013	13%	12%
	November 2013	24%	12%
	May 2014	0%	15%
Niida	November 2011	41%	12%
	April 2012	71%	11%
	November 2012	46%	13%
	May 2013	22%	13%
	November 2013	66%	10%
	May 2014	32%	15%

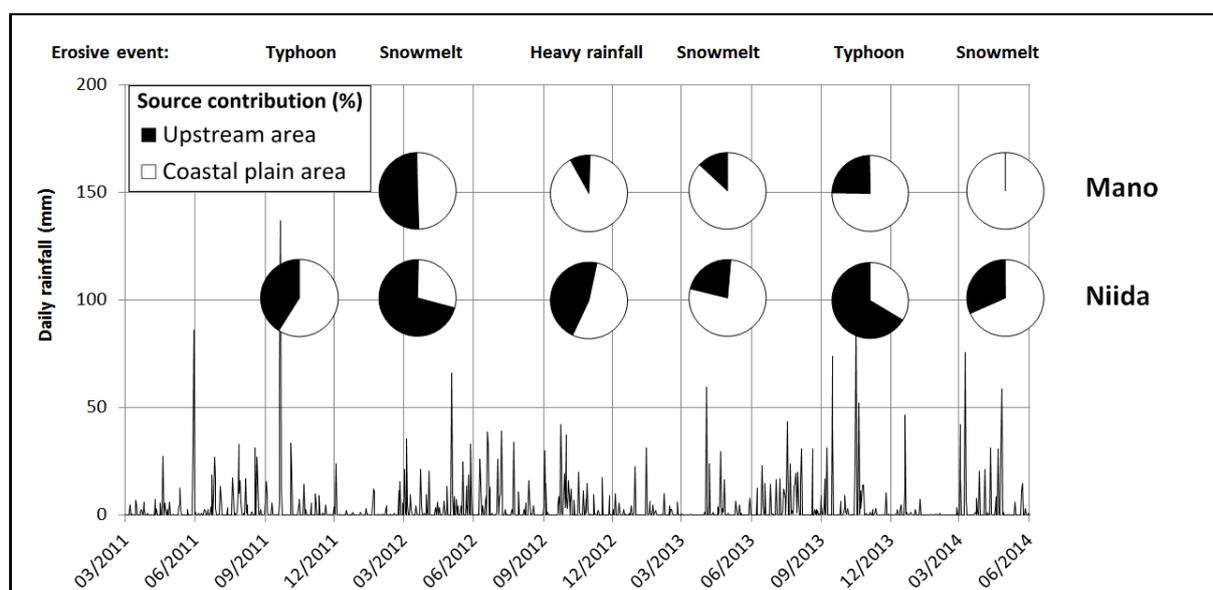


Figure 6 – Contribution of each source (upstream and coastal plain area) to coastal plain sediments collected in both catchments.

The temporal results in the Mano catchment varied similarly. The highest contribution was again modelled in April 2012 ( $50 \pm 11\%$ ), with an increase between May 2013 ( $13 \pm 12\%$ ) and November 2013 ( $24 \pm 12\%$ ). In May 2014, sediment in the Mano catchment coastal plain was modelled to be derived exclusively from coastal plain soils, with negligible upstream contributions ( $0 \pm 15\%$ ).

#### b. Source of radiocesium-contaminated soils

Two elements (Na and Zn) were not conservative and were accordingly removed from further analysis. Three elements were selected with the Kruskal Wallis H-test that provided significant discrimination between the soil sources (Table 3). From these elements, the DFA selected scandium (Sc) and ytterbium (Yb) as the optimal elemental suite for modelling source contributions from Andosols, Cambisols and Fluvisols (Table 3). The source discrimination provided by Sc and Yb is plotted in Fig. 7. Sc and Yb had a strong positive correlation in Cambisols (0.510), a negative correlation in Fluvisols (-0.348), and minimal correlation in Andosols (0.121).

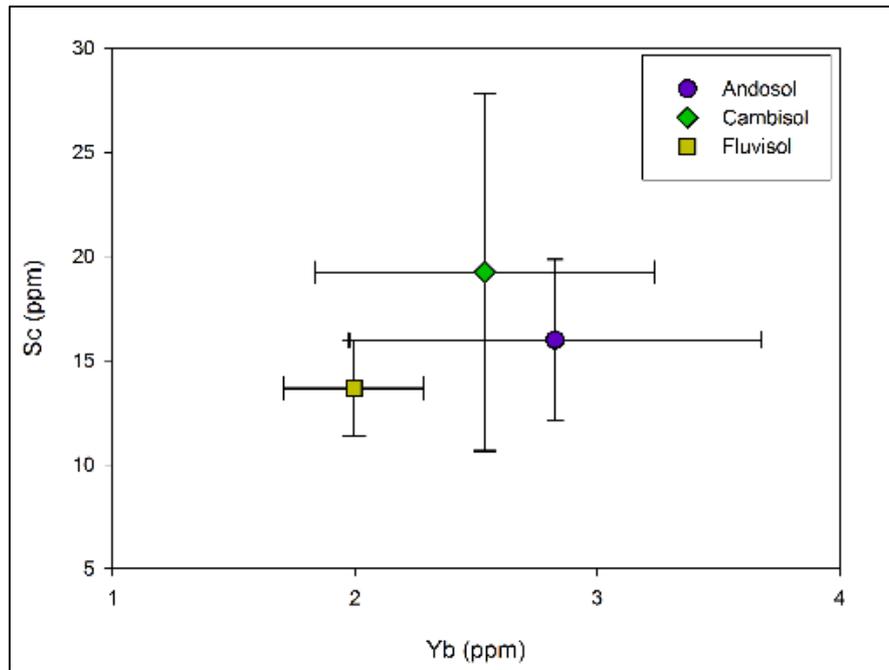


Figure 7– Scatter plot of the mean and standard deviation of Sc and Yb concentrations in each source (Andosol, Cambisol and Fluvisol).

**Table 3 – Results of the Kruskal-Wallis test to determine the discriminant elements when using the mean and the standard deviation of each element for each source.**

Element	Kruskal-Wallis p-value
Ce	0.10
Co	0.92
Cs	0.31
Fe	0.07
Hf	0.01
La	0.24
Na	Not conservative
Sc	0.01
Sm	0.06
Th	0.97
Yb	0.03
Zn	Not conservative

Modelling results (Table 4, Fig. 8) indicate that Fluvisols are the dominant source supplying sediment in both catchments with a mean contribution of 76% ( $\sigma$  14%). Andosols were the second largest sediment source ( $\mu$  21,  $\sigma$  16%), followed by Cambisols ( $\mu$  3,  $\sigma$  4%). In the Niida catchment, the mean Fluvisol contribution was 70% ( $\sigma$  10%), followed again by Andosols 28% ( $\sigma$  11%) and Cambisols 2% ( $\sigma$  3%). Fluvisol sediment contributions were higher in the Niida catchment coastal plain ( $\mu$  75,  $\sigma$  7%) compared to the upstream area ( $\mu$  66,  $\sigma$  11%). Contrarily, Andosol contributions increased from a mean 21% ( $\sigma$  6%) in the coastal plain to 33% ( $\sigma$  13%) in the upstream areas. Overall, Cambisol contributions were negligible ( $\mu$  <5%).

**Table 4 – Distribution modelling results for the three-source model for the grouped sediments.**

Catchment	Campaign	Area	Andosol contribution (%)	MU*(%)	Cambisol contribution (%)	MU* (%)	Fluvisol contribution (%)	MU* (%)
Mano	November 2012	Coastal plain	1	5	9	6	90	8
Mano	November 2013	Coastal plain	1	7	11	9	88	11
Mano	April 2012	Upstream	0	13	2	20	98	13
Mano	November 2012	Upstream	30	12	0	12	70	13
Mano	May 2013	Upstream	27	11	0	11	73	15
Mano	November 2013	Upstream	0	6	0	5	100	17
Niida	November 2012	Coastal plain	22	13	7	7	71	13
Niida	May 2013	Coastal plain	27	14	3	8	71	15
Niida	November 2013	Coastal plain	15	8	1	7	83	10
Niida	November 2011	Upstream	40	10	0	6	60	10
Niida	April 2012	Upstream	14	8	4	7	82	10
Niida	November 2012	Upstream	40	14	0	20	60	14
Niida	May 2013	Upstream	37	18	0	9	63	16
Niida	November 2013	Upstream	41	17	0	15	59	16

\*MU = Modelled Uncertainty

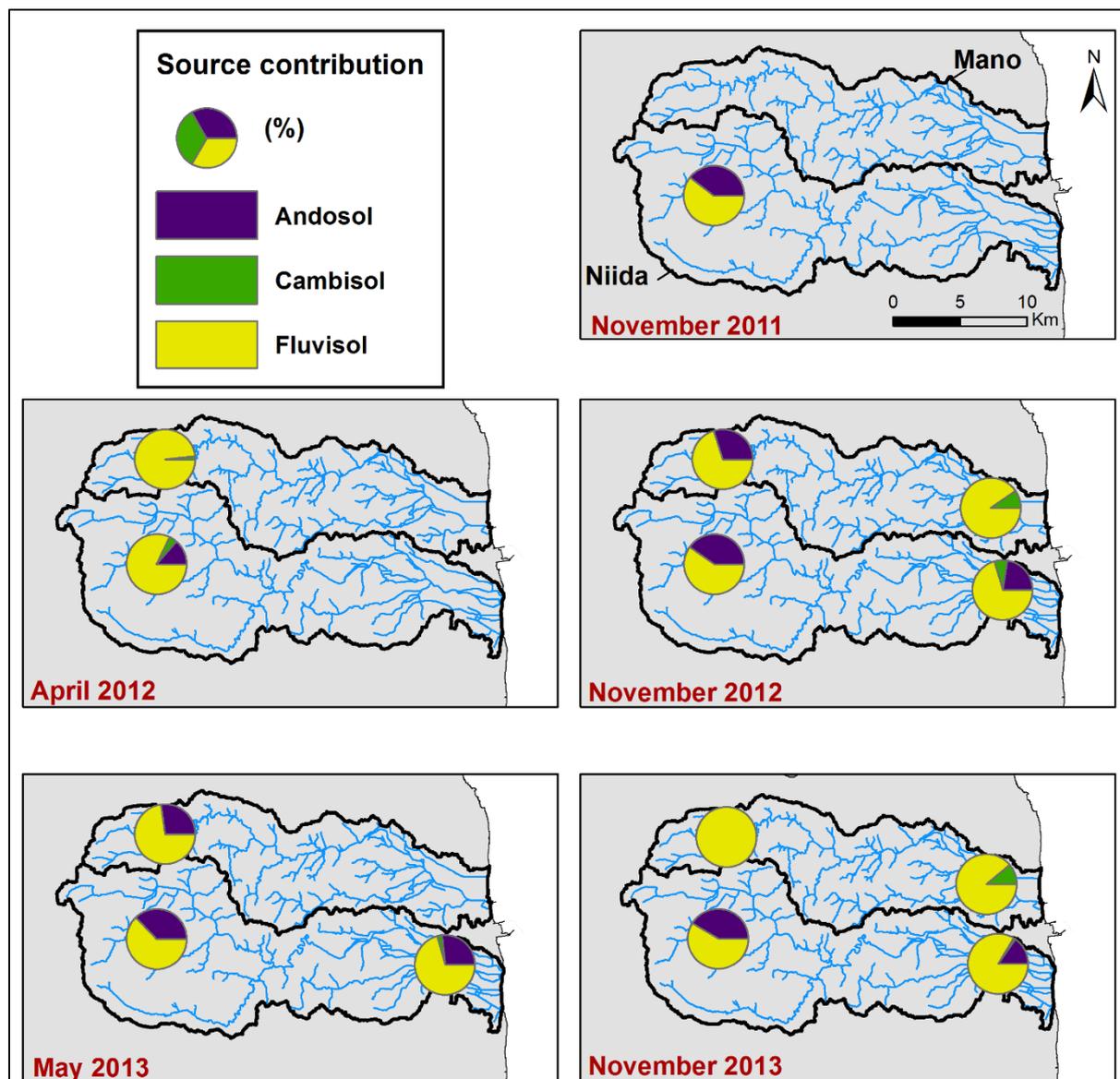


Figure 8 – Contribution of each source to the groupings of sediments transiting the rivers in the upstream and coastal plain areas of both catchments.

There were no seasonal trends for soil sources in the Niida catchment with the largest differences between snowmelt and post typhoon soil contributions differing by a maximum of only 3.5%. The highest Fluvisol contribution was  $83 \pm 10\%$  in November 2013 for the coastal plain, compared to the lowest contribution of  $60 \pm 10\%$  in the upstream area in November 2011. Although there were differences in soil source contributions over time, in general, the main result is the dominance of Fluvisols as the main sediment source in the Niida catchment.

In the Mano Catchment, modelling results again indicate that Fluvisols are the dominant source of sediment ( $87\% \sigma 13\%$ ). Andosols only contributed a mean of  $10\% (\sigma 14\%)$  compared to  $4\% (\sigma 5\%)$  from Cambisols. There was a difference of  $<5\%$  between Fluvisol sediment contributions from the Mano catchment coastal plain ( $\mu 89\% \sigma 1\%$ ) and the upstream area ( $\mu 85\% \sigma 16\%$ ). There was a switch between secondary contributions with Cambisols contributing a mean of  $10\% (\sigma 1\%)$  for the coastal plains compared to  $1\% (\sigma 1\%)$  in the upstream areas.

Andosols conversely contributed a mean of 1% ( $\sigma$  1%) in the coastal plain and 14% in the upstream area ( $\sigma$  1%).

In the Mano catchment, Fluvisols contributed more than 88% of sediment for six of the sediment groupings modelled. The only two Fluvisol contributions below 88% were the November 2012 and May 2013 sampling campaigns where the contributions dropped to ~70%. For these sampling campaigns periods, Andosols had their highest source contributions (~30%). The remainder of sediment sampled in the Mano catchment was almost entirely derived from Fluvisols (>87%).

#### 4. Discussion

##### a. Radiocesium-contaminated sediment transfers

One common approach to trace sediment sources with  $^{137}\text{Cs}$  is to investigate whether sediment are derived from surface or subsoil sources (Olley & Murray., 1993; Ben Slimane et al., 2013; Gourdin et al., 2014). In the Fukushima region, this approach is inapplicable owing to the heterogeneous deposition of  $^{137}\text{Cs}$ . Although heterogeneous, the  $^{137}\text{Cs}$  deposition effectively established two distinct spatial units in the Mano and Niida catchments: the coastal plain and upstream areas. These spatial units have conceptually similar  $^{137}\text{Cs}$  distributions as surface soils (elevated  $^{137}\text{Cs}$  activities-upstream) and subsoils (low  $^{137}\text{Cs}$  activities-coastal)(Fig. 5). Although modelling source and sediment  $^{137}\text{Cs}$  activities in the Fukushima Prefecture does not allow for an examination of erosion processes, it allows for an insightful investigation into the downstream dispersion of radiocesium-contaminated soils in these particular catchments.

Approximately 34% ( $\sigma$  24%) of sampled sediment transiting the coastal plains for both catchments was modelled to be derived from the upper catchment areas. In the Niida catchment, almost half of the sediment ( $\mu$  47,  $\sigma$  19%) was modelled to be derived from the upstream areas compared to approximately one fifth in the Mano catchment ( $\mu$  19,  $\sigma$  19%) (Fig. 6). These results support the research of Chartin et al. (2013) who traced a downstream migration of radiocesium-contaminated sediment through the coastal plains in the Niida catchment.

Although there was a substantial dispersion of radiocesium contaminated sediment downstream, these transfers differed in both catchments. The presence of a major dam on the main tributary of the Mano River likely resulted in the 28% lower downstream dispersion of radiocesium contaminated sediment from the upstream area. This confirms the influence of major dams on radiocesium migration and dispersion in the Fukushima region (Kitamura et al., 2014, Kurikami et al., 2014).

There were seasonal patterns of downstream radiocesium dispersion confirming a direct linkage between radiocesium contaminated sediment transfers and the region's climate (Evrard et al., 2014a). The increase of upstream contributions in both catchments in November 2013 is attributed to typhoons that occurred in September and October 2013. During this period, there was a modelled increase in the upstream contribution in the Niida catchment of 44% compared

to the previous sampling campaign (May 2013). In the Mano catchment, the increase was only 11%, again indicative of the influence of the Mano Dam on downstream radiocesium-contaminated sediment transfers. These observed temporal variations may be attributed to the intensity of the erosive events. Several studies conducted in the Fukushima Prefecture demonstrated that most of the contamination was transported by the rivers during typhoons (Nagao et al., 2013; Yamaguchi et al., 2014; Yamashiki et al., 2014).

Decreases in the sediment contributions modelled from the upstream area in the Niida catchment from April 2012 to May 2013 may be indicative of ongoing decontamination works that commenced in 2012. To reduce contamination, there has been a massive remediation effort in the Niida catchment since the 2012 summer with vegetation and the uppermost soil layer (~5cm) removed from cultivated soils (Nakano & Yong, 2013; Yasutaka & Naito, 2015). It has been demonstrated that decontamination may potentially increase the dose rates measured in river sediment (Evrard et al., 2014b; Lepage et al., 2014a). Therefore, the increased contribution of the upstream soils to the coastal plain sediments could be related to the occurrence of these decontamination works. Indeed, the application of this modified  $^{137}\text{Cs}$ -tracing technique could monitor the impact of decontamination works in the Fukushima region.

#### b. Radiocesium-contaminated sediment sources

Fluvisols were found to be the main soil type supplying sediment in both catchments ( $\mu$  73,  $\sigma$  30%). This soil type is mainly found in paddy fields (National Institute for Agro-Environmental Sciences (NIAES), 1996; Hirai and Hamazaki, 2004; Food and Agriculture Organization, 2014). In the literature, sediment tracing and fingerprinting research also indicates that channel banks, potentially located on Fluvisols or other alluvial material may also be a dominant sediment source (Olley et al., 2013a; Laceby et al., 2015b). A significant proportion of channel banks in the Mano and Niida catchments are channelized and effectively demobilized with cement. Although there may be remobilization of materials temporarily stored within these extensive, anthropogenically modified channel networks, it is unlikely that channel bank subsoil material was a measurable sediment source during this sampling period.

Accordingly, Fluvisols, and indirectly rice paddy fields cultivated on Fluvisols, are the main source of sediment in the Mano and Niida catchments. Chartin et al. (2013) also indicated that rice paddy fields are likely to be a major sediment source owing to their high connectivity to the river channel. Managing radiocesium contamination of rice paddy fields cultivated on Fluvisols is incredibly important as approximately 70% of the agriculture in the Fukushima Prefecture is rice-oriented (Wakahara et al., 2014). Therefore, effective management of paddy field contamination and also potential future downstream sediment-bound radiocesium transfers, both to and from paddy fields, will be fundamental for the economy and the general health of the local population.

Andosols, which contribute approximately a fifth of the sediment ( $\mu$  21%,  $\sigma$  26%) to rivers in both catchments, may also occur in some paddy fields (Matsuzaka, 1977; NIAES, 1996). The 20% higher contribution of Andosols in the Niida compared to the Mano catchment is likely the result of thicker volcanic ash deposits in the Niida catchment (Saigusa et al., 1978; Imaya

et al., 2002; Yamamoto, 2013). In particular, it may be important to investigate any specific Andosol contributions in isolated regions of these catchments with high radiocesium activities.

Cambisols were only modelled to contribute a mean of 6% ( $\sigma$  14%) of sediment for both catchments even though they occupy 59% of the catchment surface area. As Cambisols predominantly underlie forests, this confirms the low erodibility of forest soils in the region (Yoshimura et al., 2015). Approximately 66% of terrestrial fallout was deposited on forests (Hashimoto et al., 2012). As forest erosion rates are low (Yoshimura et al., 2015), the odds of this radiocesium contaminated sediment being mobilized from forests are likely similarly low. Conversely, there may be massive episodic typhoons in this region that could result in erosion and export of radiocesium-contaminated material from Cambisols.

### c. Management and research implications

The customization of  $^{137}\text{Cs}$  tracing-techniques to examine the downstream dispersion of radiocesium-contaminated sediment could be an effective approach for the long-term monitoring of radiocesium migration. Moreover, this approach could be an important method for investigating the impacts of decontamination across the region. In particular, the examination of sediment cores from dams or reservoirs, or even floodplains along with sediment from automated sampling stations or time-integrated samplers may provide a more comprehensive understanding of radiocesium dispersion. The approach could be applied over a range of scales throughout the region. Ultimately, this technique holds promise to provide more insight into radiocesium transfer dynamics and fluxes in the Fukushima region along with other fallout impacted regions in the future.

The application of geochemical fingerprinting techniques in the Fukushima region clearly indicated that Fluvisols are a dominant source of sediment. This application, owing to the recent age of soils and the dominance of volcanic activity, demonstrated a unique approach to geochemical fingerprinting focused on soil types rather than geology. There were two main challenges with the application of this technique. First, there may simply be an influence of geology or varying subtypes of soil classes that may impact the fingerprinting results. Second, it was difficult to find laboratories willing to analyze radiocesium contaminated-sediment with mass-spectrometry. The result of these challenges was a narrow suite of elements provided with INAA, leading to only three elements providing significant discrimination between these soil types.

Ultimately, these geochemical fingerprinting results are preliminary. More research needs to be undertaken in the region to confirm the dominance of Fluvisols with a broader suite of source samples and elements capable of source soil discrimination. Further, other sediment properties should be analyzed to examine whether sediments are derived from rice paddies or other major land uses in the region. These other sediment properties could potentially trace erosion processes similarly to  $^{137}\text{Cs}$  and be analyzed in sediment cores and through other in-stream sampling methods. Such an approach would comprehensively characterize the soils dominating the supply of radiocesium-contaminated sediment in the region.

## 5. Conclusions

After the FDNPP accident, the downstream migration of radiocesium contaminated sediment was investigated for the Mano and Niida catchments. In the Niida catchment, upstream, contaminated sediment contributions were double ( $\mu$  47,  $\sigma$  19%) what was transferred downstream in the Mano catchment ( $\mu$  19,  $\sigma$  19%). The Mano Dam likely results in these catchment differences. Further, erosive typhoons in 2013 led to elevated downstream dispersion of radiocesium-contaminated sediment in both catchments, confirming the strong impact of climate on radiocesium transfers in the Fukushima Prefecture.

Fluvisols were modelled to be the dominant soil source of radiocesium contaminated sediment. As paddy fields often are cultivated in Fluvisols and channel banks are not a major sediment source, it is likely that paddy fields are a major source of sediment in the Fukushima region. Installing long term monitoring networks will be important to investigate the impact of the decontamination works and the related reduction of contamination dispersion from paddy fields. In this post-accident context, where soils in the upstream area of these catchments are heavily contaminated, understanding the sources and downstream dispersion of contaminated particles is paramount to the long-term management of radiocesium contamination.

## V - 2 CAS DE LA CARTE DES SOLS DE 1972

Dans la description des bassins versants (II - 1), nous avons mis en évidence l'existence de plusieurs cartes des sols (Tableau II - 1-2). Nous avons décidé d'utiliser la carte des sols de 1972 ([Economic Planning Agency, 1972](#)), car bien qu'elle soit plus ancienne, elle couvre la totalité de la zone d'étude et présente une meilleure résolution spatiale que la carte de 1990. La carte la plus récente (2002 - [Geographical Survey Institute, 2002](#)) ne couvre qu'une partie des zones agricoles de la Préfecture, ne permettant pas de caractériser l'ensemble des échantillons. Cependant, comme cette carte est la plus récente et donc davantage représentative de la réalité de l'usage des sols sur le terrain au moment de l'accident, elle a été utilisée comme support complémentaire pour analyser les résultats.

Dans ce chapitre, nous avons vu que les Fluvisols constituaient la principale source de sédiments dans les rivières, alors que ce type de sol ne couvre que 7% de la surface des bassins versants, principalement dans les plaines côtières. Pour mieux comprendre l'origine de ces Fluvisols, nous avons comparé la carte de 1972 à celle de 2002. Les observations montrent que les Fluvisols sont plus représentés sur cette carte récente et, notamment, dans la zone amont, à l'emplacement des rizières. En effet, là où l'on observait principalement des Andosols sur la carte de 1972 (Figure V - 2-1a), on retrouve des Fluvisols sur la carte la plus récente (Figure V - 2-1b).

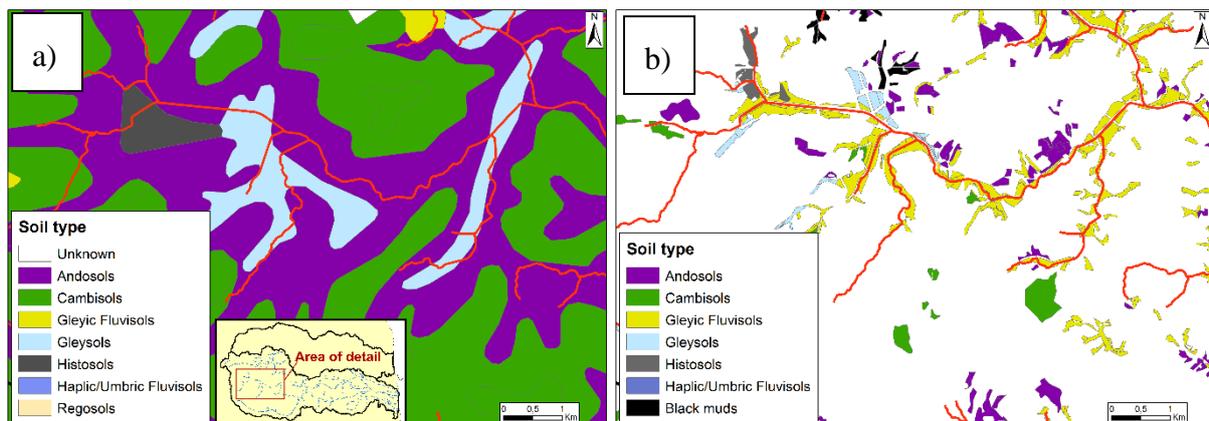


Figure V - 2-1 - Comparaison d'une zone de l'amont de la Niida telle qu'elle est représentée sur a) la carte des sols de 1972 et b) la carte des sols de 2002.

Cette différence est en partie due à la modification des sols lors des activités agricoles et de l'irrigation des rizières (voir conclusion du chapitre 3). Il apparaît donc que certains de nos échantillons de sols ont été mal identifiés. Cet écart est avéré lorsque l'on compare les teneurs en Sc et Yb (les éléments discriminants) des trois sources (Figure V - 2-2). On remarque ainsi que certains Andosols sont caractérisés par des valeurs qui se confondent avec celles des Fluvisols.

