

**Contamination de la chaîne alimentaire
par les produits de fission émis lors
des essais aériens d'armes nucléaires.**

Françoise Vray, Philippe Renaud.

**Service d'Etude et de SURveillance de la Radioactivité
dans l'Environnement**

Rapport DEI/SESURE n° 2004-19

Juillet 2004.

IRSN INSTITUT DE RADIOPROTECTION ET DE SÛRETÉ NUCLÉAIRE
 DIRECTION DE L'ENVIRONNEMENT ET DE L'INTERVENTION
 SERVICE D'ÉTUDE ET DE SURVEILLANCE DE LA RADIOACTIVITÉ DANS L'ENVIRONNEMENT

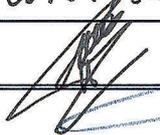
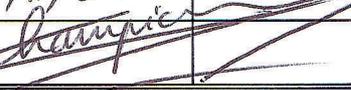
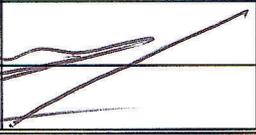
BP 35, 78116 LE VÉSINET CEDEX, France - Télécopie : 01.30.15.37.78 - Téléphone : 01.30.15.52.42

Demandeur	Directeur de la Prévention des Pollutions et des Risques
Référence de la demande	Courrier DPPR / SEI / BPSPR / DG / 2003-26
Numéro de la fiche programme	

**Contamination de la chaîne alimentaire par les produits de fission
 émis lors des essais aériens d'armes nucléaires.**

Laboratoire d'Études Radioécologiques du milieu Continental et Marin

Rapport DEI/SESURE n° 2004-19

	Réservé à l'unité		Visas pour diffusion		
	Auteur(s)	Vérificateur *	Chef du SESURE	Directeur de la DEI	Directeur Général de l'IRSN
Noms	F. VRAY	Ph. RENAUD	N. LEMAITRE	D. CHAMPION	J. REPUSSARD
Dates	22/07/2004	28/07/2004	7/10/04	29/11/04	
Signatures					

* rapport sous assurance de la qualité

RESUME

À partir d'un ensemble de résultats de mesures de radioactivité de l'air et de l'eau de pluie, les dépôts mensuels de quatorze radionucléides émis lors des essais aériens d'armes nucléaires ont été reconstitués pour le territoire français.

Ces dépôts servent de base à une reconstruction de la contamination de la chaîne alimentaire à l'aide d'un modèle simple. Les paramètres de ce modèle sont choisis en s'appuyant sur près de 40 000 résultats de mesures réalisées en France par le SCPRI et le CEA/DPS – structures aujourd'hui regroupées dans l'IRSN - sur les légumes, les fruits, les céréales, l'herbe, le lait et la viande de bœuf. Les valeurs retenues sont comparées aux références de la littérature.

Ce travail fournit l'opportunité de rappeler le bilan global de l'impact des essais sur l'environnement français, à la lumière des connaissances actuelles en radioécologie.

Dans l'air et consécutivement dans les dépôts, les activités les plus importantes ont été dues aux radionucléides à vie courte. Néanmoins, la contamination de la chaîne alimentaire par ces radionucléides est demeurée limitée, d'une part en raison de leur courte durée de vie, d'autre part en raison de leur mobilité réduite qui a pour conséquence de faibles valeurs de leurs facteurs de transfert. Bien que les dépôts mensuels de ^{137}Cs et de ^{90}Sr soient systématiquement 10 fois moindres que ceux des radionucléides à vie courte, le ^{137}Cs et le ^{90}Sr ont été mesurés dans quasiment tous les compartiments de la chaîne alimentaire durant toute la période étudiée. Ceci s'explique par des facteurs de transfert élevés et également par leur accumulation progressive dans le sol, liée à leur période de disparition voisine d'une dizaine d'années pour le « scénario français moyen ».

À l'échelle de la France, des variations sont observées autour de ce scénario moyen. Pour tous les radionucléides à vie courte, elles sont dues uniquement à la variabilité des dépôts. Celle-ci atteint au maximum un facteur voisin de 2 en liaison avec les variations maximales sur la pluviométrie moyenne annuelle à l'échelle de la France. Pour les deux radionucléides à vie longue préoccupants pour l'impact dosimétrique des essais aériens d'armes nucléaires (^{90}Sr et ^{137}Cs), la variabilité liée aux dépôts peut être modulée par des différences sur la nature du sol ayant une influence sur la contamination de certaines denrées alimentaires. Cette influence est relativement faible pour les cultures fruitières et maraîchères de même que pour les cultures céréalières pour diverses raisons (variabilité interspécifique pour les légumes et les fruits, laquelle masque la variabilité régionale, regroupement des productions au sein de grandes coopératives pour les céréales, apports d'engrais qui contribuent à uniformiser certaines des caractéristiques des sols...). En revanche, la nature du sol influence de manière sensible la contamination de l'herbe et donc du lait et de la viande. Les écarts maximaux observés pour l'activité du lait en ^{137}Cs mais surtout en ^{90}Sr entre régions françaises peuvent atteindre un facteur 10 à la fin de la période étudiée.

Ce document contient toutes les bases d'une estimation de la dose délivrée à la population française par les essais aériens d'armes nucléaires, estimation qui peut être comparée à celle proposée par l'UNSCEAR. La variabilité de cet impact dosimétrique à l'échelle du territoire français peut également être appréhendée dans ce prochain travail.

ABSTRACT

MOTS-CLES

Armes nucléaires, produits de fission, modèles de transfert, chaîne alimentaire, régionalité

AVANT PROPOS

Ce document repose sur l'existence de 40 000 résultats de mesures réalisées en France par le SCPRI et le CEA/DPS entre 1961 et 1978. Ces deux organismes ont, suite à différentes transformations, donné l'IRSN. Que les agents qui ont participé à l'acquisition de ces données, et dont certains sont encore en activité, voient ici une mise en valeur de leur travail.

