

Mention “**Agrosciences, Environnement, Territoires, Paysage, Forêt**”

Parcours “**Gestion des sols et services écosystémiques**”

--

## **Mobilité physique et chimique du $^{10}\text{Be}$ , $^{137}\text{Cs}$ et $^{210}\text{Pb}$ (xs) dans les sols : rôle des caractéristiques pédologiques**

Le  $^{10}\text{Be}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  et  $^{210}\text{Pb}$  (xs) dans les sols

--

## **Physical and chemical mobility of $^{10}\text{Be}$ , $^{137}\text{Cs}$ and $^{210}\text{Pb}$ (xs) in soils: impact of soil characteristics**

$^{10}\text{Be}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  and  $^{210}\text{Pb}$  (xs) in soils

--

Présenté par

**Félix DE TOMBEUR**

Stage effectué au Centre de Recherche et d'Enseignement de Géosciences de l'Environnement.

Sous la direction de **Sophie CORNU** et **Didier BOURLES**



**Soutenu le 29 juin 2016 à Thiverval-Grignon, devant le jury composé de :**

Rapporteur : CAMBIER Philippe

Examineurs : BAVEYE Philippe (AgroParisTech)

BENOIT Pierre (INRA)

CHENU Claire (AgroParisTech)

MICHELIN Joël (AgroParisTech)

RUMPEL Cornelia (CNRS)

## Table des matières

Liste des Figures.....	2
Liste des tableaux.....	2
I. Introduction .....	3
I - 1. Contexte et enjeux : les transferts de matières verticaux dans les sols.....	3
I - 2. Présentation de la méthode multi-isotopique.....	3
I - 3. Objectifs et démarches.....	4
II. Matériels et méthodes.....	5
II - 1. Choix des sols étudiés .....	5
II - 2. Echantillonnage.....	7
II - 3. Analyses pédologiques .....	8
II - 4. Analyses du $^{10}\text{Be}$ .....	8
II - 5. Analyses du $^{137}\text{Cs}$ et $^{210}\text{Pb}$ (xs) .....	8
II - 6. Calcul des bilans de masses.....	9
II - 7. Calculs d'incertitudes .....	11
III. Résultats et discussions.....	12
III - 1. Gammes des caractéristiques pédologiques considérées.....	12
III - 2. Distribution verticale des isotopes.....	14
III - 3. Confrontation entre stocks et apports issus de la littérature .....	18
III - 4. Impacts des différentes caractéristiques pédologiques sur la distribution des isotopes .....	25
IV. Conclusions et perspectives.....	33
V. Références bibliographiques.....	35
Remerciements.....	40
Annexes.....	41
Résumé.....	48

## Liste des Figures

<b>Figure 1</b> - Photos des 5 différents types de pédogenèses étudiés.....	5
<b>Figure 2</b> - Localisation des sols de l'étude .....	6
<b>Figure 3</b> - Variabilité spatiale de la profondeur du Leptosol.....	7
<b>Figure 4</b> - pH (A), $C_{\text{org}}$ (B) et $< 2\mu\text{m}$ (C) des sols étudiés.....	13
<b>Figure 5</b> - Distributions avec la profondeur du $^{10}\text{Be}$ ( $\times 10^8$ atomes. $\text{cm}^{-3}$ ), $^{137}\text{Cs}$ et $^{210}\text{Pb}$ (xs) ( $\times 10^{-3}$ Bq. $\text{cm}^{-3}$ ) dans les sols étudiés.....	16
<b>Figure 6</b> - Les profils "types" de distribution avec la profondeur des isotopes $^{137}\text{Cs}$ , $^{210}\text{Pb}$ (xs) et $^{10}\text{Be}$ dans les sols étudiés .....	17
<b>Figure 7</b> - Taux de dépôt annuel de $^{10}\text{Be}$ (atomes. $\text{cm}^{-2}.\text{an}^{-1}$ ) fourni par la littérature en abscisse et estimé à partir des stocks mesurés dans les sols étudiés en ordonnée.....	20
<b>Figure 8</b> - Apport de $^{137}\text{Cs}$ dérivé de la littérature en abscisse et stock de $^{137}\text{Cs}$ dans les sols étudiés en ordonnée (Bq. $\text{m}^{-2}$ ).....	22
<b>Figure 9</b> - Taux de dépôt annuel de $^{210}\text{Pb}$ (xs) sur les sols étudiés et mesurés dans les pluies sur la base de données compilés par Baskaran et al., (2011) à l'échelle mondiale, en fonction de la pluviométrie annuelle (Bq. $\text{m}^{-2}.\text{an}^{-1}$ ).....	24
<b>Figure 10</b> - Concentrations en $^{10}\text{Be}$ (atomes. $\text{g}^{-1}$ ) en fonction du coefficient de partage $K_{d<2\mu\text{m}}$ ( $\text{cm}^3.\text{g}^{-1}$ ; Campfort et al., 2016) des sols étudiés.....	26
<b>Figure 11</b> - Distribution avec la profondeur du $C_{\text{org}}$ (g. $\text{kg}^{-1}$ ) et du $^{10}\text{Be}$ (atomes. $\text{g}^{-1}$ ) dans les Podzols sous forêt et sous maïs de Pierroton.....	27
<b>Figure 12</b> - Activités en $^{210}\text{Pb}$ (xs) (Bq. $\text{kg}^{-1}$ ) en fonction du carbone organique (g. $\text{kg}^{-1}$ ) des différents échantillons des sols étudiés.....	28
<b>Figure 13</b> - Concentrations en $^{10}\text{Be}$ (atomes. $\text{g}^{-1}$ ) en fonction de la teneur en $< 2\mu\text{m}$ (g. $\text{kg}^{-1}$ ) des différents échantillons des sols étudiés.....	29
<b>Figure 14</b> - Distribution avec la profondeur des teneurs en $< 2\mu\text{m}$ (g. $\text{kg}^{-1}$ ) et du $^{10}\text{Be}$ (atomes. $\text{g}^{-1}$ ) dans les Podzols sous forêt et sous maïs de Pierroton.....	30
<b>Figure 15</b> – Profondeur du pic de $^{137}\text{Cs}$ (cm) en fonction des teneurs moyennes en $< 2\mu\text{m}$ (g. $\text{kg}^{-1}$ ) des sols étudiés.....	30
<b>Figure 16</b> - Activités en $^{210}\text{Pb}$ (xs) (Bq. $\text{kg}^{-1}$ ) en fonction de la teneur en $< 2\mu\text{m}$ (g. $\text{kg}^{-1}$ ) des différents échantillons des sols étudiés.....	31

## Liste des tableaux

<b>Tableau 1</b> - Description générale des sites étudiés.....	5
<b>Tableau 2</b> – Incertitudes sur les données d'entrées .....	11
<b>Tableau 3</b> - pH, teneur en carbone organique et texture des sols étudiés.....	12
<b>Tableau 4</b> - Stocks totaux en $^{137}\text{Cs}$ , $^{210}\text{Pb}$ (xs) (Bq. $\text{m}^{-2}$ ) et $^{10}\text{Be}$ (atomes. $\text{cm}^{-2}$ ) dans les sols étudiés - Stocks en $^{10}\text{Be}$ hérité et/ou in situ (atomes. $\text{cm}^{-2}$ ).....	19

## I. Introduction

### I - 1. Contexte et enjeux : les transferts de matières verticaux dans les sols

La pédogenèse résulte de processus physiques, chimiques et biologiques régis par des facteurs naturels et anthropiques (**Jenny, 1961 ; Lin et al., 2011**). Parmi eux, les mécanismes de redistribution verticale de matière, tels que la bioturbation et le lessivage, représentent des processus majeurs de formation et d'évolution des sols. Cependant, ils demeurent mal quantifiés (**Samouelian et Cornu, 2008**).

Le lessivage consiste en la migration de particules  $<2 \mu\text{m}$  des horizons de surface et en leur accumulation dans les horizons plus profonds (horizons Bt) (**Jamagne, 1973**). Ce processus est actif dans de nombreux types de sols (**Quénard et al., 2011**). Cependant, ce processus reste mal contraint pour deux raisons : **i**) sa cinétique est mal connue (**Legros, 2007**) ; **ii**) d'autres processus physico-chimiques peuvent mener à une différenciation de texture dans les sols (**Phillips, 2007**). La bioturbation est un mouvement de matière dans un sol dû aux organismes vivants (**Gobat et al., 2004**). En climat tempéré, les vers de terre sont considérés comme étant les principaux acteurs de ce mouvement (**Gobat et al., 2004**). Leur rôle de mélangeur devrait diminuer les contrastes texturaux dans les sols. Cependant, des auteurs reportent que la bioturbation contribue à la formation d'horizon dans les sols (**Johnson, 1990**). Ainsi, ces deux processus de transferts verticaux de matière dans les sols sont étroitement liés et l'étude de leur cinétique doit se faire conjointement (**Jagercikova, 2014**).

### I - 2. Présentation de la méthode multi-isotopique

Une approche utilisant le  $^{10}\text{Be}$ , le  $^{137}\text{Cs}$  et le  $^{210}\text{Pb}$  (xs), 3 isotopes délivrés au sol par l'atmosphère et aux temps de demi-vie et historiques d'apports contrastés, s'est montrée efficace pour quantifier ces processus de transferts de matières sur des échelles de temps décennale et millénaire (**Jagercikova et al., soumis**).

Le béryllium-10 atmosphérique est un isotope radioactif de demi-vie de 1.39 Ma (**Korschinek et al., 2010**). Il est formé dans l'atmosphère sous l'effet des rayons cosmiques, par spallation de l'azote-14 ou de l'oxygène-16 (**Lal and Peters, 1967**) puis déposé à la surface de la terre par dépôts secs et humides. Son taux de dépôt a été défini par de nombreuses études (**Monaghan et al., 1985/86 ; Graly et al., 2011**) et est étroitement lié à la pluviométrie et à la latitude (**Graly et al., 2011**).

Le  $^{137}\text{Cs}$  est un isotope artificiel (temps de demi-vie de 30.17 ans). C'est l'un des produits de fission de l'uranium. L'isotope provient de deux sources : les essais nucléaires de la seconde moitié du 20<sup>e</sup> siècle et les accidents nucléaires (Tchernobyl en 1986 et Fukushima Dai-ichi en 2011). Après son dépôt à la surface de la terre, il se fixe sur les constituants du sol ayant les capacités d'échanges les plus élevées (**Cremers et al., 1988**).

Enfin, le  $^{210}\text{Pb}$  est un isotope radioactif (temps de demi-vie : 22.3 ans) faisant partie de la chaîne de désintégration de l'uranium-238. C'est l'un des 11 éléments fils du  $^{222}\text{Rn}$  gazeux dont une partie s'échappe de la lithosphère et continue sa désintégration dans l'atmosphère vers le  $^{210}\text{Pb}$ . Ce dernier retourne au sol par dépôts secs et humides avec un taux dépôt constant. Cette fraction du  $^{210}\text{Pb}$  est dite « excess », noté  $^{210}\text{Pb}$  (xs), en contraste avec le  $^{210}\text{Pb}$  « supported » qui s'est formé dans le sol. C'est au  $^{210}\text{Pb}$  (xs) que nous nous intéressons dans cette étude.

Ces éléments présentent une forte affinité pour les constituants solides du sol (You et al., 1989 ; Willenbring and von Blanckenburg, 2010 ; Maejima et al., 2005 ; Barg et al., 1997 ; Cremers et al., 1988 ; Vandebroek et al., 2012 ; Kerndorf et al., 1980 ; Klaminder et al., 2006 ; Kaste et al., 2005). Ainsi, apportés à la surface du sol, ils s'adsorbent sur les phases solides ayant les capacités d'échanges les plus élevées et leurs redistributions peuvent être directement liées aux redistributions de matière (Teramage., 2015 ; Pfahler et al., 2015). De ce fait, ils sont classiquement utilisés pour déterminer des âges de sols ( $^{10}\text{Be}$  ; Egli et al., 2010 ; Barg et al., 1997), calculer des taux d'accumulation de sédiments (Bajard et al., 2015) ou d'érosion (Porto et Walling, 2012). Plus récemment, Jagercikova et al., (2014a, 2015, soumis) les ont utilisés pour déterminer des taux de bioturbation et de lessivage des particules < 2  $\mu\text{m}$  sur la base des distributions de ces isotopes dans des profils d'Eutric Luvisols caractérisés par des pH neutres à basiques et des teneurs en matières organiques faibles. Dans ces conditions, les transferts solubles des isotopes peuvent être négligés en première approche (Campforts et al., 2016). Néanmoins, la redistribution des isotopes dans le sol peut-elle toujours être expliquée par la redistribution de matière dans le sol et ces transferts solubles négligés ? Ainsi, cette approche est-elle applicable à tous les types de sols notamment à des sols présentant des pH acides, riches en matières organiques ou présentant un nombre de sites d'adsorption réduit ?

### ***I - 3. Objectifs et démarches***

Ainsi, nous avons étudié le comportement de ces isotopes dans des sols aux caractéristiques pédologiques variées afin de définir le domaine d'applicabilité de la méthode précédemment décrite. Pour ce faire, nous avons choisi 5 types de sols sur lesquels nous avons étudié la distribution avec la profondeur des 3 isotopes. Par des approches de bilan, nous avons ensuite estimé d'éventuelles pertes à l'échelle du profil de sol. Enfin, nous avons cherché à comprendre l'impact de différentes caractéristiques pédologiques (pH, teneur en carbone organique et teneur en < 2  $\mu\text{m}$ ) sur la distribution verticale des isotopes.

## II. Matériels et méthodes

### II - 1. Choix des sols étudiés

Dans le cadre de cette étude, 4 nouveaux types de pédogenèses (Podzol, Leptosol, Andosol, Ferralsol) ont été ajoutés aux Luvisols étudiés par **Jagercikova et al. (2014a, 2015)**. Ainsi, 10 profils de sols ont été étudiés, avec trois différents usages (culture, prairie, forêt ; Figure 1 ; Tableau 1).

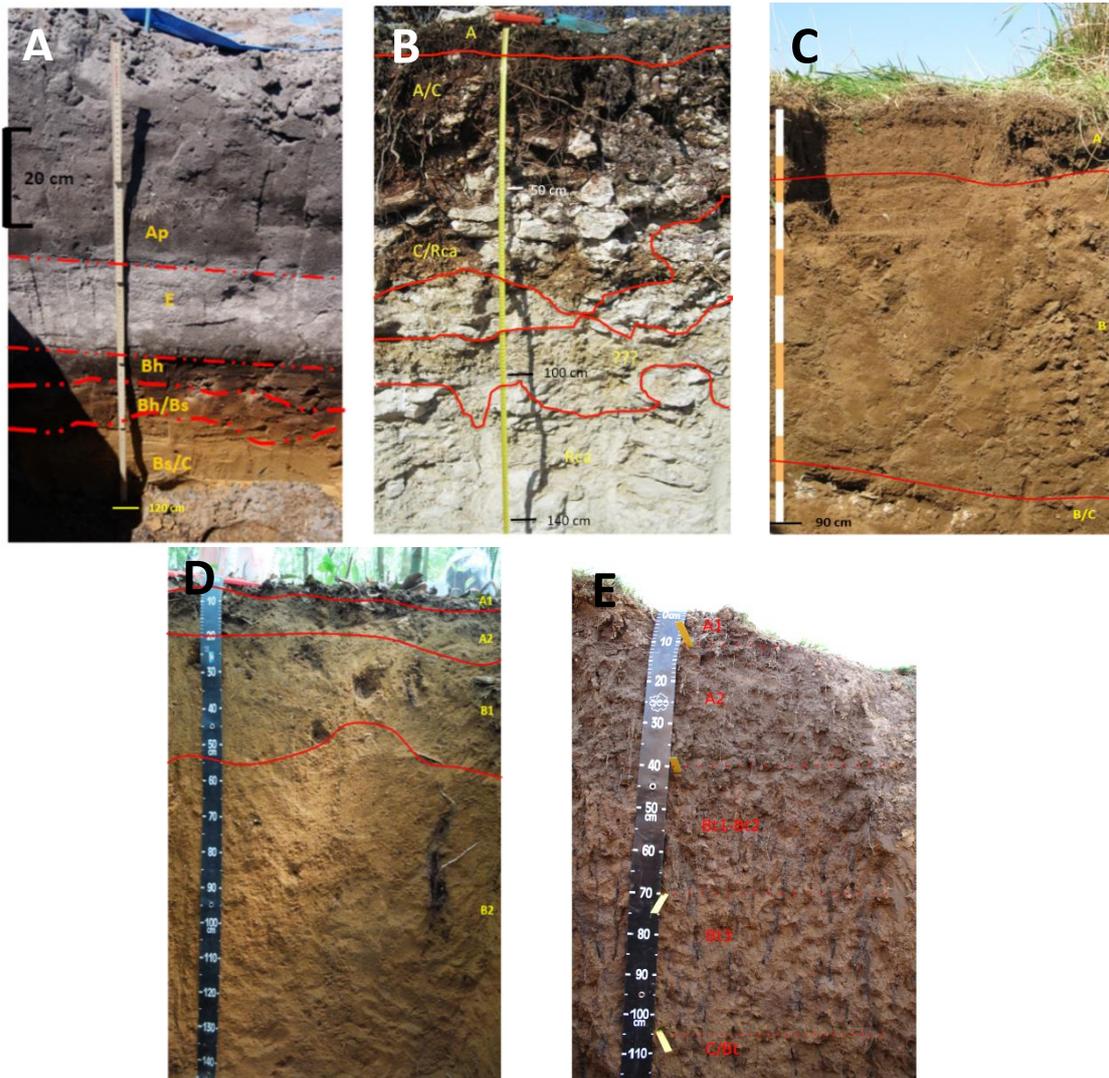


Figure 1 - Photos des 5 différents types de pédogenèses étudiés. A) Podzol sous Mais ; B) Leptosol sous forêt ; C) Andosol sous prairie ; D) Ferralsol sous forêt ; E) Luvisol sous prairie (Mons)

Tableau 1 - Description générale des sites étudiés

Type de sol (WRB)	Luvisol*	Luvisol*	Luvisol*	Podzol	Andosol	Leptosol	Ferralsol
<b>Site</b>	Mons <i>ORE ACBB</i>	Feucherolles <i>Qualiagro</i>	Boigneville <i>Arvalis</i>	Pierroton <i>INRA</i>	Laqueuille <i>INRA</i>	St Michel l'Observatoire <i>O3HP</i>	Rocoucoua
<b>Coordonnées GPS</b>	49°52'01"N 3°01'53"E	48°53'49"N 1°58'19"E	48°19'30"N 2°22'58"E	44°44'33"N 0°47'04"O	45°38'38"N 2°43'59"E	43°56'06"N 5°42'37"E	5°24'39"N 53°18'55"O
<b>Altitude</b>	88m	120m	116m	59m	1035m	682m	84m
<b>Pluviométrie moyenne</b>	680mm	660mm	630mm	890mm	1375mm	886mm	2781mm
<b>Température moyenne</b>	10.4°C	11°C	11.2°C	12.6°C	7.8°	11.8°C	23.5°
<b>Vents dominants</b>	ENE-W-SSW	SW à SSW	SW-NE	W à WSW NNE à ESE	N et S	N-NW E à S	ENE
<b>Matériau parental</b>	3 dépôts de lœss	3 dépôts de lœss sur agrile à meulière	Un dépôt de lœss sur craie cryoturbée	Sables des Landes	Doréite (roche volcanique)	Calcaire de Reillane	Granite
<b>Age sol</b>	16ka-15ka	16ka-15ka	16ka-15ka	44.8ka-15ka	11.9ka-19.1ka	7.6ka-11.5ka	A déterminer
<b>Profondeur matériau parental</b>	120 cm	85 cm (Culture) 105 cm (Forêt)	70 cm	100 cm	85 cm	0 -50 cm	Plus de 250 cm
<b>Pente</b>	Plat	Plat	Plat	Plat	3°	1.7°	2°
<b>Nombre de profils</b>	2	2	1	2	1	1	1
<b>Usages du sol</b>	-Culture -Prairie	-Culture -Forêt	-Culture	-Culture de maïs -Forêt	-Prairie	-Forêt	-Forêt
<b>Date d'échantillonnage</b>	Mars 2011	Avril 2011	Mars 2012	Mai 2014	Septembre 2015	Aout 2015	Janvier 2016

\* d'après Jagercikova et al. (2014a, 2015)

Les sols considérés se situent dans différentes régions de France métropolitaine hormis le Ferralsol (WRB, 2006) situé en Guyane Française (Figure 2). Deux Podzols (WRB, 2006) ont été échantillonnés sur la commune de Cestas-Pierroton (Gironde, 33). Il s'agit d'un sol labouré, chaulé et sous culture de maïs, depuis 24 ans (essai PK de l'INRA Pierroton) et d'un sol sous forêt mixte depuis plus de 90 ans. L'Andosol (WRB, 2006) sous prairie, a été prélevé sur la commune de Laqueuille (Puy-de-Dôme, 63 ; site expérimental de l'INRA). Le Leptosol (WRB, 2006), sous forêt dominée par le chêne pubescent, a été échantillonné sur l'O3HP à Saint Michel l'Observatoire (Alpes-de-Haute-Provence, 84). Le Ferralsol a été échantillonné à Rocoucoua sous forêt tropicale, relativement primaire (Guyane Française). Enfin, cinq Luvisols (WRB, 2006) des 9 Luvisols caractérisés par Jagercikova et al. (2014a, 2015, soumis) ont été considérés. Ils sont repartis sur 2 sites du bassin Parisien (Boigneville et Feucherolles) et un en Somme (Mons) et se développent sous forêt (Feucherolles), prairie (Mons) ou culture (Boigneville, Mons et Feucherolles).