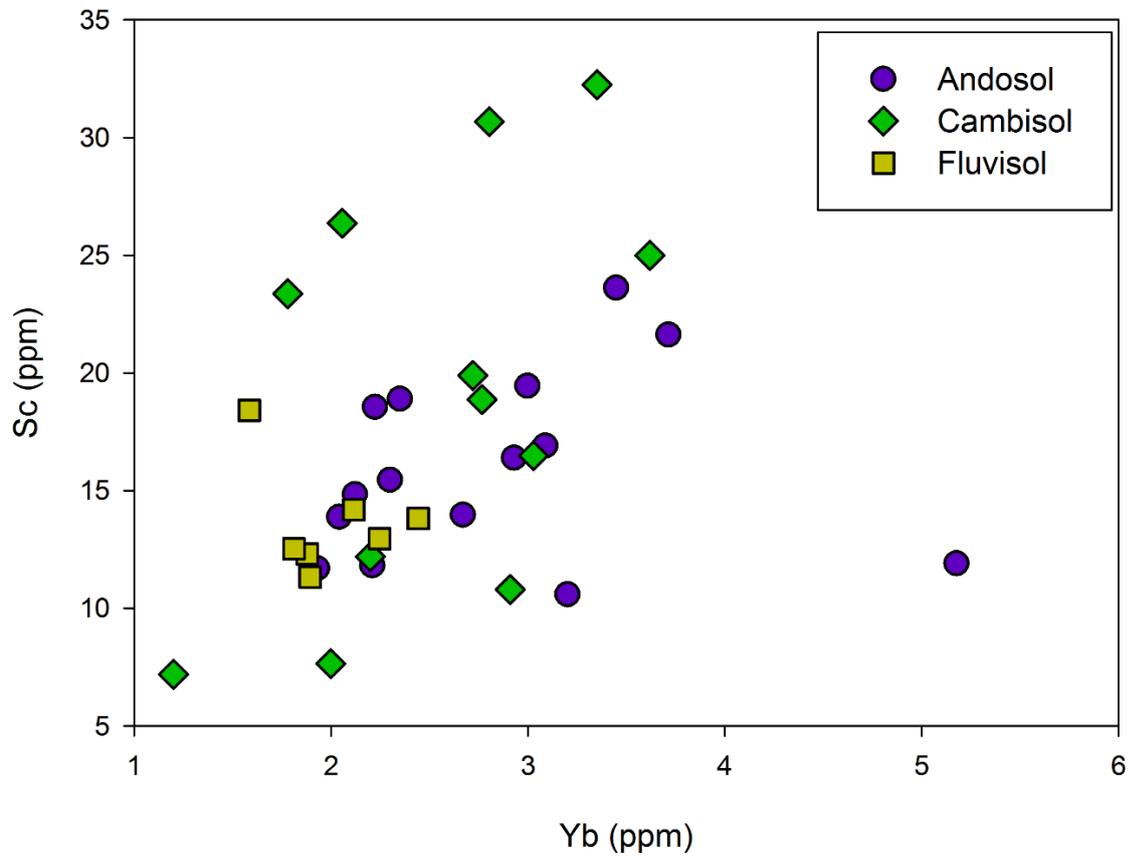


Figure V - 2-2 - Concentration en Sc et Yb dans les échantillons des trois sources.

Il est donc primordial de vérifier l'exactitude des supports utilisés pour valider les résultats. Dans cette étude, la carte de 2002 ne pouvait pas être utilisée comme support principale car elle ne couvrait qu'une partie des bassins versants. Cependant, son utilisation comme support complémentaire a permis de mettre en évidence la présence de certains écarts sur celle de 1972 pour des sols collectés plus de 40 ans après sa parution.

### V - 3 IMPACT DE LA GRANULOMETRIE

Des analyses granulométriques ont également été conduites pour vérifier si la taille des particules pouvait impacter les résultats. La surface spécifique (SSA) de plusieurs échantillons de sols (n=30) et de sédiments (n=177) a été calculée à partir des analyses granulométriques et les résultats montrent qu'il n'y a pas de différence significative entre la SSA des sols et celle des sédiments (Test de Student : p-value < 0,05) (Figure V - 3-1).

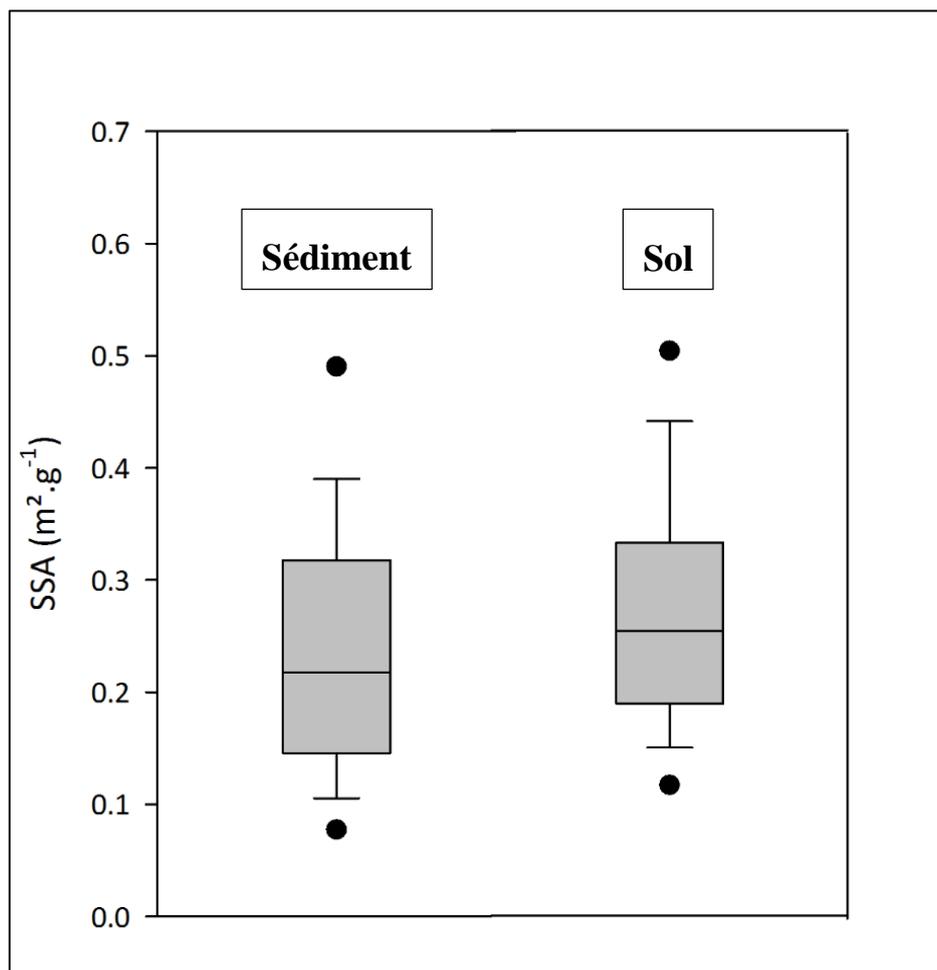


Figure V - 3-1 – Diagramme en boîte des SSA pour les échantillons de sols et de sédiments.

Si le <sup>137</sup>Cs se fixe principalement aux particules les plus fines, il a été montré dans la Préfecture de Fukushima qu'il pouvait également se fixer à des particules plus grossières comme notamment du sable (Saito et al., 2014). L'analyse de la répartition du <sup>137</sup>Cs et du <sup>110m</sup>Ag (Chapitre IV - 1.1) dans 4 classes granulométriques différentes avait montré que plus de 50% de ces radionucléides pouvaient être fixés sur des particules d'un diamètre supérieur à 63µm.

Suite à ces informations, nous avons décidé de ne pas utiliser de facteur correctif de la taille des particules dans nos différents modèles.

## V - 4 CONCLUSION SUR LE CHAPITRE V

Trois types de sols dominent dans les bassins versants étudiés : les Andosols, les Cambisols et les Fluvisols. Pour appliquer un modèle de mélange permettant de déterminer la contribution relative de ces trois sources dans les sédiments, des tests statistiques ont été réalisés pour sélectionner les éléments chimiques les plus discriminants. Ce sont le scandium (Sc) et l'ytterbium (Yb) qui ont permis de discriminer les sources et d'alimenter un modèle de mélange.

L'utilisation de ce modèle montre que les sédiments proviennent principalement des Fluvisols et, dans une moindre mesure, des Andosols. Ces deux types de sols se trouvent principalement dans les rizières (Matsuzaka, 1977; NIAES, 1996; Hirai and Hamazaki, 2004) et confirment donc la forte érodibilité de ces zones. La faible contribution des Cambisols confirme également que les sols sous forêts sont faiblement érodés, notamment parce qu'ils sont protégés de l'impact des gouttes de pluie par la présence d'une litière abondante et parce qu'ils présentent dès lors une infiltrabilité plus élevée, qui retarde la formation du ruissellement.

De plus, cette méthode a permis de mettre en évidence l'impact du barrage Takanokura, situé sur un affluent de la Niida qui, comme ceux situés sur la Mano et l'Ota, retient les sédiments. D'une part, l'étude d'échantillons individuels à l'amont du barrage a montré la forte contribution des Cambisols, principalement due à la présence de forêts d'arbres caduques et à l'absence de rizières. D'autre part, l'absence de contribution des Cambisols dans les échantillons collectés à l'aval du barrage montrent que celui-ci stocke bien les sédiments, le type de sol de cette plaine côtière étant principalement le Fluvisol.

A la différence des méthodes de traçage utilisant l'empreinte radioactive des rejets de la centrale, les résultats de l'approche par modèle statistique basé sur la signature géochimique des sols ne montrent pas de variation majeure entre les campagnes printanières et les campagnes automnales (post-typhons). Quel que soit l'évènement érosif, les résultats sont similaires et montrent que la nature des sources érodées ne varie pas significativement au cours du temps. Les variations observées par les méthodes précédentes sont donc plutôt liées à l'intensité des évènements érosifs. Il est montré dans la littérature que la contamination est principalement transportée à l'exutoire lors des typhons et nos résultats montrent que les dépôts sédimentaires dans la plaine côtière ont principalement lieu lors des crues printanières. L'une des raisons qui peut expliquer cela est liée à la taille des particules. Ainsi, il est probable que les typhons érodent les sols et transportent les particules contaminées les plus fines jusqu'à l'Océan tandis que les particules plus grossières sont déposées dans les rivières, notamment dans la zone amont. Les crues printanières peuvent ensuite remobiliser ces particules et les transporter dans la plaine côtière où elles vont en partie se déposer.

## V - 5 REFERENCES

- Ben Slimane, A., Raclot, D., Evrard, O., Sanaa, M., Lefèvre, I., Ahmadi, M., Tounsi, M., Rumpel, C., Ben Mammou, A., Le Bissonnais, Y., 2013. Fingerprinting sediment sources in the outlet reservoir of a hilly cultivated catchment in Tunisia. *J. Soils Sediments* 13, 801–815.
- Caitcheon, G.G., Olley, J.M., Pantus, F., Hancock, G., Leslie, C., 2012. The dominant erosion processes supplying fine sediment to three major rivers in tropical Australia, the Daly (NT), Mitchell (Qld) and Flinders (Qld) Rivers. *Geomorphology* 151-152, 188–195.
- Chartin, C., Evrard, O., Onda, Y., Patin, J., Lefèvre, I., Otlé, C., Ayrault, S., Lepage, H., Bonté, P., 2013. Tracking the early dispersion of contaminated sediment along rivers draining the Fukushima radioactive pollution plume. *Anthropocene* 1, 23–34.
- Collins, a. L., Walling, D.E., Leeks, G.J.L., 1997. Source type ascription for fluvial suspended sediment based on a quantitative composite fingerprinting technique. *Catena* 29, 1–27.
- Collins, A., Walling, D., 2002. Selecting fingerprint properties for discriminating potential suspended sediment sources in river basins. *J. Hydrol.* 261, 218–244.
- Cooper, R. J., Krueger, T., Hiscock, K. M., & Rawlins, B. G., 2014. Sensitivity of fluvial sediment source apportionment to mixing model assumptions: A Bayesian model comparison. *Water Resources Research*, 50, 9031-9047.
- Economic Planning Agency, 1972. Scale 1:200,000 Fundamental Land Classification Survey in Fukushima (soil map). <http://nrb-www.mlit.go.jp/kokjo/inspect/landclassification/download/index.html> (Last access May 2015)
- Evrard, O., Chartin, C., Onda, Y., Patin, J., Lepage, H., Lefèvre, I., Ayrault, S., Otlé, C., Bonté, P., 2013. Evolution of radioactive dose rates in fresh sediment deposits along coastal rivers draining Fukushima contamination plume. *Sci. Rep.* 3.
- Evrard, O., Chartin, C., Onda, Y., Lepage, H., Cerdan, O., Lefèvre, I., Ayrault, S., 2014a. Renewed soil erosion and remobilisation of radioactive sediment in Fukushima coastal rivers after the 2013 typhoons. *Sci. Rep.* 4.
- Evrard, O., Pointurier, F., Onda, Y., Chartin, C., Hubert, A., Lepage, H., Pottin, A.-C., Lefèvre, I., Bonté, P., Laceby, J.P., Ayrault, S., 2014b. Novel Insights into Fukushima Nuclear Accident from Isotopic Evidence of Plutonium Spread along Coastal Rivers. *Environ. Sci. Technol.* 48, 9334–9340.
- Evrard, O., Laceby, J.P., Lepage, H., Onda, Y., Cerdan, O., Ayrault, S., 2015. Radiocesium transfer from hillslopes to the Pacific Ocean after the Fukushima Nuclear Power Plant accident: A review. *J. Environ. Radioact.* 148, 92–110.
- Food and Agriculture Organisation, 2014. World Reference Base for Soil Resources 2014, International soil classification system for naming soils and creating legends for soil maps. *World Soil Resources Reports No.* 106.
- Foucher, A., Laceby, J.P., Salvador-Blanes, S., Evrard, O., Le Gall, M., Lefèvre, I., Cerdan, O., Rajkumar, V., Desmet, M., 2015. Quantifying the dominant sources of sediment in a drained lowland agricultural catchment: novel insights provided through sediment fingerprinting with <sup>137</sup>Cs and thorium-based particle size corrections. *Geomorphology*.
- Geographical Survey Institute, Fundamental Geospatial Data. Agricultural Soil map of Fukushima Prefecture. (Dernier accès mai 2015)
- Geospatial Information Authority of Japan, Japanese Ministry of Land, Infrastructure, Transport and Tourism. Digital Elevation Model, <http://www.gsi.go.jp> (Last access May 2015)
- Gourdin, E., Evrard, O., Huon, S., Lefèvre, I., Ribolzi, O., Reyss, J., Sengtaheuanghoung, O., Ayrault, S., 2014. Suspended sediment dynamics in a Southeast Asian mountainous catchment : Combining river monitoring and fallout radionuclide tracers. *J. Hydrol.* 519, 1811–1823.
- Haddadchi, A., Ryder, D.S., Evrard, O., Olley, J., 2013. Sediment fingerprinting in fluvial systems: review of tracers, sediment sources and mixing models. *Int. J. Sediment Res.* 28, 560–578.

- Hashimoto, S., Ugawa, S., Nanko, K., Shichi, K., 2012. The total amounts of radioactively contaminated materials in forests in Fukushima, Japan. *Sci. Rep.* 2.
- He, Q., Walling, D., 1996. Interpreting particle size effects in the adsorption of  $^{137}\text{Cs}$  and unsupported  $^{210}\text{Pb}$  by mineral soils and sediments. *J. Environ. Radioact.* 30, 117–137.
- Hirai, H., Hamazaki, T., 2004. Historical aspects of soil classification in Japan. *Soil Sci. Plant Nutr.* 50, 611–622.
- Imaya, A., Morisada, K., Ohta, S., 2002. Chemical properties and classification of Japanese brown forest soils derived from various parent materials. 17th World Congr. Soil Sci., 1–10.
- Japanese Meteorological Agency, Rainfall information. <http://www.data.jma.go.jp/obd/stats/etrn>, (Last access May 2015) (in Japanese)
- Joron, J.L., Treuil, M., Raimbault, L., 1997. Activation analysis as a geochemical tool: Statement of its capabilities for geochemical trace element studies. *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 216, 229–235.
- Kamei-Ishikawa, N., Uchida, S., Tagami, K., 2008. Distribution coefficients for  $^{85}\text{Sr}$  and  $^{137}\text{Cs}$  in Japanese agricultural soils and their correlations with soil properties. *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 277, 433–439.
- Kinoshita, N., Sueki, K., Sasa, K., Kitagawa, J., Ikarashi, S., Nishimura, T., Wong, Y.-S., Satou, Y., Handa, K., Takahashi, T., Sato, M., Yamagata, T., 2011. Assessment of individual radionuclide distributions from the Fukushima nuclear accident covering central-east Japan. *Proc. Natl. Acad. Sci. U. S. A.* 108, 19526–19539.
- Kitamura, A., Yamaguchi, M., Kurikami, H., Yui, M., Onishi, Y., 2014. Predicting sediment and cesium-137 discharge from catchments in eastern Fukushima. *Anthropocene* 5, 22–31.
- Koarashi, J., Atarashi-Andoh, M., Matsunaga, T., Sato, T., Nagao, S., Nagai, H., 2012. Factors affecting vertical distribution of Fukushima accident-derived radiocesium in soil under different land-use conditions. *Sci. Total Environ.* 431, 392–401.
- Kurikami, H., Kitamura, A., Yokuda, S.T., Onishi, Y., 2014. Sediment and  $^{137}\text{Cs}$  behaviors in the Ogaki Dam Reservoir during a heavy rainfall event. *J. Environ. Radioact.* 137, 10–17.
- Lacey, J.P., Mc Mahon, J., Evrard, O., Olley, J.M., 2015a. Comparison of geological and statistical approaches to element selection for sediment fingerprinting. *J. Soils Sediments* 15, 2117–2131.
- Lacey, J.P., Olley, J., 2015. A new modelling approach to tracing sediment sources that incorporates distributions and their elemental correlations. *Hydrol. Process.* 29, 1669–1685.
- Lacey, J.P., Olley, J., Pietsch, T.J., Sheldon, F., Bunn, S.E., 2015b. Identifying subsoil sediment sources with carbon and nitrogen stable isotope ratios. *Hydrol. Process.* 29, 1956–1971.
- Lacey, J.P., Chartin, C., Evrard, O., Onda, Y., Garcia-Sanchez, L., Cerdan, O., In review. Rainfall erosivity in subtropical catchments and implications for erosion and particle-bound contaminant transfer: a case-study of the Fukushima region. *Hydrological and Earth Systems Science*.
- Land conservation research, 2005, Landuse map, <http://nrb-www.mlit.go.jp/kokjo/inspect/landclassification/download/index.html> (Last access May 2015) (in Japanese)
- Lepage, H., Evrard, O., Onda, Y., Chartin, C., Lefevre, I., Sophie, A., Bonte, P., 2014a. Tracking the origin and dispersion of contaminated sediments transported by rivers draining the Fukushima radioactive contaminant plume, in: *Sediment Dynamics from the Summit to the Sea*, IAHS 367, 237–243.
- Lepage, H., Evrard, O., Onda, Y., Patin, J., Chartin, C., Lefèvre, I., Bonté, P., Ayrault, S., 2014b. Environmental mobility of  $^{110}\text{mAg}$ : lessons learnt from Fukushima accident (Japan) and potential use for tracking the dispersion of contamination within coastal catchments. *J. Environ. Radioact.* 130, 44–55.
- Lepage, H., Evrard, O., Onda, Y., Lefèvre, I., Lacey, J.P., Ayrault, S., 2015. Depth distribution of cesium-137 in paddy fields across the Fukushima pollution plume in 2013. *J. Environ. Radioact.* 147, 157 – 164.
- Matsuzaka, Y., 1977. Major soil groups in Japan. *Proc. Int. Semin. Soil Environ. Fertil. Manag. Intensive Agric.* 89–95.
- Ministry of Education, Culture, Sports, Science and Technology (MEXT), 2012, [http://radioactivity.nsr.go.jp/ja/contents/7000/6289/24/203\\_0928.pdf](http://radioactivity.nsr.go.jp/ja/contents/7000/6289/24/203_0928.pdf) (in Japanese).
- Motha, J., Wallbrink, P., 2002. Tracer properties of eroded sediment and source material. *Hydrol. Process.* 16, 1983–2000.

- Nagao, S., Kanamori, M., Ochiai, S., Tomihara, S., Fukushi, K., Yamamoto, M., 2013. Export of  $^{134}\text{Cs}$  and  $^{137}\text{Cs}$  in the Fukushima river systems at heavy rains by Typhoon Roke in September 2011. *Biogeosciences* 10, 6215–6223.
- Nakano, M., Yong, R.N., 2013. Overview of rehabilitation schemes for farmlands contaminated with radioactive cesium released from Fukushima power plant. *Eng. Geol.* 155, 87–93.
- National Institute for Agro-Environmental Sciences (NIAES), 1996. Classification of cultivated soils in Japan: third approximation, Classification Committee of Cultivated Soils.
- Olley, J., Murray, A., 1993. Identifying sediment sources in a gullied catchment using natural and anthropogenic radioactivity. *Water Resour. Res.* 29, 1037–1043.
- Olley, J., Brooks, A., Spencer, J., Pietsch, T., Borombovits, D., 2013a. Subsoil erosion dominates the supply of fine sediment to rivers draining into Princess Charlotte Bay, Australia. *J. Environ. Radioact.* 124, 121–129.
- Olley, J., Burton, J., Smolders, K., Pantus, F., Pietsch, T., 2013b. The application of fallout radionuclides to determine the dominant erosion process in water supply catchments of subtropical South-east Queensland, Australia. *Hydrol. Process.* 27, 885–895.
- Oracle (2013) Crystal Ball (Version: 11.2.3.500, 32 Bit, Classroom Edition)
- Saigusa, M., Shoji, S., Kato, T., 1978. Origin and nature of halloysite in Ando soils from Towada tephra, Japan. *Geoderma* 20, 115–129.
- Saito, T., Makino, H., Tanaka, S., 2014. Geochemical and grain-size distribution of radioactive and stable cesium in Fukushima soils: implications for their long-term behavior. *J. Environ. Radioact.* 138, 11–18.
- Saito, K., Onda, Y., 2015. Outline of the national mapping projects implemented after the Fukushima accident. *J. Environ. Radioact.* 139, 240–249.
- Sawhney, B., 1972. Selective sorption and fixation of cations by clay minerals: a review. *Clays Clay Miner.* 20, 93–100.
- Schuller, P., Walling, D.E., Iroumé, A., Quilodrán, C., Castillo, A, Navas, A, 2013. Using  $^{137}\text{Cs}$  and  $^{210}\text{Pb}$  and other sediment source fingerprints to document suspended sediment sources in small forested catchments in south-central Chile. *J. Environ. Radioact.* 124, 147–159.
- Shozugawa, K., Nogawa, N. and Matsuo, M., 2012. Deposition of fission and activation products after the Fukushima Dai-ichi nuclear power plant accident. *Environ. Pollut.* 163, 243–247.
- Takahashi, J., Tamura, K., Suda, T., Ryo, M., Onda, Y., 2014. Vertical distribution and temporal changes of  $^{137}\text{Cs}$  in soil profiles under various land uses after the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident. *J. Environ. Radioact.* 139, 351–361.
- Tessier, L., Bonte, P., 2002. Suspended Sediment Transfer in Seine River Watershed, France: a Strategy Using Fingerprinting From Trace Elements, in: *Science for Water Policy: The Implications of the Water Framework Directive*, 79–99.
- Ueda, S., Hasegawa, H., Kakiuchi, H., Akata, N., Ohtsuka, Y., Hisamatsu, S., 2013. Fluvial discharges of radiocaesium from watersheds contaminated by the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident, Japan. *J. Environ. Radioact.* 118, 96–104.
- Wakahara, T., Onda, Y., Kato, H., Sakaguchi, A., Yoshimura, K., 2014. Radiocesium discharge from paddy fields with different initial scrapings for decontamination after the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident. *Environ. Sci. Process. Impacts* 16, 2580e2591.
- Walling, D.E., Woodward, J.C., 1992. Use of radiometric fingerprints to derive information on suspended sediment sources, in: *Erosion and Sediment Transport Monitoring Programmes in River Basin*. IAHS Publication, Oslo, 153–164.
- Wilkinson, S.N., Hancock, G.J., Bartley, R., Hawdon, A. a., Keen, R.J., 2013. Using sediment tracing to assess processes and spatial patterns of erosion in grazed rangelands, Burdekin River basin, Australia. *Agric. Ecosyst. Environ.* 180, 90–102.

- 
- Yamaguchi, M., Kitamura, A., Oda, Y., Onishi, Y., 2014. Predicting the long-term  $^{137}\text{Cs}$  distribution in Fukushima after the Fukushima Dai-ichi nuclear power plant accident: a parameter sensitivity analysis. *J. Environ. Radioact.* 135, 135–146.
- Yamamoto, T., 2013. Quantitative re-description of tephra units since 0.3 Ma in the Tochigi-Ibaraki region, NE Japan. *Bull. Geol. Surv. JAPAN* 64, 251–304.
- Yamashiki, Y., Onda, Y., Smith, H.G., Blake, W.H., Wakahara, T., Igarashi, Y., Matsuura, Y., Yoshimura, K., 2014. Initial flux of sediment-associated radiocesium to the ocean from the largest river impacted by Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant. *Sci. Rep.* 4, 3714.
- Yasutaka, T., Naito, W., 2015. Assessing cost and effectiveness of radiation decontamination in Fukushima Prefecture, Japan. *J. Environ. Radioact.* 1–9.
- Yoshikawa, N., Obara, H., Ogasa, M., Miyazu, S., Harada, N., Nonaka, M., 2014.  $^{137}\text{Cs}$  in irrigation water and its effect on paddy fields in Japan after the Fukushima nuclear accident. *Sci. Total Environ.* 481, 252–259.
- Yoshimura, K., Onda, Y., Kato, H., 2015. Evaluation of radiocaesium wash-off by soil erosion from various land uses using USLE plots. *J. Environ. Radioact.* 139, 362–9.



# CONCLUSION



# CONCLUSION GENERALE ET PERSPECTIVES

---

## Sommaire

<b>CONCLUSION GENERALE</b>	<b>213</b>
CONTEXTE DES TRAVAUX	213
METHODES	213
DISTRIBUTION EN PROFONDEUR DU <sup>137</sup> Cs	214
DISPERSION DE LA CONTAMINATION	215
Utilisation de l’empreinte radioactive	215
Utilisation de l’empreinte géochimique	217
<b>PERSPECTIVES</b>	<b>219</b>
DECONTAMINATION DES SOLS	219
EVOLUTION TEMPORELLE	220
CARTE D’UTILISATION DES SOLS	220
FLUX DE MATIERES DURANT LES CRUES	221
UTILISATION DE LA BASE DE DONNEES POUR VALIDER DES MODELES D’EROSION DES BASSINS VERSANTS	221
APPLICATION DANS D’AUTRES CONTEXTES	222
<b>REFERENCES</b>	<b>223</b>

## VI - 1 CONCLUSION GENERALE

### VI - 1.1 CONTEXTE DES TRAVAUX

Au cours de ces travaux de thèse, différentes méthodes ont été développées pour étudier la dispersion de la contamination dans des bassins versants côtiers impactés par les retombées radioactives de l'accident de Fukushima. Lorsque la centrale nucléaire de Fukushima Dai-Ichi a été endommagée par un puissant tsunami en mars 2011, d'importantes quantités de radionucléides ont été rejetées dans l'atmosphère et une partie de ces émissions a ensuite été déposée dans la Préfecture de Fukushima sous l'effet conjoint de la pluie et du vent. Parmi les radionucléides ainsi déposés, le césium-137 ( $^{137}\text{Cs}$ ) est actuellement le plus problématique. Emis en grande quantité, il possède une demi-vie radioactive de 30 ans, et devrait impacter cette région pour de nombreuses années. Par ailleurs, il est connu pour se fixer fortement et presque irréversiblement aux particules de sols lors de son dépôt. Or, cette région du Japon est caractérisée par des événements érosifs importants (notamment les typhons), qui peuvent mettre en transport ces particules contaminées. Il est donc impératif de comprendre et de quantifier la dispersion des particules radioactives afin de dégager des préconisations pour améliorer la gestion des rivières et celle des bassins versants contaminés dans ce contexte post-accidentel inédit.