SOMMAIRE

1. CONTEXTE ET OBJECTIF	5
2. LE TERME SOURCE : LES ESSAIS ET LES DÉPÔTS.....	5
2.1. Les essais aériens d'armes nucléaires : rappels.....	5
2.2. Les dépôts : mécanismes.....	6
2.3. Reconstitution des dépôts intervenus en France de 1961 à 1980.	7
2.3.1. Cas général.....	7
2.3.2. Cas des radionucléides à vie courte.....	8
3. RECONSTITUTION DE LA CONTAMINATION DE LA CHAÎNE ALIMENTAIRE : MÉTHODES.	9
3.1. Inventaire des données disponibles.....	9
3.2. Modélisation.....	11
3.3. Choix des valeurs des paramètres.....	12
4. ÉVOLUTION DE LA CONTAMINATION DE LA CHAÎNE ALIMENTAIRE.....	12
4.1. Les légumes et les fruits.....	12
4.2. Les céréales.....	14
4.3. Les transferts aux produits animaux.....	15
4.3.1. L'herbe.....	16
4.3.2. Le lait.....	17
4.3.3. La viande.....	18
5. SYNTHÈSE ET PERSPECTIVES.....	19
6. LISTE DES ANNEXES	21
7. LISTE DES TABLEAUX	21
8. LISTE DES REFERENCES.....	22

1. CONTEXTE ET OBJECTIF

Les retombées des essais aériens d'armes nucléaires ont constitué un apport massif de radionucléides à l'échelle planétaire, qui reste aujourd'hui encore la principale source de radioactivité artificielle présente dans l'environnement français.

Les mesures effectuées depuis 1961 par le Service Central de Protection contre les Rayonnements Ionisants (SCPRI), devenu Office de Protection contre les Rayonnements Ionisants (OPRI) puis IRSN, mais également par le Département de Protection Sanitaire (CEA/IPSN/DPS, aujourd'hui IRSN), témoignent de l'importance et de la nature de ces retombées.

Ces mesures, utilisées conjointement aux modèles radioécologiques usuels servent de base à une reconstruction de la contamination de la chaîne alimentaire par les produits de fission de 1961 à 1980. Ce travail permet d'une part de tester les modèles et de choisir des valeurs de paramètres adaptées au cas de la France, ce qui est l'objet du présent document, d'autre part, à terme, d'estimer la validité de la dose délivrée à la population française par les essais aériens d'armes nucléaires telle qu'elle a été calculée par l'UNSCEAR (2000), et la variabilité autour de cette dose de référence.

Les dépôts de produits de fission estimés dans le rapport SESURE 2003-3 (Renaud *et al.*, 2003), complétés pour les radionucléides à vie courte, servent de point de départ à ce travail. Les dépôts sont en effet considérés ici comme une donnée d'entrée de la modélisation utilisée. Les principaux résultats des rapports SERNAT 2001-31 et 2002-29 qui portent respectivement sur l'activité des ^{137}Cs et ^{90}Sr dans le lait et la viande et sur la contamination des légumes-feuilles par le ^{90}Sr entre 1961 et 1980 serviront également à étayer certains choix de valeurs de paramètres.

Le présent travail s'intéresse aux radionucléides listés par l'UNSCEAR comme produits dispersés lors des essais aériens, à l'exclusion des transuraniens et des produits d'activation entrant dans les cycles biogéochimiques (^3H et ^{14}C), c'est à dire aux radionucléides suivants : $^{140}\text{Ba}+\text{La}$, ^{141}Ce , $^{144}\text{Ce}+\text{Pr}$, ^{137}Cs , ^{55}Fe , ^{131}I , ^{54}Mn , ^{103}Ru , $^{106}\text{Ru}+\text{Rh}$, ^{125}Sb , ^{89}Sr , ^{90}Sr , ^{91}Y et $^{95}\text{Zr}+\text{Nb}$.

2. LE TERME SOURCE : LES ESSAIS ET LES DÉPÔTS.

2.1. Les essais aériens d'armes nucléaires : rappels.

Entre 1945 et 1981, les États-Unis, l'URSS, le Royaume-Uni, la France et la Chine ont effectué plus de 504 essais aériens d'armes nucléaires. L'essentiel de la puissance, exprimée en Mégatonne-équivalent de TriNitroToluène, a été généré entre 1951 et 1958 puis en 1962 par les États-Unis ainsi que par les Soviétiques entre 1955 et 1958 puis en 1961-1962. Entre ces périodes, un moratoire a été respecté par ces deux nations ainsi que par le Royaume-Uni, de début 1959 jusqu'à l'automne 1961.

Le traité de non-prolifération des armes nucléaires, signé en août 1963, a marqué la fin des essais aériens américains, russes et anglais. Les tirs atmosphériques français et chinois qui ont continué respectivement jusqu'en 1974 et 1980, ne représentent que 2,3% et 4,7% de la puissance totale estimée à 440 Mt. L'inventaire de tous les essais recensés en 2002 et leur puissance est fourni par l'UNSCEAR (2000).

Les sites des tirs aériens étaient répartis sur l'ensemble du globe, bien que la plupart des explosions aient eu lieu dans l'hémisphère nord. Les puissances des explosions étaient

extrêmement variables, de moins de 1 tonne jusqu'à 50 Mt (30/10/1961 en Nouvelle-Zemble). Les essais ont été effectués à différentes altitudes, depuis la surface du sol ou sur des barges en mer, jusqu'en haute atmosphère. Si ces conditions influencent quelque peu la carte des retombées régionales, c'est principalement la puissance du tir qui conditionne les modalités de dépôt à l'échelle du globe. En effet, lors d'une explosion, la hauteur atteinte par le nuage contenant les aérosols radioactifs est globalement proportionnelle à la puissance de l'essai. Une explosion inférieure à 10 kt donne principalement des retombées troposphériques, sachant que la tropopause (limite supérieure de la troposphère) se situe à un peu moins de 10 km d'altitude aux fortes latitudes et à plus d'une quinzaine de km aux faibles latitudes (près de l'équateur). Au-delà de 1 Mt les retombées sont principalement stratosphériques.

Les aérosols injectés dans la troposphère y séjournent de quelques jours à quelques semaines avant de se déposer à la surface du sol. Durant ce délai, ils sont transportés, sur des milliers de kilomètres par les vents dominants qui les dispersent autour de la latitude d'injection.

Les produits de fission et d'activation injectés dans la stratosphère redescendent par gravité durant une période de 2 à 12 mois dans les régions polaires et de 8 à 24 mois dans les régions équatoriales. Ce délai conduit à une bonne homogénéisation. Une fois descendus dans la troposphère ils suivent les mouvements généraux de l'air, lesquels contribuent à augmenter les retombées dans les régions tempérées.

