

# Variabilité spatiale des activités en césium-137 dans les sols d'un bassin versant du massif du Jura : étendue et principales sources de variation

G. PIMOU-HEUMOU, E. LUCOT, N. CRINI, M. BRIOT AND P.M. BADOT<sup>1</sup>

(Manuscrit reçu le 21 juin 2010, accepté le 8 janvier 2011)

## RÉSUMÉ

275 échantillons de sols ont été prélevés dans le bassin versant du Haut-Doubs situé dans le massif montagneux du Jura en fonction d'une stratégie d'échantillonnage conçue pour évaluer l'étendue de la variabilité spatiale de la contamination en <sup>137</sup>Cs dans la zone d'étude et identifier les principales sources de variation. Les sols présentent des activités surfaciques en <sup>137</sup>Cs comprises entre environ 1 000 et 12 000 Bq.m<sup>-2</sup> avec une moyenne de l'ordre de 3 600 Bq.m<sup>-2</sup>. La variabilité spatiale des contaminations est élevée : l'activité surfacique montre des liens statistiquement significatifs avec l'altitude, la teneur en matière organique et le mode d'occupation des sols, alors que les autres paramètres étudiés, type de sol et position topographique, ne constituent pas des sources significatives de variations. Ces résultats sont discutés en termes d'évaluation des contaminations radioactives en zone de montagne à une échelle régionale. Ils montrent que pour être satisfaisante une stratégie d'échantillonnage doit nécessairement intégrer les différents modes d'occupation des sols.

## ABSTRACT

Spatial variability of caesium-137 activities in soils in the Jura mountains.

275 soil samples were taken in the catchment area of the upper part of the Doubs river located in the Jura mountains according to a sampling strategy designed to evaluate the extent of the spatial variability of <sup>137</sup>Cs activities and to identify its main sources. <sup>137</sup>Cs activities ranged between about 1 000 and 12 000 Bq.m<sup>-2</sup> with an average of approximately 3 600 Bq.m<sup>-2</sup>. The spatial variability of the contamination is high: <sup>137</sup>Cs activity shows statistically significant links with altitude, soil organic matter and land cover, whereas the other studied parameters, *i.e.* soil type and topographic position, do not constitute significant sources of variation. These results are discussed in terms of evaluation of the radioactive contamination on a regional scale. They show that to be satisfactory, a sampling strategy must necessarily take into account the various types of land cover.

**Keywords:** Contamination / spatial variability / land cover / caesium-137 / mountain

<sup>1</sup> CNRS – Université de Franche-Comté, Laboratoire chrono-environnement, UMR 6249, Place Leclerc, 25030 Besançon Cedex, France.

## 1. Introduction

La majeure partie des radionucléides libérés dans l'environnement en Europe occidentale depuis la fin des tirs d'armes nucléaires l'a été lors de l'accident de Tchernobyl (Gudiken *et al.*, 1989). De nombreux pays d'Europe ont alors été soumis à des retombées de radionucléides lorsqu'ils ont été atteints par les masses d'air contaminé (OCDE, 2002). La distribution spatiale des dépôts a été largement dépendante des conditions climatiques prévalant dans les jours et les semaines qui ont suivi l'accident et les retombées radioactives n'ont de ce fait pas été dispersées de manière homogène dans les zones impactées. Les événements pluvieux ont notamment contribué de manière décisive à l'hétérogénéité des dépôts de radiocésium (Fowler *et al.*, 1987).

La contamination des sols consécutive à cet accident a donc été très variable. Le dépôt consécutif à l'accident a par exemple atteint plusieurs millions de  $\text{Bq.m}^{-2}$  à proximité immédiate du site, alors qu'en France le dépôt a été de quelques centaines à quelques milliers de  $\text{Bq.m}^{-2}$  en fonction de la zone géographique considérée. Les principaux paramètres qui ont gouverné la répartition des retombées sont la trajectoire des masses d'air contaminé, les conditions atmosphériques régnant pendant la durée de l'accident et le type de couvert végétal (IRSN, 2004). Ces facteurs constituent une source importante de variations, mais ce ne sont pas les seuls à conditionner le devenir des retombées. Après le dépôt, de nombreux processus physiques et écologiques modulent le devenir des contaminants dans les sols (Staunton, 1997) : décroissance radioactive, adsorption des radionucléides sur les constituants solides des sols, absorption par les végétaux, transport en phase soluble ou particulaire... La nature et l'intensité de ces processus sont très variables dans le temps et l'espace. Les contaminations qu'il est possible d'observer dans un sol dans une région donnée sont donc sous la dépendance de deux grandes sources de variations : (1) les conditions qui ont présidé au dépôt et (2) le fonctionnement écosystémique post-dépôt. En un lieu donné, ceci peut conduire, soit à une diminution assez rapide des activités présentes dans les sols, soit au contraire à leur persistance pendant des durées assez longues.

En raison de sa situation géographique et de son relief, la Franche-Comté est l'une des régions françaises qui a été la plus exposée aux retombées radioactives consécutives aux tirs atmosphériques d'armes nucléaires et à l'accident de Tchernobyl. Renaud *et al.* (2003) ont établi que les dépôts consécutifs à cet accident survenu en avril 1986 sont de l'ordre de  $10\,000\ \text{Bq.m}^{-2}$  de césium-137 dans une large partie du massif du Jura avec des valeurs supérieures à  $20\,000\ \text{Bq.m}^{-2}$  dans certaines zones. Badot *et al.* (2004) rapportent quant à eux des contaminations surfaciques comprises entre 4 et  $50\,000\ \text{Bq.m}^{-2}$  avec des pics de contaminations localisées au sud-est de la zone dans un secteur compris entre

Saint-Claude dans le Jura et Mouthe dans le Doubs. À l'échelle de la région, la variabilité spatiale des contaminations est localement très importante tant au niveau des sols que dans la végétation. Dans l'ensemble de la partie française du massif jurassien, les activités en radiocésium dans l'horizon superficiel (0–5 cm) des sols varient entre 61 et 280 Bq.kg<sup>-1</sup> de masse sèche (MS) et les activités massiques mesurées dans différents organes végétaux (rameaux, feuilles, aiguilles) d'essences forestières (hêtre et épicéa) présentent une grande variabilité en fonction de l'espèce, de l'organe et du type de sols et de l'amplitude des contaminations (Lamarque *et al.*, 2005). Plusieurs facteurs sont potentiellement à l'origine de ces différences : conditions atmosphériques régnant au moment des dépôts, nature de l'occupation du sol (forêt, prairie, cultures...), type de végétation, fonctionnement du sol (régime hydrique, propriétés physico-chimiques...), etc.

