

# An operational method to easily determine the available fraction of a contaminant in soil and associated soil-solution distribution coefficient

*Frederic Coppin<sup>1</sup>\*, Laureline Fevrier<sup>1</sup> and Arnaud Martin-Garin<sup>1</sup>*

<sup>1</sup>IRSN/PSE-ENV/SRTE/LR2T, CE Cadarache, BP3, 13115 Saint Paul lez Durance France

Table S1 : Results obtained for all simulated initial conditions tested (the conditions tested are synthesized Table\_1)

Refer to the excel file

Table S2 : Additional information concerning the experiments performed to validate the approach

Exp.	Initial element activity <sup>+</sup> (Bq.g <sup>-1</sup> ) concentration <sup>++</sup> (μg.g <sup>-1</sup> )	Analytical technique used for elements measurements in solution	Analytical technique used for elements measurements in solid
(1a)	<sup>75</sup> Se : 10 800 <sup>+</sup>	*Liquid scintillation	**Gamma spectrometry (UP-Ge, Canberra-Eurisys)
(1b)	<sup>75</sup> Se : 10 800 <sup>+</sup>		
(2a)	<sup>137</sup> Cs : 6 203 <sup>+</sup>	**Gamma spectrometry	**Gamma spectrometry
(2b)	<sup>137</sup> Cs : 6 168 <sup>+</sup>	**Gamma spectrometry	**Gamma spectrometry
(3)	<sup>137</sup> Cs : 12 <sup>+</sup> <sup>133</sup> Cs : 428 <sup>++</sup>	**Gamma spectrometry ***ICP-MS	**Gamma spectrometry ***ICP-MS (after microwave digestion)
(4)	<sup>137</sup> Cs : 1.7 <sup>+</sup> <sup>133</sup> Cs : 220 <sup>++</sup>	**Gamma spectrometry ***ICP-MS	**Gamma spectrometry ***ICP-MS (after microwave digestion)
(5)	<sup>137</sup> Cs : 12 <sup>+</sup> <sup>133</sup> Cs : 428 <sup>++</sup>	**Gamma spectrometry ***ICP-MS	**Gamma spectrometry ***ICP-MS (after microwave digestion)
(6)	<sup>137</sup> Cs : 1.7 <sup>+</sup> <sup>133</sup> Cs : 220 <sup>++</sup>	**Gamma spectrometry ***ICP-MS	**Gamma spectrometry ***ICP-MS (after microwave digestion)

\*Wallac Quantulus ; \*\*UP-Ge,Canberra-Eurisys ; \*\*\* Agilent 7800

Table S3 : Calculation of available fraction for Elias et al. (2003)<sup>Error! Reference source not found.</sup> work

	U_initial_total_concentration ( $\mu\text{g/g}$ )*	Eq(6) slope $\pm$ S.E.	Eq(6) y-intercept $\pm$ S.E.	$k'_D$ (L/Kg)	available U (%)**	available U ( $\mu\text{g/g}$ )
fine sand (A)	101,45	87 $\pm$ 2	5,4 $\pm$ 3,6	5,4 $\pm$ 3,6	15 $\pm$ 2	15 $\pm$ 1
Coarse sand (B)	81,25	68 $\pm$ 2	4,9 $\pm$ 2,9	4,9 $\pm$ 2,9	16 $\pm$ 2	13 $\pm$ 1
Mancos Shale (C)	124,85	100 $\pm$ 1	6,1 $\pm$ 1,5	6,1 $\pm$ 1,5	20 $\pm$ 1	26 $\pm$ 1
Clay (D)	247,65	200 $\pm$ 1	3,4 $\pm$ 1,4	3,4 $\pm$ 1,4	19 $\pm$ 1	47 $\pm$ 1

\* calculated to 5 times the total U extracted after the 3 extractions

\*\*( $\text{U}_{\text{initial}} - \text{slope}$ )/ $\text{U}_{\text{initial}}$ \*100

Table S4 : Estimation of available fraction (%) and its associated  $k'd$  using equation (6) from Nagao *et al.* (2020) data.

