

*L. Pourcelot,
Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire*

Habilitation à Diriger des Recherches

Variabilité des dépôts atmosphériques et des transferts des radioéléments artificiels dans les sols

Résumé

Introduction

Mes travaux de recherche sont focalisés sur le comportement géochimique des radioéléments artificiels dans la géosphère (Thèse de Doctorat sur les réacteurs d'Oklo, analogues de stockage de déchets radioactifs, soutenue en 1997, EOST-Université Louis Pasteur), puis dans la biosphère, depuis mon embauche à l'Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire (IRSN), en 1999. J'ai mené des recherches sur les dépôts atmosphériques des contaminants radioactifs, suite à une contamination accidentelle de l'atmosphère et également dans le cas d'une contamination chronique de l'atmosphère. J'ai également traité la thématique des transferts des radioéléments artificiels dans les sols, à savoir les migrations verticales et les transferts aux plantes et à la chaîne alimentaire. Le but des recherches est de proposer des modélisations empiriques du transfert des radioéléments artificiels à l'interface atmosphère/sol, dans les sols et à l'interface sol/végétation. Je m'appuie sur des prélèvements réalisés dans les principaux compartiments de l'environnement terrestre (sols, végétaux, eaux des sols, etc...) et des mesures des radioéléments artificiels provenant de l'accident de Tchernobyl et des retombées des tirs atmosphériques d'armes nucléaires (^{137}Cs , ^{90}Sr , ^{241}Am et plutonium).

Enfin, dans le cadre des conséquences sur l'environnement des productions et des expérimentations d'armes nucléaires dans l'ex-URSS à l'époque de la Guerre Froide, je mène

des recherches dont l'objectif est la caractérisation des sources de pollutions radioactives au sein du bassin versant de l'Ob-Irtych, principalement en Sibérie et au Kazakhstan.

Synthèse des travaux de recherche

Les recherches que j'ai menées sur la variabilité des dépôts atmosphériques accidentels et chroniques s'appuient sur les inventaires des sols français en radioéléments artificiels qui proviennent de deux sources : les retombées de l'accident de Tchernobyl et les retombées globales, consécutives aux tirs atmosphériques d'armes nucléaires. Mes recherches sur la variabilité des dépôts reposent sur l'hypothèse que les inventaires des sols constituent « l'empreinte » des dépôts atmosphériques, c'est-à-dire que les sols sont des collecteurs naturels des dépôts, accumulant les polluants de différentes sources, au fil du temps. La répartition verticale des radioéléments utilisés (essentiellement ^{137}Cs , plutonium et ^{210}Pb) dans les sols, qui montre que ces sols sont peu remaniés par l'érosion ou par l'homme, valide cette hypothèse.

Ainsi, au cours de mes recherches, la variabilité spatiale des inventaires des sols en radioéléments artificiels m'a permis d'évaluer l'hétérogénéité des dépôts atmosphériques et de discuter les paramètres environnementaux prépondérants, à l'origine de la variabilité des dépôts (trajectoire des masses d'air, importance des précipitations, nature de la végétation). Les échelles d'observation sont celles de la France entière (cartographie des dépôts de ^{137}Cs provenant de Tchernobyl), de différents massifs montagneux (Jura, Puy de Dôme, Montagne-Noire, Corse, etc...), jusqu'à certaines parcelles de prairie du Mercantour, où de très fortes contaminations sont observables sur des surfaces de quelque m^2 .

J'ai montré que la variabilité des inventaires des sols dépend à la fois de la nature (pluie, neige, « précipitations occultes ») et de l'intensité des précipitations qui accompagnent le dépôt des polluants. Par exemple, les recherches menées sur les dépôts de l'accident de Tchernobyl en France ont montré que les dépôts de ^{137}Cs sont fonction de l'activité de l'air et qu'ils sont proportionnels à l'intensité des précipitations dans les jours qui suivent l'accident [A6]. Sur les massifs étudiés, les dépôts de ^{137}Cs et de plutonium (provenant des tirs atmosphériques) sont fonctions des précipitations moyennes annuelles [A13]. Cependant, on