En raison du positionnement des sites de tirs et en liaison avec les deux mécanismes précédemment évoqués, la bande latitudinale située entre le 40^{ième} et le 50^{ième} parallèle, dans laquelle est située la France, a été la plus exposée aux retombées des essais aériens d'armes nucléaires (UNSCEAR 2000).

2.2. Les dépôts : mécanismes.

À l'aide des mesures effectuées en région parisienne par le SCPRI sur le ⁹⁰Sr, ⁹⁵Zr, ¹⁰⁶Ru, ¹³⁷Cs, Renaud et Louvat (2004) ont montré que les activités dans l'air et l'eau de pluie étaient liées par un coefficient dont la valeur de $5,0 \pm 2,0 \cdot 10^5$ (m³ d'air par m³ d'eau de pluie) est indépendante du radionucléide. Cette valeur est en bon accord avec l'estimation de De Bortoli (1974) obtenue à partir de données similaires en Italie ou à celle évaluée pour des isotopes stables par d'autres auteurs (Peckar 1996 ; Chester *et al.*, 1997). Cet ensemble de résultats atteste que les processus de dépôt des radionucléides sont principalement physiques et indépendants de la nature et de la chimie des éléments.

Par ailleurs, Renaud et Louvat (2004) ont également montré qu'en Région parisienne, pour une hauteur de précipitation annuelle de l'ordre de 650 à 700 mm an⁻¹, les pluies ont constitué en moyenne les deux tiers des dépôts de ⁹⁰Sr, ⁹⁵Zr, ¹⁰⁶Ru, ¹³⁷Cs, ¹⁰³Ru et ¹⁴⁴Ce. Ils ont également vérifié à l'aide de données sur Sauveterre (Provence), Cléville (Normandie), Vioménil (Bourgogne) et Méaudre (Vercors) que les dépôts cumulés entre 1967 et 1972 augmentaient avec les hauteurs de pluie annuelles moyennes dans ces régions (650, 760, 1200 et 1400 mm an⁻¹ respectivement). Ce résultat est conforme aux observations faites par d'autres auteurs (Bunzl & Kracke, 1988 ; Mitchell *et al.*, 1990) et conforme également à l'expression décrivant le dépôt de radionucléides sur une période donnée (D , Bq m⁻² par unité de temps), utilisée dans la plupart des modèles de radioécologie :

$$D = D_{\text{sec}} + D_{\text{pl}} = C_{\text{air}} \cdot V_d + C_{\text{pl}} \cdot H_{\text{pl}} \quad (1)$$

où D_{sec} et D_{pl} correspondent respectivement au dépôt sec et au dépôt humide durant la période considérée (Bq m⁻² par unité de temps), C_{air} et C_{pl} à l'activité moyenne sur la même période respectivement dans l'air et dans l'eau de pluie (en Bq m⁻³) et où H_{pl} est la hauteur de pluie moyenne sur cette période (m par unité de temps). Le paramètre V_d ,

(m par unité de temps) est la vitesse de dépôt (sec) des aérosols, dont la valeur est comprise entre 10^{-3} m s^{-1} et 10^{-2} m s^{-1} .

À partir de la relation de Mitchell (Mitchell et al, 1990) validée sur la France et de la carte des précipitations moyennes annuelles, Renaud *et al.* (2003) ont établi la carte des dépôts cumulés de ^{137}Cs dus aux retombées des tirs aériens d'armes nucléaires. Cette carte montre que sur la majeure partie de la France, les dépôts cumulés de ^{137}Cs de 1945 à 1980 (décroissance radioactive non considérée) sont compris entre 4000 et 6000 Bq m^{-2} , en bon accord avec les estimations de l'UNSCEAR sous nos latitudes (5000 Bq m^{-2}). Les régions les plus arrosées ont pu recevoir des dépôts supérieurs à 8000 Bq m^{-2} .

2.3. Reconstitution des dépôts intervenus en France de 1961 à 1980.

Pour la période antérieure à 1961, pour laquelle aucune donnée n'est disponible pour la France, il a été considéré qu'au début de notre étude, le dépôt sur le sol français n'était pas nul. La valeur de ce dépôt initial a été prise égale au dépôt cumulé en fin d'année 1961 fourni par l'UNSCEAR (2000), auquel il a été appliqué une décroissance durant quatre ans⁽¹⁾. Ce choix a très peu d'influence sur la reconstitution de la contamination de la chaîne alimentaire par les radionucléides à vie courte mais influence quelque peu les calculs effectués pour le ^{137}Cs et le ^{90}Sr .

2.3.1. Cas général.

Afin de pouvoir, à terme, estimer l'impact dosimétrique des essais aériens d'armes nucléaires, il est indispensable de disposer d'une chronique complète des dépôts de tous les radionucléides pris en compte au pas de temps choisi pour cette étude⁽²⁾. Il a été vu au chapitre 2.2, qu'en raison de l'existence d'une relation entre l'activité dans l'air et l'activité dans l'eau de pluie, seule une des deux séries de données était indispensable. Les efforts ont donc porté sur la constitution de séries complètes de données sur l'activité dans l'air, en utilisant principalement les résultats des spectrométries gamma effectuées par le SCPRI sur les aérosols (Leprieur, 2004). Ce travail a été réalisé pour la région parisienne en regroupant les chroniques relatives à Fontenay-aux-Roses puis au Vésinet, pour une période s'étendant de juin 1961 à juillet 1978. Les données disponibles sur ces sites au pas de temps hebdomadaire ont été complétées en utilisant les règles de décision suivantes :

- constitution d'une série complète pour le ^{90}Sr en utilisant les données sur l'air ou à défaut sur l'eau de pluie ou à défaut les données concernant le ^{95}Zr en considérant un rapport d'activité constant entre les deux radionucléides ($[\text{Zr}]/[\text{Sr}]=12^{(3)}$, 20 cas), ou à défaut la limite de détection divisée par deux (25 cas sur 824), selon la méthode préconisée par Hecht & Honikel (1995) dont les principes sont rappelés en annexe A ;
- constitution d'une série de données complète pour le ^{95}Zr en utilisant les données sur l'air ou à défaut sur l'eau de pluie ou à défaut sur un autre radionucléide de durée de vie similaire ($^{106}\text{Ru}+\text{Rh}$: 96 cas ; $^{144}\text{Ce}+\text{Pr}$: 12 cas) ou à défaut sur le ^{90}Sr en utilisant un rapport d'activité constant entre les deux radionucléides ($[\text{Zr}]/[\text{Sr}]=12^{(3)}$, 24 cas).