### VI - 1.2 METHODES

Pour étudier la dispersion de cette contamination lors d'événements érosifs, des travaux ont été réalisés au cours de cette thèse dans plusieurs bassins versants côtiers (rivières Mano, Niida et Ota). Ces bassins sont caractérisés par une zone amont fortement contaminée en radiocésium tandis que les plaines côtières, densément peuplées (notamment dans la Niida avec la ville de Minamisoma), ont été en partie épargnées par les retombées initiales de césium radioactif. De plus, deux des trois bassins (la Mano et l'Ota) sont équipés de barrages sur leur cours d'eau principal et leurs réservoirs jouent un rôle important dans le transport des particules (en les stockant et les dispersant lors des lâchers). Il est donc important d'étudier la dispersion des particules contaminées dans ces bassins versants, car elle peut directement impacter la population locale en transitant par les rivières et en se déposant dans les plaines côtières préalablement épargnées.

Pour mener cette étude, des échantillons de sols ( $n=95$ ) et de laisses de crues ( $n=271$ ) ont été collectés au cours de 6 campagnes de terrain organisées dans la Préfecture de Fukushima. Compte-tenu de l'absence d'échantillonneurs automatiques collectant les matières en suspension, nous avons eu recours aux laisses de crues qui constituent un échantillonnage représentatif du dernier événement érosif. Pour étudier l'impact des phénomènes érosifs majeurs qui se produisent dans la région, les campagnes ont été organisées tous les 6 mois entre novembre 2011 et mai 2014, après les crues printanières et la saison des typhons estivaux. Les échantillons ont tous été analysés par spectrométrie gamma pour en déterminer l'activité en  $^{134}\text{Cs}$  et en  $^{137}\text{Cs}$ , et le cas échéant, celle des autres émetteurs gamma présents ( $^{110\text{m}}\text{Ag}$ ,  $^{125}\text{Sb}$  ...).

Une sélection d'échantillons (35 sols et 110 laisses de crue) a également été analysée par activation neutronique afin de déterminer leur teneur en une vingtaine d'éléments. En complément, des analyses par diffraction des rayons X, de granulométrie, et des mesures de teneur en carbone organique totale ont été réalisées pour mieux caractériser certains échantillons.

---

### VI - 1.3 DISTRIBUTION EN PROFONDEUR DU $^{137}\text{Cs}$

Tout d'abord, la distribution en profondeur du  $^{137}\text{Cs}$  dans les sols des rizières a été étudiée pour vérifier s'il n'avait pas migré, 30 mois après l'accident (novembre 2013). Ces sols (les Andosols) peuvent être caractérisés par un faible taux de rétention de ce radionucléide, car ils se sont développés sur des dépôts de cendres volcaniques qui sont connus pour faiblement fixer le  $^{137}\text{Cs}$ .

Ainsi, dix carottes de sols (0–10 cm de profondeur) ont été collectées dans des rizières localisées dans différentes parties du panache de pollution radioactive. L'analyse de l'activité en radionucléides émetteurs gamma dans différentes couches a montré une faible migration du césium en profondeur dans les sols de la région. En effet, plus de 90 % de la contamination étaient encore concentrés dans les 2 cm superficiels des sols en novembre 2013, et seuls les sols labourés présentaient une distribution homogène sur 10 cm. Cette faible migration naturelle s'explique par la présence de minéraux qui adsorbent fortement le césium comme les micas (biotite) ou les argiles (montmorillonite, kaolinite...) dont la présence a été validée par les analyses par diffraction des rayons X. Ces minéraux, qui étaient absents à l'origine des dépôts de cendres volcaniques, pourraient avoir été apportés lors de l'irrigation des rizières. En effet, l'érosion des roches situées en amont des bassins versants (des granodiorites) a apporté de nombreux minéraux dans les cours d'eau. Il est également possible que les agriculteurs aient apporté des terres venant d'autres bassins versants dans leurs rizières, terres qui se seraient mélangées aux Andosols d'origine.

Les particules contaminées par le  $^{137}\text{Cs}$  situées à la surface du sol restent donc, plusieurs années après l'accident, potentiellement mobilisables par l'érosion en cas de fortes pluies. Cependant, bien que les rizières soient fortement connectées au réseau hydrographique, l'abandon de celles-ci dû à l'interdiction de les cultiver suite à l'accident a considérablement réduit leur érodabilité du fait de la présence de végétation qui n'a cessé de pousser depuis mars 2011. Pour éviter la dispersion de cette contamination, il est important de prendre des précautions dans ces rizières et d'éviter de laisser le sol à nu lors d'évènements érosifs. Les débits de dose radioactifs auxquels les agriculteurs sont exposés peuvent être très élevés dans les rizières avant décontamination et il convient donc de limiter la durée d'exposition des populations concernées. Comme les travaux de décontamination consistent à retirer la couche superficielle du sol, il est important de le faire rapidement après la tonte des parcelles et d'éviter de réaliser ces travaux de décontamination pendant la saison des typhons.

## VI - 1.4 DISPERSION DE LA CONTAMINATION

Pour étudier la dispersion de la contamination, différentes méthodes ont été développées. Elles peuvent être regroupées en deux types d'approche. Ces méthodes ont permis d'obtenir des informations spatiales et temporelles sur la dispersion des particules contaminées.

### VI - 1.4.1 UTILISATION DE L'EMPREINTE RADIOACTIVE

Cette première approche se base sur les mesures d'activités des radionucléides gamma artificiels ( $^{137}\text{Cs}$  et  $^{110\text{m}}\text{Ag}$ ) qui ont été détectés dans les échantillons de sols et de sédiments collectés au cours des 6 campagnes.

Le  $^{110\text{m}}\text{Ag}$  (radioactif) est un produit d'activation issu du  $^{109}\text{Ag}$  (stable) présent dans les barres de contrôles et certaines gaines des réacteurs nucléaires ou créé par fission de noyaux plus lourds. Suite à l'accident de Fukushima, ce radionucléide s'est déposé sur les sols de la Préfecture homonyme. Les caractéristiques et l'âge des combustibles des différentes unités de la centrale étaient différents, ce qui s'est traduit par des rapports d'activité  $^{110\text{m}}\text{Ag}/^{137}\text{Cs}$  distincts dans les dépôts au sol qui ont fait suite aux explosions successives. La répartition spatiale de ce rapport d'activité  $^{110\text{m}}\text{Ag}/^{137}\text{Cs}$  dans les sols de la région a donc permis de distinguer plusieurs zones-source dans le bassin de la Niida. Ainsi, les sols de l'amont de ce bassin étaient caractérisés par une gamme de valeurs faibles de ce rapport (0,0010 – 0,0035) tandis que ceux du reste du bassin étaient caractérisés par une gamme de valeurs significativement plus élevées (0,0041 – 0,0082). Cependant, pour pouvoir utiliser ce rapport d'activités comme traceur, il était impératif de vérifier que les deux radionucléides présentaient le même comportement vis-à-vis des particules dans l'environnement.

Quatre expériences ont ainsi été réalisées et les résultats obtenus montrent que le  $^{110\text{m}}\text{Ag}$  et le  $^{137}\text{Cs}$  présentent un comportement similaire dans les sols et les sédiments :

- Ils présentent une forte affinité pour les particules fines (33 à 65 % de la contamination fixées sur les particules  $<63\mu\text{m}$ ) qui sont les plus susceptibles d'être érodées et transportées ;
- Ils subissent une faible migration dans les sols, avec 81 et 82 % de l'activité concentrés dans le premier centimètre respectivement pour le  $^{137}\text{Cs}$  et le  $^{110\text{m}}\text{Ag}$  ;
- Ils présentent un comportement similaire après une crue, l'inventaire d'activité des deux radionucléides étant similaire dans différentes couches des profils sédimentaires collectés dans un réservoir de barrage qui a été vidé depuis l'accident ;
- Ils sont caractérisés par une variation temporelle similaire dans les laisses de crues collectées aux mêmes sites lors des différentes campagnes et leur activité présente une corrélation positive avec la surface spécifique des particules.

L'ensemble des résultats de ces expériences, combinés avec les informations trouvées dans la littérature spécialisée, confirment donc le comportement similaire de ces deux radionucléides vis-à-vis des particules minérales fines dans les bassins versants et valident l'utilisation du rapport d'activité  $^{110\text{m}}\text{Ag}/^{137}\text{Cs}$  comme traceur des sédiments. Un modèle de mélange binaire a ainsi pu être appliqué aux échantillons de laisses de crue collectées dans le bassin de la Niida lors des 4 premières campagnes de prélèvement (de novembre 2011 à mai 2013).

L'utilisation de ce rapport a permis d'identifier l'existence de cycles d'érosion et de dispersion saisonniers de la contamination. Ainsi, lors des campagnes de prélèvements post-typhons, les sédiments étaient caractérisés par la signature des sols locaux tandis qu'après les crues printanières, les résultats montrent que les sédiments de la zone aval présentent principalement la signature des sols amont. Ces résultats suggèrent que l'érosion est surtout locale lors des typhons et que les sédiments sont principalement dispersés après les crues printanières. Cependant,  $^{110m}\text{Ag}$  ayant une demi-vie de 250 jours, il a rapidement décré et l'activité est devenue inférieure aux limites de détection dans la plupart des échantillons à compter de mai 2013.

Pour compenser la disparition de ce radionucléide, une approche basée sur le facteur d'enrichissement en  $^{137}\text{Cs}$  a été développée pour les trois bassins versants (Mano, Niida et Ota) et pour les cinq premières campagnes (novembre 2011 à novembre 2013). Cette technique permet de mettre en évidence si la laisse de crue récemment déposée est plus ou moins contaminée que les sols voisins, en calculant le rapport de l'activité du sédiment sur celle du sol.

Si cette méthode a confirmé l'occurrence d'un cycle érosion/dispersion dans le bassin de la Niida, elle a aussi montré qu'il existait également dans les deux autres bassins (Mano et Ota). Cependant, les résultats différaient selon les bassins versants. Cette distinction s'explique par la présence de barrages sur le cours principal de la Mano et l'Ota, ainsi que par les différences d'occupation des sols dans les différents bassins. Dans la Mano, la présence de forêts de conifères et l'abandon des rizières conduisent à une faible exportation de matière contaminée depuis ces zones peu érodables tandis que, dans la Niida, les sédiments sont toujours caractérisés par une activité plus élevée que les sols. Dans la partie amont de la Niida, la diminution de l'activité des sols est en partie due aux travaux de décontamination au cours desquels les premiers centimètres des sols sont retirés. Cependant, des particules contaminées ont été dispersées et stockées dans les cours d'eau lors des événements pluvieux qui se sont produits pendant ces travaux, ce qui explique que les laisses collectées à l'amont de la Niida étaient toujours plus contaminées que les sols lors des campagnes suivantes. L'absence de typhon en 2012 explique que cette contamination stockée était toujours présente en 2013.

Globalement, la proportion d'échantillons de sédiments caractérisés par des activités plus élevées que les sols est plus élevée lors des campagnes post-typhons que lors des campagnes printanières, après la fonte des neiges.

Après avoir caractérisé ce cycle d'érosion/dispersion, une méthode de fingerprinting basée sur la distribution de l'activité des sols en  $^{137}\text{Cs}$  a été développée pour quantifier la contribution de l'érosion de la zone amont aux sédiments collectés dans les plaines côtières. Elle se base sur la répartition spatiale de la contamination en  $^{137}\text{Cs}$  qui forme deux zones distinctes : d'une part, les plateaux montagneux de l'amont fortement contaminés ( $> 20 \text{ kBq/m}^2$  de  $^{134}\text{Cs} + ^{137}\text{Cs}$ ), et, d'autre part, les plaines côtières en partie épargnées par ces retombées initiales ( $< 20 \text{ kBq/m}^2$ ). En utilisant un modèle de mélange binaire basé sur les distributions du  $^{137}\text{Cs}$  dans ces deux zones, les résultats montrent que la contribution de la zone amont diffère en fonction du bassin versant et au cours du temps.

Ainsi, la zone amont fournit une part non négligeable (46 % en moyenne) des sédiments à la rivière Niida qui est dépourvue de barrage, alors que cette contribution est beaucoup plus faible (20 % en moyenne) dans la rivière Mano, qui en est équipée. Ces résultats confirment donc l'impact des barrages qui génère une dysconnectivité sédimentaire dans les bassins versants. Les résultats montrent que la contribution de la zone amont a atteint son maximum lors de la campagne d'avril 2012 (71 % dans la Niida et 50 % dans la Mano). Ensuite, cette contribution a décliné jusqu'en mai 2013 (21 % pour la Niida et 13 % pour la Mano), avant d'augmenter à nouveau suite à l'impact des typhons de 2013 (66 % dans la Niida et 24 % dans la Mano). Pour la Mano, cette augmentation est attribuée à l'ouverture du barrage, ce qui confirme que les lâchers de barrage peuvent conduire à la redistribution d'une partie des sédiments contaminés et stockés dans leur réservoir.

---

### VI - 1.4.2 UTILISATION DE L'EMPREINTE GEOCHIMIQUE

Pour compléter l'analyse de la dispersion des particules contaminées, les teneurs en éléments chimiques ont été utilisées pour caractériser les principaux types de sols des bassins de la Mano et de la Niida. Le choix initial de retenir la carte des sols à la place de la carte géologique, plus souvent utilisée dans les études de traçage, s'explique par la présence d'Andosols, développés sur des dépôts de cendres volcaniques, qui ne sont pas renseignés sur la carte géologique. A l'aide d'un modèle de mélange, il a ensuite été possible de déterminer la contribution de chacun de ces types de sol dans les sédiments.

Les trois types de sols les plus représentatifs de ces bassins présentent des répartitions spatiales différentes. Les Andosols sont principalement localisés dans les plateaux montagneux de l'amont (notamment dans les rizières), en particulier dans le bassin de la Niida. Les Cambisols sont des sols forestiers et ils recouvrent la majorité de la surface des bassins versants (68 % de l'aire totale). Enfin, les Fluvisols sont des sols alluviaux que l'on retrouve principalement le long des rivières (dans les rizières) et dans la plaine côtière. Pour différencier ces sols, sources potentielles de particules contaminées, des tests statistiques ont été réalisés pour déterminer les éléments chimiques qui permettent de les discriminer. Le scandium et l'ytterbium (Sc et Yb) ont ainsi été sélectionnés et leurs teneurs ont été utilisées dans un modèle de mélange basé sur la distribution de leur concentration dans les sources. Les résultats montrent une contribution majoritaire (entre 59 % et 100 %) des Fluvisols dans les échantillons de sédiments prélevés dans les rivières, quel que soit le bassin versant. Cela confirme donc l'érodabilité accrue des rizières et leur contribution majeure aux sédiments prélevés dans les rivières. Le reste des sédiments provient principalement des Andosols (entre 0 % et 41 %), que l'on trouve également dans certaines rizières. Dans la partie amont de la Niida, la contribution des Andosols ( $\approx 35\%$ ) est plus importante que dans celle de la Mano ( $\approx 15\%$ ). Cette différence pourrait s'expliquer par les variations spatiales de l'épaisseur des dépôts de cendres, qui est plus élevée dans le premier bassin versant. La contribution des Cambisols est très faible dans l'ensemble des bassins versants (entre 0% et 11%), ce qui confirme la faible érodabilité des sols sous forêts. Dans cette région, les forêts vont donc constituer un réservoir important de contamination à long terme.

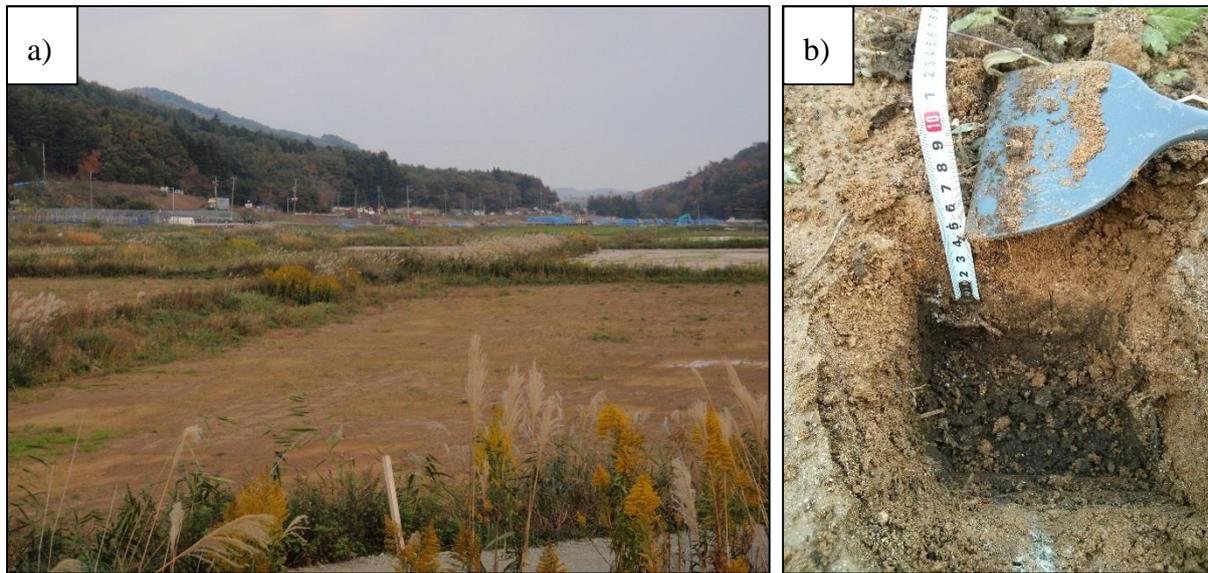
Sur le plan temporel, les sources fournissant les sédiments aux rivières déterminées avec cette dernière méthode varient très peu d'une campagne à l'autre. Ils indiquent donc que la principale source de contamination des rivières correspond aux rizières et, ce, depuis l'accident. Les résultats ne permettent pas de retrouver le cycle d'érosion/dispersion démontré précédemment lors de la succession des typhons et des crues printanières. Ces résultats montrent que les variations saisonnières observées par les autres méthodes sont donc bien liées à l'intensité des événements érosifs, la principale source de contamination restant identique pendant toute la période d'étude.

La forte contribution des Fluvisols ( $\mu$  76 %  $\sigma$  14 %), qui ne couvrent qu'une proportion très minoritaire (6 %) de la surface des bassins étudiés sur la carte des sols, a ouvert une réflexion sur l'importance du choix de la carte à utiliser pour identifier et délimiter les zones-source dont la contribution respective doit être déterminée dans le cadre d'études de traçage sédimentaire. En effet, la carte choisie pour cette étude a été réalisée il y a plus de 40 ans (1972) et elle diffère de la carte des sols du parcellaire agricole qui date, elle, du début du siècle (2002). Sur cette carte récente, les Fluvisols sont fortement représentés dans les rizières et notamment à l'amont des bassins versants, là où l'ancienne carte indiquait la présence d'Andosols. Ces résultats montrent l'importance du choix de la carte des sols qui ne doit pas être négligé dans les études de traçage mais qui dépend de la disponibilité locale des données.

## VI - 2 PERSPECTIVES

### VI - 2.1 DECONTAMINATION DES SOLS

Lors de la campagne de novembre 2012, les premiers travaux de décontamination ont débuté dans la partie amont de la Niida, dans la municipalité d'Iitate (Figure VI - 2-1a). Ces travaux consistent à décaper la couche supérieure des sols contaminés (5 à 10 cm) pour retirer la majeure partie de la contamination (Nakano & Yong, 2013; Yasutaka & Naito, 2015). Le sol est ensuite recouvert d'une arène broyée non contaminée mais faiblement fertile (Figure VI - 2-1b) visant à isoler la couche de sol non retirée. Les autorités japonaises prévoient de placer un sol fertile au-dessus cette arène.



**Figure VI - 2-1 - a) Exemple de champ décontaminé à l'amont de la Niida et b) couche d'arène granitique (couleur claire) de 5 cm sur l'ancien sol (couleur sombre).**

Il serait intéressant d'étudier l'impact de la décontamination sur l'activité en radiocésium des sédiments transitant dans les rivières en intégrant la nouvelle couche de sol fertile comme source dans le modèle de mélange basé sur les types de sols. De plus, l'utilisation du modèle de mélange basé sur le  $^{137}\text{Cs}$  dans les sédiments permettrait de quantifier l'apport de ces sols décontaminés.

Poursuivre ces études dans les années à venir permettrait d'étudier comment les travaux entrepris vont impacter cette dispersion et la quantité de  $^{137}\text{Cs}$  exporté vers les plaines côtières. On pourrait alors déterminer le temps de rémanence du  $^{137}\text{Cs}$  dans le réseau hydrographique.

---

## VI - 2.2 EVOLUTION TEMPORELLE

Depuis la campagne de mai 2014, deux campagnes de terrain supplémentaires ont été organisées (novembre 2014 et avril 2015), mais leurs résultats n'ont pas pu être pris en compte dans la présente étude. Comme ces campagnes ont suivi le même protocole que les précédentes, il serait intéressant d'appliquer le modèle basé sur les distributions de  $^{137}\text{Cs}$  dans les sources et les sédiments pour obtenir des informations sur le transfert de contamination en 2014-2015, d'autant plus que l'année 2014 a été marquée par le passage de typhons en septembre et octobre.

Des méthodes alternatives vont également être appliquées pour poursuivre l'étude de la dispersion. La présence de plutonium a ainsi été mise en évidence lors d'une étude préliminaire (Evrard et al., 2014<sup>1</sup>). Les isotopes  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{240}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Pu}$ , et  $^{242}\text{Pu}$  ont pu être mesurés en très faible concentration dans des échantillons de laisses et de sols de la Niida. Le rapport  $^{241}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  des échantillons (entre 0,0017 et 0,0884) y est supérieur à celui issu des retombées radioactives des essais nucléaires des années 1960 ( $0,00113 \pm 0,00008$ ). Cela montre que le plutonium mesuré est en partie issu de l'accident de Fukushima Dai-Ichi. Ce radionucléide pourrait donc être utilisé comme traceur pour étudier la dispersion. Cette méthode sera développée au cours de futurs travaux qui feront l'objet d'une thèse financée par le CEA (2015-2018).

---

## VI - 2.3 CARTE D'UTILISATION DES SOLS

Pour vérifier que les rizières constituent la principale source de particules contaminées dans les rivières, il serait intéressant d'appliquer des modèles de mélange qui permettraient de discriminer la contribution de sources correspondant à différentes utilisations des sols (champs, forêts, pâturages...).

Lors d'une première approche (non présentée dans ce manuscrit), les résultats des tests statistiques (Kruskal-Wallis et Wilk's Lambda) montraient que les éléments obtenus par INAA ne permettaient pas de discriminer celles-ci. Cette méthode (INAA), qui a été choisie pour l'étude pour certains critères (absence de préparation chimique des échantillons, ce qui est intéressant lorsqu'on travaille sur des échantillons radioactifs), présente plusieurs limites importantes que nous avons pu identifier dans le cadre de ces travaux. La première concerne le nombre d'échantillons irradiés/mesurés qui est faible, notamment à cause des contraintes logistiques d'utilisation des réacteurs nucléaires expérimentaux (périodes d'arrêt prolongées, programmées ou non). L'autre limite concerne le nombre d'éléments pour lesquelles les mesures élémentaires ont pu être validées (incertitude inférieure à 15%). Ce nombre est faible comparé à celui que l'on obtient avec une analyse par ICP-MS (12 éléments retenus ici contre environ 45 pour des analyses par ICP-MS – Collins et al., 2010).

Comme les éléments chimiques obtenus par INAA ne permettent pas de discriminer la contribution des différents types d'utilisations des sols, d'autres traceurs doivent être identifiés pour y parvenir.

---

<sup>1</sup> Evrard, O., Pointurier, F., Onda, Y., Chartin, C., Hubert, A., **Lepage, H.**, Pottin, A.-C., Lefèvre, I., Bonté, P., Lacey, J.P., Ayrault, S., 2014. Novel Insights into Fukushima Nuclear Accident from Isotopic Evidence of Plutonium Spread along Coastal Rivers. *Environ. Sci. Technol.* 48, 9334–9340.

Une méthode basée sur les mesures de carbone organique et d'azote total, mais aussi de la composition isotopique en carbone ( $\delta^{13}\text{C}$ ) et en azote ( $\delta^{15}\text{N}$ ), pourrait ainsi permettre de discriminer la contribution respective des rizières et celle des forêts.

---

#### VI - 2.4 FLUX DE MATIERES DURANT LES CRUES

Les travaux d'étude de la dispersion de la contamination présentés dans ce manuscrit sont basés sur des prélèvements de laisses de crues qui fournissent des informations ponctuelles et ne permettent pas de reconstruire directement le flux de matière transportée. Ils ont ainsi permis de montrer que les particules qui se sont déposées dans les rivières lors des typhons étaient ensuite transportées lors des crues printanières et se déposaient dans les plaines côtières.

Pour vérifier cette hypothèse, il serait pertinent d'instrumenter (mise en place de trappes à matières en suspension, de turbidimètres...) les bassins versants côtiers pour obtenir des informations en continu sur ces flux de particules contaminées. Il serait alors intéressant de comparer les résultats obtenus à l'aide des matières en suspension aux résultats présentés dans ce manuscrit.

---

#### VI - 2.5 UTILISATION DE LA BASE DE DONNEES POUR VALIDER DES MODELES D'EROSION DES BASSINS VERSANTS

L'étude des accidents nucléaires et de leurs conséquences est cruciale car les retombées radioactives engendrées ont un impact durable sur l'environnement proche des sites accidentés. Cependant, la rareté de ces événements (2 en 30 ans) limite grandement les travaux de recherche en situation post-accidentelle.

Ainsi, au cours de cette thèse, une base de données de plus de 500 échantillons a été constituée entre novembre 2011 et mai 2014. Cette banque d'échantillons qui couvrent l'ensemble de la période post-accidentelle est unique et constitue dès lors une importante base de données permettant de mieux comprendre le comportement des radionucléides dans l'environnement et de développer des outils opérationnels qui pourraient être utiles si un nouvel accident se produisait.

Il sera pertinent d'utiliser les résultats obtenus sur ces échantillons pour valider tant sur le plan spatial que temporel les sorties des modèles d'érosion et de dépôts sédimentaires qui sont en cours de développement dans le cadre du projet AMORAD (2014-2019) qui a été présenté dans l'introduction de ce manuscrit.

De plus, si les radionucléides à demi-vie courte (inférieure à quelques années) seront difficilement caractérisables dans les années à venir, il sera toujours possible de réaliser des analyses supplémentaires pour caractériser les radionucléides présentant des demi-vies plus longues. C'est notamment le cas des isotopes du plutonium, évoqués dans la section 6.2.2.

---

## VI - 2.6 APPLICATION DANS D'AUTRES CONTEXTES

Au cours de ces travaux de thèse, nous avons adapté des techniques de traçage sédimentaire dans un contexte particulier. Ainsi, nous avons utilisé les retombées des radionucléides issues de la centrale de Fukushima pour mieux comprendre les transferts sédimentaires dans cet environnement particulier d'Asie impacté par les typhons.