observe, pour les précipitations supérieures à 1000 mm.an⁻¹, une accentuation des dépôts probablement liée aux dépôts occultes sur les sommets (importance des brouillards). Enfin, dans les zones d'altitude, comme le Mercantour, les dépôts neigeux et la formation des congères expliquent la concentration en « points chauds » des dépôts de radioéléments artificiels (¹³⁷Cs), mais aussi d'autres polluants atmosphériques, tels que les métaux lourds (Cr, Ni, Pb et As) [A5]. Les études des dépôts atmosphériques sur les milieux montagnards s'appuient sur l'utilisation de traceurs naturels des dépôts, tels que ²¹⁰Pb [A5, A13]. Ainsi, j'ai montré que les inventaires des sols en ²¹⁰Pb d'origine atmosphérique sont fonctions des précipitations moyennes annuelles sur les massifs étudiés [A13]. Cette observation corrobore les conclusions réalisées pour le ¹³⁷Cs et le plutonium et montre que, sur le long terme (période ²¹⁰Pb = 22,2 ans), les zones d'altitude, bien que parfois très éloignées des sources d'émission de polluants, sont néanmoins sensibles aux dépôts globaux de polluants atmosphériques. La contamination des prairies d'altitude d'Europe de l'ouest par les dépôts atmosphériques augmente effectivement en fonction de l'altitude, comme l'indiquent les activités en ⁹⁰Sr du lait qui varient en fonction de l'altitude [A7]. Ainsi, la prépondérance des dépôts atmosphériques sur les sommets explique pourquoi le lait produit dans le Mercantour figure parmi les plus contaminés du territoire (⁹⁰Sr atteint 0,65 Bq.l⁻¹).

J'ai mené également des études du comportement des transuraniens et du ⁹⁰Sr dans les sols. En effet, ces radioéléments figurent parmi les polluants radioactifs les moins étudiés, en comparaison du ¹³⁷Cs. L'essentiel des données synthétisées dans ce mémoire a été acquis dans un bassin-versant silicaté des Vosges (OHGE d'Aubure). La répartition verticale du ⁹⁰Sr, du ²³⁹⁺²⁴⁰Pu et de ²⁴¹Am, les rapports d'activité et l'évaluation des vitesses de migration ont montré que le radiostrontium est particulièrement mobile dans les sols des Vosges, sableux et très acides [A11]. Le lessivage vertical dans le sol et le transfert à la végétation (qui témoigne de forts enrichissements en radiostrontium) sont probablement à l'origine du déficit en radiostrontium dans les sols des Vosges.

Perspectives de recherche

Par la suite, j'envisage de comparer des données acquises dans les Vosges (OHGE d'Aubure) avec les données (actuellement en cours d'acquisition) des sols sur substrat carbonaté (Bassin-versant de la Venoge, Suisse), dans le but d'évaluer les migrations et le temps de résidence du radiostrontium et des actinides artificiels dans deux bassins versants qui diffèrent par leur type de substrat. Pour cela, on tiendra compte des flux des radioéléments artificiels à l'exutoire des zones d'étude et on évaluera également les transferts à la végétation. On s'appuiera également sur le comportement des traceurs radioactifs ou stables, qui présentent des comportements biogéochimiques analogues aux polluants radioactifs, tels que le Sr stable d'origine atmosphérique et les actinides. En effet, les données préalables ont montré une répartition analogue du ^{90}Sr et du Sr d'origine atmosphérique ($^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr} = 0,710$) dans les profils de sol d'Aubure [A9] et il faut maintenant expérimenter ces signatures dans les eaux des sols et du ruisseau. Dans la même optique, les déséquilibres des descendants de ^{238}U (U, Th, Ra) à l'interface sol/biosphère/hydrosphère doivent contribuer à mieux comprendre le rôle joué par la végétation, dans le contrôle des signatures géochimiques des sols et des eaux.

La thèse de B. Besson (2006-2009), qui traite de la sensibilité radioécologique des zones de prairie permanentes, constitue pour moi un défi humain, car il s'agit de codiriger un chercheur « en devenir » et de participer à sa formation scientifique. Ce travail de thèse se situe dans le prolongement des résultats qui témoignent de l'impact des dépôts atmosphériques dans les différents compartiments des zones de prairie permanentes. L'objectif de ce travail est d'évaluer, d'expliquer et de hiérarchiser les transferts des polluants radioactifs (^{90}Sr et ^{137}Cs), en fonction du type de sol, de végétation et des pratiques agricoles.

Enfin, les données acquises sur les transferts de tritium (sur les zones de tests nucléaires souterrains de Semipalatinsk, au Kazakhstan) aux interfaces géosphère/hydrosphère/atmosphère seront valorisées dans les mois à venir par une publication dans une revue internationale.

Liste des publications

Publications dans des revues nationales et internationales à Comité de Lecture

A1. POURCELOT L. et GAUTHIER-LAFAYE F. (1998) - Mineralogical, chemical and oxygen isotopic data on uraninites from Natural Fission Reactors (Gabon): effects of weathering conditions. *Comptes Rendus Académie des Sciences, Paris*, 326, p. 485-492.