⁽¹⁾ Cette durée a été calculée à partir des durées individuelles obtenues en considérant les dates des dépôts antérieurs de césium et strontium et en les pondérant par les activités déposées.

⁽²⁾ Le pas de temps choisi est le mois. Cette durée est apparue comme un bon intermédiaire entre le pas de temps minimal de prélèvement respecté par le SCPRI en région parisienne (la semaine) et le pas de temps annuel qui est celui des études conduites par l'UNSCEAR.

⁽³⁾ Valeur issue de Renaud *et al.*, 2003.

Ces deux chroniques permettent de compléter toutes les autres séries de données, le ^{90}Sr étant utilisé pour compléter les chroniques relatives aux radionucléides à vie longue (utilisation d'un rapport d'activité constant entre le ^{90}Sr et le ^{137}Cs , $[\text{Cs}]/[\text{Sr}]=1,5^{(4)}$ pour constituer une série de données complète pour le ^{137}Cs pour lequel 352 données sur 824 étaient manquantes) et le ^{95}Zr étant utilisé pour compléter les séries relatives aux radionucléides à vie courte.

Par ailleurs, ces chroniques sur l'activité mesurée dans l'air fournissent directement les dépôts totaux conformément à l'équation 1, en utilisant une vitesse de dépôt sec de $5 \cdot 10^{-3} \text{ m s}^{-1}$, en accord avec l'étude bibliographique de Sehmel (1980) révisée par le National Radiological Protection Board (NRPB, 2001), puis en considérant que le dépôt humide est égal à deux fois le dépôt sec (relation dont la validité a été montrée pour la Région parisienne par Renaud *et al.*, 2003), dès lors que l'activité dans l'eau de pluie et la hauteur de pluie précipitée sur le pas de temps est inconnue.

2.3.2. Cas des radionucléides à vie courte.

Compte tenu du temps de circulation des aérosols dans la troposphère et surtout dans la stratosphère (*cf.* § 2.1), les retombées des radionucléides à vie courte ne pourront être proportionnelles à celles des radionucléides à vie longue comme le césium ou le strontium. Ceci ne peut être admis qu'en première approximation, à défaut d'information sur la date de l'essai qui a généré les produits de fission. De fait, si les radionucléides à vie longue peuvent s'accumuler au fil du temps dans ce qui peut être appelé un « réservoir stratosphérique », pour les radionucléides à vie courte, le rôle de ce réservoir est faible à nul en fonction des intervalles de temps entre les tirs et de la période physique des radionucléides considérés. Dans les mois qui suivent un essai, les apports troposphériques de radionucléides à vie courte (de préférence de période voisine) peuvent être tracés pour des couples de radionucléides par mesure de leur radioactivité dans l'air, laquelle suivra une évolution décrite par l'expression suivante :

$$\frac{[\text{R1}]}{[\text{R2}]} = \frac{[\text{R1}]_0}{[\text{R2}]_0} e^{(\lambda_2 - \lambda_1)T} \quad (2)$$

où $[\text{Ri}]$ est l'activité du radionucléide i à l'instant t , $[\text{Ri}]_0$ l'activité de ce même radionucléide au moment de l'essai, λ_i la période de décroissance physique du radionucléide i et T le temps écoulé entre la date de l'essai et l'instant t . À partir d'une valeur donnée au moment d'un essai, le rapport d'activité entre deux radionucléides de période voisine évoluera selon une fonction exponentielle dont le principal paramètre est déterminé par les périodes physiques des deux radionucléides considérés. La valeur initiale du rapport d'activité des deux radionucléides peut être quasiment indépendante de l'essai ou très variable. Elle dépend essentiellement des rendements de fission des deux nucléides considérés pour chaque type de combustible. Les figures de l'annexe B présentent l'évolution des rapports d'activité entre les différents radionucléides à vie courte considérés et le ^{95}Zr , qui est utilisé ici comme référence, et illustrent bien les différences mentionnées précédemment.

Les chroniques de données concernant l'activité des radionucléides à vie courte dans l'air ont donc été complétées en employant les méthodes suivantes :

- le temps écoulé depuis le dernier essai (T dans l'équation 2) est déterminé par observation de l'ensemble des rapports d'activité entre tous les radionucléides décelés et le ^{95}Zr . Ceci revient en fait à rechercher le délai d'arrivée des masses d'air contaminées par chacun des essais sur la France, lequel peut varier même pour le même site de tir (les données disponibles concernent principalement les essais

⁽⁴⁾ Valeur issue de Renaud *et al.*, 2003.

effectués sur le site du Lop-Nor). Cette donnée est indispensable pour compléter les séries de données en utilisant l'équation 2 ;

- pour les radionucléides dont la période physique est plus courte que celle du ^{95}Zr (^{103}Ru , ^{141}Ce et ^{131}I), la valeur du rapport $[\text{Ri}]_0/[^{95}\text{Zr}]_0$ a été considérée comme constante ;
- pour le couple $^{140}\text{Ba}+\text{La}$, pour lequel les valeurs du rapport $^{140}\text{Ba}+\text{La}]_0/[^{95}\text{Zr}]_0$ varient sur un ordre de grandeur et sont délicates à estimer, trois valeurs ont été distinguées (Figure B3). La variabilité de ce rapport est à mettre en relation avec les observations contradictoires faites par différents auteurs selon lesquels les retombées sont parfois appauvries en baryum (Clark *et al.*, 1967 ; Cooper *et al.*, 1970), parfois enrichies (Rao *et al.*, 1966 ; Peirson *et al.*, 1970). Ces particularités seraient à liées à un fractionnement important pour ce radionucléide (Mamuro *et al.*, 1966).
- pour les radionucléides dont la période physique est plus longue que celle du ^{95}Zr ($^{106}\text{Ru}+\text{Rh}$, $^{144}\text{Ce}+\text{Pr}$, ^{54}Mn), la stratosphère joue sensiblement son rôle de réservoir compte tenu des intervalles de temps séparant les tirs ; la valeur du rapport $[\text{Ri}]_0/[^{95}\text{Zr}]_0$, est donc variable d'un facteur 10 à 100 en fonction de l'intervalle de temps séparant les tirs et de leurs puissances respectives selon la loi des mélanges (Beck *et al.*, 1971 ; Noyce *et al.*, 1973). Elle a pu être estimée pour quasiment chaque tir à partir des données disponibles⁽⁵⁾ ;