Les facteurs qui déterminent globalement la variabilité des contaminations et qui conditionnent les transferts dans les écosystèmes terrestres sont bien identifiés (Lettner *et al.*, 1999 ; Fesenko *et al.*, 2001a, 2001b ; Calmon *et al.*, 2009) mais il n'en reste pas moins qu'il est souvent très difficile de prédire la variabilité des contaminations à une échelle locale. Or de telles informations peuvent s'avérer très importantes notamment lorsqu'il s'agit d'évaluer des risques environnementaux et sanitaires, notamment ceux liés à la contamination des produits agro-alimentaires. Dans ce contexte, l'objectif du présent travail est double : il s'agit de décrire à l'échelle d'un bassin versant de petite taille, l'étendue de la variabilité de la contamination des sols par le césium-137 et de déterminer si un ou plusieurs facteurs environnementaux (altitude, teneur en matière organique du sol, mode d'occupation des sols) jouent un rôle significatif dans la variabilité observée.

Le massif jurassien constitue une région d'étude particulièrement adaptée pour conduire de telles investigations. Il a été contaminé de manière sensible par les retombées consécutives aux tirs d'armes et par l'accident de Tchernobyl. Une vingtaine d'années après l'accident, les activités dans les sols y demeurent facilement détectables. Dans le bassin versant du Doubs en amont du lac Saint-Point, objet de notre étude, deux modes principaux de mise en valeurs des sols coexistent et sont géographiquement intriqués : la forêt et la prairie permanente. Une partie significative du bassin versant est occupée par la forêt qui est localisée notamment aux altitudes les plus élevées. Dans les vallées, où sont installés la plupart des villages, les prairies permanentes prédominent. Le bassin versant du Doubs en amont du lac Saint-Point présente aussi la particularité de montrer dans une aire géographique de petite taille (environ 300 km<sup>2</sup>), une grande diversité environnementale s'exprimant en particulier par la nature du matériau parental, les types de sols et leurs propriétés physico-chimiques, la position topographique (haut de pente, mi-pente, bas de pente), l'altitude et le type de végétation.

## 2. Matériel et méthodes

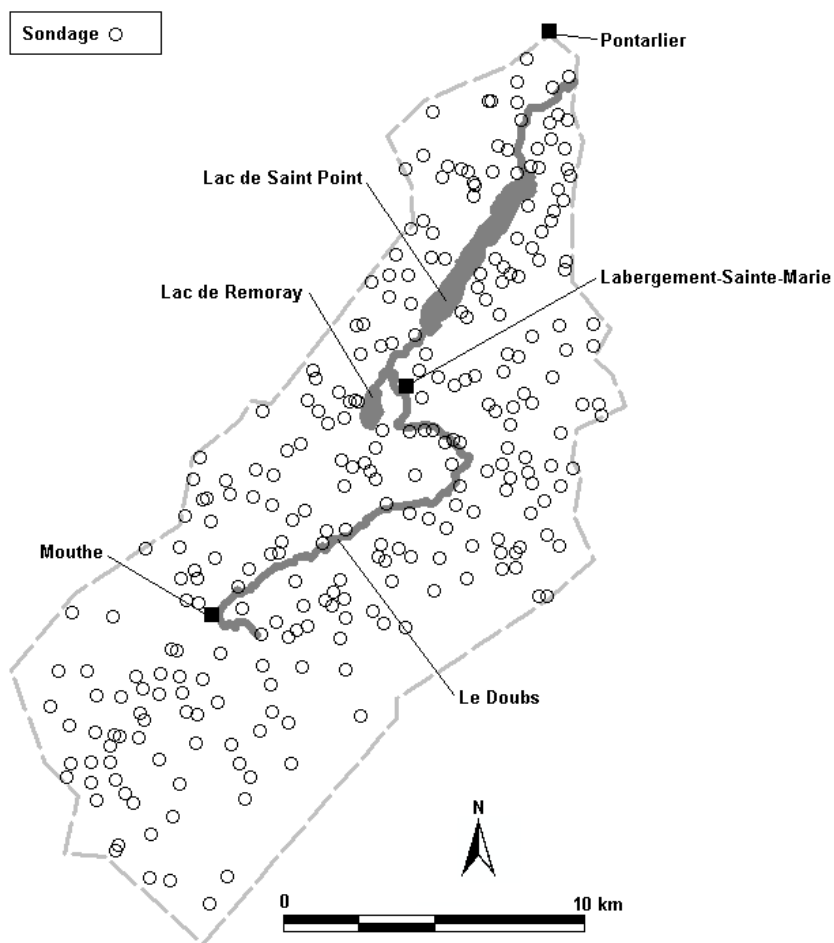
### 2.1. Stratégie d'échantillonnage

Une des caractéristiques de l'approche retenue est d'avoir défini une stratégie d'échantillonnage basée sur le fonctionnement écologique du milieu étudié. La stratégie d'échantillonnage utilisée dans ce travail repose sur l'identification *a priori* d'unités fonctionnelles homogènes, qui permet de tenir compte de l'hétérogénéité écologique du bassin versant. À l'échelle de cette étude, ces unités correspondent aux unités pédologiques, telles qu'elles sont définies pour réaliser les cartes des sols. Cette démarche s'appuie sur les travaux menés sur la variabilité spatiale des sols du massif du Jura (Charles, 1991 ; Briot, 2009). Dans le contexte du massif du Jura où la variabilité spatiale des sols est très importante, l'usage de techniques géostatistiques n'a pas été retenu car elles auraient nécessité un nombre de points d'échantillonnage très élevé (Lamarque, 2004) incompatible avec la surface concernée par cette étude.

Préalablement à l'échantillonnage, les cartes géologiques éditées par le Bureau de recherches géologiques et minières (BRGM) ont été utilisées pour identifier les unités géologiques fonctionnelles différenciées par leur lithologie et leur perméabilité. L'étape suivante a consisté à utiliser les cartes topographiques de l'Institut géographique national (IGN) au 1/25 000 afin d'identifier et de délimiter les ensembles topographiquement homogènes qui subdivisent les unités géologiques. Les principales positions topographiques sont les systèmes de haut de pente, de mi-pente et de bas de pente.

Enfin, les cartes topographiques et les photographies aériennes ont été utilisées pour représenter les différents modes d'occupations du sol : forêts, prairies, zones humides, pré-bois. À une échelle locale, le mode d'occupation est fortement dépendant des contraintes induites par les propriétés des sols : quantité d'éléments grossiers, excès d'eau et richesse en nutriments.

La superposition de ces trois groupes d'informations à savoir (1) la nature du substratum géologique, (2) les ensembles topographiques et (3) le mode d'occupation des sols a permis de définir des unités pédologiques, qui sont en règle générale homogènes pour ces 3 critères. Cependant, dans certains secteurs, la variabilité spatiale est telle que cette démarche aurait conduit à multiplier le nombre d'unités pédologiques de très petite taille. Dans ces secteurs, des regroupements ont été opérés et les unités pédologiques sont de type complexe. Dans les unités cartographiques homogènes, un seul site de prélèvement a été défini, généralement dans la partie centrale de l'unité. Les valeurs obtenues sur le site de prélèvement sont étendues à toute la surface des unités cartographiques. Dans le cas des unités complexes, 2 à 3 sites de prélèvement ont été définis en



**Figure 1 – Localisation géographique des 275 sites de prélèvement.**  
*Spatial localisation of the sampling sites (n = 275).*

fonction de la topographie ou de l'occupation du sol. Pour ces unités complexes, la valeur attribuée à l'unité cartographique est la moyenne des 2 ou 3 valeurs analytiques. Ce procédé a conduit à choisir 275 sites de prélèvement. Dans chacun des sites, une description des sols et un prélèvement d'échantillon aux fins d'analyse ont été réalisés. La figure 1 donne la localisation géographique des sites retenus.