Si l'utilisation des techniques de traçage sédimentaire repose sur des fondements universels (choix de propriétés conservatives, application d'un modèle de mélange...), il convient de prendre en compte les caractéristiques des bassins versants et de l'environnement que l'on souhaite étudier et d'adapter en conséquence la démarche de traçage. Par exemple, l'utilisation du  $^{137}\text{Cs}$  comme traceur dans cette étude s'explique principalement par le fait que sa répartition spatiale permettait de discriminer deux zones-source. C'est également le cas pour le rapport d'activité  $^{110\text{m}}\text{Ag}/^{137}\text{Cs}$  dont l'utilisation résulte d'une situation spécifique à cet accident. Il est ainsi probable que ces deux approches ne soient pas transposables en l'état pour étudier les transferts de polluants particuliers après un autre accident nucléaire s'il devait survenir.

L'utilisation de la méthode géochimique semble plus facile à adapter à des études hors contexte d'accident nucléaire. Cette approche est indépendante des retombées radioactives et permet de tracer les sédiments en se basant sur leurs teneurs élémentaires et celles des sources. De plus, les types de sols peuvent parfois être liés à des utilisations bien spécifiques et l'utilisation de techniques de traçage permet d'apporter des informations plus précises quant à l'origine spatiale des sédiments. Il serait donc pertinent d'appliquer cette approche dans un contexte différent.

## VI - 3 REFERENCES

- Collins, A L., Zhang, Y., Walling, D.E., Grenfell, S.E., Smith, P., 2010. Tracing sediment loss from eroding farm tracks using a geochemical fingerprinting procedure combining local and genetic algorithm optimisation. *Sci. Total Environ.* 408, 5461–71.
- Evrard, O., Pointurier, F., Onda, Y., Chartin, C., Hubert, A., Lepage, H., Pottin, A.-C., Lefèvre, I., Bonté, P., Laceby, J.P., Ayrault, S., 2014. Novel Insights into Fukushima Nuclear Accident from Isotopic Evidence of Plutonium Spread along Coastal Rivers. *Environ. Sci. Technol.* 48, 9334–9340.
- Kitamura, A., Yamaguchi, M., Kurikami, H., Yui, M., Onishi, Y., 2014. Predicting sediment and cesium-137 discharge from catchments in eastern Fukushima. *Anthropocene* 1–10.
- Nakano, M., Yong, R.N., 2013. Overview of rehabilitation schemes for farmlands contaminated with radioactive cesium released from Fukushima power plant. *Eng. Geol.* 155, 87–93.
- Yamashiki, Y., Onda, Y., Smith, H.G., Blake, W.H., Wakahara, T., Igarashi, Y., Matsuura, Y., Yoshimura, K., 2014. Initial flux of sediment-associated radiocesium to the ocean from the largest river impacted by Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant. *Sci. Rep.* 4, 3714.
- Yasutaka, T., Naito, W., 2015. Assessing cost and effectiveness of radiation decontamination in Fukushima Prefecture, Japan. *J. Environ. Radioact.* 1–9.





# ANNEXES



# ANNEXES

---

## Sommaire

<b>CARACTÉRISTIQUES DES ÉCHANTILLONS</b>	<b>229</b>
EMPLACEMENT DES SOLS	229
EMPLACEMENT DES LAISSES DE CRUES	231
<b>RÉSULTATS DES ANALYSES</b>	<b>239</b>
SPECTROMETRIE GAMMA	239
Activités dans les sols	239
Activités dans les laisses de crues	243
INAA	254
Teneurs élémentaires dans les sols	254
Teneurs élémentaires dans les laisses de crues	256
<b>RÉSULTATS DRX</b>	<b>261</b>
MESURES DE CARBONE ORGANIQUE TOTAL (COT) DANS LES SOLS	264
GRANULOMÉTRIE	265
Granulométrie dans les sols	265
Granulométrie dans les sédiments	266
<b>CARACTÉRISTIQUES DES STANDARDS UTILISÉS</b>	<b>270</b>
<b>TESTS STATISTIQUES POUR VALIDER LES DONNEES D'INAA</b>	<b>272</b>
ELEMENT NON DETECTÉ	272
COMPARAISON DES STANDARDS	272
Comparaison de SL1	273
Comparaison des mesures de Soil7	274
AJOUT DES DONNEES D'ACTIVATION SOUS CADMIUM	276
CAS DE LA NAVETTE N°6	279
EMPLACEMENT DES STANDARDS DANS LES NAVETTES	281

## ANNEXE A. CARACTÉRISTIQUES DES ÉCHANTILLONS

## A.1 EMBLACEMENT DES SOLS

Code échantillon	Latitude (WGS 1984)	Longitude (WGS 1984)	Code emplacement	Rivière	Campagne
<b>FMS059A</b>	37,719141	140,701086	59	Mano	1
<b>FMS060A</b>	37,733341	140,733434	60	Mano	1
<b>FMS061A</b>	37,735462	140,722874	61	Mano	1
<b>FMS062A</b>	37,741994	140,726075	62	Mano	1
<b>FMS068A</b>	37,7331583	140,8078048	68	Mano	1
<b>FMS110</b>	37,736096	140,734301	110	Mano	2
<b>FMS113</b>	37,724121	140,790605	113	Mano	2
<b>FMS121</b>	37,741737	140,799295	121	Mano	2
<b>FMS124</b>	37,724948	140,931865	124	Mano	2
<b>FMS126</b>	37,695612	140,929791	126	Mano	2
<b>FMS230</b>	37,7216187	140,8694914	230	Mano	3
<b>FMS233</b>	37,7412242	140,7982047	233	Mano	3
<b>FMS235</b>	37,7250044	140,7903081	235	Mano	3
<b>FMS240</b>	37,7192089	140,7010745	240	Mano	3
<b>FMS241</b>	37,738704	140,7478797	241	Mano	3
<b>FMS242</b>	37,7357967	140,7343867	242	Mano	3
<b>FMS243</b>	37,7414258	140,726245	243	Mano	3
<b>FMS244</b>	37,7326061	140,6883971	244	Mano	3
<b>FMS270a</b>	37,6920176	140,8873365	270	Mano	3
<b>FMS270b</b>	37,6912451	140,8860973	270	Mano	3
<b>FMS446</b>	37,6885654	140,995531	446	Mano	5
<b>FMS462</b>	37,6954441	140,9316504	462	Mano	5
<b>FMS565</b>	37,722653	140,728741	565	Mano	6
<b>FMS575</b>	37,7082087	140,928915	575	Mano	6
<b>FNS026A</b>	37,616039	140,687641	26	Niida	1
<b>FNS027A</b>	37,6179532	140,6933013	27	Niida	1
<b>FNS028A</b>	37,617842	140,694298	28	Niida	1
<b>FNS032a</b>	37,611901	140,750481	32	Niida	1
<b>FNS034A</b>	37,662167	140,728889	34	Niida	1
<b>FNS038A</b>	37,674581	140,777199	38	Niida	1
<b>FNS040A</b>	37,66483	140,92381	40	Niida	1
<b>FNS058A</b>	37,690482	140,676149	58	Niida	1
<b>fns063a</b>	37,690251	140,759761	63	Niida	1
<b>FNS063B</b>	37,690251	140,759761	63	Niida	1
<b>FNS115</b>	37,694093	140,752205	115	Niida	2

Code échantillon	Latitude (WGS 1984)	Longitude (WGS 1984)	Code emplacement	Rivière	Campagne
<b>FNS116</b>	37,693042	140,698035	116	Niida	2
<b>FNS134</b>	37,690467	140,676124	134	Niida	2
<b>FNS135</b>	37,662240	140,728147	135	Niida	2
<b>FNS136</b>	37,663951	140,778289	136	Niida	2
<b>FNS137</b>	37,662406	140,791832	137	Niida	2
<b>FNS138a</b>	37,637476	140,795798	138	Niida	2
<b>FNS138b</b>	37,637977	140,796074	138	Niida	2
<b>FNS140</b>	37,615796	140,813253	140	Niida	2
<b>FNS141</b>	37,624151	140,810154	141	Niida	2
<b>FNS200</b>	37,6904496	140,6766641	200	Niida	3
<b>FNS201</b>	37,6926979	140,6985362	201	Niida	3
<b>FNS202</b>	37,6944924	140,7521696	202	Niida	3
<b>FNS203</b>	37,6642394	140,7784076	203	Niida	3
<b>FNS204</b>	37,6616828	140,7283602	204	Niida	3
<b>FNS208</b>	37,626824	140,889737	208	Niida	3
<b>FNS211a</b>	37,627096	140,881738	211	Niida	3
<b>FNS211b</b>	37,627096	140,881738	211	Niida	3
<b>FNS216</b>	37,63945	140,9332933	216	Niida	3
<b>FNS237a</b>	37,6135164	140,8008199	237	Niida	3
<b>FNS237b</b>	37,6135164	140,8008199	237	Niida	3
<b>FNS412</b>	37,6431176	141,0025057	412	Niida	4
<b>FNS433</b>	37,6642351	140,7784076	433	Niida	4
<b>FNS470</b>	37,6613368	140,910651	470	Niida	5
<b>FNS471</b>	37,6519727	140,8906015	471	Niida	5
<b>FNS473</b>	37,6636818	140,8998279	473	Niida	5
<b>FNS475</b>	37,694382	140,752175	475	Niida	5
<b>FNS477</b>	37,690509	140,676251	477	Niida	5
<b>FNS480</b>	37,6588577	140,6964004	480	Niida	5
<b>FNS481</b>	37,6621473	140,7110857	481	Niida	5
<b>FNS482</b>	37,6951992	140,7261647	482	Niida	5
<b>FNS483</b>	37,63945	140,933296	483	Niida	5
<b>FNS484</b>	37,632061	140,859279	484	Niida	5
<b>FNS485</b>	37,630542	140,862061	485	Niida	5
<b>FNS486</b>	37,627494	140,865536	486	Niida	5
<b>FNS487</b>	37,627755	140,874936	487	Niida	5
<b>FNS489</b>	37,664095	140,778413	489	Niida	5
<b>FNS491</b>	37,637476	140,796238	491	Niida	5
<b>FNS493</b>	37,6024892	140,7849834	493	Niida	5
<b>FNS494</b>	37,6409399	140,7689862	494	Niida	5

Code échantillon	Latitude (WGS 1984)	Longitude (WGS 1984)	Code emplacement	Rivière	Campagne
<b>FNS496</b>	37,643064	140,7309484	496	Niida	5
<b>FNS498</b>	37,691116	140,74463	498	Niida	5
<b>FNS581</b>	37,674029	140,703817	581	Niida	6
<b>FNS582</b>	37,662245	140,710906	582	Niida	6
<b>FNS584</b>	37,6217545	140,6962463	584	Niida	6
<b>FNS593</b>	37,654186	140,896448	593	Niida	6
<b>FNS599</b>	37,6511192	140,9571103	599	Niida	6
<b>FNS602</b>	37,6413546	141,0156357	602	Niida	6
<b>FOS148</b>	37,556548	140,874978	148	Ota	2
<b>FOS150</b>	37,564413	140,873058	150	Ota	2
<b>FOS246</b>	37,556837	140,875244	246	Ota	3
<b>FOS248</b>	37,5670135	140,877287	248	Ota	3
<b>FOS250</b>	37,569687	140,879102	250	Ota	3
<b>FOS254</b>	37,5783158	140,883291	254	Ota	3
<b>FOS256</b>	37,603593	140,953895	256	Ota	3
<b>FOS258</b>	37,6023886	140,9950036	258	Ota	3
<b>FOS398</b>	37,556548	140,874978	398	Ota	4
<b>FOS409</b>	37,601705	140,994029	409	Ota	4
<b>FOS501</b>	37,603593	140,953895	501	Ota	5
<b>FOS502</b>	37,597804	140,925148	502	Ota	5

## A.2 EMLACEMENT DES LAISSES DE CRUES

Code échantillon	Latitude (WGS 1984)	Longitude (WGS 1984)	Code emplacement	Rivière	Campagne
<b>FML059a</b>	37,719141	140,701086	59	Mano	1
<b>FML060a</b>	37,733341	140,733434	60	Mano	1
<b>FML061a</b>	37,735462	140,722874	61	Mano	1
<b>FML062a</b>	37,741994	140,726075	62	Mano	1
<b>FML066a</b>	37,707457	140,959095	66	Mano	1
<b>FML068a</b>	37,733188	140,808293	68	Mano	1
<b>FML069a</b>	37,719101	140,857358	69	Mano	1
<b>FML110</b>	37,736096	140,734301	110	Mano	2
<b>FML111</b>	37,7389	140,747886	111	Mano	2
<b>FML112</b>	37,720174	140,73046	112	Mano	2
<b>FML114</b>	37,724712	140,790601	114	Mano	2
<b>FML121</b>	37,741737	140,799295	121	Mano	2
<b>FML122</b>	37,716408	140,840329	122	Mano	2

Code échantillon	Latitude (WGS 1984)	Longitude (WGS 1984)	Code emplacement	Rivière	Campagne
<b>FML125</b>	37,708195	140,928637	125	Mano	2
<b>FML126</b>	37,695612	140,929791	126	Mano	2
<b>FML127</b>	37,701341	140,964802	127	Mano	2
<b>FML128</b>	37,688247	140,995763	128	Mano	2
<b>FML225</b>	37,688264	140,995708	225	Mano	3
<b>FML226</b>	37,701512	140,96465	226	Mano	3
<b>FML227</b>	37,695563	140,929569	227	Mano	3
<b>FML228</b>	37,708057	140,9284	228	Mano	3
<b>FML229</b>	37,724189	140,930471	229	Mano	3
<b>FML230</b>	37,721432	140,870119	230	Mano	3
<b>FML231</b>	37,714314	140,843607	231	Mano	3
<b>FML232</b>	37,716245	140,839549	232	Mano	3
<b>FML233</b>	37,741413	140,798481	233	Mano	3
<b>FML234</b>	37,733191	140,807709	234	Mano	3
<b>FML235</b>	37,724665	140,790469	235	Mano	3
<b>FML236</b>	37,724208	140,791787	236	Mano	3
<b>FML239</b>	37,722653	140,728741	239	Mano	3
<b>FML240</b>	37,718967	140,701045	240	Mano	3
<b>FML241</b>	37,738704	140,747869	241	Mano	3
<b>FML242</b>	37,736047	140,734274	242	Mano	3
<b>FML243</b>	37,742007	140,72595	243	Mano	3
<b>FML244</b>	37,732447	140,68833	244	Mano	3
<b>FML270</b>	37,691504	140,88621	270	Mano	3
<b>FML370</b>	37,721432	140,870119	370	Mano	4
<b>FML371</b>	37,714314	140,843607	371	Mano	4
<b>FML372</b>	37,716245	140,839549	372	Mano	4
<b>FML373</b>	37,741413	140,798481	373	Mano	4
<b>FML374</b>	37,733191	140,807709	374	Mano	4
<b>FML375</b>	37,724665	140,790469	375	Mano	4
<b>FML376</b>	37,724208	140,791787	376	Mano	4
<b>FML377</b>	37,722653	140,728741	377	Mano	4
<b>FML378</b>	37,718967	140,701045	378	Mano	4
<b>FML379</b>	37,732447	140,68833	379	Mano	4
<b>FML380</b>	37,736047	140,734274	380	Mano	4
<b>FML381</b>	37,738704	140,747869	381	Mano	4
<b>FML382</b>	37,742007	140,72595	382	Mano	4
<b>FML420</b>	37,691504	140,88621	420	Mano	4
<b>FML421</b>	37,688264	140,995708	421	Mano	4
<b>FML422</b>	37,701512	140,96465	422	Mano	4

Code échantillon	Latitude (WGS 1984)	Longitude (WGS 1984)	Code emplacement	Rivière	Campagne
<b>FML424</b>	37,708057	140,9284	424	Mano	4
<b>FML425</b>	37,724189	140,930471	425	Mano	4
<b>FML446</b>	37,688264	140,995708	446	Mano	5
<b>FML447</b>	37,701512	140,96465	447	Mano	5
<b>FML448</b>	37,724189	140,930471	448	Mano	5
<b>FML449</b>	37,721432	140,870119	449	Mano	5
<b>FML450</b>	37,714314	140,843607	450	Mano	5
<b>FML451</b>	37,716245	140,839549	451	Mano	5
<b>FML452</b>	37,741413	140,798481	452	Mano	5
<b>FML453</b>	37,733191	140,807709	453	Mano	5
<b>FML454</b>	37,724665	140,790469	454	Mano	5
<b>FML455</b>	37,724208	140,791787	455	Mano	5
<b>FML456</b>	37,722653	140,728741	456	Mano	5
<b>FML457</b>	37,718967	140,701045	457	Mano	5
<b>FML458</b>	37,732447	140,68833	458	Mano	5
<b>FML459</b>	37,738704	140,747869	459	Mano	5
<b>FML460</b>	37,736047	140,734274	460	Mano	5
<b>FML461</b>	37,742007	140,72595	461	Mano	5
<b>FML462</b>	37,695563	140,929569	462	Mano	5
<b>FML463</b>	37,708057	140,9284	463	Mano	5
<b>FML474</b>	37,691504	140,88621	474	Mano	5
<b>FML560</b>	37,742007	140,72595	560	Mano	6
<b>FML561</b>	37,736047	140,734274	561	Mano	6
<b>FML562</b>	37,738704	140,747869	562	Mano	6
<b>FML563</b>	37,732447	140,68833	563	Mano	6
<b>FML564</b>	37,718967	140,701045	564	Mano	6
<b>FML565</b>	37,722653	140,728741	565	Mano	6
<b>FML566</b>	37,724665	140,790469	566	Mano	6
<b>FML567</b>	37,724208	140,791787	567	Mano	6
<b>FML568</b>	37,733191	140,807709	568	Mano	6
<b>FML569</b>	37,741413	140,798481	569	Mano	6
<b>FML571</b>	37,716245	140,839549	571	Mano	6
<b>FML572</b>	37,721432	140,870119	572	Mano	6
<b>FML573</b>	37,724189	140,930471	573	Mano	6
<b>FML574</b>	37,695563	140,929569	574	Mano	6
<b>FML575</b>	37,708057	140,9284	575	Mano	6
<b>FML576</b>	37,691504	140,88621	576	Mano	6
<b>FML577</b>	37,701512	140,96465	577	Mano	6
<b>FML578</b>	37,688264	140,995708	578	Mano	6

Code échantillon	Latitude (WGS 1984)	Longitude (WGS 1984)	Code emplacement	Rivière	Campagne
<b>FNL031a</b>	37,611786	140,750163	31	Niida	1
<b>FNL033a</b>	37,662123	140,728361	33	Niida	1
<b>FNL034b</b>	37,662167	140,728889	34	Niida	1
<b>FNL035a</b>	37,663906	140,778399	35	Niida	1
<b>FNL036a</b>	37,662452	140,792434	36	Niida	1
<b>FNL037a</b>	37,674447	140,777187	37	Niida	1
<b>FNL039</b>	37,665559	140,923222	39	Niida	1
<b>FNL041a</b>	37,643889	140,956976	41	Niida	1
<b>FNL041b</b>	37,643889	140,956976	41	Niida	1
<b>FNL042a</b>	37,645545	140,967598	42	Niida	1
<b>FNL043a</b>	37,643699	141,003037	43	Niida	1
<b>FNL043b</b>	37,643699	141,003037	43	Niida	1
<b>FNL044a</b>	37,641935	141,015549	44	Niida	1
<b>FNL058a</b>	37,690482	140,676149	58	Niida	1
<b>FNL063b</b>	37,690251	140,759761	63	Niida	1
<b>FNL064a</b>	37,651141	140,958273	64	Niida	1
<b>FNL064b</b>	37,651141	140,958273	64	Niida	1
<b>FNL065a</b>	37,644737	140,957383	65	Niida	1
<b>FNL115</b>	37,694093	140,752205	115	Niida	2
<b>FNL116</b>	37,693042	140,698035	116	Niida	2
<b>FNL129</b>	37,640396	140,93553	129	Niida	2
<b>FNL130</b>	37,663399	140,904533	130	Niida	2
<b>FNL131</b>	37,66107	140,911219	131	Niida	2
<b>FNL132</b>	37,651532	140,889964	132	Niida	2
<b>FNL134</b>	37,690467	140,676124	134	Niida	2
<b>FNL135</b>	37,66224	140,728147	135	Niida	2
<b>FNL136</b>	37,663951	140,778289	136	Niida	2
<b>FNL137</b>	37,662421	140,792334	137	Niida	2
<b>FNL138</b>	37,637476	140,796238	138	Niida	2
<b>FNL139a</b>	37,613826	140,80078	139	Niida	2
<b>FNL139b</b>	37,613826	140,80078	139	Niida	2
<b>FNL141</b>	37,624151	140,810154	141	Niida	2
<b>FNL142</b>	37,602564	140,785535	142	Niida	2
<b>FNL143</b>	37,611684	140,750117	143	Niida	2
<b>FNL144</b>	37,621735	140,69549	144	Niida	2
<b>FNL200</b>	37,690509	140,676251	200	Niida	3
<b>FNL201</b>	37,693254	140,698268	201	Niida	3
<b>FNL202</b>	37,694382	140,752175	202	Niida	3
<b>FNL203</b>	37,664095	140,778413	203	Niida	3

Code échantillon	Latitude (WGS 1984)	Longitude (WGS 1984)	Code emplacement	Rivière	Campagne
<b>FNL205</b>	37,621797	140,695852	205	Niida	3
<b>FNL206</b>	37,662447	140,792363	206	Niida	3
<b>FNL209</b>	37,626863	140,882334	209	Niida	3
<b>FNL210</b>	37,626889	140,882307	210	Niida	3
<b>FNL213</b>	37,627768	140,875077	213	Niida	3
<b>FNL216</b>	37,639605	140,934393	216	Niida	3
<b>FNL217</b>	37,653387	140,889829	217	Niida	3
<b>FNL218</b>	37,663391	140,904497	218	Niida	3
<b>FNL219</b>	37,661099	140,91082	219	Niida	3
<b>FNL220</b>	37,643998	140,957104	220	Niida	3
<b>FNL221</b>	37,651338	140,958329	221	Niida	3
<b>FNL222</b>	37,645488	140,968067	222	Niida	3
<b>FNL223</b>	37,643776	141,00301	223	Niida	3
<b>FNL224</b>	37,642013	141,015405	224	Niida	3
<b>FNL237</b>	37,61385	140,800832	237	Niida	3
<b>FNL271</b>	37,602604	140,785265	271	Niida	3
<b>FNL411</b>	37,642013	141,015405	411	Niida	4
<b>FNL412</b>	37,643776	141,00301	412	Niida	4
<b>FNL413</b>	37,645488	140,968067	413	Niida	4
<b>FNL414</b>	37,651338	140,958329	414	Niida	4
<b>FNL415</b>	37,651185	140,957915	415	Niida	4
<b>FNL416</b>	37,643998	140,957104	416	Niida	4
<b>FNL417</b>	37,639605	140,934393	417	Niida	4
<b>FNL418</b>	37,626863	140,882334	418	Niida	4
<b>FNL419</b>	37,627768	140,875077	419	Niida	4
<b>FNL426</b>	37,661099	140,91082	426	Niida	4
<b>FNL427</b>	37,653387	140,889829	427	Niida	4
<b>FNL428</b>	37,664013	140,899785	428	Niida	4
<b>FNL429</b>	37,694382	140,752175	429	Niida	4
<b>FNL430</b>	37,693254	140,698268	430	Niida	4
<b>FNL431</b>	37,690509	140,676251	431	Niida	4
<b>FNL432</b>	37,662099	140,728151	432	Niida	4
<b>FNL433</b>	37,621797	140,695852	433	Niida	4
<b>FNL434</b>	37,662447	140,792363	434	Niida	4
<b>FNL435</b>	37,637476	140,796238	435	Niida	4
<b>FNL436</b>	37,61385	140,800832	436	Niida	4
<b>FNL437</b>	37,602604	140,785265	437	Niida	4
<b>FNL438</b>	37,621797	140,695852	438	Niida	4
<b>FNL464</b>	37,642013	141,015405	464	Niida	5

Code échantillon	Latitude (WGS 1984)	Longitude (WGS 1984)	Code emplacement	Rivière	Campagne
<b>FNL466</b>	37,645488	140,968067	466	Niida	5
<b>FNL467</b>	37,643998	140,957104	467	Niida	5
<b>FNL468</b>	37,651338	140,958329	468	Niida	5
<b>FNL469</b>	37,651185	140,957915	469	Niida	5
<b>FNL470</b>	37,661099	140,91082	470	Niida	5
<b>FNL471</b>	37,653387	140,889829	471	Niida	5
<b>FNL473</b>	37,664013	140,899785	473	Niida	5
<b>FNL475</b>	37,694382	140,752175	475	Niida	5
<b>FNL476</b>	37,693254	140,698268	476	Niida	5
<b>FNL477</b>	37,690509	140,676251	477	Niida	5
<b>FNL479</b>	37,662099	140,728151	479	Niida	5
<b>FNL483</b>	37,639605	140,934393	483	Niida	5
<b>FNL485</b>	37,630542	140,862061	485	Niida	5
<b>FNL488</b>	37,627768	140,875077	488	Niida	5
<b>FNL489</b>	37,664095	140,778413	489	Niida	5
<b>FNL490</b>	37,662447	140,792363	490	Niida	5
<b>FNL491</b>	37,637476	140,796238	491	Niida	5
<b>FNL492</b>	37,61385	140,800832	492	Niida	5
<b>FNL493</b>	37,602604	140,785265	493	Niida	5
<b>FNL497</b>	37,621797	140,695852	497	Niida	5
<b>FNL579</b>	37,690509	140,676251	579	Niida	6
<b>FNL580</b>	37,693254	140,698268	580	Niida	6
<b>FNL583</b>	37,662099	140,728151	583	Niida	6
<b>FNL584</b>	37,621797	140,695852	584	Niida	6
<b>FNL585</b>	37,61385	140,800832	585	Niida	6
<b>FNL586</b>	37,602604	140,785265	586	Niida	6
<b>FNL587</b>	37,664095	140,778413	587	Niida	6
<b>FNL588</b>	37,662447	140,792363	588	Niida	6
<b>FNL589</b>	37,637476	140,796238	589	Niida	6
<b>FNL590</b>	37,694382	140,752175	590	Niida	6
<b>FNL591</b>	37,664013	140,899785	591	Niida	6
<b>FNL592</b>	37,653387	140,889829	592	Niida	6
<b>FNL594</b>	37,661099	140,91082	594	Niida	6
<b>FNL595</b>	37,627768	140,875077	595	Niida	6
<b>FNL596</b>	37,639605	140,934393	596	Niida	6
<b>FNL597</b>	37,643998	140,957104	597	Niida	6
<b>FNL598</b>	37,651338	140,958329	598	Niida	6
<b>FNL599</b>	37,651185	140,957915	599	Niida	6
<b>FNL600</b>	37,645488	140,968067	600	Niida	6