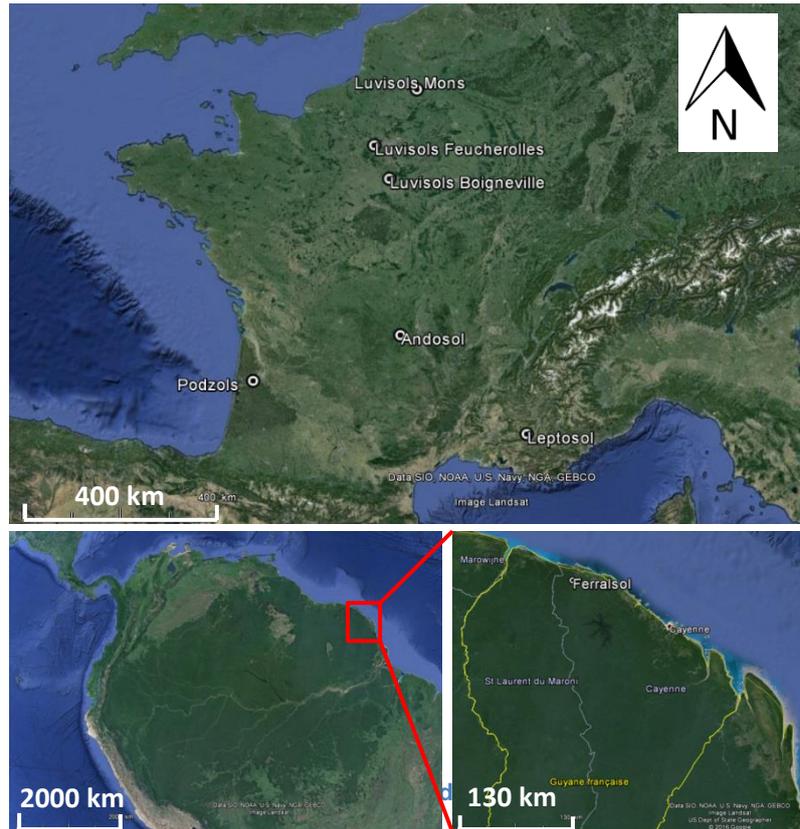


Figure 2 – Localisation des sites d'étude

Le Ferralsol (WRB, 2006), sous forêt dominée par le chêne pubescent, a été échantillonné sur l'O3HP à Saint Michel l'Observatoire (Alpes-de-Haute-Provence, 84). Le Ferralsol a été échantillonné à Rocoucoua sous forêt tropicale, relativement primaire (Guyane Française). Enfin, cinq Luvisols (WRB, 2006) des 9 Luvisols caractérisés par Jagercikova et al. (2014a, 2015, soumis) ont été considérés. Ils sont repartis sur 2 sites du bassin Parisien (Boigneville et Feucherolles) et un en Somme (Mons) et se développent sous forêt (Feucherolles), prairie (Mons) ou culture (Boigneville, Mons et Feucherolles).

Les Podzols ainsi que les Luvisols se développent sur des matériaux sédimentaires éoliens, respectivement sur Sables des Landes (Pléistocène supérieur) et loess carbonatés. L'Andosol, le Ferralsol et le Leptosol se développent sur des roches « dures », respectivement sur roche volcanique (Doréite), granite et calcaire de Reillane (Stampien-Aquitainien). La profondeur des sols est très variable, entre quelques centimètres à plus de 2,5 mètres (Tableau 1). On note la particularité du Leptosol, se développant sur un système karstique, avec une profondeur très variable allant de 0 et 70 cm (Figure 3). Ce dernier est très riche en éléments grossiers (entre 15% et 40%). L'Andosol contient 5% d'éléments grossiers non altéré en surface et 30% en profondeur, ces éléments grossiers consistent en graviers et cailloux centimétriques à décimétriques et quelques gros blocs métriques. Dans les autres sols, les éléments grossiers sont absents. Les pentes n'excèdent pas 3 degrés sur tous les sols étudiés.

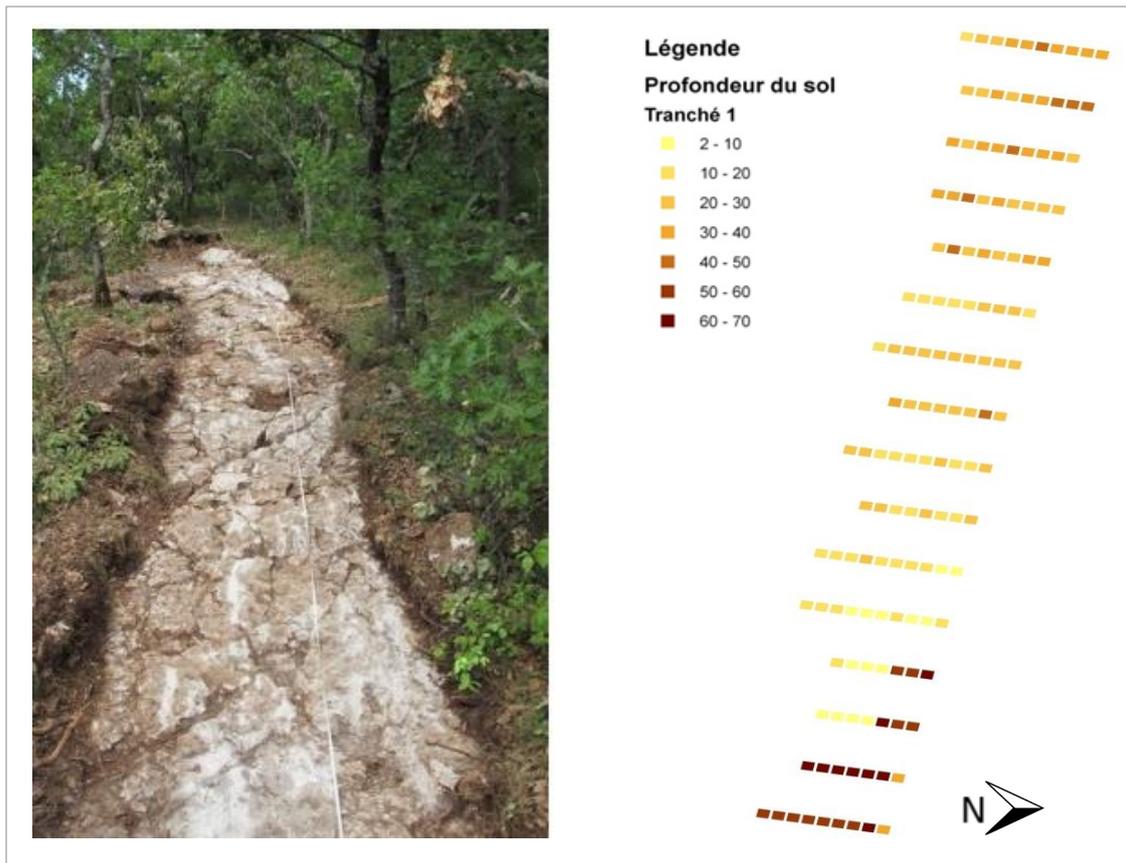


Figure 3 - Variabilité spatiale de la profondeur du Leptosol. La tranchée fait 17 mètres de long et 2 mètres de large.

Les climats des différents sites considérés sont de 4 grands types sur la base des pluviométries annuelles et des températures annuelles moyennes (Tableau 1): des pluviométries autour de 660 mm et une température d'environ 11°C pour les Luvisols et une pluviométrie plus importante, proche de 900 mm, et des températures moyennes similaires (10°C - 12°C) pour le Leptosol et les Podzols. L'Andosol se développe sous un climat montagnard avec une pluviométrie de 1375 mm (enneigement important) et des températures moyennes plus faibles (7,8°C). Enfin, le Ferralsol se développe sous climat équatorial avec une pluviométrie de 2800mm et une température moyenne de 23,5°.

## II - 2. Echantillonnage

Les sols ont tous été échantillonnés jusqu'à l'horizon C ou R. L'intervalle d'échantillonnage varie entre 2 et 20 cm selon la profondeur et/ou les changements d'horizons. Entre 3 et 4 kilos de sol ont été prélevés par échantillon. Des échantillons de litière et de végétation ont aussi été prélevés. Les échantillons sont séchés à 40°C puis tamisés à 2 mm pour les sols. Des densités apparentes ont été mesurées par cylindres, hormis pour les horizons de surface du Ferralsol (présence de racines) et sur le Leptosol (présence de cailloux) où elles ont été mesurées à l'eau. Dans ce dernier, très caillouteux et hétérogène, la densité apparente de la terre fine a été estimée par la formule d'**Alexander (1980)** basée sur la teneur en carbone organique contenue dans la terre fine.

Enfin, la quantité d'éléments grossiers et la profondeur du sol doivent être estimées avec précision pour calculer les stocks des différents isotopes. Sur l'Andosol, la quantité de graviers et cailloux a été déterminée horizon par horizon grâce aux échantillons prélevés et la quantité de blocs métriques sur la base de photographies et d'observations de terrain. Pour le Leptosol, une tranchée de 17.7m \* 3m atteignant le matériau parental nous a permis de déterminer avec précision la quantité d'éléments grossiers et la profondeur moyenne du sol (Figure 3).

### **II - 3. Analyses pédologiques**

Les analyses pédologiques (distribution granulométrique, carbone organique, pH eau) ont été réalisées au laboratoire d'analyse des sols de l'INRA (Arras, France). La distribution granulométrique (méthode NF X 31-107) est obtenue, après destruction de la matière organique à l'eau oxygénée ( $\text{H}_2\text{O}_2$ ) et dispersion de l'échantillon (ultrasons+ dispersants), par tamisage à l'eau pour les fractions  $> 50 \mu\text{m}$  et à la pipette dite *de Robinson* pour les particules  $< 50 \mu\text{m}$ . La teneur en carbone organique (NF ISO 10694) est mesurée en portant l'échantillon à  $1000^\circ\text{C}$  en présence d'oxygène. On mesure la quantité de gaz carbonique formée au moyen d'un catharomètre. Le pH-eau est mesuré après mise en suspension de l'échantillon de sol (NF ISO 10390) avec un rapport solide/solution de 1/5 en volume.

### **II - 4. Analyses du $^{10}\text{Be}$**

Les échantillons sont mis en solution puis purifiés avant l'analyse. La mise en solution s'effectue sur une aliquote d'échantillon broyé à  $250 \mu\text{m}$  (0.250 g pour un échantillon de sol, 2 g pour les litières). Après une calcination ( $450^\circ\text{C}$ ), les échantillons sont spikés avec 300  $\mu\text{l}$  d'un entraîneur (Chem-lab  $^{10}\text{Be}/^9\text{Be}=10^{-14}$ ) avant d'être attaqués par un mélange  $\text{HNO}_3/\text{HClO}_4$  puis à l'HF. Ils sont ensuite purifiés par passage sur des colonnes échangeuses de cations et d'anions afin d'éliminer le fer, l'aluminium et le bore. Enfin, ils sont oxydés au four à  $700^\circ\text{C}$  pendant 1 h afin de convertir tout le béryllium présent en  $\text{BeO}$  (**Bourlès et al., 1989**). Les rapports  $^{10}\text{Be}/^9\text{Be}$  sont mesurés par spectromètre de masse sur l'accélérateur ASTER, à 5 MV. Les concentrations en  $^{10}\text{Be}$  sont calculées à partir du standard normalisé STD-11 ( $^{10}\text{Be}/^9\text{Be} = (1.191 \pm 0.013) \times 10^{-11}$  ; **Braucher et al., 2015**). L'isotope n'a pas été mesuré dans le Ferralsol suite à une panne de machine.

### **II - 5. Analyses du $^{137}\text{Cs}$ et $^{210}\text{Pb}$ (xs)**

L'activité du  $^{137}\text{Cs}$  (661.6 keV) et du  $^{210}\text{Pb}$  (46.5 keV) ont été déterminées par spectrométrie gamma avec le détecteur HPGe à faible bruit de fond disponible aux Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement (LSCE, Gif sur Yvette,

France). L'activité du  $^{210}\text{Pb}$  (xs) est calculée en soustrayant l'activité du  $^{210}\text{Pb}$  « supported » à l'activité total mesuré dans le sol (Evrard et al., 2010).

## II - 6. Calcul des bilans de masses

Pour chacun des isotopes, on peut considérer que le stock présent dans le sol est égal à la somme des apports au sol, corrigé de la décroissance radioactive, et des pertes par lixiviation soluble ou par érosion. Dans le cas du  $^{10}\text{Be}$ , une partie de l'isotope peut préexister à la formation du sol (hérité ou *in situ*). Elle devra être prise en compte dans les calculs de bilans. Les stocks de chaque isotope sont calculés et traduits en taux de dépôt annuel pour le  $^{10}\text{Be}$  et le  $^{210}\text{Pb}$  (xs), isotopes apportés de façon continue, contrairement au  $^{137}\text{Cs}$ , apporté de manière discontinue. Ensuite, ces résultats sont confrontés aux apports fournis par la littérature ce qui permet de mettre en évidence d'éventuelles pertes.

### i) Calcul du stock des isotopes

Les stocks des isotopes  $N_i$  par couche  $i$  (atomes.cm<sup>-3</sup> pour le  $^{10}\text{Be}$  et Bq.cm<sup>-3</sup> pour le  $^{137}\text{Cs}$  et  $^{210}\text{Pb}$  (xs)) ont été calculés via la formule suivante :

$$N_i = (100 - \%cailloux - \%roche) * D_{app} * a$$

avec  $D_{app}$  la densité apparente du sol en g.cm<sup>-3</sup> et  $a$  la concentration ou l'activité de l'isotope (atomes.g<sup>-1</sup> pour le  $^{10}\text{Be}$ , Bq.g<sup>-1</sup> pour le  $^{137}\text{Cs}$  et le  $^{210}\text{Pb}$  (xs)). Les stocks de  $^{137}\text{Cs}$  et de  $^{210}\text{Pb}$  (xs) ont été ramenés à 2016 en considérant la formule de décroissance radioactive suivante :

$$N_i = N_{i0} \cdot e^{-\lambda t}$$

avec  $N_i$  le stock en 2016,  $N_{i0}$  le stock à l'année d'analyse des échantillons,  $\lambda$  la constante de décroissance radioactive (22.3 ans pour le  $^{210}\text{Pb}$  (xs) et 30.17 ans pour le  $^{137}\text{Cs}$ ) et  $t$  le temps (années) entre la date d'analyse et 2016. Cette correction n'est pas faite pour le  $^{10}\text{Be}$  au vu de son temps de demi-vie. Les distributions des isotopes avec la profondeur sont étudiées sur la base des stocks par couche  $N_i$ . Les concentrations et activités en fonction de la profondeur sont reportées en annexe 1.

Les stocks totaux sur le profil  $N$  (atomes.cm<sup>-2</sup> pour le  $^{10}\text{Be}$  et Bq.cm<sup>-2</sup> pour le  $^{137}\text{Cs}$  et  $^{210}\text{Pb}$  (xs)) sont calculés comme suit :

$$N = \sum N_i * e$$

avec  $e$  l'épaisseur de la couche  $i$ .

## ii) Traduction des stocks en taux de dépôt

Pour les isotopes apportés de manière régulière au sol ( $^{10}\text{Be}$  et  $^{210}\text{Pb}$  (xs)), les stocks totaux calculés sont rapportés en taux de dépôt annuel  $q$ , exprimé en atomes.cm<sup>-2</sup>.an<sup>-1</sup> pour le  $^{10}\text{Be}$  et en Bq.m<sup>-2</sup>.an<sup>-1</sup> pour  $^{210}\text{Pb}$  (xs), dans l'hypothèse où les pertes sont nulles :

$$q = \frac{\lambda \cdot (N - N_{\text{hérité}} - N_{\text{in situ}})}{1 - e^{-\lambda \cdot t}}$$

avec  $\lambda$  la constante de décroissance radioactive ( $1.36 \cdot 10^{-6} \text{ ans}^{-1}$  et  $22.3 \text{ ans}^{-1}$ ),  $N$  les stocks totaux en isotope (atomes.cm<sup>-2</sup> et Bq.m<sup>-2</sup>) et  $t$  le temps d'exposition. Pour le  $^{10}\text{Be}$ , le temps d'exposition correspond à l'âge du sol. Pour le  $^{210}\text{Pb}$  (xs), la durée à partir de laquelle l'isotope a atteint une activité inférieure aux limites de détection du détecteur HPGe.

Dans le cas du  $^{137}\text{Cs}$  et  $^{210}\text{Pb}$  (xs), les isotopes sont apportés au sol uniquement par l'atmosphère. Dans le cas du  $^{10}\text{Be}$ , l'isotope mesuré dans le sol peut ne pas provenir seulement de l'atmosphère, mais peut avoir été formé dans le sol depuis sa formation (*in situ*) ou être présent dans le matériau parental (hérité). Etant donné que nous nous intéressons ici à un taux de dépôt atmosphérique, il s'agit de s'affranchir de ce  $^{10}\text{Be}$  hérité et *in situ*. Le  $^{10}\text{Be}$  formé *in situ* dans les roches non carbonatées est de 4 ordres de grandeur plus faibles que les apports atmosphériques et peut donc être négligé. Par contre, les taux de production de  $^{10}\text{Be}$  *in situ* dans les roches carbonatées sont six fois supérieurs aux roches silicatées (**Braucher et al., 2005**) et doivent être pris en considération. Le  $^{10}\text{Be}$  *in situ* sera donc estimé seulement pour le Leptosol sur la base d'un taux de production dans la calcite de  $37.9 \pm 6.0 \text{ atomes.g}^{-1}.\text{an}^{-1}$  (**Braucher et al., 2005**). Par ailleurs, le  $^{10}\text{Be}$  est présent sous forme d'hérité dans les roches sédimentaires ou dans les roches volcaniques pour lesquelles il a pu être apporté par la pluie lors de la formation de la coulée. Pour les roches ayant un âge supérieur à 10 fois la demi-vie de l'isotope, la fraction héritée devient négligeable. Dans le cas contraire, elle est estimée en mesurant le  $^{10}\text{Be}$  présent dans les matériaux parentaux non affectés pédogénétiquement.

Les âges des sols sont déterminés sur la base de la littérature pour les Podzols et les Luvisols (**Sitzia et al., 2015 ; Jagercikova et al., 2015**). L'âge de l'Andosol a été déterminé sur la base de valeurs moyennes de taux de production de sol et de la profondeur du sol. Ces taux sont fournis par **Stockmann et al., (2014)** via une compilation de la littérature ( $54.5 \pm 12.7 \text{ mm.kan}^{-1}$ ). L'âge du Leptosol a été obtenu en calculant, dans un premier temps, la quantité de résidu contenu dans le Calcaire de Reillane. Pour ce faire, 20 g de calcaire broyé ont été attaqués à l'acide chlorhydrique en contrôlant que le pH ne descendent pas en-dessous de 5 afin de ne pas dissoudre les minéraux présents dans le résidu (argiles minéralogiques, oxy(hydroxydes) de fer, etc.). Ce taux de résidu a ensuite pu être traduit en volume de calcaire initial, avant la formation du sol. Enfin, il a été confronté à des vitesses de décarbonatation fournies par **Egli et al. (2001)**. L'âge du Ferralsol n'a pas été déterminé.

