

## Note d'information

### Rejets de césium radioactif sous forme de microbilles de silice lors de l'accident de Fukushima-Daiichi

#### Introduction

L'accident qui a eu lieu au Japon en mars 2011 a conduit à la fusion du cœur de trois réacteurs de la centrale nucléaire Fukushima-Daiichi et à des rejets importants dans l'environnement, notamment de césium radioactif.

Des travaux de scientifiques japonais<sup>(1)</sup> présentés à la conférence de géochimie Goldschmidt organisée du 26 juin au 1<sup>er</sup> juillet 2016 à Yokohama au Japon ont fait état de rejets de césium radioactif sous forme de microbilles de silice, confirmant une observation faite dès 2013<sup>(2)</sup>. A la suite de cette conférence, plusieurs articles ont été publiés dans la presse (en particulier, en France, dans le Figaro en date du 28 juin 2016 et dans le Monde en date du 6 juillet 2016), indiquant que la majeure partie (89 %) du césium radioactif rejeté dans l'atmosphère l'avait été sous forme de microbilles de silice plus irradiantes que les autres aérosols marquées par les isotopes radioactifs du césium.

*La présente note d'information examine les origines possibles ainsi que les contributions aux rejets et à l'impact de ces microbilles contenant du césium radioactif.*

#### ***Les microbilles de silice contenant du césium radioactif résultent-elles d'une phase particulière de rejet atmosphérique ?***

L'accident de Fukushima-Daiichi a conduit à une succession d'épisodes de rejet de produits radioactifs dans l'atmosphère, dont les deux plus importants se sont produits du 14 au 16 mars 2011 et du 19 au 26 mars 2011. Le premier est lié aux éventages des enceintes de confinement et aux explosions qui ont affecté les bâtiments des réacteurs 1 (le 13 mars 2011) et 3 (le 14 mars 2011).

**C'est à la suite du premier épisode de rejet qu'ont été collectées et observées des microbilles de silice contenant du césium radioactif, comme en témoignent les travaux publiés dès 2013. Ceux-ci indiquent en effet la présence de telles microbilles sur un prélèvement atmosphérique réalisé à Tsukuba à 170 km au sud-ouest de la centrale.**

Les prélèvements atmosphériques réalisés dans l'environnement lors du second épisode majeur de rejet et lors des rejets suivants (jusqu'à la fin du mois de mai 2011) montrent que le césium radioactif n'a plus été collecté sous forme de microbilles de silice, mais était associé à des aérosols naturellement présents (sulfates, poussières minérales, pollens...).

---

<sup>1</sup> Utsunomiya S. (2016) Challenging radionuclides in environment at the atomic scale: issues in waste disposal and Fukushima - [Goldschmidt Conference Abstract n° 3238](#). // Imoto J., Furuki G., Ochiai A., Yamasaki S., Nanba K., Ohnuki T., Grambow B., Ewing R.C., Utsunomiya S. (2016) Cesium-rich micro-particles unveil the explosive events in the Fukushima Daiichi nuclear Power plant - [Goldschmidt Conference Abstract n° 1253](#), 26 juin-1<sup>er</sup> juillet 2016. Yokohama, Japon.

<sup>2</sup> Adachi, K., Kajino, M., Zaizen Y., Igarashi Y. (2013) Emission of spherical cesium-bearing particles from an early stage of the Fukushima nuclear accident. [Scientific Reports](#), 2013, 3:2554. DOI:10.1038/srep02554.

Il convient toutefois de noter que les données disponibles à ce jour sont limitées ; aussi, il convient de rester prudent sur leur interprétation et les conclusions qu'il peut en être tiré.

### *Quelle est la nature des microbilles contenant du césium ?*

Les microbilles prélevées dans l'atmosphère lors du premier rejet ont des diamètres compris entre 0,5 et 2,6  $\mu\text{m}$  (jusqu'à 6,4  $\mu\text{m}$  sur un sol à 20 km au nord-ouest de la centrale<sup>(3)</sup>), ont en général une forme parfaitement sphérique<sup>(4)</sup> et le césium qu'elles contiennent est peu soluble<sup>(5)</sup>.

Les compositions massiques les plus détaillées<sup>(6)</sup> indiquées pour ces microbilles sont les suivantes : 69 à 73 % de  $\text{SiO}_2$ , 11 % de  $\text{ZnO}$ , 7 à 8 % de  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ , 3,3 à 3,4 % de  $\text{Cs}_2\text{O}$ , entre 1 à 2 % de  $\text{K}_2\text{O}$ ,  $\text{Rb}_2\text{O}$ ,  $\text{SnO}_2$  et de faibles quantités de chlore<sup>(7)</sup>. Les analyses détaillées montrent aussi des distributions relativement homogènes en volume pour ces différents éléments. Il a été mesuré, selon leur taille, de 0,5 à 134 Bq de  $^{137}\text{Cs}$  <sup>(8)</sup>; la valeur maximale a été obtenue pour une microbille de diamètre supérieur à 5  $\mu\text{m}$ .