## **2.2. Typologie des sols**

Le bassin versant du Doubs en amont du lac Saint-Point est localisé sur deux unités géomorphologiques, le second plateau et la Haute-Chaîne du Jura. Localement, cette zone est marquée par un modelé glaciaire récent. Au cours de la dernière glaciation, l'ablation des sols anciens y a été pratiquement totale et une nouvelle phase d'altération et de pédogénèse s'y exerce depuis 15 000 ans au plus. De ce fait, les sols sont monogénétiques, superficiels et formés à partir du matériau d'altération de la roche calcaire.

Pour chaque site, une description de la position topographique, du type de végétation et de la morphologie du sol est réalisée. La description morphologique des sols est effectuée à partir d'un sondage à la tarière jusqu'à 1 m de profondeur ou jusqu'à la roche le cas échéant.

Les sols observés dans la zone d'étude correspondent à 5 types principaux : les sols bruns à pellicule calcaire, les sols bruns calcaires, les sols humo-calciques, les sols bruns lessivés et les sols humiques à gley. Certains des sols bruns calcaires et des sols bruns lessivés sont hydromorphes.

## **2.3. Échantillonnage des sols**

Le prélèvement des échantillons sur le terrain a été réalisé en deux phases, une première phase à l'automne 2006 et une seconde phase au printemps 2007.

Lorsque le site présentait une hétérogénéité locale, le choix s'est porté sur la zone la plus représentative du milieu sur le plan topographique, en évitant les endroits qui auraient pu subir des perturbations susceptibles de modifier les caractéristiques des sols (passages d'engins liés à l'exploitation, dépôts de bois, etc.). Les coordonnées géographiques des sites d'échantillonnage ont été déterminées par GPS.

Sur l'ensemble des 275 sites répartis sur le bassin versant, des prélèvements volumiques de sol ont été réalisés entre 0 et 5 cm de profondeur à l'aide d'une tarière munie d'un cylindre de 100 cm<sup>3</sup>. Dans le présent travail, le choix de la profondeur 0–5 cm a été dicté par le fait qu'une partie des sites échantillonnés montrent des sols très superficiels. Une étude précédente (Lamarque, 2004) a montré que la distribution spatiale de la contamination mesurée à 0–5 cm est très similaire à celle obtenue pour la profondeur 10–15 cm, et que les activités mesurées dans le niveau superficiel sont plus élevées. En outre, le niveau superficiel est celui qui contribue le plus aux transferts de césium par érosion, dont l'évaluation à l'échelle du bassin versant est l'un des objectifs à long terme de nos

travaux. Dans chaque site, les prélèvements ont été effectués selon la méthode de Walter (1990) en trois points distincts distants de 10 m chacun et identiques du point de vue de tous les facteurs du milieu conformément aux recommandations couramment admises pour les prélèvements de sols (Baize, 1988) et en accord avec le travail de Chesnokov *et al.* (2000) qui ont montré l'intérêt d'une distance moyenne de 10 m pour les échantillonnages radioécologiques. Pour chaque site, on réalise un échantillon composite à partir des trois prélèvements de sol. Les échantillons sont ensuite acheminés au laboratoire pour y subir les traitements préalables aux analyses, à savoir le séchage, le tamisage à 2 mm et la pesée. Les échantillons sont ensuite conservés dans des boîtes étanches jusqu'à leur analyse.

#### **2.4. Teneur en matière organique**

La quantité totale de carbone contenue dans les échantillons de sol est évaluée grâce à la mesure de la quantité de carbone disparue par perte au feu (Baize, 1988). La méthode consiste à prélever 10 g de sol préalablement séché et à les placer pendant 12 heures dans un four à 500 °C. L'échantillon de sol est à nouveau pesé et la différence de masse fournit la quantité de matière organique. La valeur est exprimée en pourcentage de la masse sèche initiale.

### **2.5. Mesures d'activités en $^{137}\text{Cs}$ dans les échantillons de sol**

#### **2.5.1. Préparation des échantillons**

Les échantillons de sol ont été séchés à 60–70 °C à l'étuve pendant 48 heures. Les sols sont ensuite broyés et tamisés à 2 mm pour éliminer les éléments grossiers. Les fractions fines obtenues sont alors introduites dans des boîtes en plastique sphériques, dont le diamètre est 40 mm et l'épaisseur 18 mm. Ces boîtes préalablement tarées sont remplies totalement de manière à ce que la géométrie obtenue soit la plus proche de celle du standard utilisé pour l'étalonnage du spectromètre gamma.

#### **2.5.2. Mesure de l'activité en césium**

Les analyses sont réalisées à l'aide d'un spectromètre gamma pourvu d'un détecteur en cristal de germanium ultra pur (HPGe : *High Purity Germanium*) et d'un analyseur multicanaux géré par le logiciel *INTERWINNER40* version 4.1 en mode gamma (Eurisys Mesures, Saint-Quentin-en-Yvelines, France). La mesure est faite sur la totalité du spectre entre 20 et 20 000 keV. L'activité du  $^{137}\text{Cs}$  est calculée à partir du pic à 661,657 keV. Nous utilisons une source scellée, qui permet l'étalonnage en énergie et en efficacité du détecteur. La source est une source multigamma 9ML01-RGME15 de CERCA Framatome, groupe Areva. Ce

sont le pic du  $^{137}\text{Cs}$  et les deux pics du  $^{60}\text{Co}$  qui sont utilisés pour l'étalonnage en énergie (661,657, 1 173,228 et 1 332 492 keV, respectivement). Une courbe d'efficacité est tracée en tenant compte des activités des radioéléments présents dans la source. L'ensemble de ces deux opérations permet d'accéder à la caractérisation qualitative et quantitative de l'échantillon. La présence ou l'absence de la raie à 661,657 traduit qualitativement la présence ou l'absence de  $^{137}\text{Cs}$ . L'aire nette du pic (l'aire brute diminuée du bruit de fond donne l'aire nette) permet d'accéder à la valeur de l'activité. Nous vérifions systématiquement que la résolution est bonne, en calculant la largeur à mi-hauteur des pics. La date de référence choisie est le 1<sup>er</sup> mai 1986, elle coïncide avec les premiers jours de l'accident du réacteur numéro 4 de la centrale nucléaire de Tchernobyl. Cette date a été retenue pour faciliter les comparaisons avec les données recueillies antérieurement sur le massif (Badot *et al.*, 2004 ; Lamarque, 2004 ; Lamarque *et al.*, 2005). Chaque échantillon de sol a été dosé pendant 24 h (86 400 secondes). L'incertitude de comptage sur la mesure est au maximum de 10 %.