### iii) Dépôts fournis par la littérature

Des taux de dépôts annuels issus de la littérature sont considérés pour le  $^{10}\text{Be}$  et le  $^{210}\text{Pb}$  (xs). Ils sont confrontés à ceux calculés précédemment et permettent d'identifier des pertes. Des retombées globales issues de la littérature sont considérées pour le  $^{137}\text{Cs}$ . Elles sont confrontées aux stocks de  $^{137}\text{Cs}$  dans nos sols et permettent d'identifier des pertes.

Pour le  $^{10}\text{Be}$ , **Graly et al. (2011)** propose une estimation des flux annuels en  $^{10}\text{Be}$  dépendante des précipitations moyennes et des latitudes:

$$^{10}\text{Be}_{flux} = P \cdot \left( \frac{1.44}{1 + e^{-\frac{30.7-L}{4.36}}} + 0.63 \right)$$

avec  $^{10}\text{Be}_{flux}$  en atomes.cm<sup>-2</sup>.an<sup>-1</sup>, P en cm.an<sup>-1</sup> et L en degrés. Ces auteurs considèrent que les flux en  $^{10}\text{Be}$  sont estimés avec une incertitude de l'ordre de 20%.

Les dépôts dus aux essais ont été estimés pour la bande 40°-50°N à 1515 Bq.m<sup>-2</sup> (ramenés à 2016) par **Cambray et al. (1989)** et à 2260 Bq.m<sup>-2</sup> (ramené à 2016) par le rapport de **l'UNSCEAR (1982)**. Pour la bande 0°-10°N, ces retombées ont été estimées à 566 Bq.m<sup>-2</sup> (ramené à 2016) par **l'UNSCEAR (1982)** et à 452 Bq.m<sup>-2</sup> (ramené à 2016) par **Aoyama et al. (2006)**. Les apports du radionucléide par l'accident nucléaire de Tchernobyl ont été déterminés en utilisant l'équation empirique développée pour la France par **Roussel-Debel. (2007)**, dépendante de la longitude (°) et de la pluviométrie entre le 1<sup>er</sup> et le 5 mai 1986. L'influence de l'accident de Fukushima Dai-ichi en 2011 est considéré négligeable en France ( $\leq 2$  Bq.m<sup>-2</sup>; **Evrard et al., 2012**).

Enfin, les taux de dépôt de  $^{210}\text{Pb}$  (xs) sont fournis par **Baskaran (2011)**. L'auteur nous donne des taux de dépôt (mBq.cm<sup>-2</sup>.an<sup>-1</sup>) en fonction de la latitude. Ils ont été déterminés via une compilation de résultats de la littérature.

## II - 7. Calculs d'incertitudes

Les incertitudes sur les mesures pour les différentes méthodes sont reportées dans le Tableau 2.

Tableau 2 – Incertitudes sur les données d'entrées

Données	Incertitude
$^{10}\text{Be}$	0.5% erreur machine (Arnold et al., 2010)
$^{137}\text{Cs}$	2 $\sigma$ (fourni par l'analyse)
$^{210}\text{Pb}$ (xs)	2 $\sigma$ (fourni par l'analyse)
Densité apparente	Ecart-type mesures
% Volumique cailloux, roche	10%
Donnée pédologique (pH, C <sub>org</sub> , <2 $\mu\text{m}$ , etc.)	5%

A partir de ces incertitudes, nous avons calculé des incertitudes dérivées sur la base des deux règles de propagation d'erreur suivantes.

- Pour  $y = a + b$  ou  $y = a - b$ ,

$$\Delta y = \Delta a + \Delta b$$

- Pour  $y = a * b$  ou  $y = a / b$ ,

$$\Delta y = \left( \frac{\Delta a}{a} + \frac{\Delta b}{b} \right) * y$$

### III. Résultats et discussions

#### III - 1. Gammes des caractéristiques pédologiques considérées

Les sols considérés ont été choisis pour couvrir de larges gammes de pH, carbone organique et  $< 2 \mu\text{m}$ . Leurs pH s'échelonnent entre 4.5 et plus de 8, les teneurs maximales en carbone organique entre 15 g/kg et 150 g/kg et les teneurs en  $< 2 \mu\text{m}$  entre 6 % et 55 % (Tableau 3).

Tableau 3 - pH, teneur en carbone organique et texture des sols étudiés

Sols	pH	C <sub>org</sub> (%)	< 2 $\mu\text{m}$ (%)	Limons (%)	Sables (%)
Podzols	4.5 – 6.5	0 – 2.5	3 – 6	1 – 4	>90%
Andosol	5 – 6	4 – 14	10 – 24	51 – 61	15 – 39
Leptosol	7 – 8.2	2 – 15	51 – 55	11 – 14	31 – 38
Ferralsol	4.7 – 5.3	0 – 4.2	32 – 52	5 – 7	41 – 63
Luvissols	5.5 – 8.5	0 – 3	14 – 37	53 – 85	1 – 10

Le dispositif de sols choisi oppose des pH basiques - le Leptosol calcaire, le Luvisol cultivé de Mons et les horizons de surface des autres Luvisols cultivés - à des sols acides (pH  $< 5$ ) tel que le Podzol sous forêt et le Ferralsol. Les autres sols présentent des pH entre 5 et 7 (Figures 4A et 4D). De la même façon, le dispositif de sols oppose des sols riches en carbone organique sur tout le profil (Andosol) ou en surface (Leptosol) à des sols présentant des teneurs en C<sub>org</sub> très faible  $< 2 \%$



par **Jagercikova et al. (2014a, 2015, soumis)**, neutres, relativement pauvres en carbone organique, mais non limités en surface adsorbantes, le dispositif de sols permet de faire varier les critères un à un pour en déterminer leur influence.

### **III - 2. Distribution verticale des isotopes**

Les distributions des stocks des différents isotopes avec la profondeur sont présentées sur la Figure 5. La distribution du  $^{10}\text{Be}$  est assez similaire pour les deux Podzols. On observe une décroissance des stocks de la surface à l'horizon E suivi d'un stock maximal dans l'horizon d'accumulation de matières organiques Bh. Les stocks de  $^{10}\text{Be}$  dans l'Andosol augmentent entre 0 et 30 cm, sont homogènes entre 30 cm et 80 cm puis diminuent dans l'horizon C. Dans le Leptosol, les stocks de l'isotope augmentent les 5 premiers centimètres puis diminuent rapidement entre 10 et 35 cm. Enfin, les distributions de  $^{10}\text{Be}$  sont similaires dans les Luvisols étudiés par **Jagercikova et al., (2015)** avec des stocks maximaux dans l'horizon d'accumulation d'argiles Bt. Les concentrations de  $^{10}\text{Be}$  dans la litière de Podzol sont du même ordre de grandeur que celles du sol (Annexe 1) mais correspondent à des stocks faibles du fait des faibles masses que la litière représente. Celles dans la litière du Leptosol sont de 1 à 2 ordres de grandeur plus faibles que celle du sol (Annexe 1).

En ce qui concerne le  $^{137}\text{Cs}$ , l'isotope se trouve essentiellement dans les horizons de surface des sols étudiés, contrairement au  $^{10}\text{Be}$ , présent sur tout le profil. Cette différence est due à des historiques d'apports et à des demi-vies contrastés. En effet, le  $^{137}\text{Cs}$  atteint rarement des profondeurs importantes dans les sols (**Almgren and Isaksson, 2006**). C'est le Podzol sous forêt qui présente les stocks en  $^{137}\text{Cs}$  les plus profonds allant jusqu'à 55cm. Dans ce sol, les stocks diminuent de la surface jusqu'à l'horizon E où il devient indétectable puis présentent un pic dans l'horizon Bh, à 50 cm. **Bunzl et al. (1995)** ont observé des distributions similaires du radionucléide dans un Podzol en Allemagne, sous pins sylvestres. Cette distribution n'est cependant pas systématiquement observée dans tous les Podzols (**Jagercikova et al., 2014b**). Le Podzol sous maïs présente des stocks uniformes du radionucléide sur l'épaisseur de labour, puis devient indétectable à 35 cm. L'Andosol présente un pic de  $^{137}\text{Cs}$  à 8 cm de profondeur puis une diminution jusqu'à 50 cm. Dans le Leptosol, le stock le plus élevé se trouve dans l'horizon de surface (0-2cm) puis le radionucléide devient indétectable dès 20 cm. Le Ferralsol a un stock uniforme entre 0 et 12 cm et devient indétectable en-dessous de 35 cm. Le même type de distribution est observé dans tous les Luvisols cultivés étudiés par **Jagercikova et al. (2014a)** et est donc à mettre sur le compte de l'homogénéisation lié au labour (**Jagercikova et al., 2014b**). Pour le Luvisol sous prairie, la distribution de l'isotope avec la profondeur est caractérisée par un maximum autour de 20 cm et une profondeur maximale de pénétration de 50 cm. La litière du Podzol sous forêt présente des activités plus élevées que celle du sol (Annexe 1). Elles correspondent à des stocks similaires que ceux du sol (Figure 5). La litière du Leptosol présente des activités similaires à celles du sol (Annexe 1) mais qui correspondent à des stocks inférieurs (Figure 5). Aucune activité de  $^{137}\text{Cs}$  n'est détectée dans la litière du Ferralsol.

Le  $^{210}\text{Pb}$  (xs) est surtout concentré dans les horizons de surface des sols, sa demi-vie étant relativement courte (22.3 ans). Dans le Podzol forestier, on observe une diminution régulière du stock de 0 à 10 cm. Les stocks sont uniformisés par le labour sous maïs. Dans l'Andosol, ils sont égaux sur les 8 premiers centimètres puis diminuent jusqu'à 25 cm. Dans le Leptosol, le stock maximal se trouve dans l'horizon de surface (0-2 cm) puis diminue jusqu'à 10 cm. La même distribution est présente dans le Ferralsol mais l'élément atteint une profondeur de 35 cm. Enfin, dans les Luvisols étudiés par **Jagercikova et al. (2014a)**, le radionucléide n'est pas détectable sur la plupart des sols cultivés. Dans les sols sous végétation permanente, sa distribution est semblable à celle des autres sols avec une profondeur maximale atteinte autour de 10 cm. La litière du Podzol présente des activités plus élevées d'un ordre de grandeur que celles du sol (Annexe 1) qui correspondent à des stocks importants (64 % du stock total dans la litière). Celles du Leptosol et du Ferralsol sont également plus élevées que celles du sol, mais correspondent à des stocks faibles (13.9 % et 1.9 % du stock total dans la litière pour le Leptosol et le Ferralsol).

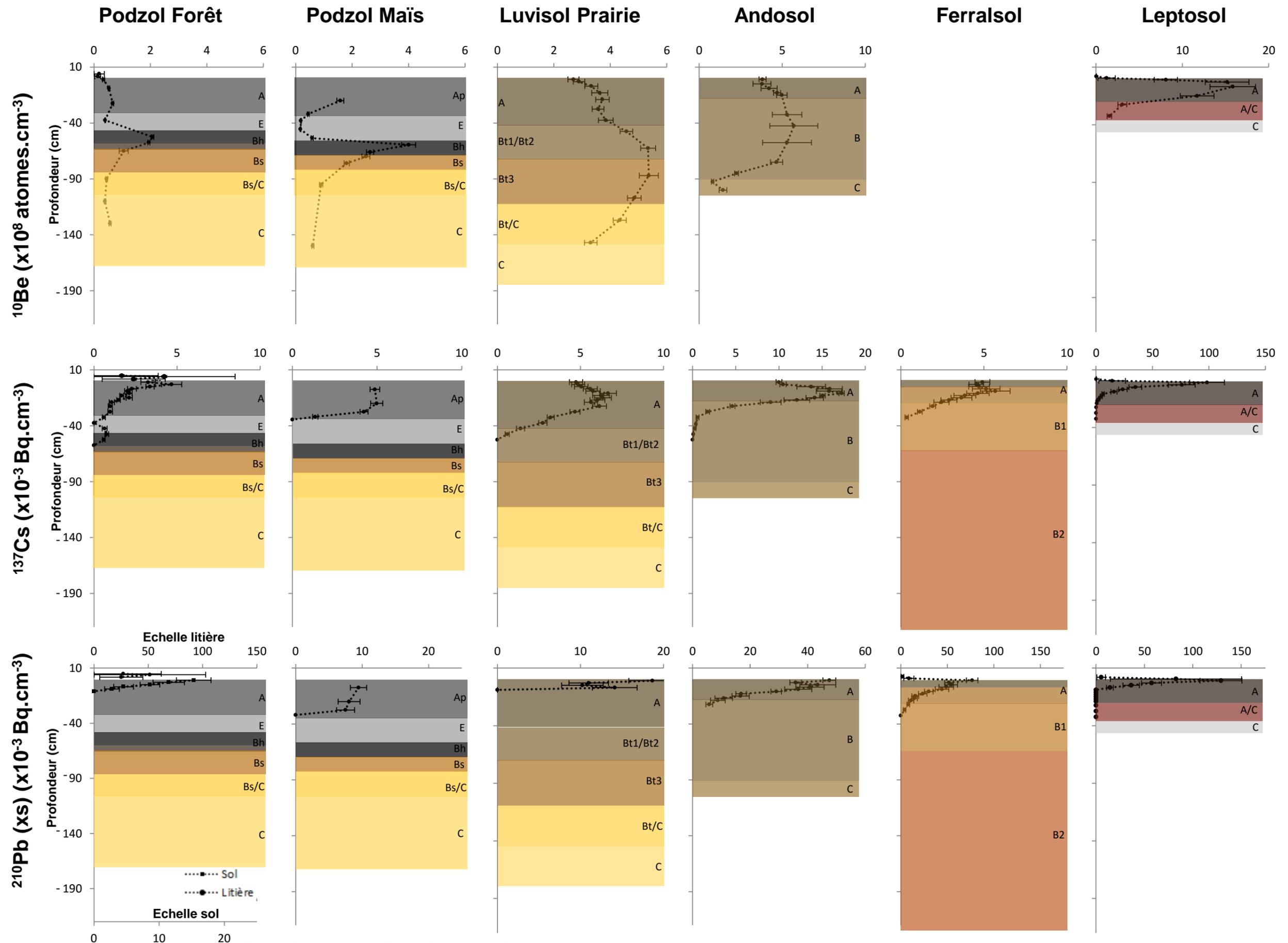


Figure 5 - Distributions avec la profondeur du  $^{10}\text{Be}$  ( $\times 10^8$  atomes. $\text{cm}^{-3}$ ),  $^{137}\text{Cs}$  et  $^{210}\text{Pb}$  (xs) ( $\times 10^{-3}$  Bq. $\text{cm}^{-3}$ ) dans les sols étudiés. Seul le Luvisol de Mons sous prairie est présenté, pour les autres se référer aux travaux de Jagercikova et al. (2014a, 2015).

L'analyse précédente nous permet de dégager 5 profils types sur la base des distributions observées (Figure 6).

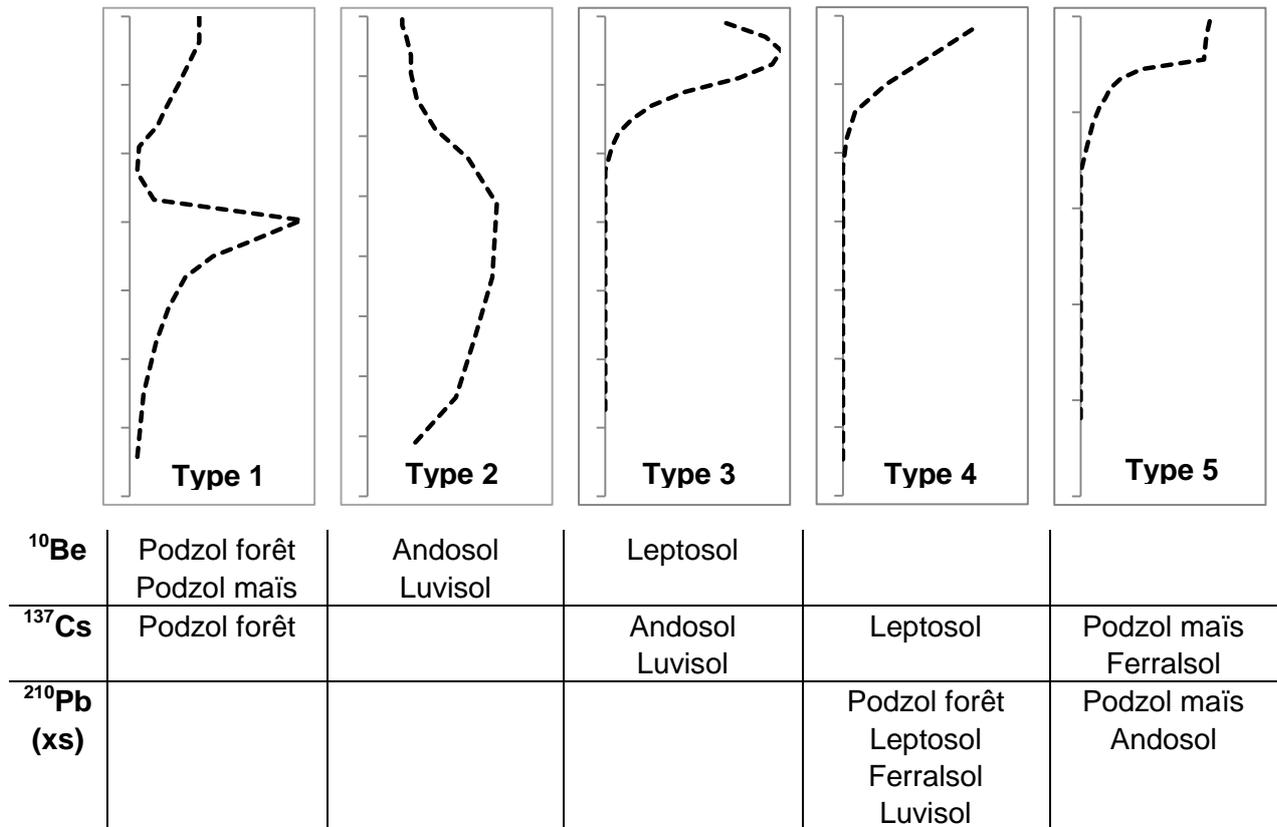


Figure 6 - Les profils "types" de distribution avec la profondeur des isotopes  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{210}\text{Pb}$  (xs) et  $^{10}\text{Be}$  dans les sols étudiés

Le profil de type 1 présente une diminution de l'isotope en surface suivi d'un pic. Il est rencontré pour le  $^{10}\text{Be}$  dans les deux Podzols et pour le  $^{137}\text{Cs}$  dans le Podzol sous forêt (Figure 6). Les distributions de type 2 sont caractérisées par une augmentation régulière de l'isotope suivi d'une diminution régulière formant un « ventre ». Cette forme est rencontrée avec le  $^{10}\text{Be}$  dans l'Andosol et dans le Luvisol. Les distributions de type 3 présentent un pic de l'isotope en sub-surface, entre 5 cm et 15 cm de profondeur. Cette forme est rencontrée avec le  $^{10}\text{Be}$  dans le Leptosol ainsi qu'avec le  $^{137}\text{Cs}$  dans l'Andosol et le Luvisol. Les distributions de type 4 sont caractérisées par un stock maximal dans l'horizon de surface suivi d'une décroissance régulière. Cette forme est rencontrée avec le  $^{210}\text{Pb}$  (xs) dans tous les sols hormis le Podzol sous maïs et l'Andosol ainsi qu'avec le  $^{137}\text{Cs}$  dans le Leptosol. Enfin, les distributions de type 5 présentent des stocks homogènes dans les 10 à 25 premiers centimètres du profil suivi d'une décroissance brutale dans les sols agricoles et exponentielle pour les autres. Cette forme est rencontrée avec le  $^{210}\text{Pb}$  (xs) et le  $^{137}\text{Cs}$  dans le Podzol sous maïs, dans le Ferralsol pour le  $^{137}\text{Cs}$  et dans l'Andosol pour le  $^{210}\text{Pb}$  (xs). Ainsi, la distribution du  $^{10}\text{Be}$  peut être de type 1, 2 et 3. Le  $^{137}\text{Cs}$  peut présenter des distributions de type 1, 3, 4 et 5. Enfin, le  $^{210}\text{Pb}$  (xs) se retrouve dans les types 4 et 5 (Figure 6).