Les prélèvements atmosphériques réalisés lors des épisodes ultérieurs de rejet (jusqu'à la fin du mois de mai 2011) montrent que le césium radioactif a été transporté dans l'environnement sous forme de particules de compositions différentes et de plus petites tailles (diamètre moyen de l'ordre de 0,1  $\mu\text{m}$  à 1 km et 11 km de l'installation, puis de l'ordre de 0,5  $\mu\text{m}$  à plus longue distance (entre une centaine de km et 170 km). Le césium radioactif y est associé à des aluminosilicates (poussières minérales provenant des sols) et à des sulfates. Ces observations sont compatibles avec une agglomération des particules les plus fines contenant du césium radioactif avec les aérosols atmosphériques présents naturellement, conduisant à un accroissement de la taille des aérosols transportant le césium radioactif. Le césium contenu dans ces particules est quant à lui soluble dans l'eau.

### *Peut-on quantifier la contribution des microbilles aux rejets et aux dépôts globaux ?*

Le césium relâché dans l'atmosphère puis déposé sur les sols y est présent sous formes solubles et insolubles. Les formes solubles sont essentiellement transférées dans les couches superficielles des sols par la pluie, et adsorbées sur les minéraux argileux, alors que les formes insolubles associées aux microbilles de silice peuvent migrer différemment vers les horizons inférieurs.

---

<sup>3</sup> Satou Y., Sueki K., Sasa K., Adachi K., Igarashi Y. (2016) First successful isolation of radioactive particles from soil near the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant. *Anthropocene*, [DOI10.1016/j.ancene.2016.05.001](https://doi.org/10.1016/j.ancene.2016.05.001).

<sup>4</sup> Les plus grosses particules peuvent résulter d'une agrégation de particules de plus petite taille.

<sup>5</sup> Certains échantillons prélevés sur le terrain indiquent néanmoins une lixiviation très progressive du césium. Récemment, il a été montré que 10 % du  $^{137}\text{Cs}$  contenu dans ces particules pouvait être lixivié au bout de deux semaines dans de l'eau à 60 °C.

<sup>6</sup> Yamaguchi N., Mitome M., Akiyama-Hasegawa K., Asano M., Adachi K., Kogure T. (2016) Internal structure of cesium-bearing radioactive microparticles released from Fukushima nuclear plant. *Scientific Reports*. 6:20548. [DOI: 10.1038/srep20548](https://doi.org/10.1038/srep20548).

<sup>7</sup> Les résultats de ces analyses doivent être interprétés avec précaution car les pourcentages annoncés dépendent des hypothèses retenues quant au degré d'oxydation des oxydes, qui n'est qu'indicatif ; les hypothèses sont fondées sur l'observation que les matériaux contenus dans les microbilles sont oxydés. S'agissant des fractions des espèces majoritaires et en particulier du silicium, les valeurs annoncées sont sans doute déterminées avec une bonne précision (à quelques % près). En revanche, les pourcentages donnés pour les espèces minoritaires sont plus incertains. Par ailleurs, certains éléments difficilement mesurables, tels le bore, peuvent ne pas apparaître dans les analyses réalisées. Les verres borosilicatés contiennent en général de 70 à 80 % de silice et les microbilles pourraient aussi en être composées.

<sup>8</sup> Et à peu près autant en  $^{134}\text{Cs}$ .

Quantifier précisément la contribution relative des microbilles de silice contenant du césium aux rejets et aux dépôts globaux dans l'environnement nécessite qu'un nombre plus important d'échantillons de diverses provenances ayant reçu les dépôts fasse l'objet d'une recherche spécifique de ce type de particules.

Des tests d'extraction<sup>9</sup> du <sup>137</sup>Cs par de l'acide nitrique à chaud, réalisés sur les aérosols collectés entre le 14 et le 22 mars 2011 à Tsukuba (170 km du site accidenté), ont montré que les aérosols prélevés du 14 au 15 mars, correspondant au premier épisode de rejet, présentaient un rendement d'extraction plus faible<sup>(10)</sup> (de seulement 70 à 80 %) que dans le cas des aérosols prélevés ultérieurement (de 94 à 99,8 %). **Ces résultats suggèrent la présence de 20 à 30 % de césium radioactif sous forme de microbilles de silice pendant cet épisode de rejet, bien en dessous de la valeur de 89 % relatée récemment dans les media.** Au-delà de ce premier épisode de rejet, le césium dans les échantillons n'était plus sous forme de microbilles de silice, puisque presque intégralement soluble dans l'acide nitrique.