Estimation using equation (6)				
	full data set	4 first extractions		
	$k'd$ ( $L\ kg^{-1}$ )	Available fraction (%)	$k'd$ ( $L\ kg^{-1}$ )	Available fraction (%)
<b>St 1 75-80cm</b>	$38 \pm 3$	$61 \pm 1$	$29 \pm 2$	$56 \pm 2$
<b>St 4 35-40 cm</b>	$77 \pm 10$	$25 \pm 1$	$47 \pm 7$	$18 \pm 2$
<b>St 5 0-5 cm</b>	$51 \pm 3$	$41 \pm 1$	$34 \pm 6$	$34 \pm 3$
<b>St 5 100-105 cm</b>	$43 \pm 2$	$56 \pm 0$	$31 \pm 1$	$49 \pm 1$

Figure S1:  $^{137}\text{Cs}$  extraction with seawater for the four sand cores :  $R_d$  vs  $1/C_{\text{solution}}$  (data from Nagao *et al.* (2020))

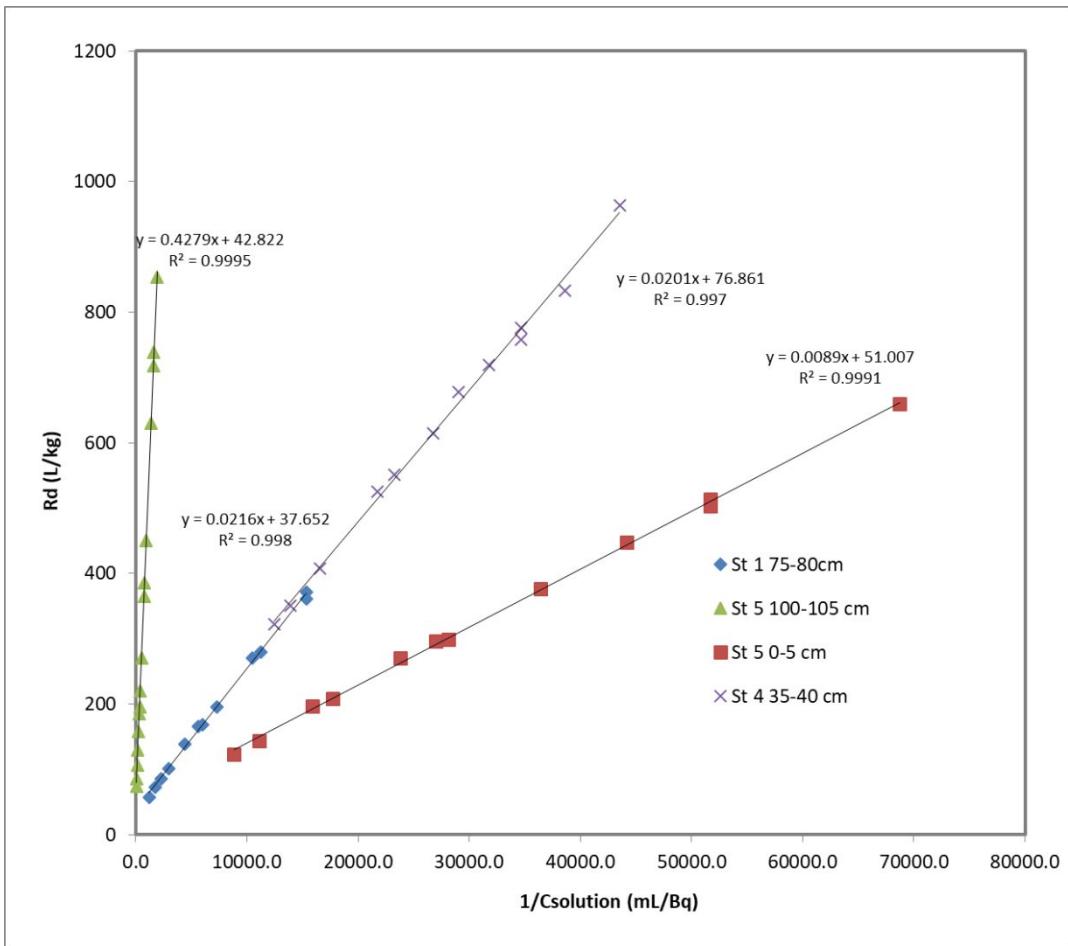


Figure S2: Estimation of the evolution of  $^{137}\text{Cs}$  concentration in interstitial water for the St\_4 core (35-40 cm) (a) and remaining in sediment (b). Considered parameters : water content of sediment 22.7%, renew of solution 2 days (data from Nagao *et al.* (2020)).