Code échantillon	Latitude (WGS 1984)	Longitude (WGS 1984)	Code emplacement	Rivière	Campagne
<b>FNL602</b>	37,642013	141,015405	602	Niida	6
<b>FOL147</b>	37,59786	140,924968	147	Ota	2
<b>FOL148</b>	37,5566	140,874637	148	Ota	2
<b>FOL149</b>	37,556835	140,875295	149	Ota	2
<b>FOL150</b>	37,564413	140,873058	150	Ota	2
<b>FOL151</b>	37,563919	140,871745	151	Ota	2
<b>FOL152</b>	37,569061	140,878886	152	Ota	2
<b>FOL153</b>	37,56944	140,879021	153	Ota	2
<b>FOL154a</b>	37,569677	140,876961	154	Ota	2
<b>FOL154b</b>	37,569677	140,876961	154	Ota	2
<b>FOL155</b>	37,579084	140,874908	155	Ota	2
<b>FOL156</b>	37,582265	140,863867	156	Ota	2
<b>FOL157</b>	37,582126	140,868798	157	Ota	2
<b>FOL158</b>	37,604955	140,985457	158	Ota	2
<b>FOL159</b>	37,601635	140,993949	159	Ota	2
<b>FOL160</b>	37,603678	140,953769	160	Ota	2
<b>FOL161</b>	37,603548	140,955046	161	Ota	2
<b>FOL245</b>	37,556548	140,874978	245	Ota	3
<b>FOL246</b>	37,556837	140,875244	246	Ota	3
<b>FOL247</b>	37,564416	140,87292	247	Ota	3
<b>FOL249</b>	37,566607	140,878025	249	Ota	3
<b>FOL250</b>	37,569687	140,879102	250	Ota	3
<b>FOL251</b>	37,569372	140,877647	251	Ota	3
<b>FOL252</b>	37,579581	140,874905	252	Ota	3
<b>FOL253</b>	37,578028	140,88418	253	Ota	3
<b>FOL255</b>	37,597804	140,925148	255	Ota	3
<b>FOL256</b>	37,603593	140,953895	256	Ota	3
<b>FOL257</b>	37,601705	140,994029	257	Ota	3
<b>FOL259</b>	37,591206	141,02227	259	Ota	3
<b>FOL260</b>	37,591387	141,021636	260	Ota	3
<b>FOL398</b>	37,556548	140,874978	398	Ota	4
<b>FOL399</b>	37,556837	140,875244	399	Ota	4
<b>FOL400</b>	37,564416	140,87292	400	Ota	4
<b>FOL401</b>	37,566607	140,878025	401	Ota	4
<b>FOL402</b>	37,569677	140,876961	402	Ota	4
<b>FOL404</b>	37,569687	140,879102	404	Ota	4
<b>FOL405</b>	37,579581	140,874905	405	Ota	4
<b>FOL406</b>	37,578028	140,88418	406	Ota	4
<b>FOL407</b>	37,597804	140,925148	407	Ota	4

Code échantillon	Latitude (WGS 1984)	Longitude (WGS 1984)	Code emplacement	Rivière	Campagne
<b>FOL409</b>	37,601705	140,994029	409	Ota	4
<b>FOL410</b>	37,591206	141,02227	410	Ota	4
<b>FOL499</b>	37,601705	140,994029	499	Ota	5
<b>FOL500</b>	37,591206	141,02227	500	Ota	5
<b>FOL501</b>	37,603593	140,953895	501	Ota	5
<b>FOL502</b>	37,597804	140,925148	502	Ota	5
<b>FOL503</b>	37,556548	140,874978	503	Ota	5
<b>FOL504</b>	37,556837	140,875244	504	Ota	5
<b>FOL505</b>	37,564416	140,87292	505	Ota	5
<b>FOL506</b>	37,566607	140,878025	506	Ota	5
<b>FOL507</b>	37,569687	140,879102	507	Ota	5
<b>FOL508</b>	37,569677	140,876961	508	Ota	5
<b>FOL509</b>	37,579581	140,874905	509	Ota	5
<b>FOL510</b>	37,578028	140,88418	510	Ota	5
<b>FOL603</b>	37,556548	140,874978	603	Ota	6
<b>FOL604</b>	37,556837	140,875244	604	Ota	6
<b>FOL605</b>	37,564416	140,87292	605	Ota	6
<b>FOL606</b>	37,567039	140,87711	606	Ota	6
<b>FOL607</b>	37,569687	140,879102	607	Ota	6
<b>FOL608</b>	37,566607	140,878025	608	Ota	6
<b>FOL609</b>	37,579581	140,874905	609	Ota	6
<b>FOL610</b>	37,578028	140,88418	610	Ota	6
<b>FOL611</b>	37,597804	140,925148	611	Ota	6
<b>FOL612</b>	37,603593	140,953895	612	Ota	6
<b>FOL613</b>	37,601705	140,994029	613	Ota	6
<b>FOL614</b>	37,591206	141,02227	614	Ota	6

## ANNEXE B. RÉSULTATS DES ANALYSES

## B.1 SPECTROMETRIE GAMMA

## B.1.1 ACTIVITES DANS LES SOLS

Code échantillon	Activité en $^{137}\text{Cs}$ (Bq.kg $^{-1}$ )	Incertitude	Activité en $^{134}\text{Cs}$ (Bq.kg $^{-1}$ )	Incertitude	Activité en $^{110\text{m}}\text{Ag}$ (Bq.kg $^{-1}$ )	Incertitude
<b>FMS059A</b>	18701	20	15212	42	74	7
<b>FMS060A</b>	30592	26	24704	54	144	8
<b>FMS061A</b>	13401	18	11073	39	67	6
<b>FMS062A</b>	15809	38	13809	84	73	14
<b>FMS068A</b>	18291	22	14811	48	125	9
<b>FMS110</b>	27294	34	21017	73	104	14
<b>FMS113</b>	13367	18	12462	46	103	9
<b>FMS121</b>	189	3	154	6	5	2
<b>FMS124</b>	3276	9	2588	20	11	4
<b>FMS126</b>	839	6	686	13	6	3
<b>FMS230</b>	1798	7	1475	17	6	6
<b>FMS233</b>	2648	5	2315	13	17	4
<b>FMS235</b>	10009	19	8667	49	75	16
<b>FMS240</b>	32407	34	27063	85	91	26
<b>FMS241</b>	1596	8	1380	20	6	8
<b>FMS242</b>	5150	13	4475	34	19	11
<b>FMS243</b>	19395	26	16682	66	133	22
<b>FMS244</b>	65715	92	52890	233	209	71
<b>FMS270a</b>	2708	8	2245	20	14	8
<b>FMS270b</b>	4102	11	3330	26	31	8

Code échantillon	Activité en $^{137}\text{Cs}$ (Bq.kg $^{-1}$ )	Incertitude	Activité en $^{134}\text{Cs}$ (Bq.kg $^{-1}$ )	Incertitude	Activité en $^{110\text{m}}\text{Ag}$ (Bq.kg $^{-1}$ )	Incertitude
<b>FMS446</b>	500	3	450	11	11	11
<b>FMS462</b>	1078	5	1023	17	<LD	
<b>FMS565</b>	17817	30	16909	105	120	80
<b>FMS575</b>	781	5	739	18	<LD	
<b>FNS026A</b>	159781	105	139762	232	245	35
<b>FNS027A</b>	22410	24	18892	53	38	8
<b>FNS028A</b>	51944	29	46848	64	122	9
<b>FNS032a</b>	19929	23	16403	51	47	8
<b>FNS034A</b>	18494	25	16180	55	75	9
<b>FNS038A</b>	50088	40	44015	89	330	14
<b>FNS040A</b>	13176	23	10441	47	73	8
<b>FNS058A</b>	3927	11	3202	23	7	4
<b>FNS063a</b>	70472	42	59805	87	412	12
<b>FNS063B</b>	19929	26	17518	58	142	10
<b>FNS115</b>	57497	44	49271	104	384	23
<b>FNS116</b>	17518	22	14975	51	61	11
<b>FNS134</b>	7834	19	7052	45	25	8
<b>FNS135</b>	47784	45	41602	107	167	21
<b>FNS136</b>	49498	34	39988	76	241	16
<b>FNS137</b>	8760	14	7172	33	46	7
<b>FNS138a</b>	461	3	369	7	0	2
<b>FNS138b</b>	27376	22	22015	51	156	11
<b>FNS140</b>	188446	99	161804	231	1043	48
<b>FNS141</b>	148299	81	120307	187	760	41
<b>FNS200</b>	12483	20	9980	57	8	33

Code échantillon	Activité en $^{137}\text{Cs}$ (Bq.kg $^{-1}$ )	Incertitude	Activité en $^{134}\text{Cs}$ (Bq.kg $^{-1}$ )	Incertitude	Activité en $^{110\text{m}}\text{Ag}$ (Bq.kg $^{-1}$ )	Incertitude
<b>FNS201</b>	35497	42	30815	109	61	34
<b>FNS202</b>	74	3	63	7	2	7
<b>FNS203</b>	1197	5	988	14	5	6
<b>FNS204</b>	15017	23	12005	68	4	49
<b>FNS208</b>	106	2	64	5	<LD	
<b>FNS211a</b>	39	2	17	5	2	7
<b>FNS211b</b>	136	2	112	5	<LD	
<b>FNS216</b>	1226	8	1016	19	0	
<b>FNS237a</b>	30395	32	24418	81	144	25
<b>FNS237b</b>	36992	42	29509	104	152	31
<b>FNS412</b>	19	1	13	2	<LD	
<b>FNS433</b>	430	4	412	11	8	7
<b>FNS470</b>	1691	7	1601	22	<LD	
<b>FNS471</b>	3549	7	3350	24	9	15
<b>FNS473</b>	8044	15	7583	47	25	27
<b>FNS475</b>	49	1	44	4	1	7
<b>FNS477</b>	197	2	189	8	9	12
<b>FNS480</b>	13635	22	12971	71	8	40
<b>FNS482</b>	22314	29	21124	92	91	51
<b>FNS483</b>	1572	7	1490	23	<LD	
<b>FNS484</b>	14849	22	14203	74	2	42
<b>FNS485</b>	23751	22	22382	73	229	46
<b>FNS486</b>	2125	9	2028	29	<LD	
<b>FNS487</b>	12455	27	11578	87	259	58
<b>FNS489</b>	1824	7	1684	22	<LD	

Code échantillon	Activité en $^{137}\text{Cs}$ (Bq.kg $^{-1}$ )	Incertitude	Activité en $^{134}\text{Cs}$ (Bq.kg $^{-1}$ )	Incertitude	Activité en $^{110\text{m}}\text{Ag}$ (Bq.kg $^{-1}$ )	Incertitude
<b>FNS491</b>	5656	10	5457	36	52	24
<b>FNS493</b>	78025	41	74916	144	129	93
<b>FNS494</b>	45544	31	43304	103	4	56
<b>FNS495</b>	39958	26	37869	83	87	45
<b>FNS496</b>	66413	62	64099	203	220	107
<b>FNS498</b>	12071	20	11571	65	<LD	
<b>FNS581</b>	23747	34	22170	118	<LD	
<b>FNS582</b>	10143	26	9639	92	48	68
<b>FNS584</b>	27347	35	26449	131	<LD	
<b>FNS593</b>	5000	15	4731	53	7	45
<b>FNS599</b>	1528	11	1276	35	<LD	
<b>FNS602</b>	31	1	24	4	21	17
<b>FOS148</b>	644446	169	516538	494	3306	291
<b>FOS150</b>	27310	25	25093	62	104	11
<b>FOS246</b>	71401	89	62293	228	484	68
<b>FOS248</b>	9912	32	8471	80	98	26
<b>FOS250</b>	39043	63	32306	158	243	49
<b>FOS254</b>	2815	9	2303	22	25	8
<b>FOS256</b>	807	5	644	15	<LD	
<b>FOS258</b>	506	6	404	16	1	6
<b>FOS398</b>	29040	37	27415	108	204	37
<b>FOS501</b>	773	3	628	8	<LD	
<b>FOS502</b>	4413	7	4199	26	43	18

## B.1.2 ACTIVITES DANS LES LAISSES DE CRUES

Code échantillon	Activité en $^{137}\text{Cs}$ (Bq.kg <sup>-1</sup> )	Incertitude	Activité en $^{134}\text{Cs}$ (Bq.kg <sup>-1</sup> )	Incertitude	Activité en $^{110\text{m}}\text{Ag}$ (Bq.kg <sup>-1</sup> )	Incertitude
<b>FML059a</b>	13238	19	10996	39	30	6
<b>FML060a</b>	51727	40	42835	83	349	13
<b>FML061a</b>	6960	12	5828	26	30	4
<b>FML062a</b>	3690	9	3048	19	12	3
<b>FML066a</b>	14801	20	11585	42	69	7
<b>FML068a</b>	33279	30	27205	64	189	11
<b>FML069a</b>	20876	20	16843	42	123	7
<b>FML110</b>	10335	15	8423	34	37	7
<b>FML111</b>	27346	38	23451	87	116	18
<b>FML112</b>	42004	62	36727	145	<LD	
<b>FML114</b>	13098	15	10888	33	61	7
<b>FML121</b>	7502	12	6078	26	20	5
<b>FML122</b>	146920	92	136867	234	1016	45
<b>FML123</b>	7341	20	6900	50	45	9
<b>FML125</b>	963	5	826	11	2	3
<b>FML126</b>	20843	27	16728	60	121	13
<b>FML127</b>	9971	16	8091	36	70	8
<b>FML128</b>	339	2	270	5	2	1
<b>FML225</b>	18070	45	15478	114	89	33
<b>FML226</b>	6576	20	5659	50	31	7
<b>FML227</b>	3750	11	3103	27	39	9
<b>FML228</b>	2816	12	2471	31	14	10
<b>FML229</b>	2979	14	2615	37	<LD	
<b>FML230</b>	2101	11	1717	27	18	8

Code échantillon	Activité en $^{137}\text{Cs}$ (Bq.kg $^{-1}$ )	Incertitude	Activité en $^{134}\text{Cs}$ (Bq.kg $^{-1}$ )	Incertitude	Activité en $^{110\text{m}}\text{Ag}$ (Bq.kg $^{-1}$ )	Incertitude
<b>FML231</b>	1896	10	1576	24	<LD	
<b>FML232</b>	261589	152	225966	385	1292	116
<b>FML233</b>	5452	14	4522	34	20	10
<b>FML234</b>	889	6	729	14	6	5
<b>FML235</b>	5629	12	4574	30	11	8
<b>FML236</b>	6982	17	6018	44	33	14
<b>FML239</b>	16185	30	14124	77	28	23
<b>FML240</b>	24708	35	19799	85	39	23
<b>FML241</b>	11697	19	9736	47	65	14
<b>FML242</b>	8679	17	7118	41	37	11
<b>FML243</b>	8461	28	7364	72	29	22
<b>FML244</b>	9525	23	8188	58	26	18
<b>FML270</b>	5395	12	4470	29	31	10
<b>FML370</b>	1721	6	1407	15	1	6
<b>FML371</b>	13808	25	13081	75	138	28
<b>FML372</b>	20099	19	16409	51	91	19
<b>FML373</b>	1359	6	1290	17	4	8
<b>FML374</b>	9710	19	9277	56	32	21
<b>FML375</b>	4790	11	4590	32	10	12
<b>FML376</b>	4600	12	4426	36	2	13
<b>FML377</b>	21488	28	20313	83	99	30
<b>FML378</b>	12415	22	11670	72	13	43
<b>FML379</b>	9900	19	9354	56	29	21
<b>FML380</b>	1513	8	1430	23	19	11
<b>FML381</b>	3536	8	3360	25	4	10

Code échantillon	Activité en $^{137}\text{Cs}$ (Bq.kg $^{-1}$ )	Incertitude	Activité en $^{134}\text{Cs}$ (Bq.kg $^{-1}$ )	Incertitude	Activité en $^{110\text{m}}\text{Ag}$ (Bq.kg $^{-1}$ )	Incertitude
<b>FML382</b>	6390	17	5186	42	14	6
<b>FML420</b>	3316	9	3179	26	24	10
<b>FML421</b>	4956	11	4092	29	27	11
<b>FML422</b>	4307	11	4096	34	9	13
<b>FML423</b>	5823	12	5468	39	14	24
<b>FML424</b>	750	3	613	9	2	4
<b>FML425</b>	9822	21	9441	62	48	23
<b>FML446</b>	5899	10	4720	28	29	17
<b>FML447</b>	5947	14	5542	45	52	29
<b>FML448</b>	10608	11	8102	31	38	21
<b>FML449</b>	3368	12	3216	39	6	24
<b>FML450</b>	8419	16	6426	44	74	30
<b>FML451</b>	21634	53	20607	171	284	105
<b>FML452</b>	6179	11	4986	31	<LD	
<b>FML453</b>	16056	26	15168	84	34	49
<b>FML454</b>	13552	21	12922	66	52	34
<b>FML455</b>	6646	9	6239	28	40	18
<b>FML456</b>	10760	18	10114	59	18	37
<b>FML457</b>	10643	15	10298	53	65	34
<b>FML458</b>	20422	26	19463	85	117	50
<b>FML459</b>	10982	16	8834	47	<LD	
<b>FML460</b>	3486	10	3298	31	29	19
<b>FML461</b>	1536	5	1270	14	5	9
<b>FML463</b>	4619	14	4454	46	9	27
<b>FML560</b>	14014	30	13318	105	71	75

Code échantillon	Activité en $^{137}\text{Cs}$ (Bq.kg $^{-1}$ )	Incertitude	Activité en $^{134}\text{Cs}$ (Bq.kg $^{-1}$ )	Incertitude	Activité en $^{110\text{m}}\text{Ag}$ (Bq.kg $^{-1}$ )	Incertitude
<b>FML561</b>	7210	21	5878	65	5	50
<b>FML562</b>	7938	17	7725	63	<LD	
<b>FML563</b>	4421	16	4129	55	<LD	
<b>FML564</b>	20107	29	16071	89	20	67
<b>FML565</b>	15535	43	12524	132	5	100
<b>FML566</b>	6455	16	6117	55	<LD	
<b>FML567</b>	4425	14	3662	44	14	34
<b>FML568</b>	19587	28	18412	96	129	74
<b>FML569</b>	8585	13	6991	41	<LD	
<b>FML571</b>	17969	26	16928	89	<LD	
<b>FML572</b>	2823	9	2743	33	<LD	
<b>FML573</b>	234	5	154	14	6	27
<b>FML574</b>	1616	7	1531	24	40	25
<b>FML575</b>	781	5	739	18	<LD	
<b>FML576</b>	76	2	77	6	<LD	
<b>FML577</b>	5334	14	5130	53	26	47
<b>FML578</b>	284	3	289	13	<LD	
<b>FNL030a</b>	64093	50	52728	105	174	16
<b>FNL031a</b>	73644	53	58785	111	141	19
<b>FNL033a</b>	16898	32	13738	68	28	11
<b>FNL034b</b>	715783	182	581734	374	3094	60
<b>FNL035a</b>	10385	16	8618	34	29	5
<b>FNL036a</b>	8031	18	6630	37	82	7
<b>FNL037a</b>	91575	58	74259	122	674	22
<b>FNL041a</b>	9020	16	7920	35	27	6

Code échantillon	Activité en $^{137}\text{Cs}$ (Bq.kg $^{-1}$ )	Incertitude	Activité en $^{134}\text{Cs}$ (Bq.kg $^{-1}$ )	Incertitude	Activité en $^{110\text{m}}\text{Ag}$ (Bq.kg $^{-1}$ )	Incertitude
<b>FNL041b</b>	9150	14	7584	30	39	5
<b>FNL042a</b>	42301	41	33746	85	321	16
<b>FNL043a</b>	14212	26	12691	58	114	10
<b>FNL043b</b>	53445	50	44671	108	467	19
<b>FNL044a</b>	20192	49	17448	107	172	18
<b>FNL058a</b>	71014	54	59431	112	157	15
<b>FNL063b</b>	5577	12	4521	25	28	4
<b>FNL064a</b>	47069	35	38955	72	339	11
<b>FNL064b</b>	12138	16	9733	33	63	5
<b>FNL065a</b>	5970	10	5001	21	14	3
<b>FNL115</b>	19600	24	15645	53	73	12
<b>FNL116</b>	47150	43	40450	101	132	21
<b>FNL129</b>	1651	6	1536	16	7	4
<b>FNL130</b>	7850	11	6241	25	18	6
<b>FNL131</b>	38368	31	31481	72	237	16
<b>FNL132</b>	28356	30	24523	71	92	15
<b>FNL134</b>	6939	17	6247	40	22	8
<b>FNL135</b>	37786	36	32897	85	132	17
<b>FNL136</b>	13885	17	11238	39	23	9
<b>FNL137</b>	6927	10	5582	23	13	5
<b>FNL138</b>	15591	20	14475	50	31	9
<b>FNL139a</b>	18717	19	15218	43	28	8
<b>FNL139b</b>	172367	78	140204	176	591	35
<b>FNL141</b>	137058	62	127161	156	633	30
<b>FNL142</b>	3101	10	2705	23	8	5

Code échantillon	Activité en $^{137}\text{Cs}$ (Bq.kg $^{-1}$ )	Incertitude	Activité en $^{134}\text{Cs}$ (Bq.kg $^{-1}$ )	Incertitude	Activité en $^{110\text{m}}\text{Ag}$ (Bq.kg $^{-1}$ )	Incertitude
FNL143	52030	38	44863	89	99	17
FNL144	65600	53	60817	133	160	24
FNL200	10395	31	8328	75	22	19
FNL201	27761	61	22183	146	20	36
FNL202	9644	34	8303	84	54	24
FNL203	12583	24	10983	61	46	17
FNL204	48680	88	39100	213	91	55
FNL205	12950	37	10285	87	17	22
FNL206	12283	39	10590	97	97	29
FNL209	18197	32	15705	81	227	26
FNL210	28744	60	24287	148	246	44
FNL213	2362	25	2108	62	23	22
FNL216	1805	8	1560	19	8	7
FNL217	19916	52	16026	126	110	35
FNL218	4544	17	3938	43	24	14
FNL219	46977	68	40582	173	319	52
FNL220	5791	25	5019	64	26	20
FNL221	29638	66	25641	166	174	50
FNL222	33417	51	28885	130	223	39
FNL223	3788	20	3147	49	15	15
FNL224	12771	23	10620	56	134	17
FNL237	23281	57	20367	142	87	39
FNL271	112182	142	97402	357	229	97
FNL411	1159	6	1113	19	4	9
FNL412	7238	17	6768	52	8	21

Code échantillon	Activité en $^{137}\text{Cs}$ (Bq.kg $^{-1}$ )	Incertitude	Activité en $^{134}\text{Cs}$ (Bq.kg $^{-1}$ )	Incertitude	Activité en $^{110\text{m}}\text{Ag}$ (Bq.kg $^{-1}$ )	Incertitude
FNL413	7924	15	6581	40	9	14
FNL414	17011	30	16161	96	42	53
FNL415	5100	13	4865	38	8	15
FNL416	6252	12	5484	35	42	14
FNL417	1513	5	1228	13	10	6
FNL418	726	5	699	16	<LD	
FNL419	12242	19	11697	56	43	21
FNL426	21589	34	20669	102	116	39
FNL427	26900	34	25727	101	122	37
FNL428	21357	30	20430	90	103	32
FNL429	9631	17	9281	52	66	21
FNL430	11599	20	10827	63	<LD	
FNL431	3850	11	3640	32	18	14
FNL432	27482	34	26586	102	73	35
FNL433	21540	23	17574	61	16	21
FNL434	8163	15	7667	45	20	17
FNL435	13583	17	12868	52	1	20
FNL436	19423	23	18527	68	20	26
FNL437	29804	29	28444	87	39	31
FNL438	23586	28	22387	82	<LD	
FNL464	9291	18	8801	60	54	35
FNL465	21148	20	20128	66	<LD	
FNL466	4009	9	3276	28	8	17
FNL467	10099	15	8308	44	2	24
FNL468	43467	42	40790	136	445	82

Code échantillon	Activité en $^{137}\text{Cs}$ (Bq.kg $^{-1}$ )	Incertitude	Activité en $^{134}\text{Cs}$ (Bq.kg $^{-1}$ )	Incertitude	Activité en $^{110\text{m}}\text{Ag}$ (Bq.kg $^{-1}$ )	Incertitude
<b>FNL469</b>	2024	5	1648	16	<LD	
<b>FNL470</b>	42774	47	32575	129	203	84
<b>FNL471</b>	39999	32	39402	112	211	67
<b>FNL473</b>	18734	26	17739	86	123	51
<b>FNL475</b>	8771	14	8647	48	21	30
<b>FNL476</b>	19556	28	18420	92	<LD	
<b>FNL477</b>	7959	19	7510	61	69	34
<b>FNL479</b>	41809	49	39107	157	65	90
<b>FNL483</b>	17327	27	16415	89	116	53
<b>FNL485</b>	32517	22	31547	76	343	47
<b>FNL488</b>	4683	10	3862	28	31	16
<b>FNL489</b>	19220	29	18037	94	109	59
<b>FNL490</b>	7500	12	7281	40	15	26
<b>FNL491</b>	5274	13	4962	43	35	29
<b>FNL492</b>	53998	45	40670	122	232	81
<b>FNL493</b>	17837	22	17386	72	<LD	
<b>FNL497</b>	20606	23	19638	74	2	39
<b>FNL579</b>	7127	31	6666	108	<LD	
<b>FNL580</b>	12813	41	12057	140	215	114
<b>FNL583</b>	48917	64	47614	236	343	185
<b>FNL584</b>	34711	66	33240	229	<LD	
<b>FNL585</b>	56813	69	46057	212	133	150
<b>FNL586</b>	18641	33	17969	120	118	97
<b>FNL587</b>	63003	103	59075	353	381	266
<b>FNL588</b>	19636	22	19003	81	109	67

Code échantillon	Activité en $^{137}\text{Cs}$ (Bq.kg $^{-1}$ )	Incertitude	Activité en $^{134}\text{Cs}$ (Bq.kg $^{-1}$ )	Incertitude	Activité en $^{110\text{m}}\text{Ag}$ (Bq.kg $^{-1}$ )	Incertitude
<b>FNL589</b>	13502	15	13055	57	<LD	
<b>FNL590</b>	6437	14	6230	52	<LD	
<b>FNL591</b>	16096	24	13299	73	13	51
<b>FNL592</b>	20601	39	20142	147	<LD	
<b>FNL594</b>	22075	35	21083	121	87	86
<b>FNL595</b>	5337	11	5077	39	37	29
<b>FNL596</b>	3189	10	2542	30	15	25
<b>FNL597</b>	17603	55	16831	192	290	142
<b>FNL598</b>	11776	31	9668	97	35	70
<b>FNL599</b>	5591	17	5489	64	27	52
<b>FNL600</b>	6824	16	5522	50	22	39
<b>FNL601</b>	10534	32	10147	119	36	96
<b>FNL602</b>	3463	18	3268	62	<LD	
<b>FOL147</b>	85538	54	68421	118	376	22
<b>FOL148</b>	81214	45	66413	102	361	20
<b>FOL149</b>	50482	45	43273	102	197	19
<b>FOL150</b>	57192	46	49069	137	202	91
<b>FOL151</b>	83810	46	71090	105	321	20
<b>FOL152</b>	3908	9	3203	26	<LD	
<b>FOL153</b>	247632	97	196761	283	2012	205
<b>FOL154a</b>	274379	176	237646	529	<LD	
<b>FOL154b</b>	42136	36	34303	80	260	16
<b>FOL155</b>	18560	17	15998	39	73	7
<b>FOL156</b>	20236	23	17738	52	44	9
<b>FOL157</b>	8796	11	7972	27	39	4