Comme **Jagercikova et al. (2014b)**, nous avons, pour chacun des profils à l'exclusion des sols agricoles labourés, mesuré la profondeur du stock maximum et la

largeur à mi-hauteur du pic. Ces mesures ont été rapportées aux temps d'apports des 3 isotopes afin de pouvoir être comparées entre elles. Les profondeurs et largeurs à mi-hauteur des pics, après avoir été rapportées aux temps d'apport, sont toujours plus élevées pour le  $^{137}\text{Cs}$  puis pour le  $^{210}\text{Pb}$  (xs) et enfin, pour le  $^{10}\text{Be}$  et diminuent donc avec la période observée par l'isotope. Cela implique que la progression des éléments n'est pas homogène au cours du temps, sans doute parce qu'elle diminue avec la profondeur comme discuté par **Jagercikova et al. (2014a, soumis)**. En effet, les auteurs modélisent les distributions des isotopes considérés dans les Luvisols avec une équation advection-diffusion pour laquelle ils utilisent des coefficients variables avec la profondeur.

Les profondeurs normées des pics s'ordonnent selon les types de sols de la façon suivante :

- pour le  $^{10}\text{Be}$  : Luvisol > Andosol > Podzol > Leptosol
- pour le  $^{137}\text{Cs}$  : Podzol > Luvisol ; Andosol > Ferralsol > Leptosol
- pour le  $^{210}\text{Pb}$  (xs) : Luvisol ; Andosol > Ferralsol ; Leptosol ; Podzol

Les largeurs à mi-hauteur normées des pics s'ordonnent quant à elles de la façon suivante :

- pour le  $^{10}\text{Be}$  : Luvisol > Andosol > Leptosol > Podzol
- pour le  $^{137}\text{Cs}$  : Luvisol > Andosol ; Ferralsol ; Podzol > Leptosol
- pour le  $^{210}\text{Pb}$  (xs) : Ferralsol > Andosol ; Podzol ; Luvisol > Leptosol

De manière générale, les pics observés sont proportionnellement plus larges et plus profonds dans le Luvisol et l'Andosol que dans le Podzol, le Leptosol et le Ferralsol. Cependant, on remarque qu'on n'a pas toujours la même séquence de sols pour les trois isotopes. Nous concluons donc les mécanismes de redistribution en profondeur ne sont pas toujours identiques pour les trois isotopes dans tous les sols considérés.

### **III - 3. Confrontation entre stocks et apports issus de la littérature**

La confrontation des stocks en isotopes avec les apports issus de la littérature permet de déterminer d'éventuelles pertes à la base des profils de sol. Cependant, les apports issus de la littérature sont souvent mal contraints car ils dépendent de nombreux facteurs dont certains probablement stationnels (pluviométrie, localisation, etc.). Cette confrontation permet alors de mieux contraindre les apports dans certains cas et d'estimer des pertes dans d'autres, notamment quand nous comparons deux solums localisés au même endroit ayant eu des apports similaires mais ayant une occupation du sol différente.

i) **Stocks en isotopes**Tableau 4 - Stocks totaux en  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{210}\text{Pb}$  (xs) ( $\text{Bq.m}^{-2}$ ) et  $^{10}\text{Be}$  (atomes. $\text{cm}^{-2}$ ) dans les sols étudiés - Stocks en  $^{10}\text{Be}$  hérité et/ou *in situ*.

Sols	Profil	Stock $^{137}\text{Cs}$ ( $\text{Bq.m}^{-2}$ )	Stock $^{210}\text{Pb}$ (xs) ( $\text{Bq.m}^{-2}$ )	Stock $^{10}\text{Be}$ ( $\times 10^8$ atomes. $\text{cm}^{-2}$ )	Stock en $^{10}\text{Be}$ hérité ou <i>in situ</i> ( $\times 10^8$ atomes. $\text{cm}^{-2}$ )
Podzols	Forêt	805 ± 316	2240 ± 1135	100 ± 24	?
	Maïs	1615 ± 401	2795 ± 983	185 ± 39	
Andosol	Prairie	2977 ± 955	5836 ± 2162	418 ± 126	10 ± 3 (Hérité)
Leptosol	Forêt	5444 ± 1422	5680 ± 1635	294 ± 78	14 ± 8 ( <i>in situ</i> )
Ferralsol	Forêt	1021 ± 390	8172 ± 3195		?
Luvisols	Culture	1265 ± 129		529 ± 78	333 ± 52
Mons*	Prairie	1850 ± 184	1325 ± 1377	505 ± 79	356 ± 52 (Hérité)
Luvisols Feucherolles*	Culture	1294 ± 167		463 ± 73	290 ± 46
	Forêt	1674 ± 217	1644 ± 1959	566 ± 77	393 ± 54 (Hérité)
Luvisol Boigneville*	Culture	1584 ± 182		652 ± 114	466 ± 81 (Hérité)

\* d'après Jagercikova et al., (2014a, 2015)

Aux incertitudes près, les stocks en  $^{137}\text{Cs}$  sont équivalents pour la plupart des sols métropolitains, à l'exception du Leptosol et de l'Andosol qui présentent des stocks plus élevés et du Podzol sous forêt qui, au contraire, présente un stock plus faible (Tableau 4). Le Ferralsol présente lui aussi un stock plus faible, à mettre en lien avec des apports en  $^{137}\text{Cs}$  plus faible dans la zone intertropicale (Tableau 4). Pour le  $^{210}\text{Pb}$  (xs), trois groupes de sols peuvent être identifiés sur la base des stocks. Des sols avec des stocks compris entre  $1325 \pm 1377$  et  $2795 \pm 983 \text{ Bq.m}^{-2}$  : les Luvisols et les Podzols ; des sols avec des stocks plus élevés autour de  $5500\text{-}6000 \text{ Bq.m}^{-2}$  : le Leptosol et l'Andosol ; un stock très élevé de  $8172 \pm 3195 \text{ Bq.m}^{-2}$  dans le Ferralsol (Tableau 4). Enfin, les stocks en  $^{10}\text{Be}$  sont beaucoup plus variables d'un sol à l'autre du fait de leurs âges et de la présence de  $^{10}\text{Be}$  *in situ* ou hérité. Les deux paragraphes suivants présenteront ces quantités de  $^{10}\text{Be}$  et l'âge des sols.

En ce qui concerne l'âge des sols, d'autres Podzols similaires aux nôtres, situés à 6 km ont été datés par thermoluminescence (OSL). Ces datations ont fourni des âges de  $42.5 \pm 2.3 \text{ ka}$  pour l'horizon C, à 1 m de profondeur (Sitzia et al., 2015). Sitzia et al. (2015) considèrent en outre que les parties supérieures de ces Podzols sont plus récentes avec des âges allant jusqu'à 15 ka ; ces horizons n'ont pour autant pas pu être datés du fait de la bioturbation. Nous considérons donc que l'âge des Podzols est compris entre 44.8 ka et 15 ka. L'Andosol se développe sur roche volcanique appartenant à la deuxième phase volcanique du Mont-Dore et datée à  $2.25 \pm 0.11 \text{ Ma}$  (Cantagrel et al., 1983). Quantin, (2004) considère que les Andosols en France ont commencé à se former il y a 12ka – 10ka, les roches ayant été mise à nues après les dernières glaciations. Si on estime l'âge de l'Andosol sur la base de la profondeur du

sol et des valeurs de taux de production de sol moyens fournis par **Stockmann et al., (2014)**, on obtient des âges allant de 11.9 ka à 19.1 ka, ce qui est cohérent avec l'idée d'un développement post-glaciaire. L'âge du Leptosol, estimé sur la base des vitesses de décarbonatation (voir partie II – 6 – ii), se situe entre 7.6 ka et 11.5 ka. Enfin, les Luvisols développés sur loëss ont un âge de 15 – 16 ka (**Jagercikova et al., 2015**). Sur la base de ces âges, les stocks calculés dans le tableau 4 ont pu être transformés en apports annuels une fois le  $^{10}\text{Be}$  hérité et *in situ* déduit.

Le  $^{10}\text{Be}$  formé *in situ* pour le Leptosol est négligeable au vu de la valeur de son stock et des incertitudes sur le stock totale (Tableau 4). Dans l'Andosol, la concentration en  $^{10}\text{Be}$  hérité, mesurée dans la roche saine, est de  $0,7 \cdot 10^8$  atomes. $\text{g}^{-1}$ . Ainsi, le stock d'hérité représente 2 % du stock total et est négligeable face aux incertitudes sur ce dernier (Tableau 4). Dans le Leptosol, la roche a un âge plus élevé que 10 fois la demi-vie du béryllium-10, il ne contient plus de  $^{10}\text{Be}$  hérité. Le Ferralsol se développe sur granite (pas d'exposition à l'atmosphère) qui a un âge supérieur à 10 fois la demi-vie du béryllium-10, il ne contient pas de  $^{10}\text{Be}$  hérité. La quantité de l'isotope hérité dans les Podzols n'a pas été estimée. Les loëss, matériaux sédimentaires remaniés, contiennent du  $^{10}\text{Be}$  hérité dont la quantité a été estimée par **Jagercikova et al., (2015)** pour les Luvisols et représente 60% du stock total.

## ii. Confrontation entre stocks et littérature pour le $^{10}\text{Be}$

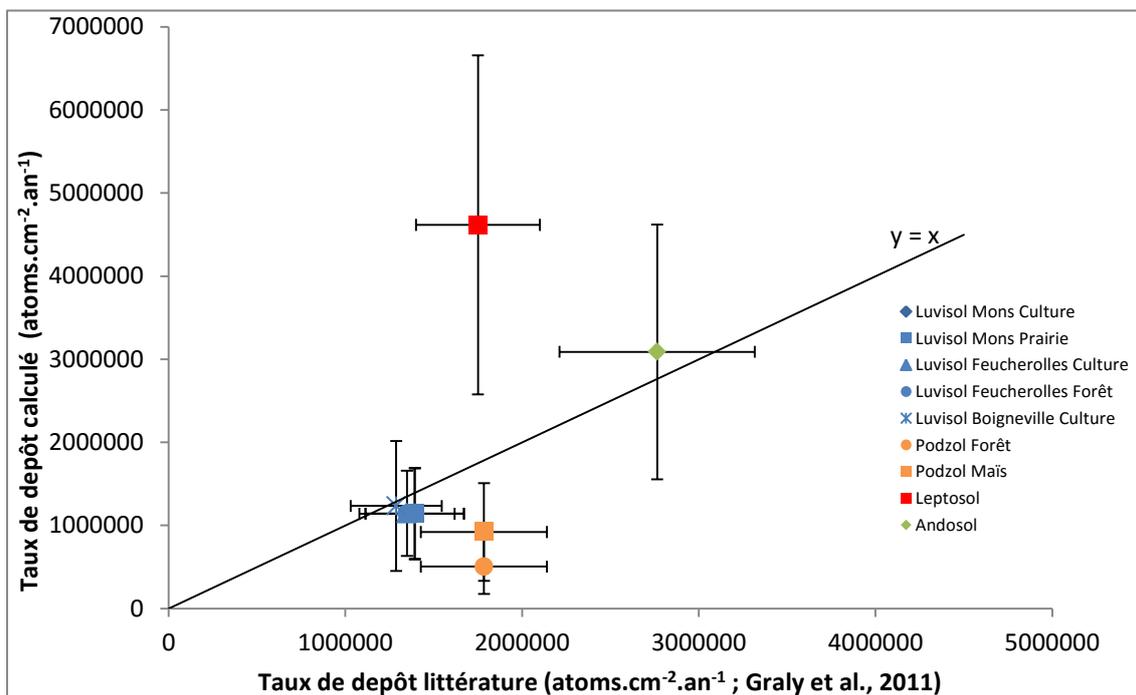


Figure 7 - Taux de dépôts annuels de  $^{10}\text{Be}$  (atomes.cm<sup>-2</sup>.an<sup>-1</sup>) fournis par la littérature en abscisses et estimés à partir des stocks mesurés dans les sols étudiés en ordonnées

Les taux de dépôts estimés à partir des stocks mesurés dans les sols ne sont pas significativement différents des taux de dépôts donnés par **Graly et al. (2011)** aux incertitudes près dans le cas des Luvisols, de l'Andosol et du Podzol sous maïs.

Cependant, ils sont inférieurs dans le cas du Podzol sous forêt et supérieurs dans le cas du Leptosol (Figure 7).

La différence entre le taux de dépôt fourni par la littérature et celui calculé dans le cas du Podzol sous forêt peut être interprétée comme résultant de pertes de l'isotope. Ces pertes vont de 42 % à 92 %. Sous culture de maïs, les pertes vont de négligeable à 84 %. Cette différence pourrait être attribuée à la différence de pH entre les deux sols (voir partie III - 1) qui modifie profondément la mobilité de  $^{10}\text{Be}$  dans le sol (voir partie III - 4). Cependant, la différence d'usage du sol (et donc de pH) existe seulement depuis 20 ans, temps négligeable par rapport au temps d'apport de l'isotope. Nous concluons que les deux Podzols ont enregistré des pertes de  $^{10}\text{Be}$ . En effet, **Egli et al., (2010)** montre que des quantités significatives de l'isotope peuvent être perdues dans des Podzols.

Le Leptosol présente un taux de dépôt calculé plus élevé que celui de la littérature. Plusieurs hypothèses peuvent expliquer cette différence : **i)** l'âge du sol a pu être sous-estimé ; **ii)** le taux de dépôt réel est plus élevé que celui fourni par **Graly et al., (2011)** ; **iii)** les concentrations, et donc les stocks, de l'isotope varient spatialement à l'échelle du site étudié, en fonction de la profondeur du sol et de la quantité d'éléments grossiers qui sont hautement variables sur le site (voir partie II-1).

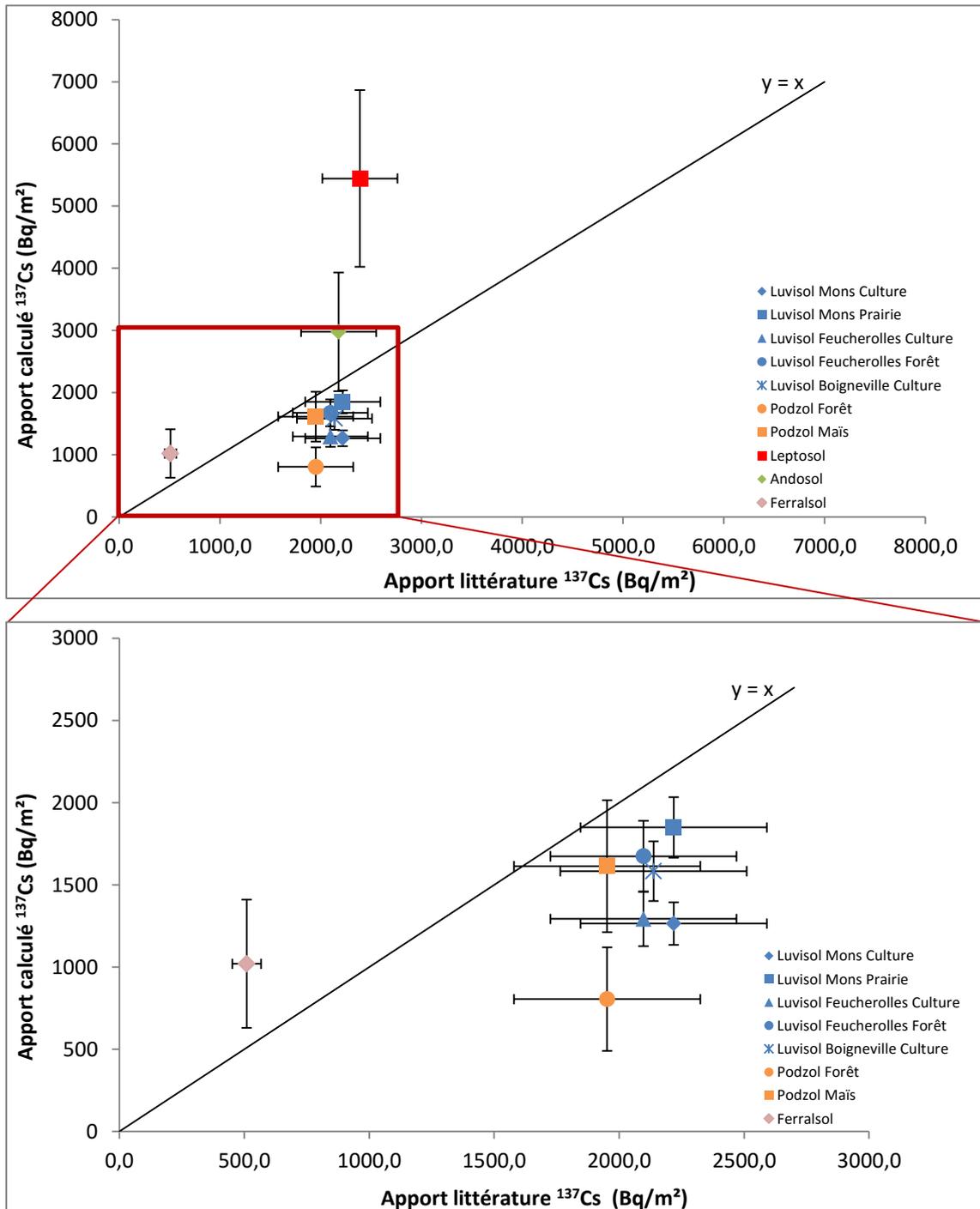
iii. Confrontation entre stocks et littérature pour le  $^{137}\text{Cs}$ 

Figure 8 - Apport de  $^{137}\text{Cs}$  dérivés de la littérature en abscisses et stock de  $^{137}\text{Cs}$  dans les sols étudiés en ordonnées (Bq/m<sup>2</sup>)

Les stocks mesurés de  $^{137}\text{Cs}$  des Luvisols non cultivés, du Podzol sous maïs et de l'Andosol ne sont pas significativement différents, aux incertitudes près, des taux de dépôts donnés par la littérature. Ils sont plus élevés dans le cas du Ferralsol et du Leptosol et plus faibles sur les 3 Luvisols cultivés et sur le Podzol en forêt (Figure 8).

Les dépôts donnés par le rapport de **l'UNSCEAR (1982)** et **Ayoama et al. (2006)** ont été sous-estimés sur le Ferralsol. En effet, le stock de  $^{137}\text{Cs}$  estimé pour ce sol ( $1021 \pm 390 \text{ Bq.m}^{-2}$ ) est en accord avec un sol de Guyane Française ( $1069 \pm 119 \text{ Bq.m}^{-2}$ ) situé à 18 kilomètres à vol d'oiseau de notre échantillonnage (**Pfahler et al., 2015**). Pour le Leptosol, deux hypothèses sont possibles : **i)** les apports de  $^{137}\text{Cs}$  de la littérature sont sous-évalués ; **ii)** le stock calculé est surestimé à cause (variabilité spatiale du site). L'équation de **Roussel-Debel (2007)** donne un dépôt de  $1000 \text{ Bq.m}^{-2}$  pour l'accident nucléaire de Tchernobyl dans cette région alors que des dépôts de  $5000\text{-}20.000 \text{ Bq.m}^{-2}$  ont été enregistrés dans cette région par **l'IRSN (2005)**. L'hypothèse de sous-estimation des dépôts est donc hautement probable et nous proposons de les réévaluer sur la base du stock mesuré, ce qui donnerait un apport de Tchernobyl d'environ  $3000\text{-}3500 \text{ Bq.m}^{-2}$ .

La différence de stock entre les deux Podzols est de  $809 \pm 717 \text{ Bq.m}^{-2}$ , alors que les deux sols sont séparés de quelques dizaines de mètres et ont reçu les mêmes apports en  $^{137}\text{Cs}$ . Deux hypothèses sont envisagées : la différence s'explique par **i)** le stockage de l'élément dans les tissus végétaux en forêt ; **ii)** une meilleure rétention du radionucléide dans le sol sous maïs après la remontée du pH de 1.5-2 unités en 1992. Dans la première hypothèse, le stockage de l'élément dans les tissus ligneux en forêt est facilité par sa biodisponibilité plus élevée en pH acide comme le montrent plusieurs études (**Goor et Thiry, 2004 ; Thiry et al., 2002**). Sur la base d'immobilisations annuelles de  $^{137}\text{Cs}$  données par **Goor et Thiry, (2004)** pour une forêt de pins sylvestres (*Pinus sylvestris*. L.) sur un Dystric Cambisol plus ou moins podzolisé, nous avons calculé que la forêt a pu stocker  $47 \text{ Bq.m}^{-2}$  de  $^{137}\text{Cs}$  depuis la mise en culture du Podzol sous maïs (24 ans). Ce stockage différentiel ne permet pas d'expliquer la différence de stocks entre les deux modes d'occupations. La seconde hypothèse considère que la différence de stocks est liée à la moindre mobilité du radionucléide sous maïs où le pH est plus élevé. Cependant, les pH étaient similaires avant 1992, la mobilité de l'isotope était donc équivalente dans les deux solums pendant 40 ans. Néanmoins, **Guillet al., (2010)** montrent que l'âge des horizons OH d'un humus similaire des Landes de Gascogne sous podzol humique est de 34 ans. Il faut alors considérer un facteur de retard d'entrée dans le sol du radionucléide dû à la litière. On note qu'un tel temps de retard est cohérent avec la présence actuelle d'une activité importante de  $^{137}\text{Cs}$  dans la litière du Podzol sous forêt (Annexe 1). Ainsi, les premiers dépôts de  $^{137}\text{Cs}$  ont pu atteindre le sol seulement quelques années avant la remontée du pH sous maïs. Nous concluons donc que le Podzol sous forêt a perdu du  $^{137}\text{Cs}$  par rapport à son homologue cultivé à cause de la différence de pH dans les deux sols.