### 2.5.3. *Activité surfacique*

L'activité surfacique exprimée en  $\text{Bq.m}^{-2}$  a été calculée à partir des activités en  $\text{Bq.kg}^{-1}$ . Pour transformer les activités massiques (becquerel par kg de masse sèche de sol) en activités surfaciques (becquerel par mètre carré), nous avons considéré que la radioactivité était toute entière contenue dans les 5 premiers cm de sol que nous avons échantillonné en utilisant la densité apparente mesurée sur les prélèvements de  $100 \text{ cm}^{-3}$ . La relation entre les deux grandeurs est donnée par :

$$\text{Cs (Bq.m}^{-2}) = \text{Cs (Bq.kg}^{-1}) \cdot (1000) \cdot \text{DA} \cdot 0,05$$

$$\text{Cs (Bq.m}^{-2}) \text{ activité surfacique en césium en Bq.m}^{-2}$$

$$\text{Cs (Bq.kg}^{-1}) \text{ activité massique en césium en Bq.kg}^{-1}$$

$$\text{DA} = \text{densité apparente en g.cm}^{-3}$$

$$0,05 = \text{épaisseur de sol considérée en m.}$$

## 3. Résultats et discussion

### 3.1. *Représentation cartographique et spatialisation*

Les activités surfaciques en césium dans les sols, exprimées en  $\text{Bq.m}^{-2}$ , ont été représentées sur la figure 2. Il existe une grande hétérogénéité des contaminations en césium à l'échelle du bassin versant. L'activité surfacique moyenne est de



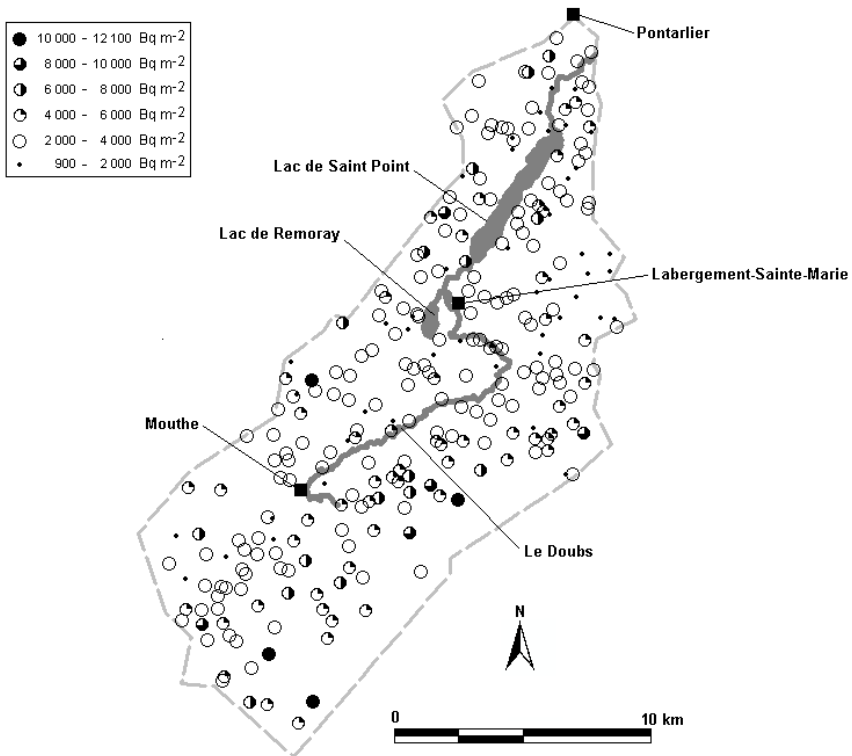


Figure 2 – Distribution spatiale des activités surfaciques en césium-137 dans le bassin versant du Doubs en amont du lac Saint-Point (n = 275).

*Spatial distribution of caesium-137 surface activities in the Doubs river watershed upstream of the Saint-Point lake (n = 275).*

3 583 Bq.m<sup>-2</sup>, mais la variabilité spatiale est très élevée. L'activité la plus faible est de 989 Bq.m<sup>-2</sup> : elle est enregistrée au niveau de la station 138 sur la commune de Labergement-Sainte-Marie. L'activité maximale, 12 042 Bq.m<sup>-2</sup>, est observée dans la station 245, localisée sur la commune de Villedieu-les-Mouthe. L'ensemble des mesures effectuées montre qu'un peu moins de la moitié des prélèvements (43 % des stations échantillonnées, 120 sites sur 275) ont des activités surfaciques inférieures ou égales à 3 100 Bq.m<sup>-2</sup>. La plupart de ces prélèvements faiblement contaminés correspondent à des sols agricoles. 42 % des prélèvements (118 sur 275) présentent une activité surfacique comprise entre 3 100 Bq.m<sup>-2</sup> et 5 300 Bq.m<sup>-2</sup>. Ces niveaux d'activité intermédiaires sont rencontrés aussi bien sur des sols agricoles, que sur des sols forestiers ou des sols correspondant aux zones de pré-bois. Seulement 15 % des prélèvements (37 sur

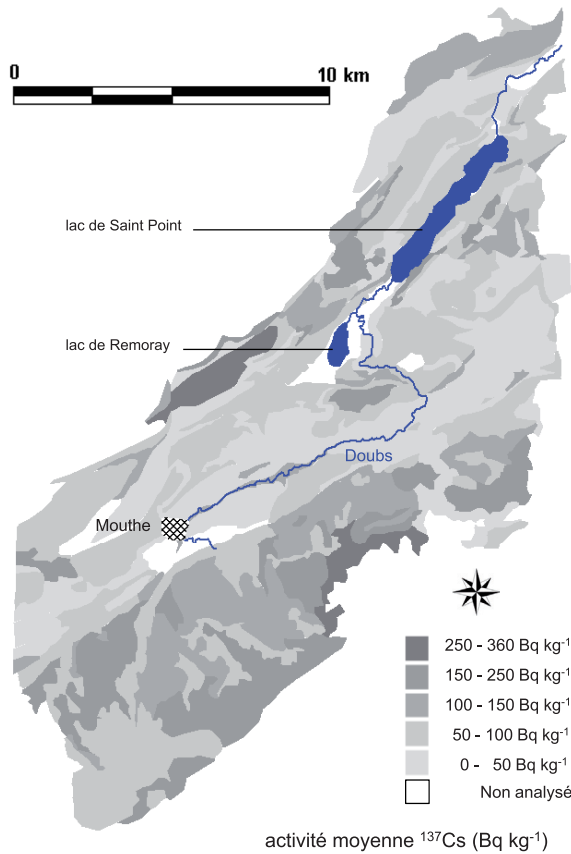
275) montrent une activité supérieure à  $5\,300\text{ Bq}\cdot\text{m}^{-2}$  qui ne dépasse cependant jamais  $12\,100\text{ Bq}\cdot\text{m}^{-2}$ . Ces prélèvements les plus actifs sont essentiellement ceux effectués sur des sols forestiers et sur les sols hydromorphes rencontrés dans les zones humides.