Code échantillon	Activité en $^{137}\text{Cs}$ (Bq.kg $^{-1}$ )	Incertitude	Activité en $^{134}\text{Cs}$ (Bq.kg $^{-1}$ )	Incertitude	Activité en $^{110\text{m}}\text{Ag}$ (Bq.kg $^{-1}$ )	Incertitude
<b>FOL158</b>	6981	18	6354	43	76	8
<b>FOL159</b>	6820	13	5819	29	30	6
<b>FOL160</b>	4807	14	4071	32	17	6
<b>FOL161</b>	66938	49	56759	111	344	21
<b>FOL245</b>	44955	47	38493	118	105	32
<b>FOL246</b>	23840	48	20145	120	78	35
<b>FOL247</b>	109626	121	89938	295	496	82
<b>FOL249</b>	17678	35	14524	84	65	21
<b>FOL250</b>	64195	105	55606	259	649	71
<b>FOL251</b>	39458	78	33763	193	216	54
<b>FOL252</b>	16340	30	12888	72	16	19
<b>FOL253</b>	58892	95	48409	231	414	64
<b>FOL255</b>	116424	169	99237	418	595	113
<b>FOL256</b>	16549	33	13293	79	35	20
<b>FOL257</b>	4243	15	3503	36	22	10
<b>FOL259</b>	23	1	21	4	<LD	
<b>FOL260</b>	22	1	21	2	<LD	
<b>FOL398</b>	50347	46	47530	136	346	47
<b>FOL399</b>	11136	19	10442	56	47	21
<b>FOL400</b>	8632	13	8159	39	26	14
<b>FOL401</b>	12452	18	11780	54	27	19
<b>FOL402</b>	12438	20	11800	57	20	20
<b>FOL404</b>	16554	24	15657	70	121	25
<b>FOL405</b>	13518	16	12766	46	6	16
<b>FOL406</b>	13835	18	13259	55	43	19

Code échantillon	Activité en $^{137}\text{Cs}$ (Bq.kg $^{-1}$ )	Incertitude	Activité en $^{134}\text{Cs}$ (Bq.kg $^{-1}$ )	Incertitude	Activité en $^{110\text{m}}\text{Ag}$ (Bq.kg $^{-1}$ )	Incertitude
<b>FOL409</b>	5089	14	4802	40	25	15
<b>FOL499</b>	10795	19	10362	66	36	43
<b>FOL500</b>	156	2	144	6	2	7
<b>FOL501</b>	115135	85	108211	273	308	159
<b>FOL502</b>	48248	24	38700	69	140	38
<b>FOL503</b>	33939	35	32003	114	20	62
<b>FOL504</b>	17937	22	16697	71	57	44
<b>FOL505</b>	31072	31	29143	97	136	54
<b>FOL506</b>	39	1	31	5	6	13
<b>FOL507</b>	22030	20	17664	58	41	33
<b>FOL508</b>	24163	30	22835	93	139	50
<b>FOL509</b>	4486	9	4317	31	42	21
<b>FOL510</b>	51528	45	48648	141	244	75
<b>FOL603</b>	28870	50	27454	174	234	122
<b>FOL604</b>	23758	52	21934	177	378	140
<b>FOL605</b>	35263	60	33329	209	145	146
<b>FOL606</b>	15995	19	14864	64	56	52
<b>FOL607</b>	25329	22	20617	69	<LD	
<b>FOL608</b>	19151	29	17991	100	<LD	
<b>FOL609</b>	15950	24	14947	83	1	66
<b>FOL610</b>	23200	40	22284	139	<LD	
<b>FOL611</b>	72323	87	59468	268	204	184
<b>FOL612</b>	4530	37	2907	93	8	109
<b>FOL613</b>	8230	34	7633	117	140	95
<b>FOL614</b>	74	2	77	7	14	18

## B.2 INAA

## B.2.1 TENEURS ÉLÉMENTAIRES DANS LES SOLS

Code échantillon	Méthode d'irradiation	Type de sol	Ce (mg/kg)	Co (mg/kg)	Cs (mg/kg)	Fe (%)	Hf (mg/kg)	La (mg/kg)	Na (%)	Sc (mg/kg)	Sm (mg/kg)	Th (mg/kg)	Yb (mg/kg)	Zn (mg/kg)
<b>FMS068a</b>	Cadmium	Urbain	40,3	25,8	2,8	5,4	4,4	19,5	1,1	22,6	4,0	6,4	2,7	111,0
<b>FMS113</b>	Cadmium	Cambisols	55,2	21,4	3,1	5,0	4,7	25,0	1,0	19,9	4,5	7,4	2,7	88,0
<b>FMS124</b>	Classique	Fluvisol	29,8	19,0	2,9	4,0	3,8	14,8	1,4	18,4	3,0	4,4	1,6	62,9
<b>FMS230</b>	Classique	Cambisols	26,2	31,0	2,5	5,9	3,3	13,0	1,1	26,4	3,1	4,4	2,1	83,1
<b>FMS233</b>	Classique	Glissement de terrain	31,4	29,7	2,4	5,8	2,3	14,6	1,0	26,9	3,7	3,8	2,4	86,0
<b>FMS240</b>	Cadmium	Cambisols	61,1	8,5	4,4	2,7	13,0	30,4	1,9	10,8	4,4	10,5	2,9	63,0
<b>FMS241</b>	Classique	Andosols	62,6	16,8	3,5	4,5	9,1	27,0	2,2	21,6	7,0	6,8	3,7	101,1
<b>FMS242</b>	Cadmium	Andosols	43,1	17,8	3,4	4,8	6,0	20,6	1,6	18,9	4,6	5,5	2,4	105,0
<b>FMS243</b>	Cadmium	Cambisols	53,1	25,8	3,3	5,5	5,2	24,0	1,1	25,0	5,4	8,9	3,6	97,0
<b>FMS244</b>	Classique	Andosols	88,1	7,8	6,7	2,6	5,1	39,9	1,9	11,9	7,2	18,5	5,2	78,1
<b>FMS270a</b>	Cadmium	Cambisols	35,4	15,0	2,6	3,5	4,6	17,9	1,6	12,2	3,7	4,6	2,2	65,0
<b>FMS270b</b>	Cadmium	Cambisols	23,9	5,7	2,4	1,8	2,6	12,6	1,9	7,2	2,2	3,7	1,2	68,5
<b>FMS446</b>	Classique	Gleyic Fluvisols	23,1	22,0	1,0	7,3	6,8	10,9	1,3	33,1	2,2	3,1	2,1	202,2
<b>FMS462</b>	Classique	Fluvisol	78,6	12,8	4,8	3,3	5,8	35,7	0,9	11,3	5,2	14,6	1,9	82,8
<b>FMS575</b>	Classique	Fluvisol	46,6	11,6	3,5	3,2	3,2	22,6	1,5	13,0	4,0	6,3	2,2	74,4
<b>FNS027a</b>	Classique	Andosols	47,4	14,0	3,9	4,5	7,8	21,5	1,3	19,5	5,6	5,9	3,0	102,2
<b>FNS137</b>	Cadmium	Andosols	67,1	14,2	4,7	4,2	5,9	30,6	1,5	16,4	5,2	11,3	2,9	92,0
<b>FNS138a</b>	Classique	Andosols	48,0	9,3	4,0	3,4	4,9	23,9	1,2	11,8	4,3	7,8	2,2	61,7
<b>FNS138b</b>	Classique	Glissement de terrain	59,2	11,6	5,6	4,4	6,4	31,2	1,9	14,6	6,4	6,7	3,3	74,0
<b>FNS200</b>	Classique	Sol décontaminé	71,6	27,7	5,2	8,0	5,2	30,0	0,3	34,9	5,8	10,7	3,3	117,6

Code échantillon	Méthode d'irradiation	Type de sol	Ce (mg/kg)	Co (mg/kg)	Cs (mg/kg)	Fe (%)	Hf (mg/kg)	La (mg/kg)	Na (%)	Sc (mg/kg)	Sm (mg/kg)	Th (mg/kg)	Yb (mg/kg)	Zn (mg/kg)
<b>FNS201</b>	Cadmium	Gleyic Fluvisols	53,4	7,2	5,3	2,5	9,8	27,7	2,2	10,1	4,1	10,9	3,1	115,0
<b>FNS202</b>	Cadmium	Sol décontaminé	57,5	32,6	3,9	6,5	3,7	23,0	0,5	24,7	5,9	5,7	3,6	101,0
<b>FNS203</b>	Classique	Sol décontaminé	61,0	10,7	3,5	4,0	6,7	28,6	2,0	15,1	6,5	6,5	3,5	94,9
<b>FNS204</b>	Cadmium	Gleyic Fluvisols	57,6	12,5	4,9	4,2	5,6	28,1	1,4	15,4	5,3	9,0	3,1	97,0
<b>FNS208</b>	Classique	Glissement de terrain	62,3	23,3	6,5	6,7	4,7	26,1	0,6	27,0	5,6	8,9	3,3	105,8
<b>FNS216</b>	Classique	Andosols	35,7	10,9	3,0	3,0	3,2	17,0	1,2	14,8	3,4	5,1	2,1	70,8
<b>FNS237a</b>	Classique	Andosols	60,1	11,6	5,4	4,0	4,6	28,9	0,9	15,5	4,1	10,6	2,3	91,2
<b>FNS412</b>	Classique	Fluvisol	31,5	8,9	2,9	2,9	3,8	16,1	1,5	12,3	3,2	4,6	1,9	74,4
<b>FNS433</b>	Classique	Sol décontaminé	48,8	17,6	4,0	5,4	3,8	22,5	0,4	22,3	5,3	4,7	2,9	95,3
<b>FNS470</b>	Classique	Cambisols	54,6	15,0	4,7	4,3	5,6	26,0	1,4	18,9	5,3	7,8	2,8	79,4
<b>FNS471</b>	Classique	Glissement de terrain	77,6	27,5	7,3	5,2	3,0	26,2	1,3	21,7	5,6	6,7	2,5	103,2
<b>FNS473</b>	Classique	Fluvisol	41,7	9,9	4,2	3,1	3,7	21,0	1,2	12,5	3,6	7,5	1,8	74,5
<b>FNS480</b>	Classique	Andosols	56,8	17,8	4,2	5,1	4,1	23,4	0,7	23,6	5,3	7,9	3,4	101,7
<b>FNS481</b>	Cadmium	Andosols	63,5	7,2	5,8	3,4	6,0	33,6	1,6	10,6	5,8	12,9	3,2	72,5
<b>FNS482</b>	Classique	Gleyic Fluvisols	100,4	10,3	4,7	4,1	4,6	49,8	0,7	16,4	8,6	14,1	4,3	117,3
<b>FNS483</b>	Classique	Andosols	34,6	9,8	2,7	3,4	5,0	16,6	1,2	13,9	3,3	4,6	2,0	71,7
<b>FNS484</b>	Classique	Cambisols	36,8	25,7	4,0	5,6	5,2	14,7	0,9	23,4	3,0	5,3	1,8	121,1
<b>FNS485</b>	Classique	Cambisols	20,2	37,1	3,6	6,7	2,2	8,3	1,2	30,7	3,5	1,7	2,8	102,2
<b>FNS486</b>	Classique	Cambisols	40,4	40,9	5,3	7,6	4,1	20,5	0,5	32,3	4,7	5,8	3,4	97,5
<b>FNS487</b>	Classique	Cambisols	60,3	12,9	5,3	4,0	3,1	24,0	1,5	16,5	5,6	8,8	3,0	64,2
<b>FNS493</b>	Classique	Andosols	43,4	8,6	4,7	3,0	3,7	22,9	1,5	11,7	3,3	6,6	1,9	86,0
<b>FNS494</b>	Classique	Andosols	59,4	8,9	3,7	3,6	5,6	26,2	1,3	14,0	5,2	8,9	2,7	89,9
<b>FNS496</b>	Classique	Gleyic Fluvisols	44,2	10,0	3,2	3,8	5,0	20,3	1,2	15,3	5,0	4,7	2,7	130,2

Code échantillon	Méthode d'irradiation	Type de sol	Ce (mg/kg)	Co (mg/kg)	Cs (mg/kg)	Fe (%)	Hf (mg/kg)	La (mg/kg)	Na (%)	Sc (mg/kg)	Sm (mg/kg)	Th (mg/kg)	Yb (mg/kg)	Zn (mg/kg)
<b>FNS584</b>	Classique	Andosols	57,1	11,8	5,2	3,9	6,5	26,9	1,0	16,9	5,7	8,2	3,1	96,1
<b>FNS599</b>	Classique	Fluvisol	44,6	11,4	4,0	3,3	3,7	21,0	1,1	14,2	4,0	6,8	2,1	85,4
<b>FNS602</b>	Classique	Gleyic Fluvisols	48,3	15,9	3,7	4,6	4,8	23,4	1,3	20,1	4,4	6,8	2,3	90,1
<b>FOS246</b>	Classique	Cambisols	38,1	6,4	5,0	2,2	3,1	18,4	1,2	7,7	2,9	7,8	2,0	56,3
<b>FOS248</b>	Classique	Andosols	40,4	14,8	5,5	4,8	4,5	18,9	1,4	18,6	4,2	7,3	2,2	85,7
<b>FOS254</b>	Classique	Glissement de terrain	46,0	15,3	4,6	3,9	4,5	22,7	1,5	15,6	3,7	7,3	1,7	55,8
<b>FOS258</b>	Classique	Fluvisol	42,5	8,8	3,9	2,9	4,4	18,7	1,9	13,8	4,0	7,0	2,4	75,3
<b>FSS268</b>	Classique	Gleyic Fluvisols	37,2	10,5	3,1	3,1	4,3	15,7	1,4	14,4	3,5	5,3	2,5	64,5
<b>FUS262</b>	Classique	Regosols	63,2	10,4	3,9	3,8	4,2	29,6	1,4	14,1	5,7	8,8	3,4	79,6
<b>FUS264</b>	Classique	Fluvisol	44,5	9,5	3,5	3,0	4,8	20,3	1,5	12,1	4,0	13,5	2,6	82,0
<b>FUS267</b>	Classique	Regosols	38,4	5,1	2,9	2,3	4,4	16,9	1,9	11,9	3,8	4,9	2,7	100,5

### B.2.2 TENEURS ELEMENTAIRES DANS LES LAISSES DE CRUES

Code échantillon	Méthode d'irradiation	Ce (mg/kg)	Co (mg/kg)	Cs (mg/kg)	Fe (%)	Hf (mg/kg)	La (mg/kg)	Na (%)	Sc (mg/kg)	Sm (mg/kg)	Th (mg/kg)	Yb (mg/kg)	Zn (mg/kg)
<b>FML111</b>	Cadmium	28,6	13,5	3,6	4,2	7,9	14,6	2,0	13,4	3,2	6,8	2,4	75,0
<b>FML112</b>	Classique	78,1	10,9	6,1	5,1	6,2	40,1	1,6	11,7	6,0	12,1	3,3	107,7
<b>FML114</b>	Classique	21,3	33,3	1,6	5,8	2,9	10,2	1,0	28,5	2,5	2,2	1,4	88,8
<b>FML121</b>	Classique	29,4	16,4	2,3	4,0	4,7	15,0	1,7	18,9	3,0	5,0	1,9	66,1
<b>FML123</b>	Classique	22,2	13,5	2,3	2,8	3,3	12,1	1,5	12,5	2,5	3,6	1,6	51,1
<b>FML128</b>	Classique	55,6	27,7	1,2	9,5	21,0	28,2	1,4	37,7	4,8	13,1	2,5	111,9
<b>FML225</b>	Classique	39,9	16,7	1,8	5,0	6,7	19,4	1,6	22,1	3,2	5,4	2,0	106,1
<b>FML226</b>	Classique	41,1	18,9	3,2	4,1	4,7	20,2	1,5	17,7	4,0	6,6	2,2	81,2

Code échantillon	Méthode d'irradiation	Ce (mg/kg)	Co (mg/kg)	Cs (mg/kg)	Fe (%)	Hf (mg/kg)	La (mg/kg)	Na (%)	Sc (mg/kg)	Sm (mg/kg)	Th (mg/kg)	Yb (mg/kg)	Zn (mg/kg)
<b>FML228</b>	Cadmium	45,9	7,7	3,0	2,1	10,3	23,3	1,2	8,3	3,5	21,2	1,5	63,0
<b>FML229</b>	Classique	39,1	18,9	3,0	3,8	4,2	20,0	1,6	15,8	3,5	6,1	2,0	80,5
<b>FML230</b>	Cadmium	36,3	18,5	4,1	4,7	4,9	18,4	1,5	19,3	3,7	6,4	2,5	98,0
<b>FML234</b>	Cadmium	17,6	18,4	1,6	4,2	2,8	8,6	1,5	20,3	2,1	2,7	1,9	57,0
<b>FML235</b>	Cadmium	17,5	37,2	1,4	5,8	3,0	8,7	1,2	24,9	2,3	3,6	1,7	103,0
<b>FML236</b>	Classique	25,5	32,1	1,7	5,6	3,2	11,9	1,2	23,9	2,6	2,7	1,8	80,9
<b>FML239</b>	Classique	64,3	8,6	5,5	3,5	15,1	29,3	2,6	10,2	5,2	13,4	3,5	97,6
<b>FML240</b>	Cadmium	56,6	9,1	4,4	3,7	7,2	28,6	2,1	9,4	4,3	8,5	2,5	83,0
<b>FML241</b>	Cadmium	37,5	17,4	3,8	4,4	7,1	18,1	2,0	15,9	3,8	7,2	2,8	98,0
<b>FML242</b>	Classique	33,7	13,7	3,6	3,8	7,0	14,3	1,8	14,9	3,4	5,2	2,3	72,1
<b>FML243</b>	Classique	32,9	24,5	3,2	6,2	6,4	15,0	2,2	24,8	4,0	3,6	3,0	122,8
<b>FML244</b>	Cadmium	65,5	7,5	7,1	2,9	7,3	29,8	2,4	9,6	5,3	14,8	3,3	82,0
<b>FML270</b>	Cadmium	20,9	16,2	2,5	5,1	2,4	10,0	1,8	15,2	2,4	2,7	1,5	92,0
<b>FML373</b>	Classique	100,6	3,7	4,2	5,0	7,4	40,2	1,3	16,7	9,2	15,2	5,3	93,5
<b>FML376</b>	Classique	19,6	30,4	1,3	5,1	2,0	12,1	1,0	22,4	2,2	2,4	1,5	81,4
<b>FML377</b>	Classique	64,0	9,4	5,1	4,4	8,4	31,3	1,9	9,7	5,0	10,5	3,0	104,8
<b>FML378</b>	Cadmium	51,0	8,4	4,4	4,0	6,9	28,7	1,8	9,1	4,5	8,6	2,3	84,0
<b>FML380</b>	Classique	51,1	12,3	3,8	4,0	14,9	24,4	1,8	13,9	4,8	12,0	3,0	89,7
<b>FML381</b>	Classique	14,6	6,1	2,5	1,9	2,6	7,9	1,6	6,9	1,7	2,6	1,2	48,4
<b>FML382</b>	Classique	38,6	18,5	3,5	5,7	5,8	17,1	1,7	21,8	4,3	5,8	2,8	121,2
<b>FML421</b>	Classique	48,7	16,6	3,0	4,8	5,6	23,2	2,0	20,0	4,3	8,2	2,2	116,2
<b>FML422</b>	Classique	42,6	20,8	3,2	4,5	3,9	21,1	1,4	19,1	4,2	6,7	2,3	100,8
<b>FML425</b>	Classique	42,7	19,7	3,3	4,3	3,7	21,4	1,2	18,7	4,2	6,5	2,1	106,0
<b>FML446</b>	Classique	23,6	17,6	1,7	5,1	9,6	9,8	1,4	23,5	2,2	2,7	1,8	103,2

Code échantillon	Méthode d'irradiation	Ce (mg/kg)	Co (mg/kg)	Cs (mg/kg)	Fe (%)	Hf (mg/kg)	La (mg/kg)	Na (%)	Sc (mg/kg)	Sm (mg/kg)	Th (mg/kg)	Yb (mg/kg)	Zn (mg/kg)
<b>FML447</b>	Classique	38,4	16,3	2,8	3,7	3,4	18,5	1,5	15,1	3,5	5,5	1,9	82,7
<b>FML448</b>	Classique	34,5	17,7	2,7	3,7	4,3	18,3	1,3	16,5	3,3	5,1	1,7	81,3
<b>FML449</b>	Cadmium	41,4	19,7	4,0	4,8	5,3	19,6	1,4	19,2	4,1	6,2	2,5	90,0
<b>FML452</b>	Classique	19,3	16,3	2,0	3,4	2,4	9,7	1,3	14,9	2,0	2,8	1,4	63,2
<b>FML456</b>	Classique	49,9	7,9	5,0	3,1	11,4	24,2	2,5	9,6	4,1	9,2	3,0	93,6
<b>FML457</b>	Cadmium	42,3	8,7	4,8	3,4	7,3	29,8	2,2	9,4	4,4	11,7	2,7	82,0
<b>FML459</b>	Classique	34,4	14,5	4,7	4,0	6,3	17,3	2,3	14,2	3,5	7,6	2,4	106,4
<b>FML460</b>	Classique	41,3	10,9	4,1	3,6	9,2	19,7	2,0	13,8	4,0	7,5	2,8	84,4
<b>FML461</b>	Classique	43,8	7,1	3,4	2,1	3,3	22,0	0,9	7,6	3,1	8,0	1,1	65,1
<b>FML474</b>	Cadmium	23,2	14,6	2,9	3,9	3,1	11,5	1,5	14,6	2,6	4,0	1,8	68,0
<b>FNL030a</b>	Classique	64,6	12,7	5,9	5,0	9,1	30,5	1,0	15,9	6,0	9,8	3,4	105,4
<b>FNL033a</b>	Cadmium	34,1	9,8	4,0	3,4	4,6	16,8	1,4	10,1	3,4	6,9	1,7	99,0
<b>FNL035a</b>	Classique	52,9	11,2	5,6	4,0	4,9	25,6	1,6	14,6	5,4	6,1	2,7	98,8
<b>FNL036a</b>	Classique	51,4	12,3	4,5	3,9	8,6	23,4	1,7	13,6	4,6	6,7	3,4	96,9
<b>FNL041a</b>	Classique	28,5	9,4	2,0	2,8	3,1	13,5	1,7	10,8	2,4	5,7	1,4	151,5
<b>FNL041b</b>	Classique	37,0	12,4	3,2	3,7	4,4	16,5	1,7	13,7	3,2	9,9	1,8	130,8
<b>FNL044a</b>	Classique	47,1	12,7	3,1	4,1	9,8	22,9	1,6	17,0	4,1	8,1	2,7	90,2
<b>FNL058a</b>	Classique	90,4	10,9	7,3	5,1	5,8	47,0	1,4	12,1	6,9	16,1	3,4	140,6
<b>FNL131</b>	Cadmium	52,3	12,1	4,0	3,7	3,6	26,9	1,5	12,1	4,3	9,5	2,3	93,0
<b>FNL132</b>	Classique	51,0	13,8	5,4	4,5	6,6	24,7	2,2	17,0	4,9	7,6	2,9	113,3
<b>FNL134</b>	Classique	78,7	10,3	7,2	4,3	5,8	42,5	1,5	11,9	6,4	12,7	3,3	118,6
<b>FNL135</b>	Classique	55,5	12,1	5,5	4,1	5,2	26,5	1,6	11,9	4,7	8,5	2,7	104,2
<b>FNL136</b>	Classique	52,6	11,5	5,6	4,2	6,5	23,1	1,7	16,0	5,5	7,2	3,4	96,2
<b>FNL137</b>	Classique	16,1	6,9	2,9	2,2	2,2	9,2	1,0	7,3	2,3	2,4	1,4	81,1

Code échantillon	Méthode d'irradiation	Ce (mg/kg)	Co (mg/kg)	Cs (mg/kg)	Fe (%)	Hf (mg/kg)	La (mg/kg)	Na (%)	Sc (mg/kg)	Sm (mg/kg)	Th (mg/kg)	Yb (mg/kg)	Zn (mg/kg)
<b>FNL139b</b>	Cadmium	52,6	7,2	3,5	2,7	3,8	31,2	1,6	8,1	2,9	11,6	1,6	56,0
<b>FNL144</b>	Classique	72,0	13,1	5,8	5,3	6,4	35,6	0,8	15,2	6,7	14,1	3,5	113,5
<b>FNL200</b>	Classique	62,9	7,6	5,4	3,3	6,6	31,5	1,6	9,6	5,0	12,3	2,8	83,2
<b>FNL201</b>	Classique	99,8	13,9	6,4	4,4	4,7	47,7	1,6	11,8	7,4	14,3	3,3	167,5
<b>FNL203</b>	Classique	40,2	11,7	4,7	4,2	8,0	18,8	1,7	14,7	4,4	6,2	2,8	104,5
<b>FNL204</b>	Classique	74,7	15,4	5,6	5,4	7,5	37,1	1,4	14,6	6,4	11,0	3,4	156,4
<b>FNL205</b>	Classique	36,0	9,7	4,3	3,8	5,9	16,4	1,0	13,6	3,8	6,3	2,4	82,9
<b>FNL209</b>	Cadmium	41,3	28,0	4,7	5,5	5,8	21,3	1,4	22,8	4,5	5,4	3,0	103,0
<b>FNL210</b>	Cadmium	39,2	28,5	4,5	5,7	6,7	20,7	1,3	22,7	4,4	5,5	2,9	104,0
<b>FNL213</b>	Cadmium	37,6	34,7	4,2	6,0	4,0	17,5	1,4	26,5	4,5	5,1	3,0	114,0
<b>FNL217</b>	Classique	30,8	10,6	3,6	3,1	3,9	14,9	1,6	11,0	3,0	7,5	1,8	67,7
<b>FNL218</b>	Cadmium	21,9	15,6	3,8	5,4	7,1	11,1	1,2	16,0	2,4	4,8	2,0	104,0
<b>FNL219</b>	Classique	66,1	18,4	4,1	4,5	3,3	34,4	1,2	17,0	5,7	9,5	3,0	158,2
<b>FNL220</b>	Classique	28,5	11,8	2,8	3,6	4,9	12,9	1,7	14,2	3,0	6,5	1,8	150,5
<b>FNL221</b>	Cadmium	45,6	11,5	3,7	3,6	7,9	21,5	1,8	13,1	4,3	9,1	2,8	79,0
<b>FNL222</b>	Cadmium	46,7	13,8	3,9	3,9	4,4	23,3	1,3	12,9	4,1	7,7	2,8	239,0
<b>FNL223</b>	Classique	42,7	13,4	4,2	3,8	5,0	21,7	1,8	13,9	4,1	7,4	2,6	118,0
<b>FNL224</b>	Classique	45,3	11,3	4,1	3,3	6,2	22,9	1,5	12,7	4,1	6,9	2,5	95,7
<b>FNL271</b>	Cadmium	50,6	10,3	4,6	3,7	16,7	23,1	2,4	13,2	4,3	17,4	3,7	98,0
<b>FNL416</b>	Classique	31,5	12,1	2,8	3,9	7,9	15,3	1,5	13,9	2,9	8,5	1,9	144,8
<b>FNL426</b>	Cadmium	82,7	15,8	5,0	4,9	4,6	44,7	1,1	14,8	6,9	14,0	3,5	122,0
<b>FNL427</b>	Classique	24,1	16,4	1,8	3,1	2,2	12,1	0,6	14,6	2,7	3,7	1,6	47,4
<b>FNL430</b>	Cadmium	71,0	15,6	5,3	4,1	7,3	27,8	1,9	11,0	5,2	8,9	3,1	102,0
<b>FNL431</b>	Classique	59,9	14,1	6,6	4,3	9,0	30,7	2,3	15,9	5,6	14,0	3,5	103,6

Code échantillon	Méthode d'irradiation	Ce (mg/kg)	Co (mg/kg)	Cs (mg/kg)	Fe (%)	Hf (mg/kg)	La (mg/kg)	Na (%)	Sc (mg/kg)	Sm (mg/kg)	Th (mg/kg)	Yb (mg/kg)	Zn (mg/kg)
<b>FNL432</b>	Classique	24,7	4,3	3,5	1,8	4,5	12,7	1,3	5,8	2,4	4,7	1,7	45,1
<b>FNL433</b>	Classique	73,2	14,5	6,1	4,7	9,5	40,7	2,0	15,4	5,7	9,7	3,5	109,1
<b>FNL434</b>	Classique	25,7	8,1	3,4	2,7	4,6	13,0	1,2	9,4	3,2	3,8	2,2	56,9
<b>FNL438</b>	Classique	34,3	12,6	4,4	4,0	10,1	17,3	1,7	14,6	4,1	5,3	3,2	82,0
<b>FNL464</b>	Classique	47,6	13,6	3,6	4,0	5,2	23,1	1,6	16,9	4,3	8,8	2,6	83,0
<b>FNL467</b>	Classique	42,7	11,5	3,4	3,4	4,1	21,2	1,6	12,8	3,5	7,2	1,9	222,9
<b>FNL470</b>	Cadmium	49,9	12,6	4,2	3,7	4,9	24,4	1,4	12,2	4,2	7,0	2,6	86,0
<b>FNL471</b>	Classique	44,1	11,3	4,7	3,8	5,8	21,7	1,5	12,6	4,3	8,0	2,5	97,8
<b>FNL477</b>	Cadmium	87,8	11,8	6,9	4,5	5,8	43,1	1,4	14,5	7,1	14,4	4,3	123,0
<b>FNL479</b>	Classique	79,5	13,1	6,9	4,5	5,3	41,8	1,3	13,5	7,1	13,6	3,8	122,1
<b>FNL483</b>	Cadmium	46,1	13,2	3,5	3,4	4,8	25,1	1,5	12,6	4,0	9,6	2,2	99,0
<b>FNL488</b>	Cadmium	25,4	33,6	3,3	6,9	3,1	12,4	1,4	26,4	3,4	3,8	2,3	95,0
<b>FNL489</b>	Classique	72,6	13,6	6,6	4,3	4,8	43,9	1,1	11,8	6,5	11,4	3,4	128,6
<b>FNL490</b>	Classique	35,6	9,2	3,9	3,0	6,5	17,6	1,5	10,6	3,6	5,5	2,3	66,7
<b>FNL492</b>	Cadmium	54,1	10,5	4,3	3,8	5,6	31,7	1,5	12,9	4,0	10,0	2,4	81,5
<b>FNL497</b>	Cadmium	57,9	11,2	4,1	4,1	8,7	22,2	0,9	13,4	4,7	7,9	2,6	75,0

## B.3 RÉSULTATS DRX

Le tableau ci-dessous regroupe les résultats obtenus par DRX pour les différents sols étudiés et classés en fonction de leur type (WRB).