Parmi les radionucléides à étudier, ceux pour lesquels aucune donnée relative à l'air ou à l'eau de pluie n'est disponible pour la France sont le ^{55}Fe , l' ^{125}Sb , le ^{89}Sr et l' ^{91}Y . Trois de ces quatre radionucléides n'ont jamais été mesurés dans aucun compartiment par le SCPRI ou le DPS. L'estimation des apports de ces radionucléides sur le territoire français a donc été faite en utilisant les rapports d'activité dans l'air entre ces radionucléides et le ^{95}Zr ou le $^{106}\text{Ru}+\text{Rh}$ fournis par l'UNSCEAR ($^{106}\text{Ru}+\text{Rh}]_0/[^{55}\text{Fe}]_0=6,14$; $^{106}\text{Ru}+\text{Rh}]_0/[^{125}\text{Sb}]_0=10,97$; $^{95}\text{Zr}]_0/[^{91}\text{Y}]_0=1,25$). En ce qui concerne le ^{89}Sr , dont la période radioactive (51 jours) est proche de celle du ^{95}Zr (64 jours), un rapport d'activité a été estimé à partir de données obtenues en France sur l'herbe. La valeur de $^{95}\text{Zr}]_0/[^{89}\text{Sr}]_0$ ainsi estimée (0,14) est inférieure à celle fournie par l'UNSCEAR (1,74). Des valeurs de 0,19 à 1,43 sont rapportées par Baugh *et al.* (1967) et la variabilité de ce rapport est expliquée par les mécanismes de fractionnement intervenant lors des essais.

Les chroniques des activités dans l'air ainsi reconstituées sont présentées en annexe C. Il est à souligner que ces valeurs ne peuvent être comparées directement à des valeurs équivalentes provenant de l'étude de référence de l'UNSCEAR. En effet, ces chroniques ne sont pas détaillées dans les documents de l'UNSCEAR qui présentent seulement des dépôts totaux (annuels ou cumulés).

3. RECONSTITUTION DE LA CONTAMINATION DE LA CHAÎNE ALIMENTAIRE : MÉTHODES.

3.1. Inventaire des données disponibles.

Les données utilisées pour la présente étude proviennent des bulletins mensuels édités par le SCPRI (1961-1978), pour partie accessibles à partir de la base de données

⁽⁵⁾ Pour le ^{54}Mn pour lequel seulement 32 données sont disponibles, il a été admis sur la base de l'observation de ces données que ce radionucléide avait été émis avec des caractéristiques identiques à celles des $^{106}\text{Ru}+\text{Rh}$ et $^{144}\text{Ce}+\text{Pr}$; l'activité du ^{54}Mn dans l'air a alors été reconstituée à partir de celle du $^{106}\text{Ru}+\text{Rh}$ compte tenu de leurs périodes physiques proches en utilisant le rapport $^{106}\text{Ru}+\text{Rh}]_0/[^{54}\text{Mn}]_0 = 12$.

ARCENV, et des bulletins trimestriels du Sous-Comité Interministériel de Protection Sanitaire (1961-1965) devenu par la suite CEA / DPS (1965-1978), dont le contenu a été archivé dans la base de données SYLVESTRE.

Si le suivi de la contamination de la chaîne alimentaire par ces deux organismes a été continu pendant toute la période étudiée, l'évolution de la contamination de l'environnement, le comportement spécifique des radionucléides vis à vis des produits alimentaires étudiés, de même que l'évolution des techniques de mesure de chaque radionucléide provoque des hétérogénéités dans les séries de données disponibles : certains maillons de la chaîne alimentaire sont particulièrement bien renseignés pour de nombreux radionucléides, tandis que seulement quelques données éparses sont disponibles pour d'autres. L'abondance des données sur chaque produit étudié – air et eau de pluie inclus - et pour tous les radionucléides concernés par les essais aériens d'armes nucléaires est présentée dans le Tableau 1.

Les données citées dans le Tableau 1 sont relatives à la France entière (sauf en ce qui concerne l'air et l'eau de pluie, compartiments pour lesquels le nombre de données, très important, a été limité à la seule Région parisienne), mais pour certains compartiments seules quelques régions ont été prospectées. Ces disparités imposent de ne pas approcher les problèmes de régionalité de façon systématique. Ces problèmes seront donc traités en soulignant et expliquant la variabilité observée lorsque les mesures le permettent. La variabilité régionale des dépôts servira alors de référence.

Il convient de rappeler ici les limites des données utilisées dont la qualité n'est cependant plus à démontrer :

- imprécision des données DPS concernant les dates (seul le mois est connu) et les lieux de prélèvement (seule la région est identifiée) ;
- activité de l'herbe rapportée au poids de cendres et rapports de poids frais / cendres pas toujours connus pour les données du SCPRI. La valeur moyenne de ce rapport a été estimée à 45.

Tableau 1 – Nombre de résultats de mesures relatifs au territoire français disponibles pour l'étude de la contamination de la chaîne alimentaire entre 1961 et 1978.

	⁹⁰ Sr	¹³⁷ Cs	⁹⁵ Zr+Nb	¹⁰³ Ru	¹⁴⁴ Ce+Pr	¹³¹ I	¹⁰⁶ Ru+Rh	¹⁴¹ Ce	⁸⁹ Sr	¹⁴⁰ Ba+La	⁵⁴ Mn
Air et eau de pluie ^(a)	1 440	1 080	840	600	200	60	380	75		140	35
Herbe	2 460	1 890	2 030	605	570	150	120	250	285	175	
Céréales	310	320									
Légumes feuilles	3 050	1 980	430	90	230		130	130			
Légumes racines	1 255	520	30	6	20		9	9			
Lég. fruits + fruits	430	520	55	20	40		5	30	15		
Laït	11 000	9 000				810			70	9	
Viande		310									
Repas complet ^(b)	820	735									
Total	20 765	16 355	3 385	1 321	1 060	1 020	644	494	370	324	35

(a) pour ce compartiment, l'inventaire a été limité à la Région parisienne. Le nombre total de données concernant la France est très élevé et seule une partie d'entre elles a été utilisée, notamment pour établir la relation pluie-dépôt.