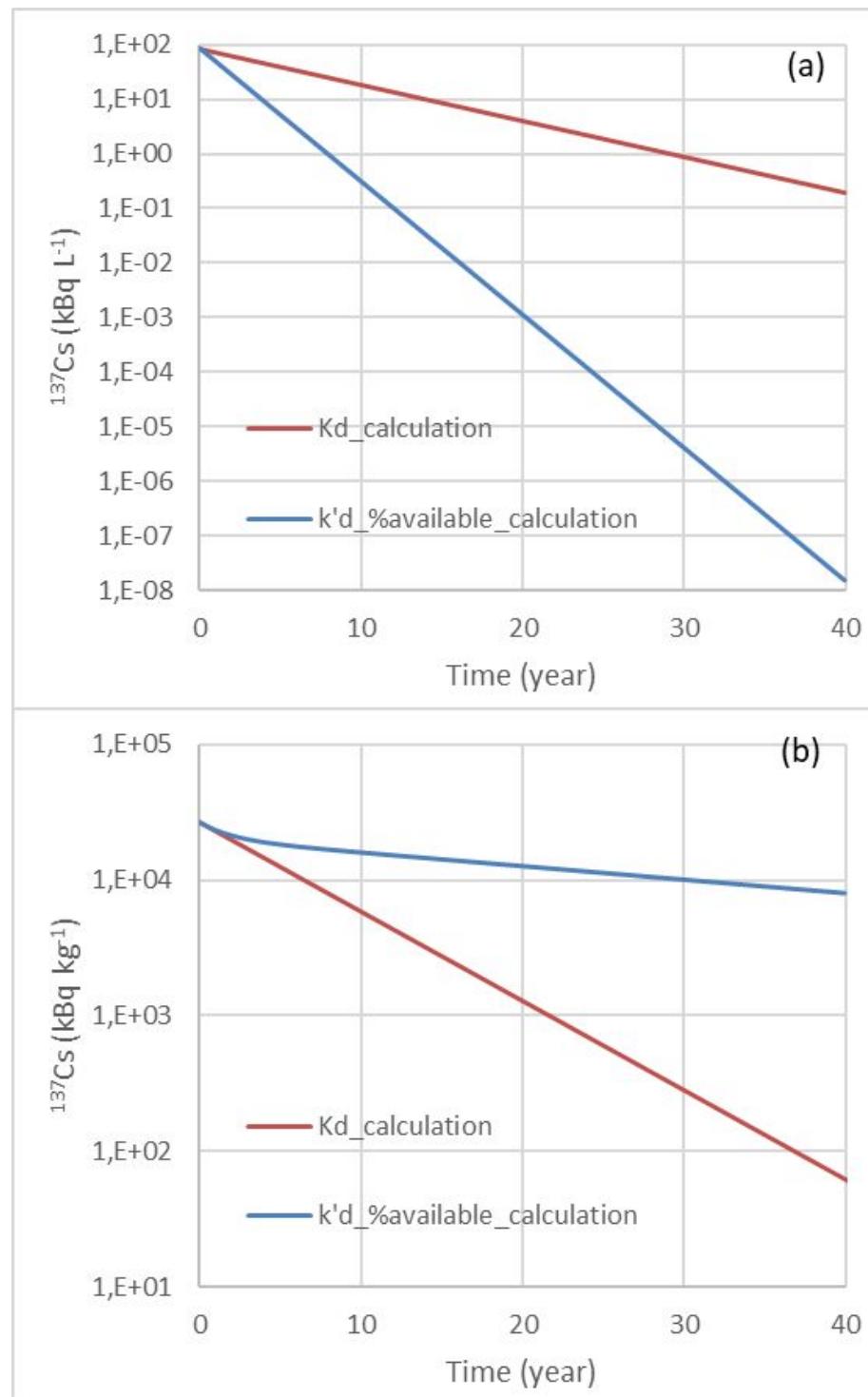


Table S5: Estimation of available fraction (%) and its associated  $k'_d$  using equation (4) from Rigol *et al.* (1999) data.