La méthode d'échantillonnage exposée dans la section 2.1 a permis de cartographier les données et de construire les représentations spatiales de l'activité en césium-137, de la teneur en matière organique et de l'altitude qui sont respectivement fournies dans les figures 3, 4 et 5. La répartition spatiale des contaminations est liée aux ensembles géomorphologiques présents dans le bassin versant. Celui-ci est en effet constitué d'une vallée où prédominent les prairies naturelles, entourée de part et d'autre de plateaux et sommets couverts par la forêt. La zone centrale correspondant à la vallée centrale est la moins contaminée, alors que les zones présentant les contaminations les plus élevées sont localisées dans une bande située à l'est du bassin versant et orientée nord-est sud-ouest. Une seconde zone située au nord et au nord-ouest présentent aussi des valeurs d'activité plus élevées. Ces zones plus fortement contaminées correspondent approximativement aux massifs forestiers installés sur les plateaux et sur les sommets. Les cartes révèlent également que les variations spatiales de la teneur en matière organique des sols présentent globalement le même patron de répartition. Ces informations permettent donc de dégager les grandes tendances de la distribution de la contamination : la variabilité spatiale apparaît en première approche liée à plusieurs caractéristiques du milieu et notamment à l'altitude, à la teneur en matière organique et au mode d'occupation du sol.

### **3.2. Liaison entre l'activité surfacique et l'altitude**

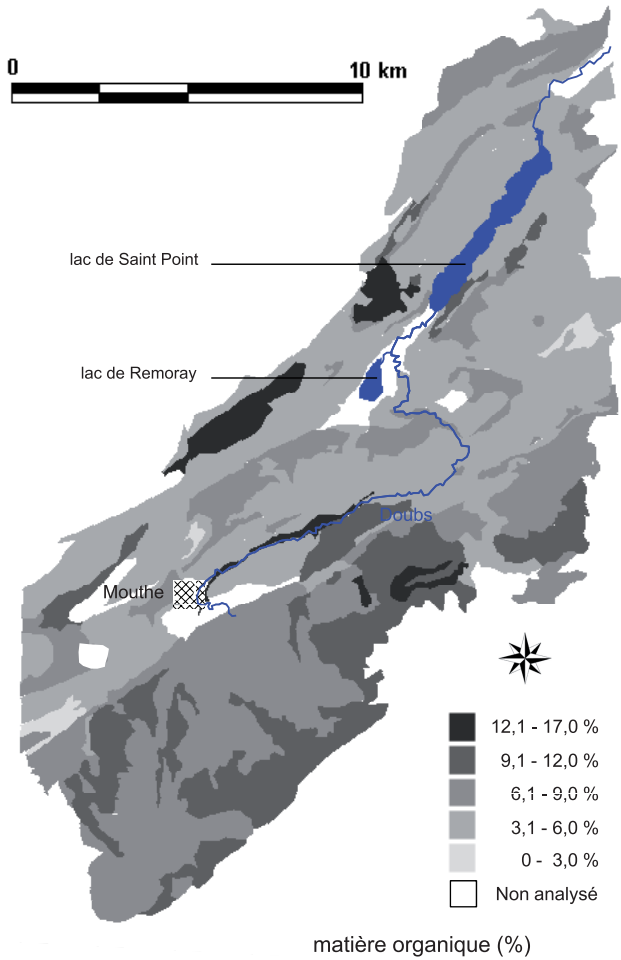
Dans le bassin versant du Doubs, l'activité surfacique en césium augmente significativement avec l'altitude (Fig. 6). Un test de Spearman, test non paramétrique permettant d'analyser la liaison entre ces deux variables quantitatives, a été réalisé. Le coefficient de corrélation vaut 0,351 et le test permet de rejeter l'hypothèse nulle avec un risque d'erreur inférieur à  $10^{-5}$  : il existe donc une relation positive entre l'activité surfacique en césium-137 et l'altitude. L'analyse statistique de nos données montrent que dans le bassin versant du Doubs à l'amont du lac Saint-Point, les contaminations des sols par le césium-137 varient avec l'altitude et que les sites les plus élevés sont les plus contaminés. Ce résultat est à rapprocher de ceux obtenus dans les Alpes autrichiennes où la contamination de la végétation augmente avec l'altitude (Lettner *et al.*, 2006).

Il est loisible de se poser la question de savoir si ce résultat est lié à des retombées quantitativement plus importantes sur les sommets ou s'il est lié à d'autres caractéristiques du bassin versant. Les différentes données disponibles

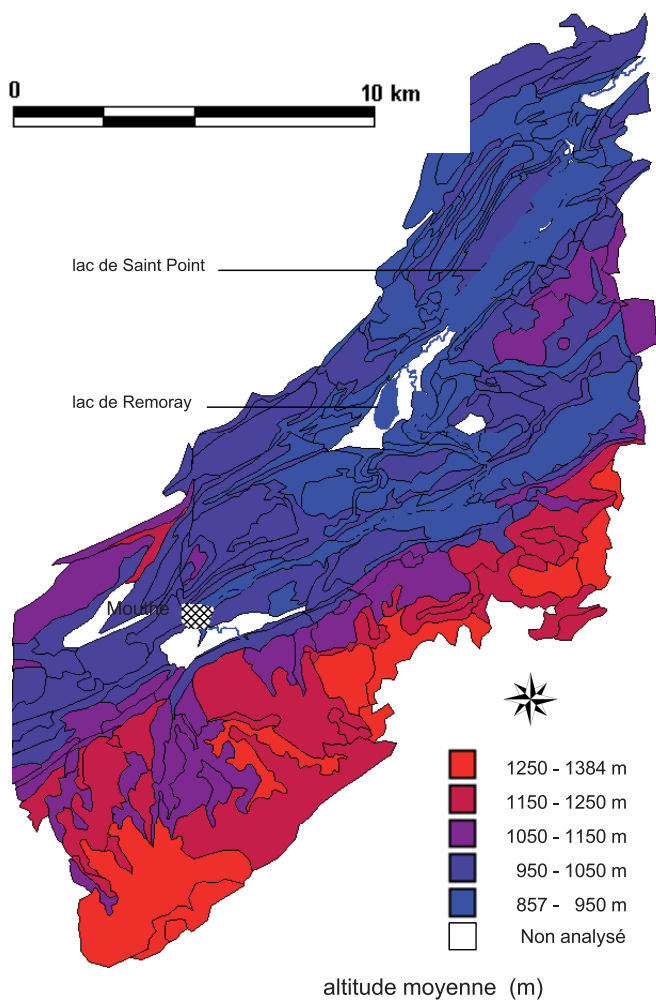


**Figure 3 – Représentation cartographique de l'activité en césium-137 dans le bassin versant du Doubs en amont du Lac Saint-Point selon une méthode basée sur une stratégie d'échantillonnage raisonnée. Les unités pédologiques qui sont cartographiées sont identifiées par la superposition de trois groupes d'informations à savoir (1) la nature du substratum géologique, (2) les ensembles topographiques et (3) le mode d'occupation des sols. Dans les unités cartographiques homogènes, un seul site de prélèvement a été défini, généralement dans la partie centrale de l'unité. Les valeurs obtenues sur le site de prélèvement sont étendues à toute la surface des unités cartographiques. Dans le cas des unités complexes, 2 à 3 sites de prélèvement ont été définis en fonction de la topographie ou de l'occupation du sol. Pour ces unités complexes, la valeur attribuée à l'unité cartographique est la moyenne des 2 ou 3 valeurs analytiques.**