(b) Moyenne des repas de 7 jours correspondant à l'activité ingérée par jour par un collégien.

Les données provenant majoritairement du SCPRI figurent en gris ; les autres proviennent essentiellement du DPS.

3.2. Modélisation.

Les équations utilisées pour modéliser la contamination des différents produits de la chaîne alimentaire sont communes à la plupart des modèles opérationnels de calcul de l'impact de rejets chroniques, notamment FOCON (Rommens *et al.*, 1999), mais également ABRICOT (Santucci, 1995). Pour les végétaux, elles correspondent également à l'intégration de l'expression de la contamination suite à un rejet aigu figurant dans ASTRAL (Renaud *et al.*, 1999 a et b) ou ECOSYS (Müller & Pröhl, 1993).

Dans le cas d'un apport de radionucléide par voie atmosphérique, considéré comme constant sur un pas de temps donné, la radioactivité d'un végétal à l'issue de l'intervalle de temps t , $C_v(t)$ s'exprime en Bq kg^{-1} de poids frais par :

$$C_v(t) = \underbrace{\frac{1}{T_c} \sum_{i=t-T_c}^{i=t} D_i \frac{R_c}{Rdt} f_t \frac{1 - e^{-(\lambda_b + \lambda_p)T_c}}{\lambda_b + \lambda_p}}_{\text{captation}} + \underbrace{\frac{FT_r}{\mu h} \cdot \sum_{i=0}^{i=t} D_i e^{-(\lambda_s + \lambda_p)(T_t - T_i)}}_{\text{transfert racinaire}} \quad (3)$$

Avec :

- T_c : durée de croissance du végétal (en jours)
- D_i : activité déposée durant l'intervalle de temps i (Bq m^{-2})
- R_c : rapport de captation (sans dimension)
- Rdt : rendement cultural (kg m^{-2} pour une culture, poids de végétal frais)
- f_t : facteur de translocation (sans dimension ; sa valeur est de 1 dans le cas de l'herbe ou des légumes-feuilles)
- λ_p : constante de décroissance physique du radionucléide (j^{-1})
- λ_b : constante de décroissance biomécanique du radionucléide pour le végétal (j^{-1})
- λ_s : constante de décroissance du radionucléide biodisponible dans le sol (intégrant les phénomènes de migration horizontale et verticale ainsi que le vieillissement du radionucléide ; en j^{-1})
- FT_r : facteur de transfert racinaire (en kg de sol sec par kg de végétal frais) ;
- μ : la masse volumique du sol (sec) en place (en kg de sol sec par m^3), laquelle a été prise égale à 1400 kg m^{-3} , moyenne de 241 mesures archivées dans la base de données SYLVESTRE ;
- h : la hauteur de l'horizon racinaire (en m) ;
- T_i : durée en jours à l'issue de l'intervalle de temps i .

Pour les légumes et les fruits, les cultures ont été présumées continues sur l'année, un légume ou un fruit en remplaçant un autre. Il n'a pas été tenu compte d'un arrêt de production durant l'hiver, celui-ci étant trop court et ses dates étant trop variables à l'échelle du pays. La culture des céréales a en revanche été considérée comme discontinue, avec une récolte annuelle unique.

Les transferts aux animaux (vache) sont décrits par :

$$C_{\text{ani}}(t) = Q_{\text{alim}} \cdot C_{\text{alim}}(t) \cdot FT_{\text{h-ani}} \quad (4)$$

Avec :

- $C_{\text{ani}}(t)$: l'activité du produit animal considéré (lait ou viande) en Bq kg^{-1} frais ou Bq l^{-1}
- Q_{alim} : la quantité d'aliment ingérée quotidiennement (kg j^{-1} , poids frais)
- $C_{\text{alim}}(t)$: l'activité de l'aliment durant l'intervalle de temps t (Bq kg^{-1} frais)
- $FT_{\text{h-ani}}$: le facteur de transfert au produit animal par ingestion de nourriture (j kg^{-1} frais)

3.3. Choix des valeurs des paramètres.

De façon générale, les valeurs des paramètres des modèles décrits dans le paragraphe précédent ont été choisies en s'appuyant sur les résultats de mesures disponibles. L'adéquation d'un jeu de valeurs de paramètre a été testée par étude du rapport valeurs calculées / valeurs mesurées, lequel doit rester proche de 1 et par analyse graphique (afin d'éviter des dérives temporelles du rapport alors que sa valeur moyenne est voisine de 1).

En l'absence de résultats de mesures ou en cas d'insuffisance de ces derniers, les valeurs de paramètres manquantes ont été recherchées parmi celles disponibles dans la bibliographie. Ce sont principalement les valeurs par défaut des modèles FOCON, ECOSYS ou FARMLAND qui ont été utilisées (Rommens, 1997 ; Müller & Prohl, 1993 ; Brown & Simmonds, 1995). Dans tous les cas, le jeu de paramètre retenu est resitué par rapport à ces valeurs considérées comme des références dans la littérature sur le sujet.

Les valeurs retenues pour les différents paramètres sont présentées en annexe D. Le rapport moyen valeurs calculées / mesurées résultant de ces choix est consultable en annexe E.

4. ÉVOLUTION DE LA CONTAMINATION DE LA CHAÎNE ALIMENTAIRE.