Estimation using equation (4)							
		CH <sub>3</sub> COONH <sub>4</sub> (1M)			CaCl <sub>2</sub> (1M)		
Available fraction (%)		Rigol et al. (1999)	full data set	4 first extractions	Rigol et al. (1999)	full data set	full data set excepted 4 first extractions
H20-M	<b>HAT</b>	<b>100</b>	100 ± 0	100 ± 0	<b>100</b>	100,2 ± 0	100,2 ± 0
	<b>KOM</b>	<b>77,7</b>	77,1 ± 0,2	76,7 ± 0,2	<b>85,1</b>	82,6 ± 1,2	88 ± 0,3
	<b>BRA</b>	<b>56,8</b>	56,2 ± 0,2	55,8 ± 0,2	<b>65,9</b>	74,1 ± 1,4	79 ± 0,9
	<b>BIR</b>	<b>63,4</b>	62,9 ± 0,2	62,4 ± 0,2	<b>66,3</b>	70,1 ± 1,7	79,6 ± 1,2
PCaK-M	<b>HAT</b>	<b>98,8</b>	98,8 ± 0,1	99,1 ± 0,4	<b>98,8</b>	98,2 ± 0,1	98,2 ± 0,1
	<b>KOM</b>	<b>58,1</b>	56,6 ± 0,7	53,9 ± 0,7	<b>73,6</b>	77,4 ± 1,2	83 ± 0,4
	<b>BRA</b>	<b>53,5</b>	52,2 ± 0,6	50 ± 0,7	<b>69,6</b>	86,8 ± 3,2	88,9 ± 3,6
	<b>BIR</b>	<b>53,3</b>	53,2 ± 0,1	53 ± 0,2	<b>57,5</b>	69,2 ± 1,9	77 ± 1,6
PCaK-D	<b>HAT</b>	<b>97,4</b>	98,7 ± 0	98,9 ± 0,2	<b>98,7</b>	97,3 ± 0,1	97,4 ± 0
	<b>KOM</b>	<b>61,5</b>	60,5 ± 0,3	59,4 ± 0,4	<b>73,9</b>	65,2 ± 1,8	75 ± 0,3
	<b>BRA</b>	<b>33,9</b>	33,3 ± 0,2	32,5 ± 0,3	<b>53</b>	49,2 ± 3,2	64,1 ± 3,3
	<b>BIR</b>	<b>15,1</b>	14,8 ± 0,1	14,5 ± 0,1	<b>39,9</b>	48,7 ± 3,8	48,6 ± 3,2
k'd (L/kg)							
H20-M	<b>HAT</b>		2,4 ± 0	2,4 ± 0		2,4 ± 0	15,1 ± 7,3
	<b>KOM</b>		3,3 ± 0,3	3 ± 0,2		159,6 ± 13,1	388,7 ± 9,1
	<b>BRA</b>		3,5 ± 0,4	3,1 ± 0,3		618,7 ± 31,5	810,8 ± 27,2
	<b>BIR</b>		3,2 ± 0,4	2,8 ± 0,2		397,1 ± 34,3	769,4 ± 39,2
PCaK-M	<b>HAT</b>		4,4 ± 0,1	4,6 ± 0,3		4,5 ± 0,1	-1,9 ± 40
	<b>KOM</b>		6,2 ± 1,6	3,7 ± 1		280,1 ± 14,9	460,9 ± 9,3
	<b>BRA</b>		5,6 ± 1,4	3,4 ± 1		921 ± 65,2	975,1 ± 83,2
	<b>BIR</b>		3 ± 0,1	2,8 ± 0,3		702 ± 51,2	1009,5 ± 52,8
PCaK-D	<b>HAT</b>		4,8 ± 0,1	4,9 ± 0,1		3,5 ± 0,1	8,5 ± 3,3
	<b>KOM</b>		3,4 ± 0,7	2,4 ± 0,5		89,2 ± 15,2	385,5 ± 8,8
	<b>BRA</b>		4 ± 0,8	2,9 ± 0,6		437,3 ± 76,6	893,2 ± 100
	<b>BIR</b>		4 ± 0,8	2,9 ± 0,3		879,7 ± 126	820,5 ± 110,3

Table S6: Estimation of available fraction (%) and its associated  $k'_d$  using equation (6) from Rigol *et al.* (1999) data.