*Map of caesium-137 surface activities in the Doubs river watershed upstream of the Saint-Point lake following a point-to-point sampling strategy. Soil units have been identified by the means of three data layers: geological substratum, topography, and land cover. When the soil units were homogeneous, only one sample has been taken, usually in the central part of the unit. When units were complex, at least 2 or 3 sampling sites have been chosen. Activity measurements have been performed in each sample, and we have considered that the value for the unit is the average of the measurements.*

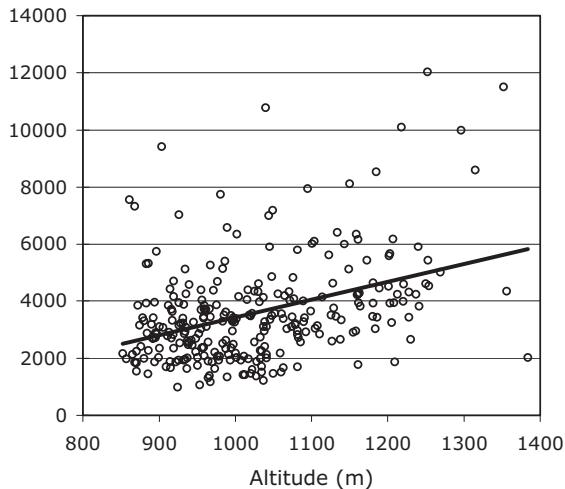


**Figure 4 – Représentation cartographique de la teneur en matière organique des sols (% de la masse sèche) échantillonnés dans le bassin versant du Doubs en amont du Lac Saint-Point. La méthode de représentation est décrite dans la légende de la figure 3.**  
*Map of soil organic matter measurements (% dry mass) in the Doubs river watershed upstream of the Saint-Point lake. The method is described in the legend of Figure 3.*



**Figure 5 – Représentation cartographique de l'altitude dans le bassin versant du Doubs en amont du Lac Saint-Point.**

*Map of elevations in the Doubs river watershed upstream of the Saint-Point lake.*



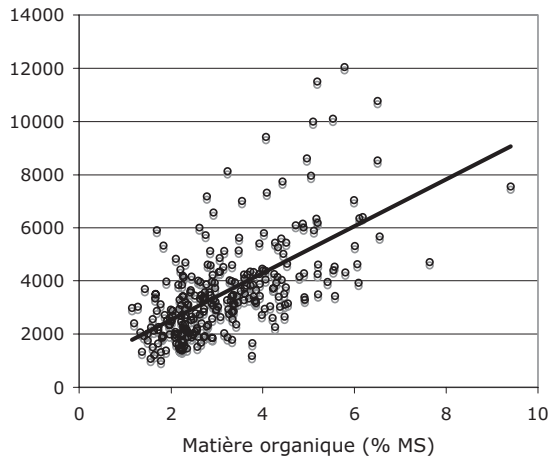
**Figure 6 – Relation entre l'activité surfacique en césium-137 mesurée dans 275 sites du bassin versant du Doubs en amont du lac Saint-Point et l'altitude des sites de prélèvement.**

*Relationship between sampling site elevations and caesium-137 surface activities in the Doubs river watershed upstream of the Saint-Point (n = 275).*

dans la littérature ne militent pas en faveur d'une contamination initiale plus importante des zones les plus élevées. Les retombées de l'accident de Tchernobyl en mai 1986 dans ce secteur du massif jurassien ont été décrites par différents auteurs (Renaud *et al.*, 2003 ; Badot *et al.*, 2004 ; Renaud *et al.*, 2004) et la superficie, relativement faible, du bassin versant étudié est telle que l'on peut considérer que les retombées atmosphériques y ont été relativement homogènes. L'origine de la plus forte activité des prélèvements en altitude doit vraisemblablement être recherchée ailleurs. Aucune donnée relative aux cumuls de pluie locaux n'étant disponible à l'échelle de l'échantillonnage réalisé, il n'a donc pas été possible de mettre en évidence d'éventuels liens entre les activités et les précipitations. Les sols des plateaux et des sommets sont des sols peu épais et il est vraisemblable que la plus importante quantité de matière organique qu'ils contiennent puisse en partie rendre compte de ces activités surfaciques plus élevées. Une autre hypothèse réside dans le fait que la capacité d'interception des poussières et aérosols par les milieux forestiers est supérieure à celle des milieux agricoles (Maubert *et al.*, 1998).

### **3.3. Liaison entre l'activité surfacique et la teneur en matière organique**

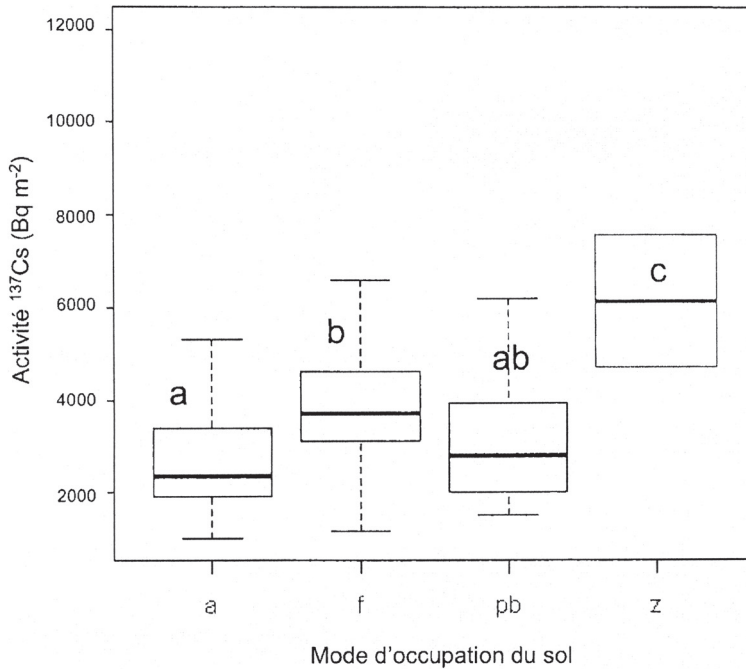
Dans la région étudiée, l'activité surfacique en césium augmente significativement avec la teneur en matière organique du sol (Fig. 7). Un test de Spearman montre



**Figure 7** – Relation entre l'activité surfacique en césium-137 mesurée dans 275 sites du bassin versant du Doubs en amont du lac Saint-Point et la teneur en matière organique des sols exprimée en pourcentage de la masse sèche.