	Albite	Amphibole	Anorthite	Biotite	Chamosite	Chlorite	Clinochlore	Imogolite
<b>FMS124</b>							x	x
<b>FMS230</b>							x	
<b>FMS233</b>	x					x		
<b>FMS241</b>	x					x		
<b>FMS446</b>	x		x			x		
<b>FMS575</b>	x			x		x		
<b>FNS138a</b>	x					x		
<b>FNS138b</b>	x				x			
<b>FNS203</b>	x	x	x					
<b>FNS208</b>			x	x		x		
<b>FNS216</b>	x			x				
<b>FNS433</b>		x	x	x	x			
<b>FNS462</b>	x	x		x		x		
<b>FNS470</b>	x				x			
<b>FNS480</b>	x		x		x			
<b>FNS482</b>	x							
<b>FNS483</b>			x	x	x			
<b>FNS493</b>	x	trace	x	x				
<b>FNS494</b>					x			
<b>FNS496</b>	x	x		x		x		
<b>FNS599</b>	x	x	x		x			
<b>FNS602</b>	x	x	x		x			

<b>FOS246</b>	x				x			
<b>FOS248</b>	x	x			x			
<b>FOS254</b>		x	x		x			
<b>FOS258</b>					x			
<b>FSS268</b>	x							
<b>FUS262</b>	x		x		x			
<b>FUS264</b>	x	x						
<b>FUS267</b>	x				?			

	Kaolinite	Labradorite	Mica	Montmorillonite	Muscovite	Orthoclase	Quartz	Tremolite
<b>FMS124</b>		x			x		x	
<b>FMS230</b>	x	x			x		x	
<b>FMS233</b>			?	x			x	
<b>FMS241</b>					x	x	x	
<b>FMS446</b>					x		x	
<b>FMS575</b>							x	x
<b>FNS138a</b>		x		x	x		x	x
<b>FNS138b</b>					x	x	x	x
<b>FNS203</b>	x				x		x	
<b>FNS208</b>							x	x
<b>FNS216</b>							x	x
<b>FNS433</b>					x		x	
<b>FNS462</b>							x	
<b>FNS470</b>					x		x	x
<b>FNS480</b>	x			x	x		x	x

Annexes

---

<b>FNS482</b>				x	x		x	
<b>FNS483</b>							x	x
<b>FNS493</b>	x			x			x	
<b>FNS494</b>	x				x	x	x	x
<b>FNS496</b>							x	
<b>FNS599</b>							x	
<b>FNS602</b>					trace		x	
<b>FOS246</b>					x		x	
<b>FOS248</b>				x	trace		x	
<b>FOS254</b>					trace	x	x	
<b>FOS258</b>		x			x		x	
<b>FSS268</b>	x			x	x		x	
<b>FUS262</b>			trace		trace		x	trace
<b>FUS264</b>					trace		x	
<b>FUS267</b>							x	

## B.4 MESURES DE CARBONE ORGANIQUE TOTAL (COT) DANS LES SOLS

Code échantillon	COT (%)	Code échantillon	COT (%)
<b>FMS124</b>	1,71	<b>FNS473</b>	3,10
<b>FMS230</b>	1,47	<b>FNS480</b>	4,32
<b>FMS233</b>	4,84	<b>FNS482</b>	4,73
<b>FMS241</b>	3,63	<b>FNS483</b>	1,36
<b>FMS446</b>	1,23	<b>FNS484</b>	4,63
<b>FMS462</b>	1,02	<b>FNS485</b>	6,53
<b>FMS575</b>	1,21	<b>FNS486</b>	2,46
<b>FNS027A</b>	3,33	<b>FNS487</b>	8,51
<b>FNS138a</b>	1,25	<b>FNS493</b>	2,27
<b>FNS138b</b>	< 0,32	<b>FNS494</b>	3,17
<b>FNS200</b>	1,81	<b>FNS496</b>	9,97
<b>FNS203</b>	1,83	<b>FNS584</b>	5,48
<b>FNS208</b>	4,82	<b>FNS599</b>	3,10
<b>FNS216</b>	2,50	<b>FNS602</b>	2,26
<b>FNS237a</b>	4,70	<b>FOS246</b>	12,64
<b>FNS412</b>	1,44	<b>FOS248</b>	4,03
<b>FNS433</b>	< 0,32	<b>FOS254</b>	3,76
<b>FNS470</b>	2,29	<b>FOS258</b>	2,49
<b>FNS471</b>	1,79		

## B.5 GRANULOMÉTRIE

## B.5.1 GRANULOMÉTRIE DANS LES SOLS

Code échantillon	SSA* (m <sup>2</sup> .g <sup>-1</sup> )	x<2 µm (%)	2 µm <x<50 µm (%)	50 µm <x<2000 µm (%)	2000 µm <x (%)	D10 (µm)	D50 (µm)
<b>FMS059A</b>	0,283	4,6	37,9	52,1	5,3	6,4	71,6
<b>FMS060A</b>	0,539	9,9	72,8	15,7	1,6	10,4	76,7
<b>FMS061A</b>	0,188	3,1	28,0	62,4	6,4	13,1	132,8
<b>FMS062A</b>	0,272	4,9	25,9	69,2	0,0	8,4	169,2
<b>FMS068A</b>	0,347	5,8	49,4	44,8	0,0	11,8	411,6
<b>FNS026A</b>	0,379	6,8	36,4	56,8	0,0	4,2	74,0
<b>FNS027A</b>	0,205	3,5	26,1	56,5	14,0	11,2	
<b>FNS028A</b>	0,224	3,7	30,2	56,8	9,2	9,4	414,2
<b>FNS032a</b>	0,201	3,2	31,2	61,5	4,2	9,9	119,2
<b>FNS034A</b>	0,258	4,2	34,7	52,4	8,7	7,0	88,4
<b>FNS038A</b>	0,205	3,5	23,1	60,8	12,6	11,8	411,6
<b>FNS040A</b>	0,286	5,1	28,9	62,2	3,9	6,5	131,9
<b>FNS058A</b>	0,255	4,9	45,1	50,0	0,0	5,0	50,1
<b>FNS063B</b>	0,164	3,1	31,8	53,8	11,3	11,2	
<b>FNS412</b>	0,448	8,8	46,1	43,4	1,7		39,5
<b>FNS433</b>	0,303	5,3	38,1	55,7	1,0		59,8
<b>FOS398</b>	0,204	3,2	34,0	62,8	0,0		73,2

\*Le calcul de la surface spécifique est détaillé dans la publication sur le comportement du <sup>110m</sup>Ag.

## B.5.2 GRANULOMÉTRIE DANS LES SÉDIMENTS

Code échantillon	SSA (m <sup>2</sup> .g <sup>-1</sup> )	x<2 µm (%)	2 µm <x<50 µm (%)	50 µm <x<2000 µm (%)	2000 µm <x (%)	D10 (µm)	D50 (µm)
FML059a	0,290	4,9	33,3	53,9	8,0	6,4	71,6
FML060a	0,344	5,5	54,2	40,2	0,0	14,4	108,5
FML061a	0,175	2,8	23,5	71,4	2,3	15,2	125,3
FML062a	0,118	2,1	9,5	63,4	25,1	27,7	1000,0
FML066a	0,337	5,8	45,5	48,7	0,0	4,8	47,9
FML069a	0,166	2,8	18,5	78,7	0,0	9,9	119,2
FML225	0,517	10,2	41,7	48,1	0,0	1,9	46,9
FML226	0,483	8,7	57,7	33,6	0,0	2,6	34,2
FML227	0,075	0,7	24,2	75,1	0,0	21,8	144,0
FML228	0,553	10,4	50,5	39,1	0,0	1,9	34,0
FML229	0,363	6,8	34,3	47,4	11,5	4,5	69,5
FML230	0,635	12,5	38,0	49,6	0,0	1,4	48,9
FML231	0,506	8,9	67,7	23,4	0,0	2,5	27,3
FML232	0,102	2,3	17,1	66,2	14,3	19,7	1000,0
FML233	0,159	2,8	17,3	65,0	14,8	18,4	1000,0
FML234	0,443	8,1	47,9	33,1	10,8	3,1	39,4
FML235	0,198	3,5	20,3	67,4	8,7	14,7	222,5
FML236	0,154	2,7	17,9	60,2	19,2	21,3	1000,0
FML239	0,176	2,6	29,3	68,0	0,0	14,6	83,2
FML240	0,179	2,9	27,4	65,6	4,1	14,4	101,9
FML241	0,272	5,1	28,5	65,6	0,9	9,1	94,4
FML242	0,158	2,8	18,0	79,2	0,0	20,9	228,7
FML243	0,168	3,3	14,6	57,5	24,7	22,5	1000,0

<b>FML244</b>	0,306	5,2	43,5	51,2	0,0	7,5	51,5
<b>FML270</b>	0,119	2,3	8,5	84,9	4,3	44,7	1000,0
<b>FML373</b>	0,381	8,3	69,0	20,7	2,0	2,3	13,7
<b>FML374</b>	0,184	3,5	56,3	40,2	0,0	7,4	39,4
<b>FML375</b>	0,332	6,2	31,9	60,5	1,4	4,3	88,7
<b>FML376</b>	0,147	3,5	28,1	65,7	2,8	7,8	1000,0
<b>FML380</b>	0,092	1,6	33,0	58,6	6,8	17,3	77,4
<b>FML382</b>	0,066	0,8	17,8	57,3	24,1	26,3	1000,0
<b>FML420</b>	0,003	0,0	0,0	84,9	15,1	323,0	1000,0
<b>FML421</b>	0,373	6,2	61,8	28,0	3,9	3,2	26,2
<b>FML422</b>	0,069	0,1	40,4	58,6	0,9	15,6	71,5
<b>FNL030a</b>	0,364	5,9	59,9	34,2	0,0	10,9	98,2
<b>FNL031a</b>	0,206	3,5	24,3	69,2	3,0	14,4	108,5
<b>FNL033a</b>	0,105	1,6	15,9	72,0	10,5	27,7	1000,0
<b>FNL034b</b>	0,255	3,9	45,5	47,5	3,0	42,3	1000,0
<b>FNL035a</b>	0,110	1,8	13,8	83,6	0,7	9,4	86,4
<b>FNL036a</b>	0,158	2,4	26,9	70,7	0,0	15,4	107,3
<b>FNL037a</b>	0,241	4,0	34,4	61,6	0,0	10,4	76,7
<b>FNL041a</b>	0,109	2,0	8,9	87,3	1,7	42,3	1000,0
<b>FNL041b</b>	0,118	2,1	10,2	85,2	2,5	35,5	1000,0
<b>FNL042a</b>	0,161	2,5	26,4	45,9	25,1	15,1	1000,0
<b>FNL043a</b>	0,204	3,3	29,5	59,1	8,1	6,5	131,9
<b>FNL044a</b>	0,268	4,4	34,6	59,5	1,6	9,1	76,2
<b>FNL058a</b>	0,355	6,2	59,3	34,6	0,0	35,5	1000,0
<b>FNL063b</b>	0,033	0,5	6,3	75,3	17,9	15,1	1000,0
<b>FNL064a</b>	0,553	9,9	52,6	37,5	0,0	9,1	76,2

<b>FNL064b</b>	0,306	6,4	63,6	30,0	0,0	4,2	74,0
<b>FNL200</b>	0,188	2,8	38,0	58,7	0,5	10,5	66,6
<b>FNL201</b>	0,306	3,0	50,3	40,1	6,6	9,2	45,4
<b>FNL202</b>	0,289	4,9	40,5	54,6	0,0	8,1	55,8
<b>FNL203</b>	0,125	1,9	21,3	76,4	0,4	22,0	148,3
<b>FNL204</b>	0,243	3,6	49,5	46,8	0,0	8,1	46,3
<b>FNL205</b>	0,096	1,4	18,4	80,3	0,0	24,7	299,0
<b>FNL206</b>	0,117	1,6	24,0	74,1	0,2	20,0	133,6
<b>FNL209</b>	0,320	5,1	54,3	40,7	0,0	5,9	41,0
<b>FNL213</b>	0,392	6,4	60,9	32,6	0,0	3,8	31,3
<b>FNL216</b>	0,359	6,7	36,5	56,9	0,0	4,5	66,6
<b>FNL217</b>	0,097	1,5	16,2	73,9	8,5	27,7	1000,0
<b>FNL218</b>	0,184	3,2	21,2	70,3	5,3	13,9	255,1
<b>FNL219</b>	0,181	2,7	35,1	28,2	34,0	10,6	105,6
<b>FNL220</b>	0,433	7,8	47,7	44,5	0,0	3,1	40,8
<b>FNL221</b>	0,301	4,8	56,1	39,1	0,0	5,2	37,3
<b>FNL222</b>	0,195	3,5	58,1	33,9	4,5	6,0	37,1
<b>FNL223</b>	0,212	3,2	37,2	59,6	0,0	10,1	65,8
<b>FNL224</b>	0,277	4,3	50,5	45,2	0,0	6,4	44,1
<b>FNL237</b>	0,119	1,7	24,7	66,3	7,3	17,7	1000,0
<b>FNL271</b>	0,314	5,8	33,3	59,7	1,2	7,4	68,3
<b>FNL411</b>	0,336	6,1	34,7	58,6	0,5	5,4	68,4
<b>FNL412</b>	0,414	7,1	56,5	36,4	0,0	3,5	33,8
<b>FNL415</b>	0,177	3,1	26,0	55,6	15,3	8,5	1000,0
<b>FNL416</b>	0,224	4,2	17,2	78,2	0,4	11,9	228,3
<b>FNL418</b>	0,300	5,3	33,9	40,1	20,7	6,0	105,7

Annexes

<b>FNL419</b>	0,115	2,1	10,1	54,7	33,1	34,5	1000,0
<b>FNL428</b>	0,183	3,0	29,1	40,5	27,5	10,3	1000,0
<b>FNL433</b>	0,129	1,9	23,2	64,2	10,7	18,2	181,5
<b>FNL434</b>	0,193	3,3	25,8	70,9	0,0	14,8	117,0
<b>FNL435</b>	0,107	2,1	7,2	90,5	0,2	54,3	1000,0
<b>FNL436</b>	0,073	1,4	4,3	93,5	0,8	92,9	1000,0
<b>FOL245</b>	0,152	2,5	21,4	66,3	9,7	18,5	188,5
<b>FOL246</b>	0,177	3,4	15,8	72,9	7,9	21,4	1000,0
<b>FOL247</b>	0,119	2,2	21,9	66,4	9,6	17,6	175,9
<b>FOL249</b>	0,124	2,0	20,1	75,7	2,3	18,6	172,1
<b>FOL251</b>	0,147	2,2	30,4	59,6	7,8	15,5	87,8
<b>FOL252</b>	0,044	0,5	11,2	78,7	9,5	242,0	388,0
<b>FOL253</b>	0,136	2,1	29,3	23,4	45,2	17,7	1000,0
<b>FOL256</b>	0,102	1,8	18,4	48,7	31,0	17,9	1000,0
<b>FOL257</b>	0,342	6,2	38,7	54,6	0,5	5,2	59,6
<b>FOL259</b>	0,008	0,0	0,0	100,0	0,0	222,4	303,4
<b>FOL260</b>	0,008	0,0	0,0	100,0	0,0	220,3	302,2
<b>FOL398</b>	0,172	3,1	19,8	62,1	15,0	18,4	231,5
<b>FOL399</b>	0,076	1,3	8,2	87,6	2,9	53,0	1000,0
<b>FOL400</b>	0,017	0,2	1,3	97,1	1,4	195,0	1000,0
<b>FOL401</b>	0,027	0,3	3,8	94,4	1,6	122,9	353,1
<b>FOL402</b>	0,027	0,4	2,5	95,3	1,8	157,4	422,1
<b>FOL404</b>	0,136	2,4	16,3	81,3	0,0	24,9	275,3
<b>FOL405</b>	0,019	0,3	1,6	78,9	19,3	192,2	1000,0

## ANNEXE C. CARACTÉRISTIQUES DES STANDARDS UTILISÉS

Teneur des éléments contenus dans les standards utilisés. Les valeurs en gras sont exprimées en pourcentage et non en mg.kg<sup>-1</sup>.

Élément	SL1 (mg.kg <sup>-1</sup> )	Intervalle	Qualité de la donnée*	Soil-7 (mg.kg <sup>-1</sup> )	Intervalle	Qualité de la donnée*
As	27,6	24,7 – 30,5	R	13,4	12,5 – 14,2	R
Ba	639	586 – 692	R	159	131 – 196	C
Br				7	3 – 10	C
Ca (%)				<b>16,3</b>	<b>15,7 – 17,4</b>	C
Cd	0,26	0,21 – 0,31	C	1,3	1,1 – 2,7	C
Ce	117	100 – 134	R	60	49 – 74	R
Co	19,8	18,3 – 21,3	R	8,9	8,4 – 10,1	R
Cr	104	95 – 113	C	60	49 – 74	R
Cs	7	6,1 – 7,9	C	5,4	4,9 – 6,4	R
Cu	30	24 – 36	C	11	9 – 13	R
Dy	7,5	5,3 – 9,7	C	3,9	3,2 – 5,3	R
Eu	1,6	1,1 – 2,1	C	1	0,9 – 1,3	R
Fe (%)	<b>6,74</b>	<b>6,57 – 6,91</b>	R	<b>2,57</b>	<b>2,52 – 2,63</b>	C
Hf	4,2	3,6 – 4,8	C	5,1	4,8 – 5,5	R
Hg	0,13	0,08 – 0,18	C	0,04	0,003 – 0,07	C
K (%)	<b>1,45</b>	<b>1,24 – 1,66</b>	C	<b>1,21</b>	<b>1,13 – 1,27</b>	C
La	52,6	49,5 – 55,7	R	28	27 – 29	R
Lu	0,54	0,41 – 0,67	C	0,3	0,1 – 0,4	C
Na (%)	<b>0,17</b>	<b>0,16 – 0,18</b>	C	<b>0,24</b>	<b>0,23 – 0,25</b>	C
Nd				30	22 – 34	R
Ni	44,9	36,9 – 53,9	C	26	21 – 37	C

## Annexes

Pb	37,7	30,3 – 45,1	C	60	55 – 71	R
Rb	113	102 – 124	R	51	47 – 56	R
Sb	1,31	1,19 – 1,43	C	1,7	1,4 – 1,8	R
Sc	17,3	16,2 – 18,4	C	8,3	6,9 – 9,0	R
Se	2,85	1,31 – 4,37	C	0,4	0,2 – 0,8	C
Sm	9,25	8,74 – 9,76	C	5,1	4,8 – 5,5	R
Sr	80	37 – 123	C	108	103 – 114	R
Ta	1,58	1,00 – 2,16	C	0,8	0,6 – 1,0	R
Tb	1,4	0,94 – 1,86	C	0,6	0,5 – 0,9	R
Th	14	13 – 15	R	8,2	6,5 – 8,7	R
U	4,02	3,69 – 4,35	C	2,6	2,2 – 3,3	R
Y				21	15 – 27	R
Yb	3,42	2,77 – 4,07	C	2,4	1,9 – 2,6	R
Zn	223	213 - 233	R	104	101 – 113	R
Zr				185	180 - 201	R

\* (R) Valeur recommandée et (C) valeur certifiée

## ANNEXE D. TESTS STATISTIQUES POUR VALIDER LES DONNEES D'INAA

---

### D.1 ELEMENT NON DETECTÉ

Il arrive que dans certains échantillons, un ou plusieurs éléments ne soient pas détectés, indépendamment de la méthode de dépouillement. Il s'agit principalement d'éléments dont les pics d'énergie sont masqués par le bruit de fond ou par le pic d'un autre élément. Nous avons donc décidé de rejeter les éléments dont le bruit de fond était supérieur à 40% de la valeur (Tessier, 2003).

En agissant de la sorte, il apparaît que 10 éléments ne sont pas détectés systématiquement : As, Ba, Br, Ca, K, Rb, Sb, Ta, Tb et Zr. A l'exception du rubidium (5%), les autres éléments ne sont pas détectés dans plus de 10% des échantillons.

---

### D.2 COMPARAISON DES STANDARDS

L'utilisation de deux standards dans chaque navette permet de vérifier les valeurs mesurées du deuxième standard (Soil7) en utilisant le premier (SL-1) comme référence. De plus, comme chaque standard est mesuré en début et en fin de série, on obtient 2 valeurs pour chaque standard.

Ici, comme  $SL1_{\text{début}}$  est utilisé comme référence, on peut vérifier l'exactitude des résultats en comparant les valeurs avec celles de  $SL1_{\text{fin}}$  et des deux mesures sur Soil7. Exceptionnellement, le standard Soil7 a été utilisé comme référence pour la navette n°8. Ceci s'explique par une erreur sur les deux mesures de SL1 lors de la série D.

Pour valider une mesure, il est nécessaire de prendre en compte l'intervalle certifié pour chaque élément. Nous avons décidé d'appliquer deux tests de vérification :

- 1) La valeur mesurée du standard est-elle dans l'intervalle certifié ?  
Si oui = validation de la valeur
- 2) Si non : la valeur est-elle à moins de 15% de la valeur référence ?  
Si oui = validation de la valeur  
Si non = rejet de la valeur

## D.2.1 COMPARAISON DE SL1

Pour comparer, nous avons appliqué la formule suivante:

$$\text{Comparaison} = (\text{Valeur mesurée} - \text{Valeur certifiée}) / \text{Valeur certifiée}$$

Les résultats de comparaison entre SL1<sub>début</sub> (référence) et SL1<sub>fin</sub> (mesure) sont compilés dans le Tableau D-1. A l'exception d'éléments isolés (Cs pour la navette 3 et La Lu pour la navette n°8) et de la navette n°6, on remarque que l'ensemble des valeurs répondent positivement aux critères 1 et 2. Dans certains cas, l'une des mesures du standard SL1 n'a pas été réalisée (navettes n°5, n°7 et n°8), principalement à cause de problèmes sur le passeur d'échantillons.

**Tableau D-1 – Ecart entre les valeurs certifiées de SL1 et les valeurs mesurées de SL1<sub>fin</sub> – Les résultats en rouges sont hors de l'intervalle et présentent un écart supérieur à 15% de la valeur certifiée.**

Navette	Série	1	2	3	4	5	6	7	8*
Ce	D	4,5%	1,0%	0,5%	0,5%		21,6%		
Co	D	3,6%	0,4%	2,2%	0,3%		19,0%		
Cr	D	6,8%	0,1%	1,1%	1,3%		18,8%		
Cs	D	9,9%	2,4%	16,9%	4,8%		23,0%		
Eu	D	6,6%	0,3%	8,6%	11,7%		10,2%		
Fe	D	6,2%	0,1%	0,3%	0,1%		20,4%		
Hf	D	4,0%	1,6%	0,5%	1,2%		18,1%		
La	B	5,9%	3,4%	2,0%	0,6%	0,6%	0,3%	2,2%	20,6%
Lu	C	0,4%	3,3%	7,9%	5,0%	0,8%		11,5%	32,0%
Na	A	0,3%	7,0%		3,5%	1,2%		0,2%	6,7%
Nd	D	13,0%	11,0%	0,1%	3,4%		19,7%		
Sc	D	4,8%	0,4%	0,5%	0,1%		19,1%		
Sm	C	0,1%	1,0%	9,7%	1,4%	0,6%		1,0%	10,9%
Th	D	6,3%	2,5%	0,1%	0,4%		19,0%		
Yb	D	9,0%	3,1%	8,2%	1,5%		18,3%		
Zn	D	8,1%	4,5%	0,1%	3,9%		16,7%		

\*Pour la navette n°8, comme le standard Soil7 a été utilisé comme référence, les teneurs de SL1 correspondent aux moyennes entre la valeur de début et la valeur finale pour les séries A, B et C.

Pour la navette n°6, un décalage important apparaît sur les mesures obtenues par la série D et les valeurs de référence. Comme le but de ces tests est de déterminer les éléments qui peuvent être utilisés pour la suite des travaux, nous avons décidé d'exclure les résultats de cette série (Série D de la navette n°6) de ces tests pour les traiter ultérieurement en se concentrant sur les éléments validés.