Les **Luvisols** cultivés présentent des stocks de  $^{137}\text{Cs}$  plus faibles que leurs homologues non cultivés. Comme discuté par **Jagercikova et al. (2014a)**, cette différence de stock peut s'expliquer par de l'érosion due au travail du sol.

En conclusion, les apports de  $^{137}\text{Cs}$  sont sous-évalués pour le Ferralsol et le Leptosol, le Podzol sous forêt a perdu du  $^{137}\text{Cs}$  sous forme soluble et les Luvisols cultivés par érosion.

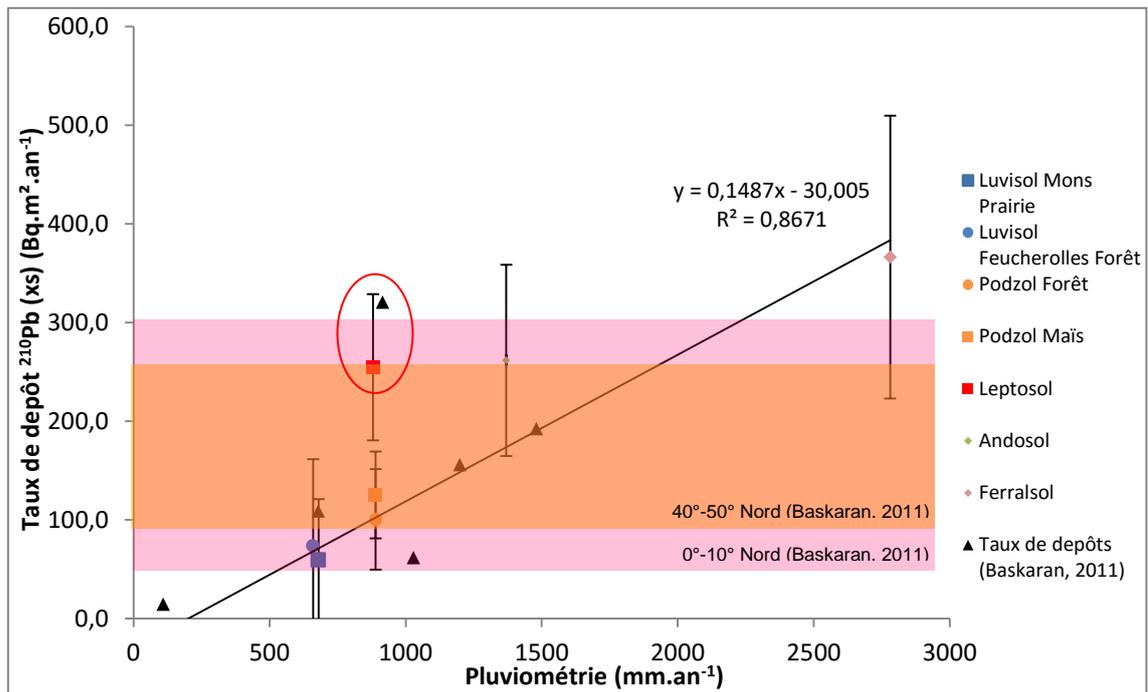
iv. Confrontation entre stocks et littérature pour le  $^{210}\text{Pb}$  (xs)

Figure 9 - Taux de dépôts annuel de  $^{210}\text{Pb}$  (xs) sur les sols étudiés ( $\text{Bq.m}^2.\text{an}^{-1}$ ) et mesurés dans les pluies sur la base de données compilée par Baskaran (2011) à l'échelle mondiale, en fonction de la pluviométrie annuelle ( $\text{mm.an}^{-1}$ ). Les bandes colorées représentent des dépôts de  $^{210}\text{Pb}$  (xs) latitudinaux proposés par Baskaran (2011). La droite de régression présentée ( $R^2=0,87$ ) ne prend pas en compte le Leptosol et le taux de dépôt le plus élevé de la littérature (entourés en rouge).

Les taux de dépôt de  $^{210}\text{Pb}$  (xs) estimés à partir des stocks mesurés dans les sols ne sont pas significativement différents des taux de dépôts fournis par **Baskaran (2001)** aux incertitudes près (Figure 9). Les topographies planes, la forte affinité de l'élément pour le sol et l'absence de l'élément en profondeur nous permettent de conclure que les sols étudiés n'enregistrent pas de pertes de  $^{210}\text{Pb}$  (xs). Des taux de dépôts de  $^{210}\text{Pb}$  (xs), mesurés dans la pluie, ont en outre été compilés par **Baskaran (2011)**. Nous les avons reportés en Figure 9. Si l'on considère ces taux de dépôts et ceux calculés dans les sols étudiés, on remarque que la pluviométrie annuelle et le taux de dépôt de  $^{210}\text{Pb}$  (xs) sont corrélés avec un  $R^2$  de 0,87, si l'on excepte deux points, le Leptosol et un point de la littérature (**McNeary et Baskaran, 2003**). Pour ces derniers, il est possible que localement, les activités de  $^{210}\text{Pb}$  (xs) dans la pluie soient plus élevées sans que nous ayons pu mettre en évidence les causes.

### **III - 4. Impacts des différentes caractéristiques pédologiques sur la distribution des isotopes**

Comme discuté en introduction, pour des pH neutres ou basiques et des teneurs en matières organiques faibles, **Jagercikova et al. (2014a, 2015, soumis)** montrent que les distributions de  $^{10}\text{Be}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  et  $^{210}\text{Pb}$  (xs) peuvent être modélisées principalement par des transferts particulaires, les transferts solubles étant considérés comme secondaires. La partie 1 de ce mémoire, montre que les sols choisis présentent des gammes de pH et de carbone organique très différentes de celles des Luvisols de **Jagercikova et al. (2014a, 2015, soumis)** ainsi qu'un nombre de sites réactionnels très différent. La question est de savoir comment ces différents paramètres pédologiques jouent sur la proportion de mobilité physique ou chimique des isotopes. Nous discutons successivement de l'impact de ces différentes caractéristiques pédologiques dans ce qui suit.

#### ***i) Influence du pH***

**Campforts et al. (2016)**, sur la base d'une synthèse de la littérature, proposent une équation liant le  $K_{d<2\mu\text{m}}$  (coefficient de partage entre la fraction  $<2\ \mu\text{m}$  et la phase liquide du  $^{10}\text{Be}$ ) au pH du sol. Sur la base de cette équation, les  $K_{d<2\mu\text{m}}$  ont été estimés pour tous les échantillons étudiés (Figure 10). On remarque que les deux Podzols se trouvent dans un domaine de  $K_{d<2\mu\text{m}}$  faibles pour lesquels **Campforts et al. (2016)** modélisent la mobilité du  $^{10}\text{Be}$  à 73 % sous forme dissoute. Cette migration soluble de l'isotope est cohérente avec les pertes observées dans les Podzols (voir partie III – 3 – ii). Il en va de même pour l'Andosol pour lesquels les  $K_{d<2\mu\text{m}}$  sont dans un domaine de faible affinité à l'exception des deux horizons les plus profonds. Dans ce sol, la distribution verticale du  $^{10}\text{Be}$  est typique des distributions modélisées par **Campforts et al. (2016)** pour des sols présentant de la mobilité du  $^{10}\text{Be}$  en solution avec néanmoins une affinité croissante pour les phases solides vers la profondeur. A l'opposé, le Leptosol est dans un domaine de forte affinité du  $^{10}\text{Be}$  pour les phases solides pour lequel **Campforts et al. (2016)** modélisent la mobilité de l'élément à 86 % sous forme particulaire. Les horizons des Luvisols couvrent une large gamme de  $K_{d<2\mu\text{m}}$ , faibles pour les horizons de surface du site forestier et de la prairie, élevés pour les horizons profonds. Pour les horizons de surface des deux Luvisols sous couvert permanent, **Jagercikova et al. (2015)** ont montré une moindre adsorption de  $^{10}\text{Be}$  dans la fraction  $< 2\ \mu\text{m}$ . Ces deux résultats sont donc cohérents.

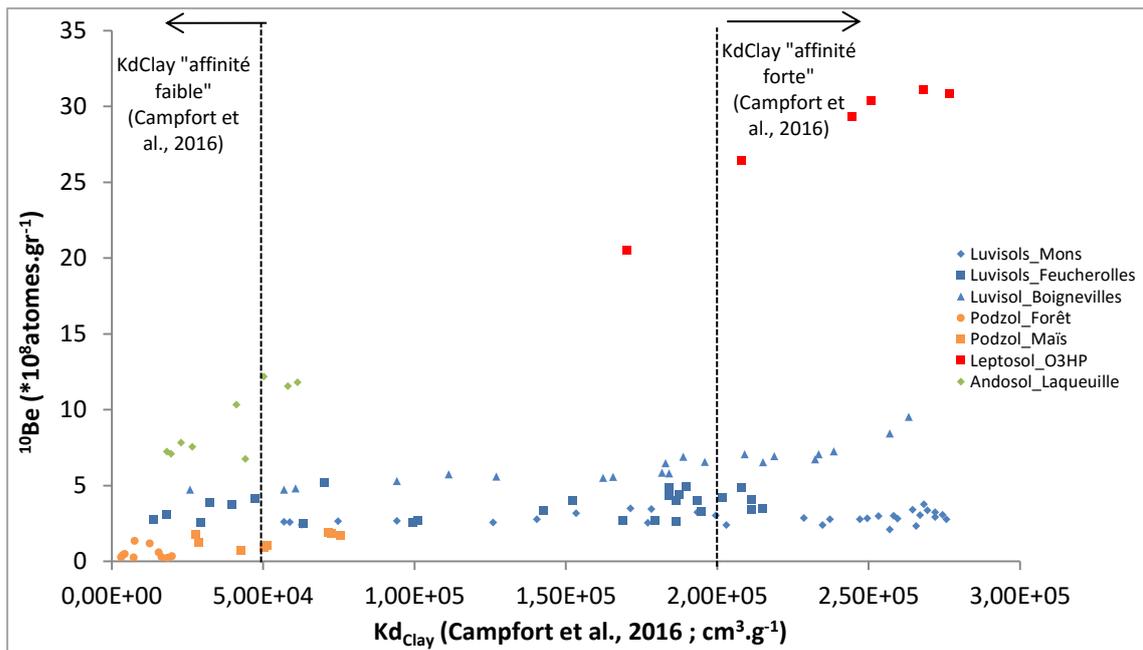


Figure 10 - Concentrations en  $^{10}\text{Be}$  (atomes. $\text{g}^{-1}$ ) en fonction du coefficient de partage  $K_{d<2\mu\text{m}}$  (Campfort et al., 2016) des sols étudiés ( $\text{cm}^3.\text{g}^{-1}$ ). Le coefficient est obtenu avec l'équation  $K_{d\text{clay}}=10^{\frac{a}{1+\exp(-(b1+(b2\cdot\text{pH}))})}$  avec  $a=5.82$  ;  $b1=-1.82$  ;  $b2= 0.55$ . Les limites «affinité faible» et «affinité forte» proviennent de simulation du modèle Be2D de Campfort et al., (2016).

De plus, les concentrations en  $^{10}\text{Be}$  dans la végétation peuvent être considérées comme un proxy des quantités de l'élément présent en solution. Elles ont été mesurées dans la végétation du Leptosol et de l'Andosol (Annexe 1). Elles sont dans les deux cas nettement plus faibles que les concentrations du sol avec  $1.6 \cdot 10^7$  atomes. $\text{g}^{-1}$  sur le Leptosol et  $7.8 \cdot 10^7$  atomes. $\text{g}^{-1}$  sur l'Andosol. **Brown et al. (1984)** présentent une concentration également faible de l'isotope dans des bois de feuillus:  $10^6$  atomes. $\text{g}^{-1}$ . La bioaccumulation du béryllium par les plantes n'est pas importante et l'isotope n'est pas enrichi dans l'humus comme peuvent l'être d'autres métaux (**Keilen et al., 1977**). Cependant, on note que la concentration dans la végétation est plus élevée sur l'Andosol que sur le Leptosol alors que celles du sol le sont moins. Les pH acides de l'Andosol favorisent probablement la biodisponibilité de l'isotope qui est bioaccumulé plus facilement par la végétation que dans des sols basiques comme le Leptosol.

En ce qui concerne le  $^{137}\text{Cs}$ , les activités de l'élément ne sont pas corrélées au pH pour aucun des sols étudiés (données non présentées). Une ré-analyse des RIP (« *Radiocesium Interception Potential* »), paramètre définissant la capacité qu'à un sol à adsorber le  $^{137}\text{Cs}$ , fournie par **Vandebroek et al. (2012)** pour plus de 88 sols de type différents confirme l'absence de corrélation entre le pH et la valeur du « RIP » des sols étudiés. Enfin, l'**Environmental Protection Agency (1999)** démontre aussi l'absence de corrélation entre des coefficients de partage  $K_d$  du  $^{137}\text{Cs}$  et le pH sur une base de données de 50 sols. Ainsi, le pH ne semble pas avoir un rôle d'ordre 1 sur la mobilité du  $^{137}\text{Cs}$  dans les sols. Cependant, il semble avoir un rôle d'ordre 2 comme discuté précédemment dans la partie III – 3 – iii) pour les Podzols.

En ce qui concerne le  $^{210}\text{Pb}$  (xs), les activités ne sont pas non plus corrélées au pH pour aucun des sols étudiés (données non présentées). Cependant on remarque que la profondeur atteinte par l'isotope est plus élevée dans l'Andosol et le Ferralsol, sols acides, que dans les Luvisols et le Leptosol, sols neutres à basiques (Figure 5). La profondeur atteinte dans le Podzol sous forêt est certes faible mais la litière en retient des quantités importantes (voir partie suivante). L'**Environmental Protection Agency (1999)** montre que les coefficients d'adsorption du plomb ( $K_d$ ) dans les sols augmentent avec le pH. Ainsi le  $^{210}\text{Pb}$  (xs) s'adsorbe plus aux particules du sol pour des pH basiques et migre donc moins vite, à l'inverse, dans les sols acides une fraction du Pb migre peut-être sous forme soluble.

### ii) Influence du carbone organique

Les concentrations en  $^{10}\text{Be}$  ne sont corrélées avec les teneurs en carbone organique du sol dans aucun des sols étudiés. Par contre, pour les Podzols pour lesquels des transferts solubles se produisent, les distributions du  $^{10}\text{Be}$  et du  $\text{C}_{\text{org}}$  présentent toutes deux un pic de concentrations dans l'horizon Bh (Figure 11). Ce lien peut être interprété comme la solubilisation du  $^{10}\text{Be}$  migrant avec les substances organiques au sein du profil et précipitant dans l'horizon Bh. **Egli et al., (2010)** observent aussi une accumulation de l'isotope dans les horizons Bh-Bs qu'ils interprètent comme le résultat de l'action de processus de podzolisation sur l'élément. En effet, la présence d'acide humique en solution peut complexer une partie du  $^{10}\text{Be}$  (**Takahashi., 1999**).

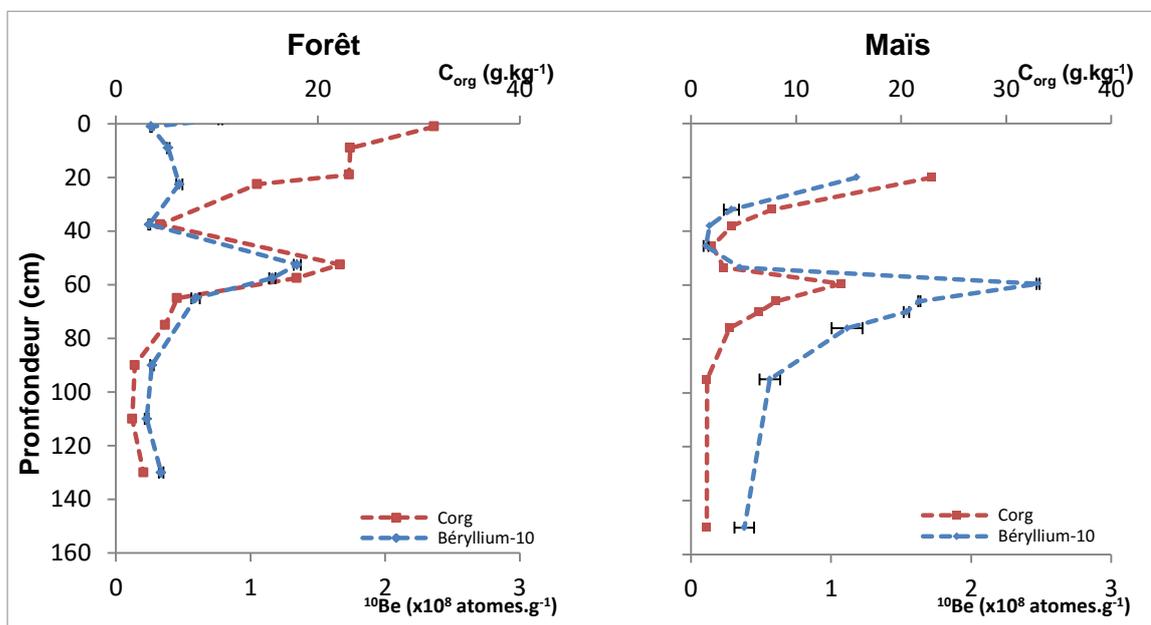


Figure 11 - Distribution avec la profondeur du  $\text{C}_{\text{org}}$  ( $\text{g.kg}^{-1}$ ) et du  $^{10}\text{Be}$  ( $\text{atomes.g}^{-1}$ ) dans les Podzols sous forêt et sous maïs de Pierroton

En ce qui concerne le  $^{137}\text{Cs}$ , il n'existe pas de lien entre la teneur en matière organique des sols et la profondeur du pic ou la profondeur maximale de l'isotope. Le Leptosol, riche en carbone organique, présente un pic en surface et le radionucléide ne dépasse pas 20 cm de profondeur tandis que l'Andosol, également riche en matière organique, présente un pic à 8 cm et pénètre dans le sol jusqu'à 50 cm (Figure 5). Néanmoins, le pic de  $^{137}\text{Cs}$  dans l'horizon Bh du Podzol sous forêt (Figure 5) pourrait indiquer soit une fixation du radionucléide par la matière organique présente dans cet horizon et/ou par la fraction  $< 2\ \mu\text{m}$  qui augmente également dans cet horizon. **Gil-Garcia et al., (2009)** démontrent que les sols riches en matière organique retiennent peu le  $^{137}\text{Cs}$ , avec des valeurs de coefficient de partage  $K_d$  faibles. La ré-analyse des RIP fournis par **Vandebroek et al. (2012)** pour plus de 88 sols de types différents, montre une absence de corrélation entre teneur en carbone organique et valeur du « RIP ». La redistribution du radionucléide dans les sols ne semble donc pas être liée aux teneurs en carbone organique du sol.