4.1. Les légumes et les fruits.

Ce compartiment de la chaîne alimentaire est caractérisé par une très grande diversité. D'un point de vue radioécologique, il a été subdivisé en trois grandes catégories : les légumes-feuilles, les légumes-racines et les légumes-fruits, qui englobent les fruits. Ces divisions / regroupements sont parfaitement justifiés par les mécanismes impliqués dans la contamination de ces différents végétaux. De plus, il est possible de définir des rations alimentaires moyennes pour chacune de ces catégories d'aliments sans que la variabilité autour de ces moyennes soit trop importante (Descamps & Guillet, 2003). Néanmoins, à l'intérieur de chacune de ces catégories sont groupées des espèces aussi différentes qu'une salade et un poireau (légumes-feuilles), qu'une pomme et un haricot (légumes-fruits) ou qu'une betterave et un radis (légumes-racines). Il résulte de ces différences une importante dispersion des valeurs de contamination. Pour la période 1961-1980 l'activité du ⁹⁰Sr dans les légumes-feuilles français, par exemple, s'étend en permanence sur un ordre de grandeur et des méthodes très fines sont nécessaires pour mettre en évidence des différences interrégionales, lesquelles sont moins apparentes que les différences interspécifiques (Vray, 2002).

Les paramètres radioécologiques indépendants du radionucléide (Rc/Rdt, λ_b , Tc) ont été calés principalement sur les données relatives au ⁹⁰Sr. Pour les légumes-feuilles, ce sont les valeurs moyennes obtenues pour les salades par Vray (2002) qui ont été retenues. Ce choix est légèrement majorant car il tend à maximiser la captation des légumes feuilles, la salade étant une espèce pour laquelle la captation est importante. Si la salade n'est pas l'espèce la plus représentative des légumes-feuilles, elle est cependant celle dont la consommation est la moins variable de tous les légumes-feuilles et également, en moyenne, la plus élevée (Descamps & Guillet, 2003).

La valeur de Rc/Rdt issue de cette étude et arrondie à 0,1 a été également conservée pour les autres catégories de légumes. Pour ces derniers, ce choix est de faible

importance, ce paramètre pouvant être totalement agrégé avec le facteur de translocation (les deux paramètres sont multiplicatifs).

Les valeurs des facteurs de translocation, dépendant de la mobilité de chaque élément, ont été choisies en tenant compte des grandes catégories de mobilité connues dans la littérature (Müller & Prohl, 1993 ; Brown & Simmonds, 1995). Il a également été tenu compte du fait que de nombreux auteurs estiment que la contamination des parties consommées des légumes-racines et des légumes-fruits peut provenir d'une contamination de surface (Bukovac, 1957 ; Aarkrog, 1969). Ceci a conduit à admettre une légère sous-estimation des activités moyennes des radionucléides à vie courte (pour lesquels la captation est quasiment l'unique voie de contamination), les valeurs mesurées minimales ayant été supposées exemptes de contamination de surface contrairement aux mesures les plus fortes. Les valeurs retenues sont donc de 0,05 et 0,2 pour les légumes-racines et de 0,05 et 0,15 pour les légumes-fruits et les fruits, respectivement pour les éléments peu mobiles (ruthénium, baryum, zirconium, cérium, strontium, yttrium, fer et antimoine) et mobiles (césium, manganèse et iode). Elles sont donc très voisines des valeurs proposées par défaut dans les codes français de calcul d'impact de rejets chroniques, généralement comprises entre 0,05 et 0,15 (Rommens, 1997 ; Santucci, 1995 ; Quinault *et al.*, 1989).

Les valeurs des facteurs de transfert racinaire sont celles utilisées dans ECOSYS ou à défaut dans FARMLAND ou FOCON. Il convient de souligner la faible importance de ce paramètre pour les radionucléides de période physique voisine d'un an ou moindre, compte tenu des gammes de variations enregistrées dans les dépôts. Les valeurs sensibles concernent donc le strontium et le césium et elles ont pu être contrôlées par confrontation avec les résultats de mesures. Pour ces deux radionucléides, une attention particulière a été portée à la période du radionucléide disponible dans le sol. Celle-ci est en effet liée à la hauteur de l'horizon racinaire, et cette relation est sensible (Vray, 2002). Des valeurs distinctes ont donc été retenues pour les légumes-feuilles d'une part et pour les légumes-fruits et les légumes-racines d'autre part.

Pour l'ensemble des 6 650 données recueillies sur les légumes, le rapport moyen calcul / mesure est de 1,30. Ces données peuvent être visualisées sur les graphiques de l'annexe F.

Il est à signaler que les observations disponibles sur les radionucléides à vie courte concernent principalement les régions Languedoc et Provence, c'est-à-dire des régions dont la pluviométrie moyenne annuelle est voisine de celle de la Région parisienne. Néanmoins, dans ces régions, les épisodes pluvieux sont plutôt de forte intensité, de faible durée et ont une répartition très inégale sur l'année, autant de caractéristiques qui contribuent à augmenter la variabilité de la contamination des légumes par les radionucléides à vie courte. Cette particularité, ajoutée à la variabilité interspécifique et aux possibilités de contaminations de surface est à l'origine de la dispersion des valeurs présentées sur les figures F1 et F2, pages 33 et 34.

Les résultats de mesures relatifs au ^{90}Sr et au ^{137}Cs sont beaucoup plus abondants et leur rythme d'acquisition est régulier, contrairement à celui concernant les radionucléides à vie courte. Ceci s'explique essentiellement par le poids important du transfert racinaire, qui masque en partie les « pics » d'activité consécutifs à chaque tir. Ce poids est encore plus important pour le ^{90}Sr que pour le ^{137}Cs , ce qui transparaît sous la forme d'un léger « lissage » de l'activité de ce radionucléide dans les légumes et les fruits (*cf.* figures F3 et F4, pages 35 et 36).

Ces observations (provenance des données, origine de la variabilité observée) permettent de conclure à la bonne représentativité des paramètres choisis pour la Région parisienne. La variabilité intra régionale des activités mesurées, liée aux phénomènes évoqués dans le paragraphe précédent est nettement supérieure à la variabilité interrégionale, laquelle peut être réduite à la variabilité observée sur les dépôts.

4.2. Les céréales.

En France, parmi les céréales cultivées, le blé joue un rôle prépondérant en raison de son importance dans la ration alimentaire moyenne (pain, pâtes). Les autres céréales sont soit destinées à l'alimentation du bétail, soit, comme le riz, ont une importance tout à fait mineure dans la consommation humaine ou dans la production. Par ailleurs, il existe moins de différences entre deux espèces de céréales qu'entre deux types de légumes-feuilles par exemple. Donc, même si aucune donnée n'est disponible pour attester de sa véracité, l'hypothèse selon laquelle la contamination du blé est représentative de la contamination de l'ensemble des céréales peut être retenue.