*Relationship between soil organic matter (% dry mass) and caesium-137 surface activities in the Doubs river watershed upstream of the Saint-Point (n = 275).*

qu'il existe une liaison positive entre l'activité surfacique en césium-137 et la teneur en matière organique ( $r = 0,63$ ) et permet de rejeter l'hypothèse nulle avec un risque d'erreur inférieur à  $10^{-5}$ . Le modèle de régression linéaire (coefficient de détermination = 0,394) explique seulement une faible part de la variance observée. L'analyse statistique de nos données montre que dans le bassin versant du Doubs à l'amont du lac Saint-Point, les activités en césium-137 des sols sont liées à leur teneur en matière organique (Fig. 7). Un tel résultat n'a rien de surprenant. La quantité de matière organique d'un sol est fonction du type de pédogenèse. Les sols d'altitude sont plus riches en matière organique, en raison de la présence de roches calcaires dures dont l'altération libère de nombreux cailloux dans les sols et des pentes généralement fortes. Ces éléments grossiers qui sont présents dès la surface, libèrent une quantité importante de calcium qui a pour effet de ralentir la minéralisation de la matière organique (mélanisation). De nombreux auteurs (Staunton, 1997 ; Tamponnet *et al.*, 2002, 2008) ont rapporté ce type de relation et ont montré que la teneur en matière organique du sol conditionne la biodisponibilité des radionucléides métalliques. Il existe également une liaison statistiquement significative (test de Spearman,  $r = 0,398$ ,  $p < 10^{-5}$ ) entre l'altitude et la teneur en matière organique. Ces résultats confirment donc l'hypothèse énoncée plus haut à savoir que les sols d'altitude présentent des activités plus élevées en raison de leur plus grande richesse en matière organique.



**Figure 8** – Relation entre l'activité surfacique en césium-137 mesurée dans 275 sites du bassin versant du Doubs en amont du lac Saint-Point et l'occupation des sols. Les « boîtes à moustaches » représentent respectivement du bas vers le haut le premier décile, le premier quartile, la médiane, le troisième quartile et le neuvième décile. Les lettres a, b et c indiquent que les différences sont significatives avec un risque d'erreur  $p < 0,05$  dans un test de Mann-Whitney effectué sur les moyennes.

*Relationship between land cover and caesium-137 surface activities in the Doubs river watershed upstream of the Saint-Point (n = 275). From the bottom to the top, whisker boxes represent first decile, first quartile, median, third quartile, and ninth decile. a, b, c indicate that statistical differences occur with a p-value < 0.05 in a Mann-Whitney test on the average values.*

### 3.4. Liaison entre l'activité surfacique et l'occupation du sol

La figure 8 récapitule les variations d'activité surfacique en fonction des quatre types d'occupation du sol qui ont été distingués dans le bassin versant. Les sols agricoles et les pré-bois présentent les activités les plus faibles et les différences observées entre ces deux types ne sont pas statistiquement significatives (test de Mann-Whitney). De la même manière, les moyennes des activités mesurées dans les sols des pré-bois et dans les sols forestiers ne sont pas différentes. Les sols



forestiers présentent cependant des activités significativement supérieures à celles des sols agricoles. Les zones les plus contaminées sont les zones humides qui présentent en moyenne des activités nettement supérieures aux trois autres types d'occupation du sol. En résumé, l'on constate que dans une région de moyenne montagne dont on sait qu'elle a été impactée à la fois par les retombées des essais nucléaires et par celles de l'accident de Tchernobyl (Badot *et al.*, 1984 ; Le Roux *et al.*, 2008), les activités mesurées dans les sols varient significativement avec le type d'occupation du sol. Si l'on excepte les pré-bois ( $n = 10$ ) et les zones humides ( $n = 4$ ) qui sont peu représentés, le principal résultat réside dans le fait que les activités sont supérieures dans les sols forestiers par comparaison aux sols agricoles. Comme l'observation visuelle du bassin versant le suggère, il existe un lien significatif entre le mode d'occupation du sol et l'altitude. Un test de Mann-Whitney montre que l'altitude moyenne des sites forestiers est significativement ( $p < 0,05$ ) supérieure à celle des sites agricoles, alors qu'il n'existe pas de différence entre ces deux types de sites et les pré-bois, les zones humides étant quant à elles situées aux altitudes faibles. Ce résultat est en pleine cohérence avec ceux énoncés précédemment. L'ensemble des données recueillies montre donc que les activités les plus élevées sont observées en altitude dans les sols forestiers riches en matière organique. L'existence de ce lien entre le mode d'occupation des sols et l'activité surfacique en  $^{137}\text{Cs}$  est à rapprocher des résultats obtenus par Le Roux *et al.* [24] qui indiquent que dans la Montagne Noire et le Jura, les dépôts de  $^{210}\text{Pb}$  sont supérieurs dans les sols forestiers par rapport aux sols prairiaux. Dans le bassin versant du haut Doubs, il n'est cependant pas possible de déterminer si l'activité plus élevée des sols forestiers par rapport aux sols agricoles est consécutive aux processus de dépôt, au devenir des contaminations post-dépôt et aux caractéristiques intrinsèques de ces sols (*i.e.* leur teneur en matière organique).

### ***3.5. Étude des relations entre l'activité surfacique, la position topographique et les types de sols***

Il n'a pas été possible de mettre en évidence de relation statistiquement significative entre l'activité surfacique moyenne et la position topographique des sites de prélèvements (haut de pente, mi-pente, bas de pente). De la même manière aucune différence statistique n'a pu être établie entre les activités moyennes des différents types de sols présents sur la zone.

## **4. Conclusions**

Les sols du bassin versant du Haut-Doubs présentent des activités surfaciques en  $^{137}\text{Cs}$  comprises entre 1 000 et 12 000  $\text{Bq.m}^{-2}$  avec des valeurs moyennes de l'ordre de 3 600  $\text{Bq.m}^{-2}$ . La variabilité spatiale est élevée alors même que l'on peut

considérer que les retombées de l'accident de Tchernobyl dans ce secteur ont été homogènes. L'activité surfacique montre des liens statistiquement significatifs avec l'altitude, la teneur en matière organique et le mode d'occupation des sols, alors que les autres paramètres étudiés, type de sol et position topographique, ne constituent pas des sources significatives de variations.

Le bassin versant du Haut-Doubs n'est pas une région de grande culture et la mise en valeur agricole s'y effectue essentiellement sous forme de prairies permanentes destinées à l'élevage laitier, ce qui signifie que les sols agricoles sont soumis à peu d'interventions et ne font pas nécessairement l'objet de remaniements importants. La plus faible activité moyenne observée dans les sols agricoles du bassin n'est donc pas liée au travail de la terre.

Nos résultats montrent qu'il est important de prendre en compte les différents modes d'occupation des sols lorsqu'il s'agit d'évaluer l'ampleur d'une contamination dans une région donnée. Récemment, il a été suggéré que le lait pouvait constituer dans les régions de montagne un bien meilleur indicateur que le sol ou les prélèvements végétaux pour rendre compte de la contamination à une échelle régionale (Pourcelot *et al.*, 2007). En effet, les activités mesurées dans le lait sont homogénéisées par le fait que les animaux d'élevage exploitent de larges surfaces et qu'il y a intégration dans cette matrice des variations spatiales existant dans les zones pâturées. Les résultats du présent travail confirment le bien-fondé de cette proposition et montre qu'il convient de la compléter dans les régions montagneuses par l'échantillonnage de sites forestiers. Ceux-ci peuvent présenter des activités significativement différentes de celles des pâturages, étant entendu que bien d'autres facteurs tels que les caractéristiques locales (Pourcelot *et al.*, 2008) ou la mise en valeur des productions agricoles (Besson *et al.*, 2009) peuvent aussi influencer fortement sur le devenir des contaminants radioactifs et moduler leur transfert dans la chaîne alimentaire.