Enfin, les activités en  $^{210}\text{Pb}$  (xs) sont corrélées positivement au carbone organique dans le Leptosol, l'Andosol, le Ferralsol et le Luvisol de Feucherolles sous forêt (Figure 12). Pour les autres Luvisols et les Podzols, l'isotope devient rapidement

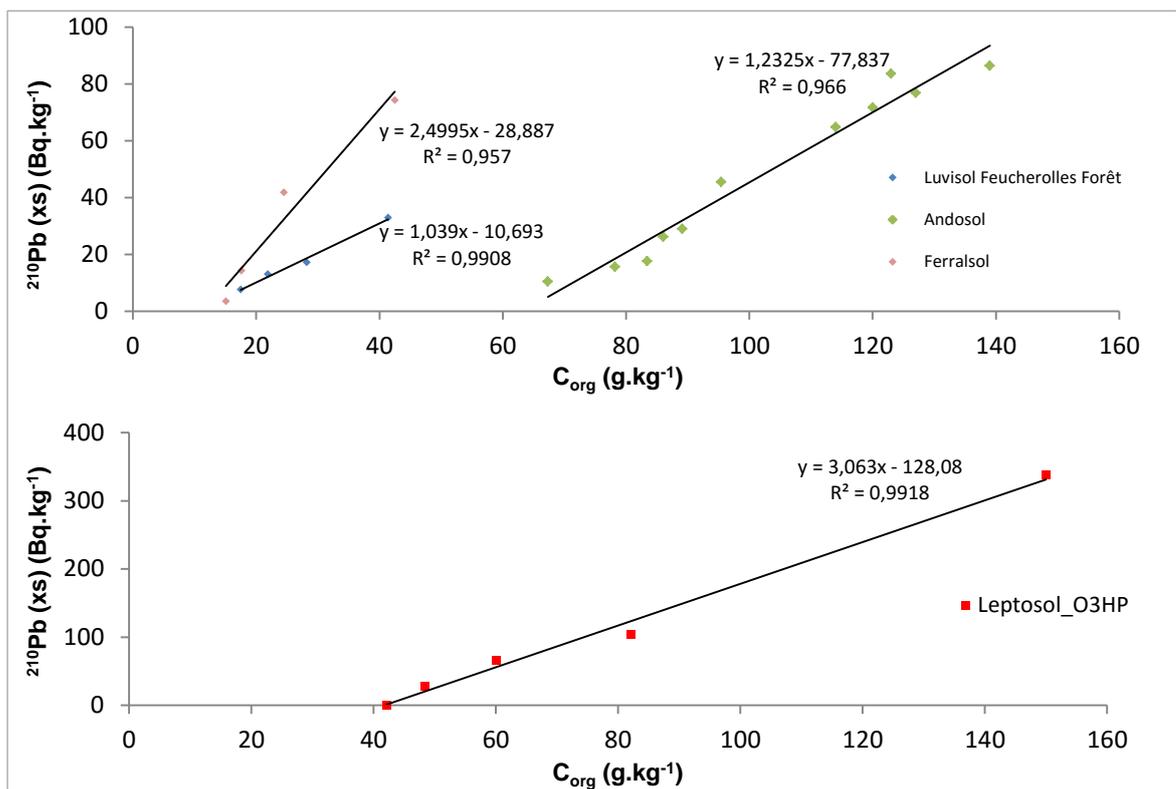


Figure 12 - Activités en  $^{210}\text{Pb}$  (xs) (Bq.kg<sup>-1</sup>) en fonction du carbone organique (g.kg<sup>-1</sup>) des différents échantillons des sols étudiés

indétectable et le nombre de mesures trop faibles pour établir d'éventuelles corrélations. Cependant, **Jagercikova et al., (2014a)** montrent qu'en surface (0 – 4 cm), une fraction du  $^{210}\text{Pb}$  (xs) est adsorbée sur des particules plus grosses que  $2\ \mu\text{m}$  dans les Luvisols et que cette fraction était corrélée à la teneur en carbone organique supérieur à  $2\ \mu\text{m}$ . Enfin, les activités de l'isotope sont très élevées dans les litières des sols étudiés. Elles représentent respectivement 64%, 14% et 2 % du stock

total pour le Podzol, le Leptosol et le Ferralsol. En outre, les stocks relatifs de l'élément dans les litières semblent dépendre du temps de dégradation de ces dernières, les deux décroissant dans l'ordre suivant : Podzol > Leptosol > Ferralsol. Nous en concluons que l'isotope est très retenu par la matière organique car son entrée dans le sol dépend de la vitesse de dégradation de la litière. L'isotope peut rester exclusivement dans les humus de type MOR de forêt boréal jusqu'à sa décroissance totale (Klaminder et al., 2006). Plusieurs auteurs ont en effet montré que le transfert du  $^{210}\text{Pb}$  (xs) était lié au transport de matières organiques (Dörr and Münnich (1989) ; Teramage et al. (2014)) et que son adsorption augmentait avec les teneurs en matière organique des sols (Environmental Protection Agency, 1999).

### iii) Influence de la fraction < 2 $\mu\text{m}$

Jagercikova et al. (2015) montrent que, dans les Luvisols, les concentrations en  $^{10}\text{Be}$  sont corrélées aux teneurs en particules < 2  $\mu\text{m}$  (Figure 13). Par contre, cette corrélation ne s'observe pas dans les Podzols et le Leptosol où les deux paramètres sont indépendants, ni dans l'Andosol où une anti-corrélation est observée ( $R^2=0.85$ ) (Figure 13).

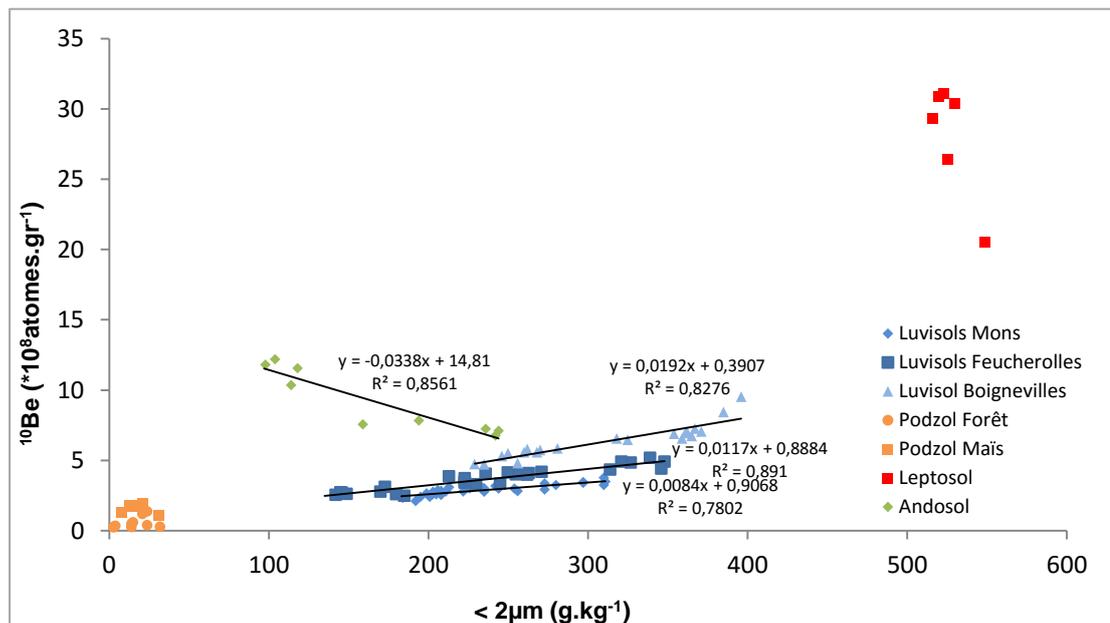


Figure 13 - Concentrations en  $^{10}\text{Be}$  (atomes.gr $^{-1}$ ) en fonction de la teneur en < 2  $\mu\text{m}$  (g.kg $^{-1}$ ) des différents échantillons des sols étudiés

Jagercikova et al. (2015) montrent que  $79.8 \pm 9.0$  % du  $^{10}\text{Be}$  total est associé aux particules < 2  $\mu\text{m}$  dans les Luvisols étudiés et qu'il existe une corrélation significative ( $p$ -value < 0.5) entre le  $^{10}\text{Be}$  et la teneur en < 2  $\mu\text{m}$  dans 50 % des sols ayant un horizon Bt contre seulement 23 % des sols sans horizons Bt (réanalyse des données de Graly et al., 2010). Dans l'Andosol, où des transferts solubles ont été mis en évidence, les distributions de la teneur en < 2  $\mu\text{m}$  (Annexe 2) et de  $^{10}\text{Be}$  (Figure 5) ne présentent aucun lien. Enfin, dans les Podzols, les pics de  $^{10}\text{Be}$  dans l'horizon Bh

sont concomitants avec une augmentation des teneurs en  $< 2\ \mu\text{m}$  et en carbone organique comme mentionné précédemment (Figure 14). Ainsi, l'isotope qui se déplace majoritairement en solution dans les Podzols, se fixe dans l'horizon Bh du fait de l'augmentation de la teneur en  $< 2\ \mu\text{m}$  et/ou de celle en carbone organique (voir partie précédente). Des analyses du  $^{10}\text{Be}$  fixé dans la fraction  $< 2\ \mu\text{m}$  et la caractérisation de cette dernière seraient nécessaires pour conclure sur ce point.

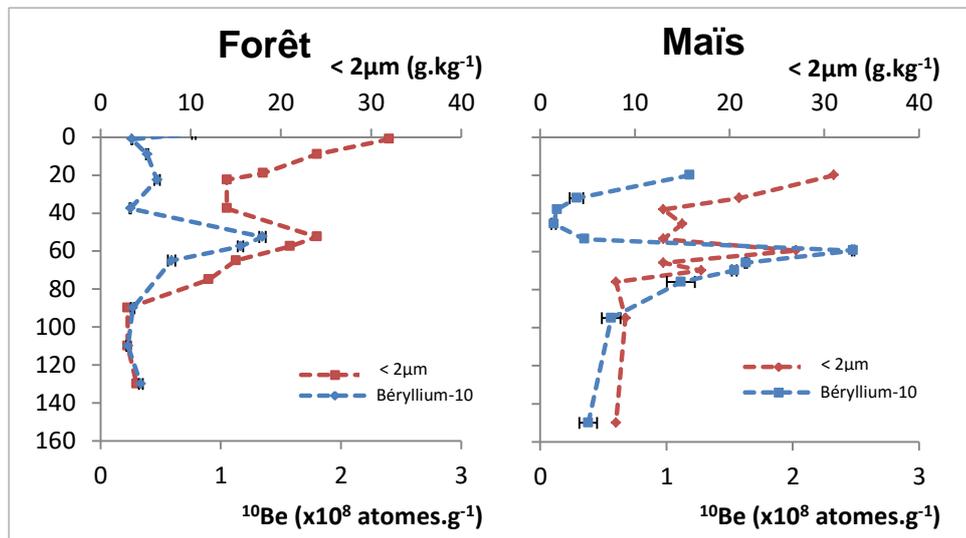


Figure 14 - Distribution avec la profondeur des teneurs en  $< 2\ \mu\text{m}$  ( $\text{g.kg}^{-1}$ ) et du  $^{10}\text{Be}$  ( $\text{atomes.g}^{-1}$ ) dans les Podzols sous forêt et sous maïs de Pierroton

En ce qui concerne le  $^{137}\text{Cs}$ , la profondeur du pic en élément décroît logarithmiquement avec l'augmentation des teneurs moyennes en  $< 2\ \mu\text{m}$  des sols étudiés (Figure 15). Ainsi, il semble que la teneur en particules fines du sol soit déterminante sur la mobilité du radionucléide dans les sols considérés.

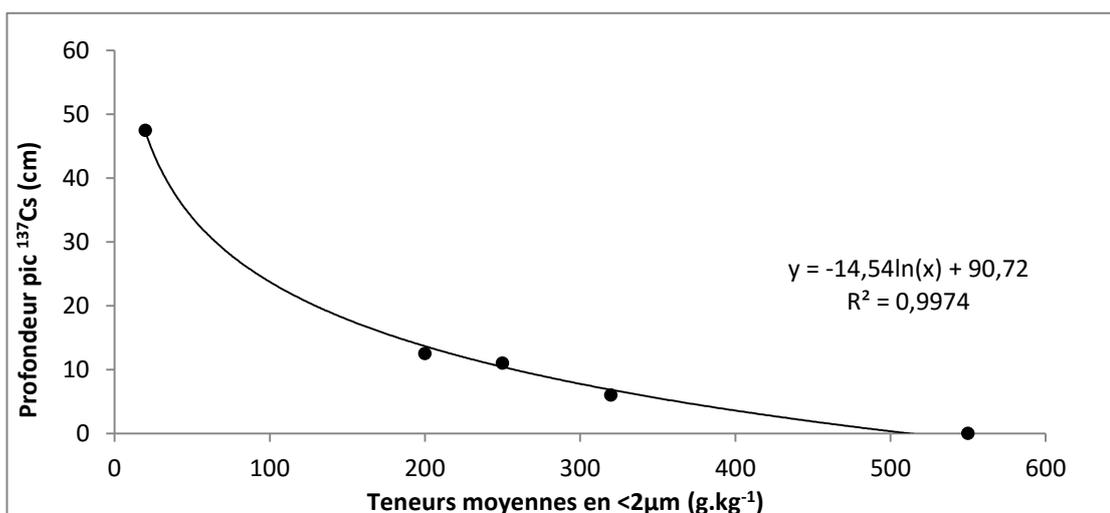


Figure 15 – Profondeur du pic de  $^{137}\text{Cs}$  (cm) en fonction des teneurs moyennes en  $< 2\ \mu\text{m}$  des sols étudiés ( $\text{g.kg}^{-1}$ )

Ce résultat est en accord avec les travaux de **Gil- Garcia et al. (2009)** qui montre que les valeurs du coefficient de partage augmentent des sols sableux aux sols limoneux puis argileux. En effet, l'isotope se fixe facilement sur les minéraux phyllosilicatés du sol (**Bunzl et al., 1998 ; Cremers et al., 1988 ; Environmental Protection Agency, 1999**) et **Jagercikova et al., (2014a)** montre que respectivement  $87 \pm 10 \%$ ,  $94 \pm 6 \%$  et  $95 \pm 10 \%$  du stock de  $^{137}\text{Cs}$  des Luvisols de Mons, Feucherolles et Boignevilles est associé à la fraction  $< 2 \mu\text{m}$ .

Enfin, les activités du  $^{210}\text{Pb}$  (xs) sont corrélées aux teneurs en  $< 2 \mu\text{m}$  dans l'Andosol (Figure 16). Dans ce sol, carbone organique et  $< 2 \mu\text{m}$  sont étroitement corrélés, ce qui est typique des fortes associations organo-minérales rencontrées dans les Andosols. Ainsi l'élément fortement corrélé aux teneurs en carbones organiques (voir partie précédente) l'est aussi avec l' $< 2 \mu\text{m}$ . Dans les autres sols, aucune corrélation significative n'est observée entre activités du  $^{210}\text{Pb}$  (xs) et les teneurs en  $< 2 \mu\text{m}$ . Cependant, **Jagercikova et al. (2014a)** montrent qu'en-dessous de 4 cm de profondeur, tout le  $^{210}\text{Pb}$  (xs) est associé à la fraction  $< 2 \mu\text{m}$  dans les Luvisols étudiés. Des analyses du  $^{210}\text{Pb}$  (xs) fixé dans les fractions  $< 2 \mu\text{m}$  seraient nécessaires dans les autres sols.

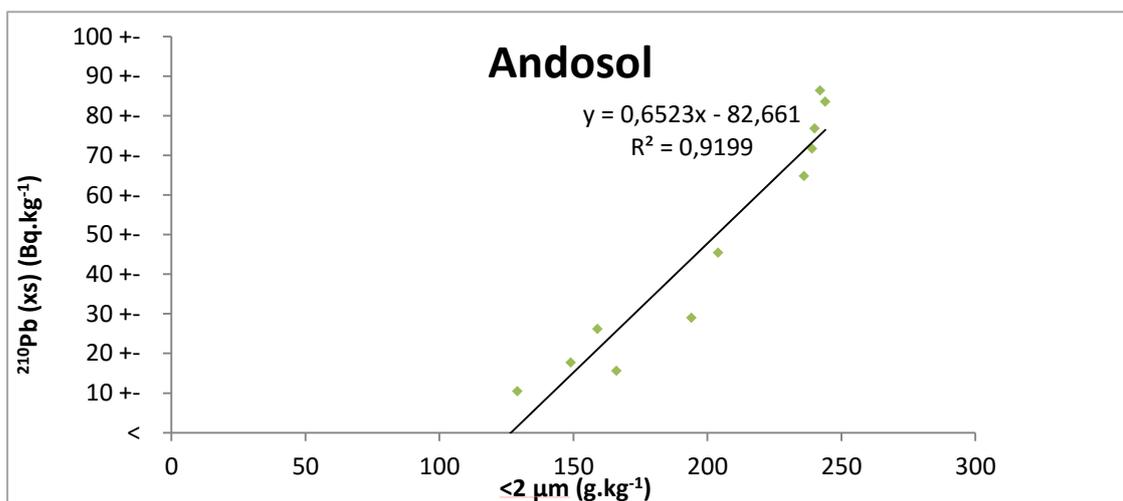


Figure 16 - Activités en  $^{210}\text{Pb}$  (xs) ( $\text{Bq.kg}^{-1}$ ) en fonction de la teneur en  $< 2 \mu\text{m}$  des échantillons de l'Andosol ( $\text{g.kg}^{-1}$ )

#### iv) Synthèse sur l'influence des caractéristiques pédologiques sur la distribution des isotopes

Pour conclure sur cette partie, le  $^{10}\text{Be}$  migre majoritairement sous forme dissoute dans les sols acides et pauvres en particules  $< 2 \mu\text{m}$  (Podzols) ou acides et riches en carbone organique (Andosol). Dans les Podzols, la fixation de l'isotope dans l'horizon Bh peut être dû à l'augmentation du carbone organique et/ou de la fraction  $< 2 \mu\text{m}$ . Dans l'Andosol, la nature des phases adsorbantes en profondeur n'a pas pu être identifiée. Par contre, l'isotope semble migrer essentiellement sous forme particulaire dans les sols riches en particules  $< 2 \mu\text{m}$ , basique, même s'ils sont riches en carbone organique (Leptosol). Cette conclusion étant atteinte sur la base d'un seul exemple, d'autres sols de ce type devraient être analysés pour confirmer ce résultat. Pour le  $^{137}\text{Cs}$ , c'est la quantité de particules  $< 2 \mu\text{m}$ , et particulièrement de minéraux

phyllosilicatés qui semble être déterminante dans la rétention du radionucléide dans les sols. Des transferts solubles se produisent dans le sol acide et pauvre en  $< 2 \mu\text{m}$  (Podzol sous forêt) qui enregistre des pertes du radionucléide. Enfin, le  $^{210}\text{Pb}$  (xs) semble moins retenu par les phases adsorbantes du sol quand les pH sont acides (Ferralsol et Andosol) que quand ils sont neutres ou basiques (Luvisol et Leptosol). De ce fait, la migration de l'isotope sous forme soluble n'est pas à exclure dans les sols présentant des  $\text{pH} < 5.5$ . Son affinité pour la matière organique a été mise en évidence.

#### IV. Conclusions et perspectives

Nous avons déterminé le domaine d'applicabilité du traçage des transferts verticaux de matière dans les sols par l'approche multi-isotopique proposée par **Jagercikova et al. (2014a, 2015, soumis)** sur des Luvisols aux pH neutres à basiques et aux teneurs en matières organiques faibles. Nous montrons que :

- Les retombées de  $^{137}\text{Cs}$  provenant de Tchernobyl dans les Alpes du Sud ont été réévaluées.
- Le choix de deux solums ayant reçu les mêmes apports (Podzols et Luvisols) permet de s'affranchir des incertitudes sur l'estimation de ces derniers.
- La progression des isotopes dans les sols étudiés n'est pas homogène au cours du temps et semble diminuer avec la profondeur.
- Les mécanismes et les vitesses de redistribution en profondeur ne sont pas identiques pour les trois isotopes dans les sols considérés.
- Des transferts solubles sont identifiés :
  - pour le  $^{10}\text{Be}$  dans l'Andosol et les Podzols ;
  - pour le  $^{210}\text{Pb}$  (xs) pour des pH < 5.5 (Andosol et Ferralsol) ;
  - pour le  $^{137}\text{Cs}$  dans le Podzol sous forêt.
- Des pertes en isotopes ont été identifiées dans certains sols :
  - $^{10}\text{Be}$  et  $^{137}\text{Cs}$  par lixiviation soluble à la base du profil dans les sols acides et pauvres en < 2  $\mu\text{m}$  (Podzols) ;
  - $^{137}\text{Cs}$  par érosion (Luvisols cultivés).

En conclusion, les transferts solubles des trois isotopes dans les sols étudiés ne sont pas négligeables dans les sols acides. De ce fait, l'approche de traçage des transferts verticaux de matière par ces trois isotopes dans des sols acides doit impérativement considérer une fraction du transport sous forme soluble. Des approches de modélisations plus complexes que l'approche d'advection-diffusion proposée par **Jagercikova et al. (soumis)** pourraient nous permettre de déterminer la part de mobilité physique et chimique des différents isotopes sur les sols étudiés. Ainsi **Campforts et al. (2016)** propose un modèle de transfert du  $^{10}\text{Be}$  incluant mobilité chimique par une approche Kd et mobilité physique sur les bases des travaux de **Jagercikova et al. (2015)**. Par ailleurs, une équation de mobilité du  $^{10}\text{Be}$  sur la base de Kd a été récemment introduite dans le modèle de pédogenèse SoilGen2 (**Finke et al., 2012**). L'utilisation de tels modèles pourrait nous permettre de **i)** déterminer

l'importance relative des transferts chimiques et physiques de ces éléments dans les sols et **ii)** déterminer un seuil de mobilité chimique à partir duquel la quantification des transferts de matières verticaux tel que le lessivage ou la bioturbation n'est plus possible par l'approche multi-isotopique.