A2. POURCELOT L. et GAUTHIER-LAFAYE F. (1999) - Hydrothermal and supergene clays of the Oklo Natural Reactors: conditions of radionuclides releases, migration and retention. *Chemical Geology*, 157, p. 155-174.

A3. AUBERT D., STILLE P., GAUTHIER LAFAYE F., POURCELOT L., PROBST A. et DEL NERO M. (2002) - Characterization and migration of atmospheric REE in soil profiles and surface waters. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 66, p. 3339-3350.

A4. SURMA F., GERAUD Y., POURCELOT L., GAUTHIER-LAFAYE F., CLAVAUD J-B, ZAMORA M., Marc LESPINASSE M. et CATHELINÉAU M. (2003) - microstructures d'un grès affecté par une faille normale : Anisotropie de connectivité et de perméabilité. *Bulletin Société Géologique de France*, 174, 3, p. 295-303.

A5. POURCELOT L., LOUVAT D., GAUTHIER-LAFAYE F. et STILLE P. (2003) - Formation of radioactivity enriched soils in mountain areas. *Journal of Environmental Radioactivity*, 68, p. 215-233.

A6. RENAUD Ph., POURCELOT L., MÉTIVIER J-M et MORELLO M. (2003) - ¹³⁷Cs deposits and behaviour over eastern France after the Chernobyl accident, *The Science of the Total Environment*, 309, p. 257-264.

A7. POURCELOT L., STEINMANN Ph., FROIDEVAUX P. (2007) - Lower variability of uplands dairy products compared to soils and vegetation: Implication for environmental Survey, *Chemosphere*, 66, p. 1571-1579.

A8. STILLE P., STEINMANN M., PIERRET M.-C., GAUTHIER-LAFAYE F., VIVILLE D., MATERA V., AOUAD G., AUBERT D., POURCELOT L., PROBST A. et CHABAUX F. (2006) - The impact of vegetation on REE fractionation in natural surface waters, *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 70, p. 3217-3230.

A9. POURCELOT L., STILLE P., AUBERT D., SOLOVITCH-VELLA N., GAUTHIER-LAFAYE F. Comparative study of the behaviour of radiostrontium and atmospheric common strontium in soils (Vosges mountains, France). accepté *Applied Geochemistry*.

A10. VASSAS C., POURCELOT L., VELLA C., CARPÉNA J., PUPIN J-P, BOUISSET P., GUILLOT L. (2006), Mechanisms of enrichment of natural radioactivity along the beaches of the Camargue, France. *Journal of Environmental Radioactivity*, 91, p. 146-159.

A11. SOLOVITCH-VELLA N., POURCELOT L., CHEN V.T., FROIDEVAUX P., GAUTHIER-LAFAYE F., STILLE P., AUBERT D., STEINMANN P., Comparative

migration behaviour of ^{90}Sr , $^{239+240}\text{Pu}$ and ^{241}Am in mineral and organic soils of France, accepté *Applied Geochemistry*.

A12. GAUTHIER-LAFAYE F., **POURCELOT L.**, EIKENBERG J; STILLE P., RENAUD Ph., RHIKVANOV L.P., Contaminations from the releases of Tomsk-Seversk nuclear facility accepté à *Journal of Environmental Radioactivity*.

A13. LE ROUX G., **POURCELOT L.**, MASSON O., DUFFA C., VRAY F., RENAUD P., Use of inventories of natural and artificial radionuclides in soils to estimate total aerosols deposition and origin in French mountains, accepté à *Atmospheric Environment*.

Publications dans d'autres revues de grande diffusion

B1. **POURCELOT L.**, DUBOIS C., CHAMBAUDET A. et JAFFIOL F. (1994) - Caractérisation quantitative du grainage de pièces en matières plastiques. *Surface*, 248, p. 26-31.

B2. MÉTIVIER J-M et **POURCELOT L.** (2002) - Modélisation spatiale des activités surfaciques de ^{137}Cs d'une zone de montagne. *Géomatique*, 18, p. 26-30.

B3. **POURCELOT L.**, RENAUD Ph., LOUVAT D., GURRIARAN R. et RICHON P. (2003) - Influence des points de concentration en césium-137 sur la contamination d'une chaîne alimentaire de type alpin et doses associées. *Environnement Risques et Santé*, 2, p. 112-120.

B4. RENAUD Ph., MÉTIVIER J-M, CASTELIER E., **POURCELOT L.** et LOUVAT D. (2004) - Cartographie des dépôts de ^{137}Cs en mai 1986 sur l'ensemble du territoire français métropolitain. *Radioprotection*, 39, p. 23-38.