Estimation using equation (6)								
		CH <sub>3</sub> COONH <sub>4</sub> (1M)			CaCl <sub>2</sub> (1M)			
Available fraction (%)		Rigol et al. (1999)	full data set	4 first extractions	Rigol et al. (1999)	full data set	full data set executed 4 first extractions	4 first extractions
H20-M	<b>HAT</b>	<b>100</b>	100 ± 0	100 ± 0	<b>100</b>	100,2 ± 0	100,2 ± 0	100,2 ± 0
	<b>KOM</b>	<b>77,7</b>	77,6 ± 0,1	76,9 ± 0	<b>85,1</b>	90 ± 0,1	90,2 ± 0,1	47 ± 2,7
	<b>BRA</b>	<b>56,8</b>	56,6 ± 0,2	56 ± 0	<b>65,9</b>	77 ± 0,3	77,1 ± 0,3	24 ± 1
	<b>BIR</b>	<b>63,4</b>	63,3 ± 0,2	62,6 ± 0	<b>66,3</b>	81 ± 0,9	81,6 ± 0,9	25,5 ± 2,8
PCaK-M	<b>HAT</b>	<b>98,8</b>	98,6 ± 0	98,8 ± 0,1	<b>98,8</b>	98,1 ± 0	98,1 ± 0	98,1 ± 0
	<b>KOM</b>	<b>58,1</b>	58,1 ± 0,1	54,6 ± 0,5	<b>73,6</b>	83,2 ± 0,3	83,8 ± 0,2	48 ± 13,3
	<b>BRA</b>	<b>53,5</b>	53,5 ± 0,1	50,7 ± 0,4	<b>69,6</b>	83,7 ± 1,4	83,4 ± 1,5	19,3 ± 17,6
	<b>BIR</b>	<b>53,3</b>	53,3 ± 0	53,2 ± 0,1	<b>57,5</b>	76,1 ± 0,9	76,4 ± 0,9	17,4 ± 2,2
PCaK-D	<b>HAT</b>	<b>97,4</b>	98,7 ± 0	98,7 ± 0,1	<b>98,7</b>	97,4 ± 0	97,4 ± 0	97,3 ± 0
	<b>KOM</b>	<b>61,5</b>	61,3 ± 0,2	59,8 ± 0,2	<b>73,9</b>	75,2 ± 0,3	75,5 ± 0,2	38,5 ± 2,8
	<b>BRA</b>	<b>33,9</b>	33,8 ± 0,1	32,8 ± 0,2	<b>53</b>	65,1 ± 2,2	65,6 ± 2,1	12,8 ± 1,8
	<b>BIR</b>	<b>15,1</b>	15 ± 0,1	14,5 ± 0	<b>39,9</b>	51,4 ± 2,5	49,9 ± 2,1	6,2 ± 3,8
k'd (L/kg)								
H20-M	<b>HAT</b>		7,3 ± 4	2,3 ± 0,1		10,7 ± 7,1	30 ± 19,4	30 ± 19,4
	<b>KOM</b>		30,3 ± 21	4,9 ± 1,1		524,7 ± 25,9	564,8 ± 24	49,8 ± 14,6
	<b>BRA</b>		28,2 ± 26,8	5,7 ± 1,4		682,8 ± 30,9	686,3 ± 32,7	112,8 ± 11,1
	<b>BIR</b>		29,1 ± 25,6	5,1 ± 1,4		815,7 ± 64,8	873,5 ± 69,4	65,4 ± 25,1
PCaK-M	<b>HAT</b>		-10,6 ± 12,6	3,9 ± 0,7		-10,1 ± 12,7	-42,4 ± 28,1	3,7 ± 1,1
	<b>KOM</b>		34,1 ± 12,1	7,5 ± 5,2		448,3 ± 19,5	493,6 ± 16,1	119,2 ± 67,5
	<b>BRA</b>		34,4 ± 13,3	7,8 ± 6,1		835,7 ± 50,5	818,5 ± 56,6	128,5 ± 213,9
	<b>BIR</b>		2,3 ± 1,2	3,9 ± 1,3		954,4 ± 55,9	979,8 ± 59,8	85,3 ± 29,9
PCaK-D	<b>HAT</b>		7,5 ± 4,4	4,5 ± 0,4		4,1 ± 1,7	2 ± 3,7	4 ± 0,4
	<b>KOM</b>		29 ± 19,5	4,6 ± 2,6		385,1 ± 22,1	415,9 ± 19,6	30,7 ± 23
	<b>BRA</b>		39,6 ± 22,9	8,1 ± 7,7		936,1 ± 88,7	946,4 ± 85,4	57,1 ± 36,9
	<b>BIR</b>		31,1 ± 24,8	4,1 ± 1,3		980,5 ± 109,9	871,2 ± 94,7	64,8 ± 111

Figure S3:  $^{134}\text{Cs}$  extraction with  $\text{CaCl}_2$  (1M) for the KOM soil :  $C_{\text{solid}}$  vs  $C_{\text{solution}}$  (a) and  $R_d$  vs  $1/C_{\text{solution}}$  (b) (data from Rigol *et al.* (1999)),