De plus, tout comme **Jagercikova et al. (2014a, 2015)**, des mesures d'activités et de concentrations des isotopes étudiés dans la fraction  $< 2 \mu\text{m}$  ainsi qu'une caractérisation de cette dernière pourraient nous permettre d'améliorer notre connaissance des phases porteuses de ces isotopes dans les sols. En effet, les phases adsorbantes de ces isotopes n'ont pas toujours pu être identifiées.

## V. Références bibliographiques

- Alexander, E.B. 1980. Bulk densities of California soils in relation to other soil properties. *Soil Science Society of America Journal*, 44, 689-692.
- Almgren, S., Isaksson, M. 2006. Vertical migration studies of  $^{137}\text{Cs}$  from nuclear weapons fallout and the Chernobyl accident. *J. Environ. Radioactivity* 91, 90-102.
- Aoyama, M., Hirose, K., Igarashi, Y. 2006. Re-construction and updating our understanding on the global weapons tests Cs-137 fallout. *Journal of environmental monitoring* 8, 431-438
- Bajard, M., Sabatier, P., David, F., Develle, A.L., Reyss, J.L., Fanget, B., Malet, E., Arnaud, D., Augustin, L., Crouzet, C., Poulenard, J., Arnaud, F. 2015. Reconstitution de l'évolution du paysage du lac de La Thuile (874 m, Massif des Bauges) durant l'Holocène : mise en évidence d'une domination des processus érosifs liés à l'homme à l'étage montagnard. *Environnements, Dynamiques et Territoires de Montagne, Collection EDYTEM 16*, 107-118.
- Bard, E., Lal, D., Pavich, M.J., Caffee, M.W., Southon, J.R. 1997. Beryllium geochemistry in soils: evaluation of  $^{10}\text{Be}/^{9}\text{Be}$  ratios in authigenic minerals as a basis for age models. *Chemical Geology* 140. 237-258.
- Baskaran, M. 2011. Po-210 and Pb-210 as atmospheric tracers and global atmospheric Pb-210 fallout: a Review. *Journal of Environmental Radioactivity* 102, 500-513.
- Bourlès, D., Raisbeck, G.M., Yiou, F. 1989. Be-10 and Be-9 in marine-sediments and their potential for dating. *Geochimica Cosmochimica Acta* 53 (2), 443-452.
- Braucher, R., Benedetti, L., Bourlès, D.L., Brown, E.T., Chardon, D. 2005. Use of in situ-produced  $^{10}\text{Be}$  in carbonate-rich environments: A first attempt. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, Vol. 69, 1473-1478.
- Braucher, R., Guillou, V., Bourlès, D., Arnold, M., Aumaitre, G., Keddadouche, K., Nottoli, E. 2015. Preparation of ASTER in-house  $^{10}\text{Be}/^{9}\text{Be}$  standard solutions. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms Volume 361*, 335-340.
- Brown, E.T., Edmond, J.M., Raisbeck, G.M., Bourlès, D.L., Yiou, F., Measures, C.I. 1992. Beryllium isotope geochemistry in tropical river basins. *Geochimica et Cosmochimica Acta Vol. 56*, 1607-1624.
- Bunzl, K., Kracke, W., Schimmack, W. 1995. Migration of Fallout  $^{239+240}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Am}$  and  $^{137}\text{Cs}$  in the Various Horizons of a Forest Soil Under Pine. *J. Environ. Radioactivity* 28, 17-34.
- Cambray, R.S., Playford, K. and Carpenter, R.C. 1989. Radioactive fallout in air and rain: results to the end of 1988. *UK Atomic Energy Authority Report AERE-R 10155*, HMSO.

- Campforts, B., Vanacker, V., Vanderborght, J., Baken, S., Smolders, E., Govers, G. 2016. Simulating the mobility of meteoric  $^{10}\text{Be}$  in the landscape through a coupled soil-hillslope model (Be2D). *Earth and Planetary Science letters* 439, 143-157.
- Cantagrel, J-M. et Baubron, J-C., 1983 – Chronologie K-Ar des éruptions dans le massif volcanique des Monts-Dores : implications volcanologiques. *Géologie de la France* (2), I, 1-2, 123-142.
- Cornu, S., Quénard, L. Cousin, I., Samouëlian, A. 2014. Experimental approach of lessivage: Quantification and mechanisms. *Geoderma* 213, 357-370.
- Cremers, A., Elsen, P., De Preter, P., Maes, A. 1988. Quantitative analysis of radiocaesium retention in soils. *Nature* vol. 335, 247-249.
- Dörr, H., Münnich, K.O. 1989. Downward movement of soil organic matter and its influence on trace-element transport ( $^{210}\text{Pb}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ) in the soil. *Radiocarbon* vol. 31, 665-663
- Egli, M., Fitze, P. 2001. Quantitative aspects of carbonate leaching of soils with differing ages and climates. *Catena* 46, 35-62.
- Egli, E., Brandova, D., Böhlert, R., Favilli, F., Kubik, P.W. 2010.  $^{10}\text{Be}$  inventories in Alpine soils and their potential for dating land surfaces. *Geomorphology* 119, 62-73.
- Evrard, O., Némery, J., Gratiot, N., Duvert, C., Ayrault, S., Lefèvre, I., Poulénard, 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 (1), 42-54.
- 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. *Journal of Environmental radioactivity* 114, 54-60.
- Gil-Garcia, G., Rigol, A., Vidal, M. 2009. New best estimates for radionuclide solid-liquid distribution coefficients in soils, part 1 : radiostrontium and radiocaesium. *Journal of Environmental Radioactivity* 100, 690-696.
- Gobat, J-M., Aragno, M., Matthey, W. 2004. The living soil: fundamentals of soil science and soil biology. *Science Publishers*.
- Goor, F., Thiry, Y. 2004. Process, dynamics and modelling of radiocaesium cycling in a chronosequence of Chernobyl-contaminated Scots pine (*Pinus sylvestris* L.) plantations. *Science of the total Environment* 325, 163-180.
- Graly, J.A., Bierman, P.R., Reusser, L.J., Pavich, M.J. 2010. Meteoric Be-10 in soil profiles – A global meta-analysis. *Geochimica et Cosmochimica Acta* 74 (23), 6814-6829.
- Graly, J.A., Reusser, L.J., Bierman, P.R., 2011. Short and long-term delivery rates of meteoric  $^{10}\text{Be}$  to terrestrial soils. *Earth and Planetary Science Letters* 302, 329-336.

- Guillet B., Disnar J.R, Loustau D., Balesdent. J. 2010. Chapter 3. Dynamics of soil carbon and moder horizons related to age in pine and beech stands. *Forests, Carbon Cycle and Climate Change*, 55-78.
- IRSN. 2005. Cartographie des retombées radioactives de l'accident de Tchernobyl en France : présentation comparée de différentes approches.
- IUSS Working Group WRB, (2006): World reference base for soil resources 2006 - A framework for international classification, correlation and communication. *Rome, Food and Agriculture Organization of the United Nations*.
- Jagercikova, M., Evrard, O., Balesdent, J., Lefèvre, I. Cornu, S., 2014. Modelling the migration of fallout radionuclides to quantify the contemporary transfer of fine particles in Luvisols profiles under different land uses and farming practices. *Soil and Tillage Research 140*, 82-97.
- Jagercikova, M., Cornu, S., Bas, C. Le, & Evrard, O., 2014. Vertical distributions of <sup>137</sup>Cs in soils : a meta-analysis. *Soils Sediments*.
- Jagercikova, M., Cornu, S., Bourlès, D., Antoine, P., Mayor, M., Guillou, V., 2015. Understanding long-term soil process using meteoric <sup>10</sup>Be: A first attempt on loessic deposits. *Quaternary Geochronology 27*, 11-21.
- Jagercikova, M., Cornu, S., Bourlès, D., Evrard, O., Veron, A., Hatté, C., Ayrault, S., Balesdent, J., Quantification of vertical solid matter transfers in soils during pedogenesis by a multi-tracer approach. *Soumis*.
- Jamagne, M., 1973. Contribution à l'étude pédologique des formations loessiques du nord de la France. Ph.D.thesis, *Thèse de la faculté des sciences agronomiques de l'état, Gembloux Belgique*.
- Jenny, Hans., 1941. Factors of soil formation, A system of Quantitative Pedology. *McGraw-Hill Book Company New York*.
- Johnson, D.L., 1990. Biomantle evolution and the redistribution of earth materials and artifacts. *Soil Science 149 (2)*, 84-102.
- Kaste, J.M., Friedland, A.J., Miller, E.K. 2005. Potentially mobile lead fractions in montane organic-rich soil horizons. *Water, Air and Soil Pollution*, 139-154.
- Keilen, L., Stahr, K., Goltz, H.V.D., Zöttl, H.W. 1977. Zur Pedochemie des Berylliums-Untersuchen einer Bodengesellschaft im Gebiet des Bärhaldegranits (Südschwarzwald). *Geoderma 17*, 315-329.
- Kerndorff, H., Schnitzer, M. 1980. Sorption of metals on humic acid. *Geochimica et Cosmochimica Acta Vol. 44*, 1701-1708.
- Klaminder, J., Bindler, R., Emteryd, O., Appleby, P., Grip, H. 2006. Estimating the mean residence time of lead in the organic horizon of boreal forest soils using 210-lead, stable lead and a soil chronosequence. *Biogeochemistry 78*, 31-49.

- Korschinek, G., Bergmaier, A., Faestermann, T., Gerstmann, U., Knie, K., Ruger, G., Wallner, A., Dillman, I., Dollinger, G., von Gostomski, C.L., Kossert, K., Maiti, M., Poutivtsev, M., Remmert, A., 2010. A new value for the half-life of  $^{10}\text{Be}$  by heavy-ion elastic recoil detection and liquid scintillation counting. *Nuclear Instruments and Methods in Physics research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms* 268 (2), 187-191.
- Lal, D., Peters, B., 1967. Cosmic-ray produces radioactivity on the Earth. In: *Kosmische Strahlung II/Cosmic Rays II*. Springer, pp. 551-612.
- Lin, Henry., 2011. "Three Principles of Soil Change and Pedogenesis in Time and Space". *Soil Science Society of America Journal* 75, no 6.
- McNeary, D., Baskaran, M. 2003. Depositional characteristics of  $^7\text{Be}$  and  $^{210}\text{Pb}$  in southeastern Michigan. *Journal of Geophysical Research* 108, 4210.
- Monaghan, M.C., Krishaswami, S., Turekian, K.K., 1985/1986. The global-average production rate of  $\text{Be-10}$ . *Earth and Planetary Science Letters* 76 (3), 279-287.
- Paul Quantin. 2004. Volcanic soils in France. *Catena* 56, 95-109.
- Pfahler, V., Glaser, B., McKey, D., Klemm, E. 2015. Soil redistribution in abandoned raised fields in French Guiana assessed by radionuclides. *J. Plant Nuth. Sci*, 1-9.
- Philipps, J.D, 2007. Development of texture contrast soils by a combination of bioturbation and translocation. *Catena* 70 (1), 92-104.
- Porto, P., Walling, Des.E. 2012. Validating the use of  $^{137}\text{Cs}$  and  $^{210}\text{Pb}$  measurements to estimate rates of soil loss from cultivated land in southern Italy. *Journal of Environmental Radioactivity* 106, 47-57.
- Reusser, L., Graly, J., Bierman, P., Rood, D., 2010. Calibrating a long-term meteoric  $\text{Be-10}$  accumulation rate in soil. *Geophysical Research Letters* 37. L19403.
- Roussel-Debel, S., Renaud, P., Metivier, J-M. 2007.  $^{137}\text{Cs}$  in french soils : Deposition patterns and 15-year evolution. *Science of the total environment* 374 (2), 388-398.
- Samouelian, A., Cornu, S., 2008. Modelling the formation and evolution of soils, towards an initial synthesis. *Geoderma* 145 (3-4), 401-409
- Sitzia, L., Bertran, P., Bahain, J.J., Bateman, M.D., Hernandez, M., Garon, H., de Lafontaine, G., Mercier, N., Leroyer, C., Queffelec, A., Voinchet, P. 2015. The Quaternary coversands of southwest France. *Quaternary Science Reviews* 124, 84-105.
- Stockmann, U., Minasny, B., McBratney, A.B. 2014. How fast does soil grow ? *Geoderma* 216, 48-61.
- Sweeck, L., Wauters, J., Valcke, E., Cremers, A. 1990. The specific interception potential of soils for radiocesium. EUR 12448. In: Desmet, G., Nassimbeni, P., Belli, M. (Eds.), Transfer of Radionuclides in Natural and Seminatural Environments. Elsevier Applied Science, 249-258.

Takahashi, Y., Minai, Y., Ambe, S., Makide, Y., Ambe, F. 1999. Comparison of adsorption behaviour of multiple inorganic ions on kaolinite and silica in the presence of humic acid using the multitracer technique. *Geochimica et Cosmochimica Acta* 63 (6), 815-836.

Teramage, T., Onda, Y., Wakiyama, Y., Kato, H., Takashi, K., Tamura, K. 2015. Atmospheric  $^{210}\text{Pb}$  as a tracer for soil organic carbon transport in a coniferous forest. *Environ. Sci : Process*.

Thiry, Y., Goor, F., Riesen, T. 2002. The true distribution and accumulation of radiocaesium in stem of Scots pine (*Pinus sylvestris* L.). *Journal of Environmental Radioactivity* 58, 243-259.

United States Environmental Protection Agency. 1999. Understanding variation in partition coefficient,  $K_d$ , values. Volume II: Review of Geochemistry and Available  $K_d$ , Values for Cadmium, Cesium, Chromium, Lead, Plutonium, Radon, Strontium, Thorium, Tritium ( $^3\text{H}$ ) and Uranium. *EPA 402-R-99-004B*.

UNSCEAR, 1982. Ionizing radiation: sources and biological effects report to the general assembly, with annexes. *Tech. rep., United Nations, New York*.

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. *Journal of Environmental Radioactivity* 104, 87-93.

Willenbring, J.K., von Blanckenburg, F. 2010. Meteoric cosmogenic Beryllium-10 adsorbed to river sediment and soil: Applications for earth-surface dynamics. *Earth-Science Reviews* 98, 105-122.

You, C.F., Lee, T., Li, Y.H. 1989. The partition of Be between soil and water. *Chemical Geology* 77, 105-118

## Remerciements

En premier lieu, je tiens à remercier Sophie Cornu, pédologue 2.0, de m'avoir encadré et épaulé durant ce stage. Sa grande disponibilité et ses conseils m'ont permis d'avancer dans mon travail et cela même dans les périodes de doutes. Je remercie également Didier Bourlès pour l'encadrement, les conseils et les prêts de bouquins sur la création de l'Univers !

Je tiens également à remercier toute l'équipe INRA du CEREGE (Saba, Romain<sup>2</sup>, Louay, Alexia, Chloé, Francine, Jérôme, Isabelle, Christine et Zuzana) pour l'aide ainsi que les conseils apportés par chacun !

Un grand merci à Julie Pupier pour la formation aux manips  $^{10}\text{Be}$ . Au vu de mes capacités en manips chimiques, je ne sais pas bien comment j'aurais fait sans ton aide, merci !

Je remercie également Valéry Guillou de m'avoir donné des conseils et toujours répondu au téléphone en cas de galère avec les manips. Merci également à toute l'équipe « cosmo » du CEREGE (Régis Braucher, Laetitia Leanni, Anne Lebatard) pour les conseils et le prêt de mon laboratoire perso ainsi qu'à Georges Aumaître et Karim Keddadouche pour les mesures !

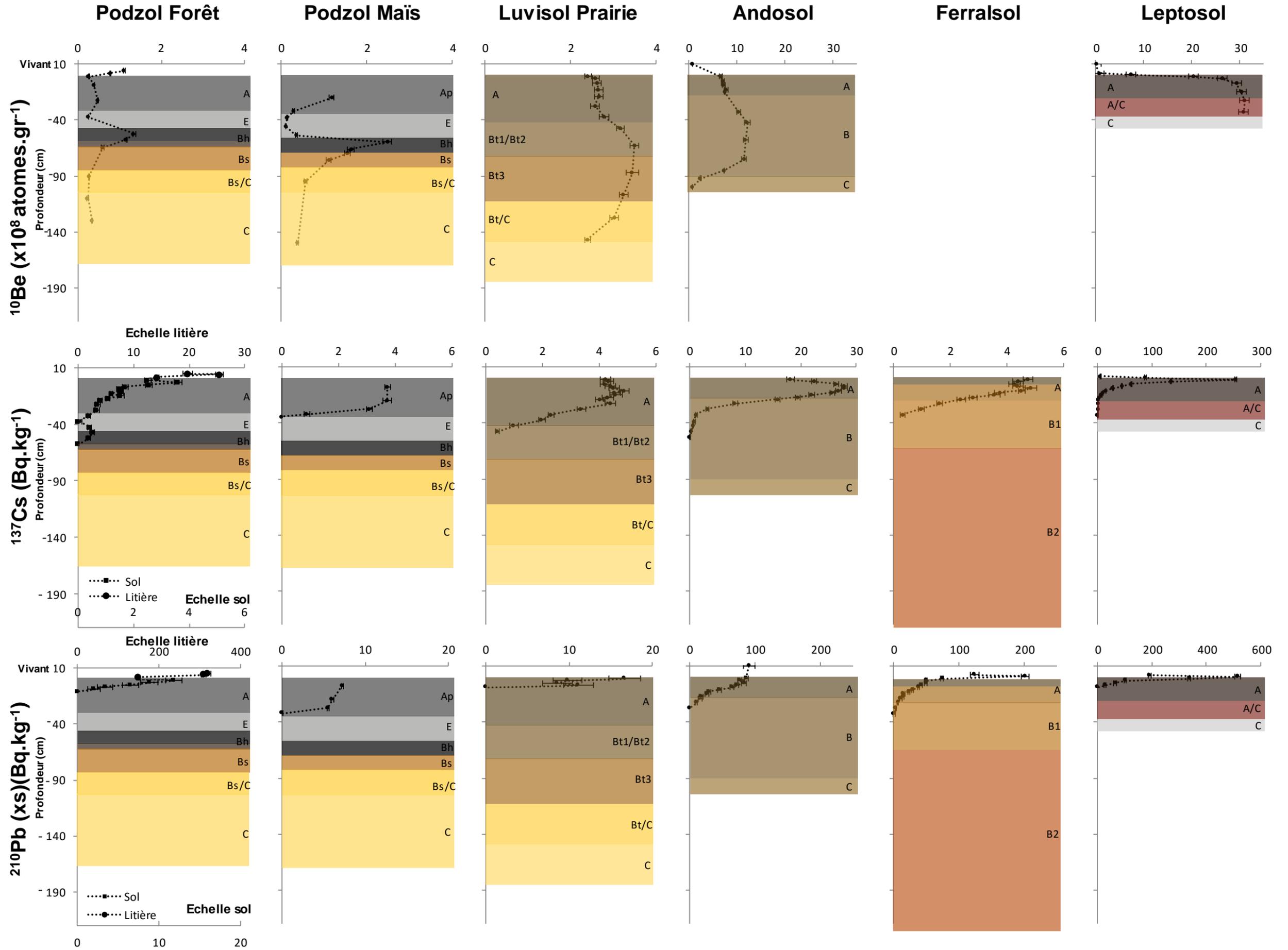
Mes remerciements s'adressent également à Irène Lefèvre et Olivier Evrard pour les mesures et l'aide pour l'interprétation des données. Merci également à Anne-Marie Farnet pour la RMN et l'interprétation des spectres.

Un grand merci aux équipes de recherche suivantes d'avoir mis à notre disposition leurs sites expérimentaux et sans lesquelles ce travail n'aurait pas pu être réalisé :

- INRA Unité Expérimentale Forêt Pierroton ;
- INRA ISPA (Interactions Sol Plante Atmosphère) et plus particulièrement Pierre Trichet and Pascal Denoroy ;
- OSU-Pytheas (O3HP LTER à Saint-Michel l'Observatoire), l'IMBE et plus particulièrement Thierry Gauquelin et Jean-Philippe Orts pour l'aide sur le terrain et la cartographie de profondeur de sol, merci ! ;
- INRA UREP (Unité de Recherche sur l'Ecosystème Prairial) et le dispositif SOERE ACBB ; Merci à Olivier Darsonville et Katja Klumpp pour les échanges.
- Inra de Mons en Chaussée, de Grignon et Arvalis pour les Luvisols.