### ***Comment ces microbilles ont-elles pu se former ?***

Dans les réacteurs de la centrale Fukushima-Daiichi, le silicium est présent en abondance dans les matériaux utilisés pour calorifuger les cuves des réacteurs et les circuits de vapeur ainsi que dans le béton des bâtiments des réacteurs. Il entre aussi dans la composition des alliages métalliques des structures internes. De la silice a aussi pu être introduite dans les réacteurs accidentés lors de l'injection d'eau de mer (contenue dans les minéraux présents dans cette eau).

**La forme sphérique des microbilles et leur composition élémentaire relativement homogène en silicium, césium, zinc, fer et rubidium suggèrent qu'elles ont été formées à relativement haute température, à proximité du combustible nucléaire en fusion, à partir de composés volatilisés sous forme gazeuse ou liquide et de l'eau vaporisée au contact du corium (mélange de matériaux en fusion formé par la dégradation du combustible) pour le refroidir.** Ces composés réagissent entre eux, puis les composés formés se condensent et se solidifient lorsqu'ils atteignent des zones plus froides. La formation de gouttelettes liquides explique sans doute la forme sphérique des microbilles qui incluent des éléments provenant de la dégradation du combustible. Les éléments fer (Fe) et étain (Sn) peuvent provenir des matériaux de structure (Fe de l'acier et Sn des gaines de combustible) et les éléments zinc (Zn) et chlore (Cl) des eaux utilisées pour le refroidissement des cœurs dégradés<sup>(11)</sup>, le rubidium (Rb) provenant quant à lui des réactions de fission.

Il a aussi été observé qu'occasionnellement, ces microbilles pouvaient contenir des nanoparticules d'autres éléments (Ag, Te, Mo, Se)<sup>(12)</sup> issus des réactions de fission et des éléments métalliques (Cu, Zn). Toutes ces informations suggèrent que ces microbilles ont été formées et relâchées depuis les réacteurs accidentés.

---

<sup>9</sup> Igarashi Y., Kajino M., Zaizen Y., Adachi K, Mikami M. Atmospheric radioactivity over Tsukuba, Japan: a summary of three years of observations after the FDNPP accident - [Progress in Earth and Planetary Science](#) (2015) 2:44.

<sup>10</sup> Les microbilles de silice ne sont pas dissoutes par l'acide nitrique.

<sup>11</sup> Dans les réacteurs de la centrale Fukushima-Daiichi, le zinc (Zn) est un additif utilisé pour éviter la corrosion des circuits ; le chlore (Cl) a pu être ajouté lors de l'introduction d'eau de mer pour refroidir les cœurs des réacteurs.

<sup>12</sup> Le molybdène (Mo) est associé au soufre (S), l'argent (Ag) est associé au tellure (Te) ou au soufre (S) et au sélénium (Se).

### ***Leur formation est-elle associée à une phase particulière de la dégradation des réacteurs ?***

Sur la base de leur contenu élevé en silicium, il a été suggéré dans la littérature qu'elles auraient pu être formées lors de phases d'interaction entre le corium et le béton de l'enceinte de confinement, phases qui interviennent après la rupture de la cuve.

Cette possibilité ne peut pas être écartée même si d'autres composants du béton qui pourraient interagir avec le silicium ou le césium, tel que le calcium issu de la chaux du ciment, n'ont pas été retrouvés dans les microbilles. Une autre source de silice provient des matériaux de calorifugeage ou d'isolation thermique de type « laine de verre », présents dans les bâtiments. Il est également possible qu'elles aient été formées dans la cuve, avant sa rupture, lors de l'injection d'eau de mer sur le cœur dégradé et très chaud. La formation de composés de borosilicates de césium très stables avec le bore présent en quantité importante dans les cœurs dégradés de Fukushima est également une possibilité qui ne peut pas être exclue.

### ***Leur formation est-elle associée à la dégradation d'un réacteur en particulier ?***

Les rejets entre le 14 et le 16 mars 2011 ont été essentiellement attribués aux réacteurs 1 et 3. Il n'est pas possible, eu égard aux informations actuellement disponibles, d'attribuer l'origine des microbilles à l'un ou à l'autre de ces réacteurs.