## RÉFÉRENCES

- Badot P.M., Lucot E., Lamarque S. (2004) *Pollution de l'air et retombées atmosphériques en Franche-Comté. Contaminations des sols et de la végétation par le césium 137*. Observatoire régional de l'Environnement, pp. 1-30, Conseil Régional de Franche-Comté, Besançon.
- Baize D. (1988) *Guide des analyses courantes en pédologie*, pp. 1-170, INRA, Paris.
- Besson B., Pourcelot L., Lucot E., Badot P.M. (2009) Variations in the transfer of  $^{137}\text{Cs}$  and  $^{90}\text{Sr}$  from milk to cheese, *J. Dairy Sci.* **92**, 5363-5370.
- Briot M. (2009) *Analyse des critères de définition de la zone d'appellation d'origine contrôlée des résineux du massif du Jura par les facteurs écologiques et application à sa délimitation*. Thèse de doctorat, Université de Franche-Comté, Besançon, pp. 1-198.
- Calmon P., Thiry Y., Zibold G., Rantavaara A., Fesenko S. (2009) Transfer parameter values in temperate forest ecosystems: a review, *J. Environ. Radioact.* **100**, 757-766.

- Charles L. (1991) *Zonage agro-pédologique régional de Franche-Comté. Mise au point méthodologique de cartogénèse à petite échelle. Contrôle statistique des unités cartographiées*. Thèse de doctorat, Université de Franche-Comté, Besançon. pp. 1-171.
- Chesnokov A.V., Govorun A.P., Linnik V.G., Shcherbak S.B. (2000)  $^{137}\text{Cs}$  contamination of the Techa river flood plain near the village of Muslumovo, *J. Environ. Radioact.* **50**, 179-191.
- Fesenko S.V., Soukhova N.V., Sanzharova N.I., Avila R., Spiridonov S.I., Klein D., Lucot E., Badot P.M. (2001a) Identification of processes governing accumulation of  $^{137}\text{Cs}$  by forest trees in the long term after the accident at the Tchernobyl NPP, *Radiat. Environ. Biophys.* **40**, 105-113.
- Fesenko S.V., Soukhova N.V., Sanzharova N.I., Avila R., Spiridonov S.I., Klein D., Badot P.M. (2001b)  $^{137}\text{Cs}$  availability for soil to understory transfer in different types of forest ecosystems, *Sci. Total Environ.* **269**, 87-103.
- Fowler S.W., Buat-Menard P., Yokoyama Y., Ballestra S., Holm E., Nguyen H.V. (1987) Rapid removal of Tchernobyl fallout from Mediterranean surface waters by biological activities, *Nature* **329**, 56-57.
- Gudiksen P.H., Harvey T.F., Lange R. (1989) Tchernobyl source term, atmospheric dispersion and dose estimation, *Health Phys.* **57**, 687-705.
- IRSN (2004) *Tchernobyl, 17 ans après*, pp. 1-102. IRSN, Clamart.
- Lamarque S. (2004) *Étude de la distribution spatiale du radiocésium ( $^{137}\text{Cs}$ ), de son transfert sol-plante et de son devenir dans les écosystèmes forestiers faiblement contaminés*. Thèse de doctorat, Université de Franche-Comté, Besançon, pp. 1-224.
- Lamarque S., Lucot E., Badot P.M. (2005) Soil-plant transfer of radiocaesium in weakly contaminated forest ecosystems, *Radioprotection* **40**, Suppl. 1, S407-S412.
- Le Roux, G., Pourcelot, L., Masson, O., Duffa, C., Vray, F., Renaud, P. (2008) Aerosol deposition and origin in French mountains estimated with soil inventories of  $^{210}\text{Pb}$  and artificial radionuclides, *Atmos. Environ.* **42**, 1517-1524.
- Lettner H., Bossew P., Hubmer A.K. (1999) Spatial variability of fallout caesium-137 in Austrian alpine regions, *J. Environ. Radioact.* **47**, 71-82.
- Lettner H., Griesebner A., Peer T., Hubmer A.K., Pintaric M. (2006) Altitude dependent  $^{137}\text{Cs}$  concentrations in different plant species in alpine agricultural areas, *J. Environ. Radioact.* **86**, 12-30.
- Maubert H., Renaud P., Beaugelin K. (1998) Contamination: example of the radioecological consequences of the Tchernobyl accident in France. Workshop Comparative Evaluation of Environmental Toxicants, Chiban, Japan, January 28–30.
- OCDE (2002) *Tchernobyl. Évaluation de l'impact radiologique et sanitaire. Mise à jour de Tchernobyl, 10 ans déjà*, pp. 1-120. Agence pour l'Énergie Nucléaire, OCDE, Paris.
- Pourcelot L., Renaud P., Le Roux G. (2008) Variability of atmospheric depositions on mountainous area, *Geochim. Cosmochim. Acta* **72**, Suppl. 1, A758-A758.
- Pourcelot L., Steinmann P., Froidevaux P. (2007) Lower variability of radionuclide activities in upland dairy products compared to soils and vegetation: Implication for environmental survey, *Chemosphere* **66**, 1571-1579.
- Renaud P., Métivier J.M., Castelier E., Pourcelot L., Louvat D. (2004) Cartographie des dépôts de  $^{137}\text{Cs}$  en mai 1986 sur l'ensemble du territoire français métropolitain, *Radioprotection* **39**, 23-28.
- Renaud P., Pourcelot L., Métivier J.M., Morello M. (2003) Mapping of  $^{137}\text{Cs}$  deposition over eastern France 16 years after the Tchernobyl accident, *Sci. Total Environ.* **309**, 257-264.
- Staunton S. (1997) On the mechanisms which determine the fate of radiocaesium in soil, *Analisis Magazine* **25**, 24-28.

- Tamponnet C., Martin-Garin A., Gonze M.A., Parekh N., Vallejo R., Sauras T., Casadesus J., Plassard C., Staunton S., Norden M., Avila R., Shaw G. (2008) An overview of BORIS: Bioavailability of radionuclides in soils, *J. Environ. Radioact.* **99**, 820-830.
- Tamponnet C., Martin-Garin A., Gonze M.A., Sanchez A., Parekh N., Vallejo R., Sauras T., Casadesus J., Plassard C., Staunton S., Moberg L., Avila R., Shaw G., Wells C. (2002) The European programme BORIS: involvement of biological components in the transfer of radioactive nuclides to plants, *Radioprotection* **37**, 331-336.
- Walter C. (1990) *Estimation de propriétés du sol et quantification de leur variabilité à moyenne échelle*. Thèse de doctorat, Université Paris VI, Paris, pp. 1-172.