Le cas de la navette n°8 est particulier. En effet, dans cette navette, nous avons placé deux standards Soil7 supplémentaires (Soil7b et Soil7c), pour vérifier si l'emplacement de ce standard dans la navette engendrait des différences (en haut, au milieu et en bas de la navette). Lorsque l'on utilise Soil7a comme référence, les valeurs obtenues dans les deux autres Soil7 sont similaires (résultats non présentés).

### D.2.2 COMPARAISON DES MESURES DE SOIL7

En comparant les résultats obtenus par les mesures effectuées sur le standard Soil7 et les valeurs de référence (Tableau D-2), on remarque en premier lieu un écart significatif pour les éléments déterminés par le standard Soil7<sub>début</sub> dans la navette n°3. Nous avons décidé de la retirer et nous ne conservons que les valeurs obtenus par le standard Soil7<sub>fin</sub>. Cet écart s'explique par un problème lors de la mesure de l'échantillon (suite à un mauvais positionnement dans le château de plomb).

On remarque également quelques écarts significatifs pour les deux mesures (Soil7<sub>début</sub> et Soil7<sub>fin</sub>) dans la navette n°4 (Ce, Fe, La, Sc et Sm). Cependant, les écarts sont similaires sur les deux mesures de cette navette ce qui permet de les conserver car cela n'impactera pas le calcul de l'incertitude à appliquer sur les teneurs. Cependant, l'incertitude pour les échantillons de cette navette sera supérieure à celle des autres navettes. La raison de ce décalage n'a pas pu être identifiée.

**Tableau D-2 - Ecart entre les valeurs certifiées de Soil7 et les valeurs mesurées de Soil7<sub>début</sub> et de Soil7<sub>fin</sub> – Les résultats en rouges sont hors de l'intervalle et l'écart est > à 15% de la valeur certifiée.**

Navette		1		2		3		4		5		7		8	
Série \ Soil7		Début	Fin	Début*	Fin										
Ce	D	14,6%	10,5%	7,7%	8,3%	18,2%	19,5%	23,2%	23,6%	11,8%		9,1%	6,3%		0,1%
Co	D	3,5%	0,1%	0,4%	1,3%	22,3%	9,7%	17,3%	17,1%	4,8%		0,2%	2,5%		0,6%
Cr	D	11,4%	4,4%	8,4%	5,9%	19,2%	18,9%	17,6%	17,8%	9,1%		8,5%	3,4%		0,9%
Cs	D	1,4%	1,9%	0,6%	1,0%	23,4%	10,2%	8,6%	11,3%	0,9%		2,1%	3,3%		3,7%
Eu	D	24,8%	10,3%	20,0%	7,3%	32,5%	6,6%	2,8%	0,8%	8,9%		12,4%	12,9%		1,0%
Fe	D	6,9%	1,1%	0,8%	1,8%	20,9%	16,0%	21,6%	22,1%	14,0%		7,2%	5,5%		0,4%
Hf	D	6,9%	9,6%	9,2%	9,4%	33,1%	8,2%	2,4%	0,4%	11,4%		15,5%	18,4%		0,6%
La	B	3,8%	1,4%	4,5%	0,3%	13,5%	11,5%	22,8%	22,5%	7,0%	9,3%	5,4%	3,0%		3,5%
Lu	C	28,4%	17,6%	22,5%	26,8%	18,5%	25,8%	23,2%	31,2%	15,1%	21,5%	23,8%	36,6%		8,1%
Na	A	0,3%	3,9%	1,8%	7,0%			1,2%	3,0%	4,5%	5,8%	9,4%	8,3%		2,6%
Nd	D	14,9%	34,5%	24,5%	38,6%	40,4%	20,5%	8,7%	12,5%	12,6%		14,9%	28,3%		10,5%
Sc	D	9,1%	3,8%	3,4%	3,4%	18,5%	15,2%	20,9%	21,4%	11,6%		5,7%	4,9%		0,3%
Sm	C	5,4%	3,9%	1,8%	7,3%	13,1%	17,7%	17,7%	19,7%	6,2%	6,3%	0,0%	4,2%		9,1%
Th	D	1,8%	4,7%	4,2%	5,1%	25,7%	6,8%	11,4%	12,9%	0,5%		4,1%	6,7%		1,0%
Yb	D	6,1%	9,6%	0,1%	4,5%	5,3%	7,2%	4,9%	6,9%	5,2%		6,2%	5,8%		0,3%
Zn	D	22,7%	13,3%	5,1%	1,1%	20,1%	17,1%	16,4%	19,4%	5,7%		7,8%	3,0%		2,5%

\*Pas de valeurs car utilisé comme référence.

Enfin, lorsque l'on compare les autres valeurs mesurées de Soil7, il subsiste quelques écarts significatifs mais isolés sur certains éléments (Ce, Eu, Hf, Lu, Nd, Sm et Zn). Cependant, le pourcentage d'écart moyen pour chaque navette des teneurs obtenues sur Soil7<sub>début</sub> et Soil7<sub>fin</sub> reste inférieur à 20% à l'exception du lutétium et du néodyme (Tableau D-3). Pour ces deux éléments, l'écart moyen global (moyenne de toutes les navettes) est aussi supérieur à 15%. Cela est principalement à la large gamme de valeurs certifiées (Annexe C) et à leur faible teneur dans les standards. Nous avons donc décidé de les retirer pour la suite des travaux.

**Tableau D-3 – Pourcentage d'écart entre la valeur référence de Soil7 et la moyenne des valeurs mesurées dans Soil7<sub>début</sub> et Soil7<sub>fin</sub> des échantillons hors intervalles certifiés. Les écarts supérieurs à 20% sont notés en rouge.**

Navette	N°1	N°2	N°3	N°6	N°7	Ecart moyen global*
Ce			19,5 %			12 %
Eu	-17,5 %	-13,6 %				-12 %
Hf					16,9 %	11 %
Lu				37,4 %	30,1 %	27 %
Nd	-24,6 %	-31,5 %			-21,6 %	22 %
Sm			17,7 %			7 %
Zn	18.0 %					10 %

\*Résultats obtenues en excluant les navettes n°4 et n°6 ainsi que les mesures sur Soil7<sub>début</sub> de la navette n°3.

### D.3 AJOUT DES DONNEES D'ACTIVATION SOUS CADMIUM

Pour pouvoir combiner les résultats des deux méthodes d'activation, nous avons comparé les résultats obtenus sur des échantillons analysés par les deux méthodes. Ainsi, des sous-échantillons de 65 laisses et sols ont été mesurés d'une part après l'irradiation dans le réacteur Orphée, et d'autre part suivant l'irradiation sous cadmium. Nous avons ensuite appliqué la formule suivante pour calculer l'écart en pourcent (Tableau D-4) :

$$\text{Comparaison} = \frac{\text{valeur méthode 1} - \text{valeur méthode 2}}{\text{valeur méthode 1} + \text{valeur méthode 2}}$$

Nous avons ainsi obtenu, pour chaque échantillon et pour chaque élément, un écart en pourcent entre les deux méthodes. Si de nombreuses valeurs étaient supérieures à 15% d'écart, nous avons décidé de nous concentrer sur les valeurs moyennes. Ainsi, pour chaque échantillon, nous avons calculé la moyenne des écarts des éléments et, pour chaque élément, nous avons calculé la moyenne des écarts des échantillons (Tableau D-4). Au total, 2 éléments présentaient des écarts moyens supérieurs à 15%. C'était également le cas pour 10 échantillons.

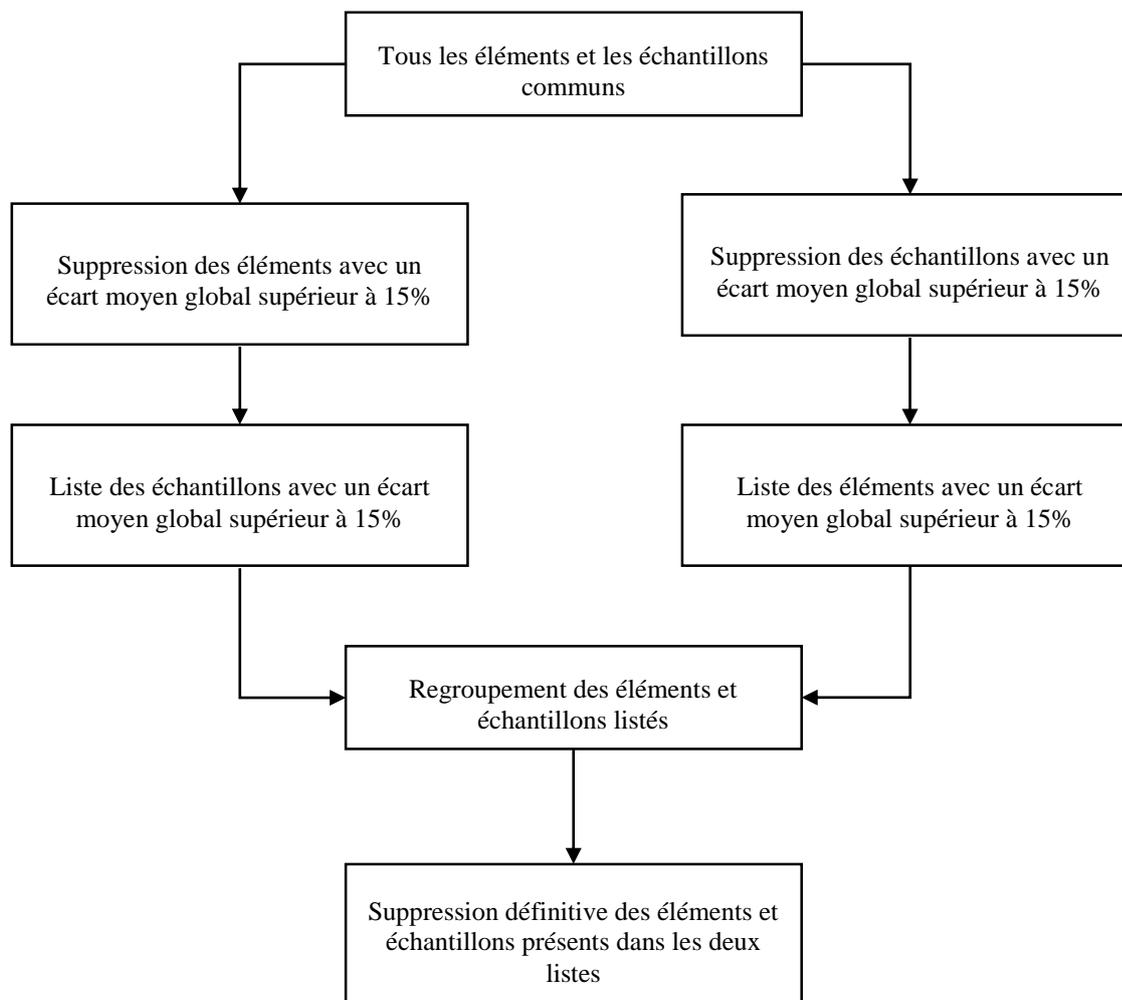
Avant de supprimer ces éléments, il a fallu vérifier si ces écarts importants n'étaient pas dus à des échantillons présentant des teneurs particulières. De même pour les échantillons, il a fallu vérifier que les écarts n'étaient pas dus à des éléments spécifiques.

**Tableau D-4 – Ecart moyen des teneurs mesurées par les deux méthodes. Les écarts en rouge sont supérieurs à 15%.**

Élément	Écarts moyens*
Ce	12,1%
Co	6,9%
Cr	22,2%
Cs	9,1%
Eu	19,1%
Fe	6,4%
Hf	14,6%
La	11,9%
Na	8,9%
Sc	6,6%
Sm	9,7%
Th	13,6%
Yb169	9,2%
Zn	7,8%

\*Calculé à partir la valeur absolue des teneurs

Ainsi, nous avons procédé en suivant plusieurs étapes pour prendre en compte l'ensemble des cas de figure (Figure D-1).



**Figure D-1 – Schéma décrivant les étapes pour valider l'utilisation des données apportées par l'irradiation sous Cadmium.**

Au cours de ce test, et malgré la suppression des échantillons ayant plus de 15% d'écart, le chrome et l'euporium présentaient toujours des écarts supérieurs à cette limite. Nous pouvons donc en déduire que l'écart sur ces éléments est dû aux méthodes de mesures.

Pour les échantillons, les résultats étaient différents en fonction des tests, mais 8 échantillons présentaient un écart supérieur à 15% après les deux tests. Nous les avons donc supprimés.

Enfin, après suppression des deux éléments et des cinq échantillons, trois nouveaux échantillons ont dû être retirés car leurs écarts étaient supérieurs à 15%.

## D.4 CAS DE LA NAVETTE N°6

Le cas de la navette n°6 est particulier. Les résultats de comparaison des standards montrent un écart important sur la plupart des éléments déterminés lors de la série D (Tableau D-5). Cette observation indique un problème de mesure pour SL1<sub>début</sub> ou pour SL1<sub>fin</sub> lors de cette même série. Pour déterminer quelle mesure est fautive, nous avons comparé les résultats obtenus sur les standards Soil7 en utilisant les deux SL1 comme référence (Tableau D-5 et Tableau D-6) pour les éléments obtenus lors de la série D.

Tableau D-5 – Ecart entre les valeurs certifiées de SL1 et les valeurs mesurées de SL1<sub>fin</sub>

Éléments série D	SL-1 <sub>fin</sub>	Soil7 <sub>début</sub>	Soil7 <sub>fin</sub>
Ce	-22%	-6%	48%
Co	-19%	-12%	35%
Cs	-23%	-17%	31%
Fe	-20%	-9%	43%
Hf	-18%	-31%	4%
Sc	-19%	-9%	39%
Th	-19%	-18%	27%
Yb	-17%	-12%	34%
Zn	-18%	-15%	10%

Tableau D-6 – Ecart entre les valeurs certifiées de SL1 et les valeurs mesurées de SL1<sub>début</sub>

Éléments série D	SL-1 <sub>début</sub>	Soil7 <sub>début</sub>	Soil7 <sub>fin</sub>
Ce	-22%	-26%	16%
Co	-19%	-28%	9%
Cs	-23%	-36%	1%
Fe	-20%	-27%	14%
Hf	-18%	-44%	-15%
Sc	-19%	-26%	13%
Th	-19%	-34%	3%
Yb	-17%	-27%	12%
Zn	-18%	-30%	-10%

On remarque qu'à l'issue de ces tests, les résultats présentent à nouveau un décalage significatif sur la navette n°6 pour les deux mesures. Lorsque l'on utilise SL-1<sub>début</sub> comme référence, on remarque des écarts importants sur Soil7<sub>fin</sub> et inversement lorsque l'on utilise SL-1<sub>fin</sub> comme référence, c'est Soil7<sub>début</sub> qui montre des écarts importants. Ces variations d'écart entre les standards signifient qu'il y a aussi eu un problème de mesure du standard Soil7.

Nous avons alors décidé de comparer les teneurs obtenues par les deux méthodes (classique et Cadmium) pour les échantillons communs (4 sédiments et 3 sols). Les écarts calculés sont présentés dans le Tableau D-7 et le

Tableau D-8.

**Tableau D-7 – Ecart (%) entre les teneurs obtenues par INAA classique et sous Cadmium en utilisant SL1<sub>début</sub> comme référence. Les écarts supérieurs à 15% sont en rouge et les résultats inférieurs à 10% en gras.**

Éléments série D	FML422	FML447	FMS233	FNL416	FNL467	FNS216	FNS584	Moyenne*
Ce	12,8%	11,5%	20,1%	0,9%	22,0%	16,9%	18,0%	14,6%
Co	4,1%	7,8%	4,0%	8,7%	9,2%	9,8%	8,9%	7,5%
Cs	12,0%	11,4%	14,4%	13,6%	15,3%	14,5%	18,9%	14,3%
Fe	7,0%	7,1%	10,3%	10,8%	8,1%	11,0%	10,0%	9,2%
Hf	2,8%	-1,7%	-1,2%	3,3%	-14,3%	4,1%	-5,5%	4,7%
Sc	8,5%	9,8%	14,4%	9,2%	12,0%	12,2%	12,3%	11,2%
Th	14,2%	-4,8%	22,4%	-25,4%	12,5%	16,3%	8,5%	14,9%
Yb	1,2%	-0,8%	4,7%	3,4%	0,1%	0,2%	8,7%	2,7%
Zn	17,7%	14,7%	2,2%	23,1%	23,1%	14,4%	22,5%	16,8%

\*Calculé à partir la valeur absolue des teneurs

**Tableau D-8 - Ecart (%) entre les teneurs obtenues par INAA classique et Cadmium en utilisant SL1<sub>fin</sub> comme référence. Les écarts supérieurs à 15% sont en rouge et les résultats inférieurs à 10% en gras.**

Éléments série D	FML422	FML447	FMS233	FNL416	FNL467	FNS216	FNS584	Moyenne*
Ce	4,9%	8,2%	-11,3%	0,7%	-0,7%	10,1%	6,0%	6,0%
Co	-0,7%	-6,5%	-1,8%	-6,4%	-2,7%	-1,2%	-1,6%	3,0%
Cs	1,5%	1,4%	0,6%	-1,0%	-1,6%	2,3%	6,0%	2,1%
Fe	-0,3%	-1,0%	-0,6%	-4,4%	-4,3%	-3,3%	-1,4%	2,2%
Hf	-5,9%	-11,1%	-6,6%	-7,1%	-11,6%	-23,9%	-15,3%	11,7%
Sc	1,7%	3,9%	-1,3%	-2,1%	-0,7%	1,5%	1,8%	1,9%
Th	5,9%	12,2%	-35,0%	3,8%	-15,2%	2,1%	-2,0%	10,9%
Yb	-9,9%	-5,3%	-6,5%	-8,8%	-10,9%	-9,8%	-1,3%	7,5%
Zn	5,3%	-6,9%	14,3%	8,7%	5,7%	14,3%	13,6%	9,8%

\*Calculé à partir la valeur absolue des teneurs

Dans ces Tableaux, on remarque qu'en utilisant SL1<sub>fin</sub> comme référence (Tableau 2-8), on obtient des résultats proches de ceux obtenus sous Cadmium. En utilisant SL1<sub>début</sub>, les résultats sont moins bons. L'utilisation de SL1<sub>fin</sub> confère donc de meilleurs résultats pour cette navette. Il semblerait que le problème de mesures n'ait affecté que les mesures du début de la série D.

Les teneurs des échantillons de la navette n°6 seront calculés en utilisant SL1<sub>fin</sub> comme référence et l'incertitude sur ces teneurs sera égale à l'écart entre la valeur référence de Soil7 et celle mesurée par Soil7<sub>fin</sub>. Les résultats obtenus par cette navette sont réintroduits pour la suite des travaux.

## D.5 EMBLACEMENT DES STANDARDS DANS LES NAVETTES

Tableau D-9 - Ecart entre les valeurs certifiées de Soil7 et les valeurs mesurées de Soil7b et de Soil7c.

Éléments	Soil7b (bas)	Soil7c (haut)
Ce	0,8%	2,4%
Co	0,4%	0,2%
Cs	0,3%	0,1%
Fe	1,3%	0,9%
Hf	4,5%	2,1%
Sc	1,3%	1,0%
Th	1,5%	0,6%
Yb	5,1%	1,8%
Zn	5,4%	6,0%

Dans la dernière navette (n°8), nous avons introduit 2 standards Soil7 supplémentaires pour vérifier si les mesures de teneurs sont impactées par l'emplacement de ce standard.

Pour vérifier cela, nous avons calculé le pourcentage de différence entre la valeur certifiée de Soil7 et les mesures sur ces deux échantillons (Tableau D-9).

On remarque que les écarts sont très faibles, voire même inférieurs à 5% dans la plupart des éléments et pour les deux échantillons. Seul le zinc présente un écart >5% pour les deux standards. Quoiqu'il en soit, l'emplacement du standard dans la navette n'impacte pas les teneurs élémentaires.



## Tracage de la dispersion des sédiments contaminés dans les bassins versants côtiers de Fukushima

### Résumé :

Suite aux séismes et au tsunami qui ont frappé les côtes japonaises le 11 mars 2011, d'importantes quantités de radionucléides ont été émises par la centrale de Fukushima Dai-Ichi. Une part non négligeable (20%) du radiocésium rejeté s'est ensuite déposée sur les sols de la Préfecture de Fukushima. Cette étude vise à développer des méthodes de tracage sédimentaire originales afin de comprendre la dispersion des particules contaminées. L'étude se concentre sur 3 bassins versants côtiers situés au nord de la centrale (bassins de la Mano - 175 km<sup>2</sup>, Niida - 270 km<sup>2</sup> et Ota - 75 km<sup>2</sup>) et drainant la partie la plus contaminée du panache de pollution radioactive. Cette région connaît un climat particulièrement érosif, avec des crues printanières et le passage de typhons entre juin et octobre. Pour étudier la dispersion de la contamination radioactive initiale, des sols et des laisses de crues ont été collectés au cours de 6 campagnes de terrain (organisées tous les 6 mois entre novembre 2011 et mai 2014 après les crues printanières et les typhons estivaux). L'activité des principaux radionucléides a été mesurée par spectrométrie gamma et une sélection d'échantillons a également été analysée par activation neutronique afin de déterminer leur teneur en une vingtaine d'éléments. L'analyse de l'activité en <sup>137</sup>Cs dans 10 carottes de sols collectées dans des rizières a confirmé la faible migration du césium en profondeur dans les sols de la région. Plus de 90 % de la contamination étaient concentrés dans les 2 cm superficiels des sols en novembre 2013. Cette contamination située à la surface du sol reste donc potentiellement mobilisable par l'érosion. Par ailleurs, la détection d'argent-110 métastable (<sup>110m</sup>Ag) et le fait que ce radioisotope ait un comportement similaire à celui du césium, ont permis de l'utiliser pour tracer la dispersion de la contamination dans le bassin versant de la Niida. En effet, le rapport d'activités <sup>110m</sup>Ag/<sup>137</sup>Cs dans les sols de ce bassin est significativement différent à l'amont et à l'aval de celui-ci. L'utilisation de ce rapport et d'un modèle de mélange binaire a permis d'identifier l'occurrence de cycles d'érosion et de dispersion saisonniers de la contamination. Cependant, <sup>110m</sup>Ag ayant une demi-vie de 250 jours, il a rapidement décru et l'activité est devenue inférieure aux limites de détection à compter de mai 2013. Pour pallier sa disparition, la contribution des sols des plateaux montagneux aux sédiments transitant dans la plaine côtière a été quantifiée à partir de leur signature en <sup>137</sup>Cs. En utilisant un modèle de mélange binaire basé sur les distributions du <sup>137</sup>Cs à l'amont (> 20 kBq/m<sup>2</sup>) et à l'aval (< 20 kBq/m<sup>2</sup>) des bassins versants, les résultats montrent que la contribution de la zone amont diffère en fonction du bassin versant. Elle fournit une part non négligeable (=46%) des sédiments à la rivière Niida, qui est dépourvue de barrage, à la différence de la rivière Mano (=20 %) qui en est équipée. Ces résultats montrent donc l'impact de ce type d'ouvrage qui génère une dysconnectivité sédimentaire. Afin de préciser l'origine spatiale des sédiments contaminés transportés par ces rivières, la carte des sols des bassins versants a été utilisée. Les principaux types de sols (Andosols, Cambisols et Fluvisols) ont été caractérisés par leurs teneurs en éléments chimiques, et Sc et Yb se sont révélés être le couple d'éléments le plus discriminant. Les distributions de ces deux éléments dans les trois sources ont ensuite été utilisées dans un modèle de mélange. Les résultats montrent une contribution majoritaire (> 70 %) des Fluvisols dans les sédiments. La forte contribution de ce type de sol, que l'on trouve principalement dans les rizières, confirme donc l'érodabilité accrue de ces zones agricoles. Pour poursuivre ces travaux, l'ensemble des données acquises pourrait être utilisé pour améliorer les modèles d'érosion des sols opérant à l'échelle des bassins versants. De plus, il serait pertinent d'étudier l'impact des travaux de décontamination actuellement en cours sur la dispersion des sédiments contaminés.

## Tracking the dispersion of contaminated sediments in Fukushima coastal catchments

### Abstract:

Large quantities of radionuclides were released into the atmosphere by the Fukushima Dai-Ichi Nuclear Power Plant (FDNPP) after the earthquake-triggered tsunami devastated the eastern coast of Japan on March 11, 2011. Many of these radionuclides (20%) were deposited on soils of the Fukushima Prefecture. This PhD thesis develops original fingerprinting methods to track the dispersion of contaminated particles following this accident. The study focuses on 3 coastal catchments north of the FDNPP (Mano – 175km<sup>2</sup>, Niida – 270km<sup>2</sup> and Ota – 75km<sup>2</sup>) draining heavily contaminated areas of the radioactive plume. The Fukushima Prefecture is characterized by an erosive climate, with the occurrence of spring floods and summer typhoons. To study the dispersion of the radioactive contamination, soil samples and sediment drape deposits were collected during 6 sampling campaigns (every six months between November 2011 and May 2014; i.e., after the major flood events). Each sample was analyzed by gamma spectrometry to determine radionuclide activities, and several soil and sediment samples were also analyzed by neutron activation analysis to determine their geochemistry. First, the analysis of <sup>137</sup>Cs activity in 10 soil cores collected in paddy fields confirmed the limited migration of radiocesium with depth in the soils of the coastal catchments. More than 90% of the contamination was still concentrated in the uppermost 2cm of the soils by November 2013. Particles contaminated were therefore available for mobilization and transport downstream by processes that govern soil erosion. Second, metastable silver-110 (<sup>110m</sup>Ag) was detected in most of the samples collected between November 2011 and November 2012, and our investigation showed that this radionuclide has a similar behavior as <sup>137</sup>Cs in soil and sediment. Consequently, we used <sup>110m</sup>Ag to track the dispersion of the contamination as the <sup>110m</sup>Ag/<sup>137</sup>Cs activity ratio in soils of the Niida catchment showed significant differences between upstream and downstream locations. The use of a binary mixing model allowed the identification of a seasonal cycle of erosion and dispersion of particles. However, as <sup>110m</sup>Ag has a short half-life (250 days), it rapidly decayed and could not be detected anymore by May 2013. To overcome its disappearance, the contribution of soils located on the mountainous plateaus to the sediment transiting the river in the coastal plains was quantified based on their <sup>137</sup>Cs signature. Binary mixing models were used, based on the distributions of <sup>137</sup>Cs in mountainous areas (> 20 kBq/m<sup>2</sup>) and in coastal plains (< 20 kBq/m<sup>2</sup>). The results demonstrated that the contribution of the mountainous area varied in the different catchments. In the Niida catchment where no dam has been built, the mountainous area supplies more sediment to the river (=46%) than in the Mano catchment that has a dam (=20%). These results show the impact of dams generating a sediment disconnectivity. Finally, the soil map of the region was used in order to identify the soil types that may supply sediment to the rivers. The main soil types (Andosols, Cambisols and Fluvisols) were characterized by their geochemical composition, and Sc and Yb were identified as the most discriminant elements. The distributions of these elements in the three sources were used in a mixing model. Results show that Fluvisols are the main source supplying >70% of sediment to the rivers in both catchments. This soil type is mainly found in paddy fields, which confirms the enhanced erodibility of these cultivated areas. In the future, the dataset compiled could be used to improve soil erosion model operating at the catchment scale. Moreover, the impact of the ongoing decontamination works on the dispersion of contaminated sediments should be investigated.