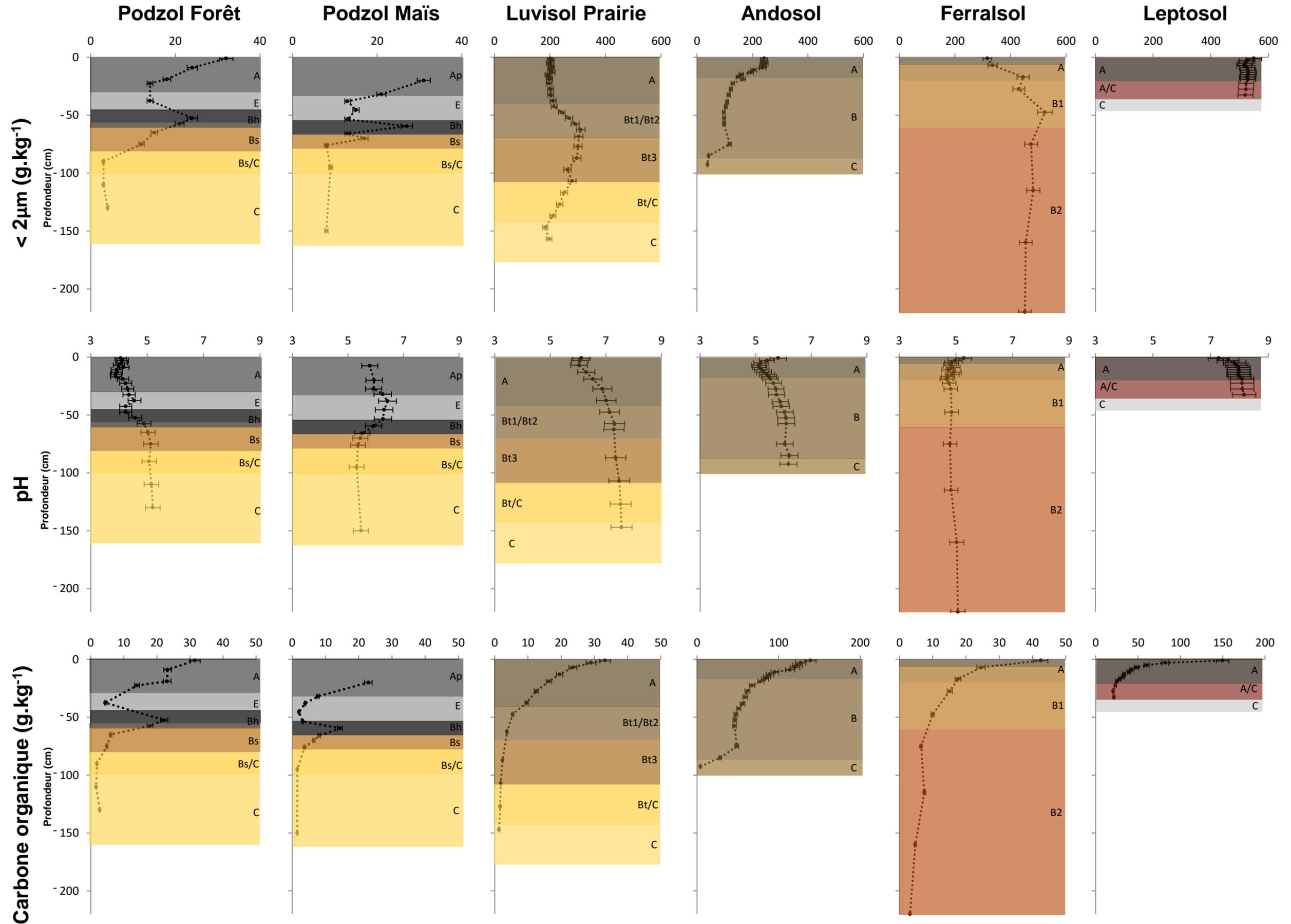
Merci également à tous mes professeurs du master sol d'AgroParisTech et plus particulièrement à Joël Michelin, Philippe Baveye et David Montagne pour les cours passionnants suivis cette année, l'appui et les conseils prodigués.

# Annexe 1



Distributions avec la profondeur du <sup>10</sup>Be (x10<sup>8</sup> atomes.gr<sup>-1</sup>), <sup>137</sup>Cs et <sup>210</sup>Pb (xs) (Bq.kg<sup>-1</sup>) dans les sols étudiés. Seul le Luvisol de Mons sous prairie est présenté, pour les autres se référer aux travaux de Jagercikova et al. (2014a, 2015).

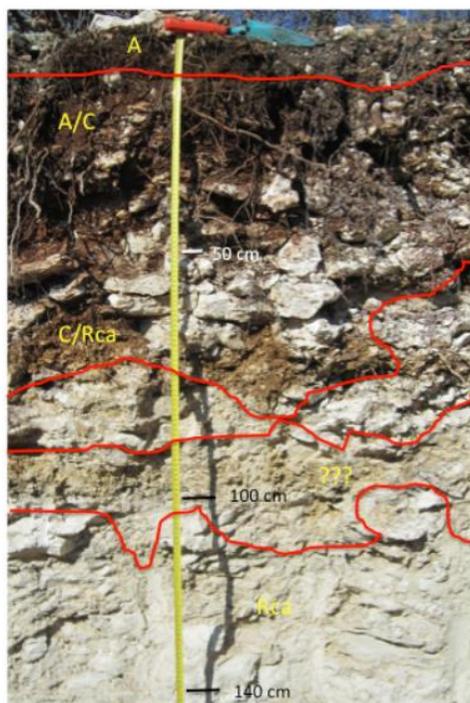
# Annexe 2



Distributions avec la profondeur des teneurs en  $< 2\mu\text{m}</math>, du pH et des teneurs en carbone organique des sols étudiés. Seul le Luvisol de Mons sous prairie est présenté, pour les autres se référer aux travaux de Jagercikova et al. (2014a, 2015).$

## Annexe 3 : Description pédologique du Leptosol à St Michel l'Observatoire (O3HP)

Horizon	Profondeur	Structure	Texture	Couleur	Racines	Activité biologique	Commentaires
OL	1 à 2.5 cm d'épaisseur	/					
OF	0.5 à 1cm d'épaisseur	/					
A	0-20cm	Grumeleuse/ Polyédrique subanguleuse	Argileuse	7.5YR2.5/1 à 5YR3/4	Abondantes	Turricules de vers assez abondants	Effervescence limitée aux sables grossiers / Pierres calcaire en proportion variable
A/C	20-35 (50) cm	Polyédrique subanguleuse	Argileuse	5YR3/4 à 2.5YR3/6	Présentes	Pas de turricules	Effervescence limitée aux sables grossiers / <b>Dominance</b> blocs pluridécimétriques émoussés (horizon R)
C/Rca	50 cm et plus						Calcaire dur



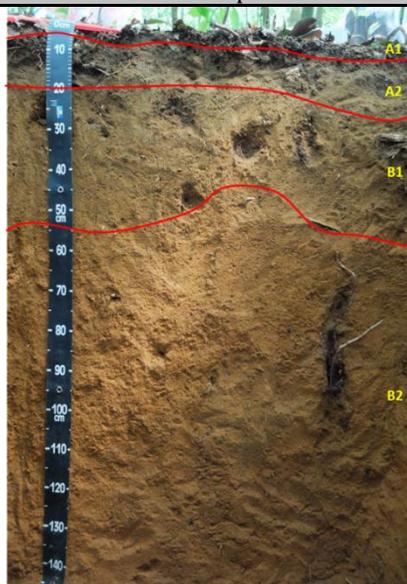
### Informations supplémentaires :

-Matériau parental (Calcaire de Reillane) se présente sous forme de dalle fragmentée en blocs pluri-décimétriques rencontrée à des profondeurs très variables, entre 0 et 30cm (lapiaz).

-La végétation est une forêt méditerranéenne, dominée par *Quercus pubescens* (Chêne pubescent).

## Annexe 4 : Description pédologique du Ferralsol à Rocoucoua

Horizon	Profondeur	Structure	Texture	Compacité	Couleur	Racines	Activité biologique	Commentaires
<b>OL1</b>	1.5 cm d'épaisseur	/						Feuilles entières et perforées
<b>OL2</b>	1.5 cm d'épaisseur	/						Feuilles fragmentées, en cours de décomposition
<b>A1</b>	0-3(5) cm	Agrégats centimétriques en anguleux	Argilo-sableux	Porosité tubulaire millimétrique	7.5YR3/2	Abondantes	Déjections millimétriques	Mat racinaire / Grosse racines à la transition avec l'horizon sous-jacent
<b>A2</b>	3(5)-15(20) cm	Grumeleuse	Argileux	Variable	10YR4/4.5	Abondantes de toutes tailles	Micro-agrégats friables et fragiles, libres	Présence d'un horizon compacté vers 15-20cm
<b>B1</b>	15(20)-40(60) cm	Massive avec sous-structure micro-agrégée	Argileux	Variable	7.5YR5/8	Présentes	Fourmis et petites termites ( <i>Nasutitemuis sp.</i> )	Présence de charbons sur tout l'horizon ; concentrés particulièrement autour de 25-30 cm
<b>B2</b>	40(60)-190 cm	Massive avec sous-structure micro-agrégée	Argileux	/	Gradient de 7.5YR5/8 à 5YR4/6 à 210-230 cm	Moins nombreuses	Faible	Limite diffuse avec teinte rouge qui devient de plus en plus marqué avec la profondeur / Tarière plus difficile d'utilisation à 210 cm : changement d'horizon ?
<b>B3</b>	190 à 250 cm et plus							Prélèvement tarière, pas d'informations pédologiques



### Informations supplémentaires :

- Matériau parental : granite.
- La végétation est une forêt tropicale, relativement primaire.

## Annexe 5 : Description pédologique de l'Andosol à Laqueuille

Horizon	Profondeur	Structure	Texture	Couleur	Racines	Activité biologique	Commentaires
A	0-15(22) cm	Grumeleuse	Limoneux	10YR3/3	Très abondantes	Peu de vers de terre	Andésites altérées
B	15(22)-86 cm	Pas de structure nette	Limoneux	10YR3/4	Nombreuses	/	Blocs demi-métriques nombreux à partir de 40 cm ; Transition supérieure diffuse
C	86 cm et plus	/	Limoneux + grains de sable	10YR4/6	Peu nombreuses	/	Structure de la roche altérée

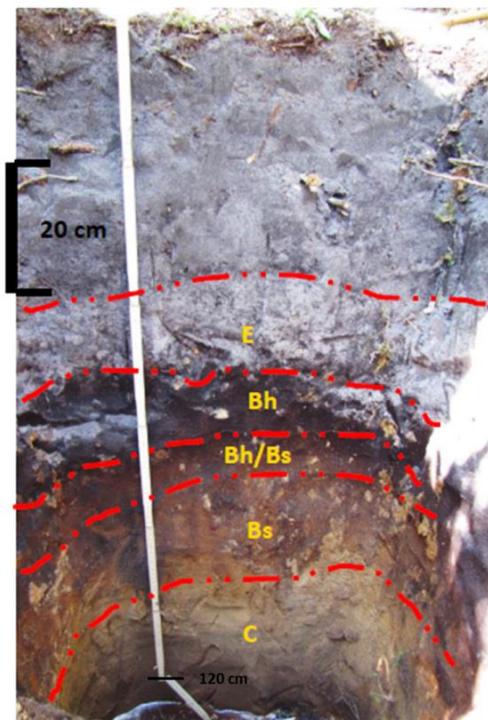


### Informations supplémentaires :

- Parcelle cultivée (céréales) il y a plus de 50 ans.
- Situé en début de pente, sous un plateau, le sol a pu recevoir des matériaux provenant d'érosion naturelle.

## Annexe 6 : Description pédologique du Podzol sous forêt à Pierroton

Horizon	Profondeur	Structure	Texture	Couleur	Racines	Activité biologique	Commentaires
<b>OL</b>	Très fine						
<b>OF</b>	1cm d'épaisseur				Nombreuses racines		Nombreuses pourritures blanches
<b>OH</b>	3-4 cm d'épaisseur				Nombreuses racines		Présence de sables
<b>A</b>	0-30 cm	/	Sableuse	10YR2/1	Abondantes	Importante	Transition O/A abrupte / Taches organiques sombres passées : ancien labour
<b>E</b>	30-45 cm	/	Sableuse	10YR3/1	Peu nombreuses	Faible	Transition A/E nette et ondulée
<b>Bh</b>	45-55 cm	/	Sableuse	7.5YR2.5/1	Peu nombreuses	Moyenne	Transition E/Bh diffuse
<b>Bh/Bs</b>	55-60 cm	/	Sableuse	10YR2/2		Faible	Transition nette/ondulée / Horizon induré
<b>Bs</b>	60-80 cm	/	Sableuse	7.5YR2.5/3		Faible	Transition diffuse / Très induré
<b>Bs/C</b>	80-100 cm	/	Sableuse	10YR3/6		Faible	Transition très progressive / Induré
<b>C</b>	100-160 cm	/	Sableuse	10YR3/4		Faible	Transition progressive / Nappe à 120 cm

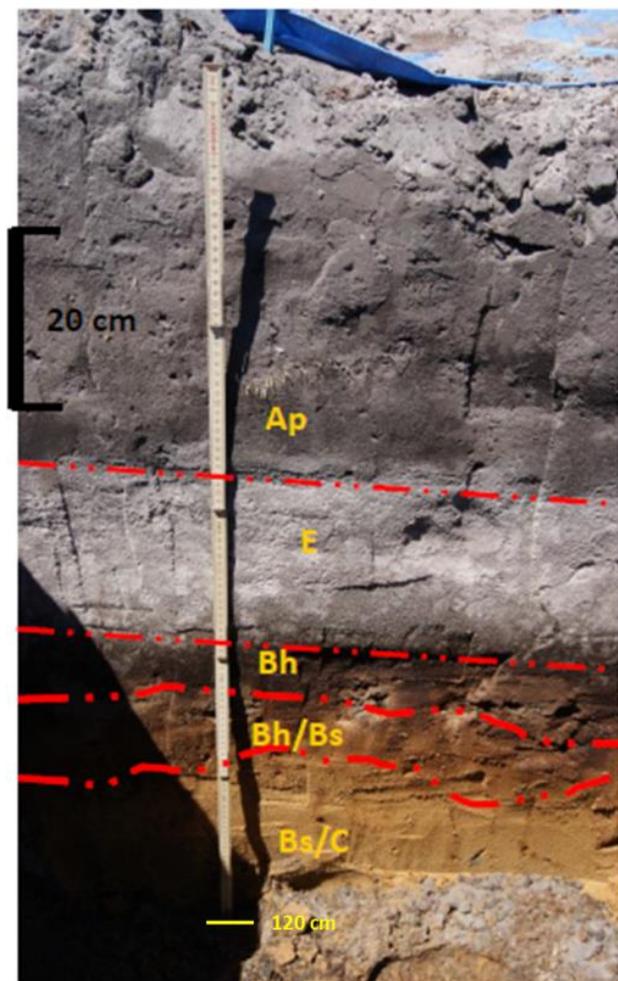


### Informations supplémentaires :

- Présence d'un ancien labour ; système forestier depuis au moins 90 ans.
- La végétation est une forêt mixte.

## Annexe 7 : Description pédologique du Podzol sous maïs à Pierroton

Horizon	Profondeur	Structure	Texture	Couleur	Racines	Activité biologique	Commentaires
Ap	0-32 cm	/	Sableuse	10YR2/1		Moyenne	
E	32-55 cm	/	Sableuse	7.5YR3/1	Peu nombreuses	Faible	Transition A/E nette et ondulée
Bh	55-67 cm	/	Sableuse	10YR2/2		Faible	Transition E/Bh diffuse avec patchs ondulés
Bs	67-78 cm	/	Sableuse	7.5YR3/3		Faible	Transition Bh/Bs nette et ondulée / Légèrement induré
Bs/C	78-100 cm	/	Sableuse	10YR4/6		Faible	Transition Bs/C progressive
C	100-160 cm	/	Sableuse	10YR3/3		Faible	Nappe à 140 cm



### Informations supplémentaires :

- Chaulage lors de la mise en place de la culture de maïs (1992) : 400kg dolomie/an. 3 coupures depuis (2006 jachère ; 2010 carottes ; 2013 haricots verts)
- Parcelle labourée à 25 cm et sous-solage après défrichage
- Restitution des tiges et des racines
- Irrigation : 320mm/an.

**Note :** Pour les descriptions pédologiques des Luvisols étudiés, se référer à Jagercikova et al., (2014a, 2015).

## Résumé

Les processus de transferts de matières verticaux dans les sols (bioturbation et lessivage) sont jusqu'à présent mal contraints bien qu'ils soient responsables de l'évolution temporelle des services écosystémiques rendus par les sols. Afin de mieux contraindre ces processus, une méthode de quantification cinétique basée sur les profils verticaux de  $^{210}\text{Pb}$  (xs),  $^{10}\text{Be}$  et  $^{137}\text{Cs}$  a été développée pour les Luvisols, dans lesquels les transferts solubles peuvent être négligés. Les limites d'applicabilité de ce type d'approche n'ont cependant pas été testées. Dans ce travail, nous avons analysé le  $^{210}\text{Pb}$  (xs),  $^{10}\text{Be}$  et  $^{137}\text{Cs}$  dans des sols présentant des gradients de carbone organique, de pH et de teneurs en  $< 2 \mu\text{m}$  (Podzol, Andosol, Ferralsol, Leptosol). Des sols acides et des teneurs en matières organiques importantes ont été considérés. La distribution verticale des isotopes étudiés a été interprétée en fonction de la teneur en matière organique, du pH et de la fraction  $< 2 \mu\text{m}$ . Nous démontrons que des pertes de  $^{10}\text{Be}$  et de  $^{137}\text{Cs}$  sous forme solubles sont présentes dans les Podzols, spécialement sous forêt, plus acide, pour le dernier. Des transferts solubles de  $^{10}\text{Be}$  ont également été identifiés dans l'Andosol mais considérés comme négligeables dans le Leptosol. Pour le  $^{210}\text{Pb}$  (xs), les transferts solubles sont également probables pour les sols au pH inférieurs à 5.5 (Andosol et Ferralsol) et une forte affinité pour la matière organique a été démontrée. Ainsi, en conditions acides et teneur en particules  $< 2 \mu\text{m}$  faible, les transferts solubles ne peuvent plus être négligés.

**Mots-clés:** Mobilité physique ; Mobilité chimique ;  $^{10}\text{Be}$  ;  $^{137}\text{Cs}$  ;  $^{210}\text{Pb}$  (xs)

### **Abstract**

Vertical matter transfer processes (bioturbation and  $<2\mu\text{m}$  translocation) in soils and their dynamics are up to now poorly constrained although they are responsible for the temporal evolution of the ecosystem services. In order to better constrain and quantify these processes, a kinetic quantification of the involved transfers based on vertical profiles of  $^{210}\text{Pb}$  (xs),  $^{10}\text{Be}$  and  $^{137}\text{Cs}$  has been developed for Luvisols in which soluble transfers could be neglected. The range of applicability of this type of approach was nevertheless not tested. In this work, we analyzed  $^{210}\text{Pb}$  (xs),  $^{10}\text{Be}$  and  $^{137}\text{Cs}$  in soils exhibiting gradients of organic matter, pH and  $<2\mu\text{m}$  fraction (Podzol, Andosol Ferralsol, Leptosol). Acidic soils and large organic matter contents were considered. The depth distribution of the studied isotopes was then interpreted as a function of the organic matter content, the soil pH and its  $<2\mu\text{m}$  fraction. This demonstrates that  $^{10}\text{Be}$  and  $^{137}\text{Cs}$  losses occur under soluble form in the Podzol, especially under forest, more acid, for the latter. Soluble  $^{10}\text{Be}$  transfers were also identified in the Andosol when they were considered as negligible in the Leptosol. For  $^{210}\text{Pb}$  (xs), soluble transfers are also probable for soils with pH less than 5.5 (Andosol and Ferralsol) and strong affinity for organic matter has been demonstrated. Thus, under acidic conditions and low  $<2\mu\text{m}$  fraction, soluble transfer cannot be neglected anymore.

**Keywords:** Physical mobility; Chemical mobility;  $^{10}\text{Be}$ ;  $^{137}\text{Cs}$ ;  $^{210}\text{Pb}$  (xs)