### ***Un comportement spécifique est-il attendu dans l'environnement ?***

En termes de dispersion atmosphérique et de dépôt, ces microbilles se comportent peu ou prou de la même manière que les aérosols de même taille. Leur comportement dans l'environnement dépend principalement de leur caractère peu soluble dans l'eau de pluie ou dans celle des cours d'eau, du fait de la présence de silice à l'état de verre en proportion importante.

Le <sup>137</sup>Cs dans les sols est présent sous forme de cation monovalent et soluble dans l'eau. Il interagit fortement avec les aluminosilicates constituant les argiles et est donc considéré peu mobile dans la majorité des sols. A l'inverse, le <sup>137</sup>Cs contenu dans les microbilles est séquestré dans cette matrice peu soluble. Il restera associé à ces microbilles dont les propriétés de migration dans le sol vont dépendre de leur taille (selon la porosité du sol) et être différentes de celles du césium dissous.

**Le césium radioactif contenu dans ces microbilles est moins disponible pour les plantes, par transfert racinaire, que le césium radioactif soluble interagissant principalement avec les argiles des sols.** L'incorporation des microbilles après dépôt direct sur les feuilles (transfert foliaire) est par contre plausible via les stomates<sup>(13)</sup> présents sur les feuilles des végétaux, compte tenu de leur diamètre généralement supérieur à celui des microbilles, le transfert du césium radioactif dans l'ensemble du végétal (translocation) restant à évaluer en l'état actuel des connaissances.

### ***Quels effets sur les conséquences radiologiques ?***

Pour ce qui est des conséquences radiologiques, le caractère peu soluble des microbilles de silice contenant du césium radioactif peut potentiellement impacter leur devenir dans l'organisme, en particulier leur durée de séjour et leur élimination.

---

<sup>13</sup> Les stomates permettent les échanges gazeux entre la plante et l'air ambiant. Ils ont des dimensions de quelques microns à plusieurs dizaines de micromètres et leur densité peut atteindre plusieurs centaines par mm<sup>2</sup> selon l'espèce, la face de la feuille et les conditions dans lesquelles la plante s'est développée. Ils représentent au maximum 2 à 3 % de la surface foliaire (source : <http://www.didier-pol.net/4TRANSPI.html>).

Ainsi, des particules de très faible diamètre peuvent être stockées plus en profondeur dans l'arbre bronchique, prolongeant ainsi leur rétention dans l'organisme et délivrant des doses localement plus élevées que celles estimées par les modèles biocinétiques et dosimétriques recommandés. En revanche, les particules de diamètre plus important seront régurgitées par la mise en action d'un phénomène réflexe de défense (renforcé par le caractère irritant que peut avoir la silice sur les poumons) et seront alors éliminées directement dans les selles sans être transférées dans la circulation sanguine, diminuant ainsi l'impact dosimétrique de leur inhalation, car se comportant comme des particules ingérées.

**A ce stade, il est difficile et prématuré de tirer des conclusions définitives quant à l'impact dosimétrique et sanitaire lié à l'incorporation de césium pour partie contenu dans des microbilles de silice.** L'évaluation des conséquences d'une telle incorporation nécessite en effet la mise en œuvre de travaux expérimentaux et de modélisation à l'échelle micrométrique afin de déterminer précisément le devenir et l'impact radiologique de ces microbilles de silice.

## **Conclusion**

Les données disponibles à ce jour sur les microbilles de silice contenant du césium radioactif qui ont été rejetées lors de l'accident de la centrale nucléaire Fukushima-Daiichi sont peu nombreuses et il convient de rester prudent sur leur interprétation et les conclusions qu'il peut en être tiré.

A cet égard, au vu des résultats publiés dans la littérature scientifique, il apparaît que de l'ordre de 20 à 30 % du césium radioactif émis dans l'environnement lors de l'épisode de rejet du 14 au 16 mars 2011 l'auraient été sous forme de microbilles de silice formées à haute température près des matériaux en fusion. **Ceci implique que la majeure partie du césium rejeté lors de l'accident de Fukushima l'a été sous forme d'aérosols solubles.**

**Pour ce qui est de la dispersion atmosphérique et des dépôts dans l'environnement, les microbilles ont vraisemblablement eu un comportement proche des autres aérosols radioactifs de même taille.** Une fois déposées, ce sont leur caractère peu soluble et leur taille qui vont conditionner leur devenir dans l'environnement.

**Pour ce qui est des conséquences radiologiques, il est prématuré de tirer des conclusions définitives en l'absence d'informations suffisantes sur le devenir de telles microbilles dans l'organisme.** En tout état de cause, elles n'auraient concerné qu'une part réduite des rejets de l'accident au vu des données disponibles.