Pour les céréales, la durée de croissance à considérer vis à vis du transfert au grain est celui de l'épi et non pas celui de la plante. En effet, la translocation des radionucléides à partir des feuilles est négligeable avant le début de la formation de l'épi. Cette durée de croissance a été fixée à 120 jours, période allant approximativement, pour le blé, de la montaison à la récolte. Il a été considéré que celle-ci avait lieu le 1^{er} août de chaque année.

Les données disponibles sur le blé (grains), présentées en annexe G, indiquent que la seule contamination mise en évidence dans les céréales sur la période qui nous intéresse est liée au ^{90}Sr et au ^{137}Cs . L'absence de valeurs pour les autres radionucléides a diverses origines. En ce qui concerne l' ^{131}I , sa très courte période physique provoque sa disparition en quelques mois. Or c'est approximativement le temps nécessaire aux coopératives pour regrouper les récoltes et procéder à la commercialisation. Les mesures du SCPRI ont été réalisées sur ces récoltes regroupées et homogénéisées au niveau des grandes régions climatiques françaises et l' ^{131}I ne pouvait donc y être décelé, pas plus qu'il ne pouvait être présent dans les produits céréaliers destinés à la consommation humaine. En ce qui concerne les autres radionucléides à vie courte (ruthéniums, cériums, baryum...), c'est principalement une translocation faible qui peut être à l'origine de la non-détection de ces radionucléides dans les grains de blé.

Afin de prendre en compte cette réalité, il a été nécessaire de distinguer fortement les valeurs du facteur de translocation pour le césium et le strontium d'une part et pour les autres radionucléides d'autre part. Pour le césium, la valeur retenue (0,2) est proche de celles proposées par défaut dans les codes français de calcul d'impact de rejets chroniques (Rommens, 1997 ; Santucci, 1995 ; Quinault *et al.*, 1989). Elle est égale à celle utilisée pour ce même radionucléide et pour les légumes-racines. Pour le ^{90}Sr , la valeur retenue est voisine de celle choisie pour le ^{137}Cs . Elle est de 0,15 et a été calée à l'aide des mesures disponibles. Pour les autres radionucléides, la distinction entre éléments mobiles (césium, iode, manganèse d'une part, autres nucléides dont strontiums d'autre part) a été modifiée. L'utilisation d'une valeur de 0,15 pour le facteur de translocation au grain de blé pour tous les radionucléides conduirait en effet à des activités considérables dans les grains de blé (plus de 200 Bq kg⁻¹ frais en ^{95}Zr par exemple), lesquelles auraient forcément été décelées. Par conséquent, pour tous les radionucléides considérés généralement comme peu mobiles (hors strontiums), la valeur du facteur de translocation a été prise égale à 0,02, valeur préconisée dans ECOSYS et FARMLAND et qui permet de maintenir l'activité de ces radionucléides dans les céréales à des niveaux voisins de ceux mesurés pour le ^{137}Cs (figure G2, page 37). Pour l'iode et le manganèse, c'est la valeur utilisée pour le ^{90}Sr (0,15) qui a été retenue.

Ces valeurs du facteur de translocation influent sur la contamination du blé par voie aérienne, laquelle est modélisée par ailleurs avec une période biologique de 14 jours, une durée de croissance de 120 jours et un rapport Rc/Rdt de 1. Pour l'ensemble des 160 données recueillies sur la France entière, le rapport moyen calcul / mesure est de 1,09.

Pour les deux radionucléides à vie longue décelés dans les céréales (figure G1, page 37), on note que les variations interrégionales sont faibles (de l'ordre d'un facteur 2 au maximum pour le ^{137}Cs et d'un facteur 3 au maximum pour le ^{90}Sr). Ces variations sont donc du même ordre de grandeur que les variations sur les dépôts moyennées à l'échelle

des grandes régions climatiques étudiées. Ce lissage, dû au regroupement des productions locales dans de grandes coopératives, est une réalité qui conditionne non seulement les résultats de mesures exploités ici mais également les transferts à l'homme puisque les produits céréaliers sont distribués avec la même homogénéité que celle des mesures faites par le SCPRI, voire avec une homogénéité plus grande encore. L'absence de disparités régionales sur les valeurs des paramètres caractéristiques du sol (FT_r , λ_s) peut être expliquée d'une part par les regroupements de cultures évoqués précédemment, d'autre part par le fait que ce type de culture est traditionnellement pratiqué en ayant recours à des apports d'engrais importants, lesquels contribuent à uniformiser les caractéristiques du sol influençant les transferts de ces deux radionucléides.

4.3. Les transferts aux produits animaux.

Dans le présent travail, la vache a été retenue comme unique représentant du compartiment « animaux », dernier maillon de la chaîne alimentaire de l'homme, avant tout parce qu'il s'agit du seul animal sur lequel des résultats de mesure sont disponibles. Dans le cas des produits laitiers, ce choix n'a rien de contestable en raison de la nette prépondérance du lait de vache dans la consommation humaine d'aliments de ce type. En ce qui concerne la viande, la population française a une alimentation assez diversifiée dans laquelle le bœuf occupe une place assez voisine de celle du porc et de la volaille. Le choix du bœuf apparaît donc tout à fait acceptable.

Dans l'objectif de simplifier et de clarifier le mode de calcul de la contamination des produits animaux, il a été décidé d'adopter un régime alimentaire unique pour le bétail, valable pour la France entière. Compte tenu de la forme de l'équation (4), page 11, la contamination des produits animaux est proportionnelle à celle des aliments du bétail à deux facteurs multiplicatifs près : la quantité de nourriture ingérée quotidiennement (Q_{alim}) et le facteur de transfert au produit animal (FT_{h-ani}). Dans la mesure où il a été décidé de fixer la valeur de Q_{alim} , les éventuelles variations régionales de ce paramètre seront répercutées sur FT_{h-ani} .

Le choix de la valeur de Q_{alim} repose sur une donnée zootechnique de base : une vache ingère quotidiennement 13 kg de matière sèche. En période estivale, cette ration correspond à 40 à 70 kg d'herbe fraîche. Il a été choisi de retenir la valeur de 50 kg frais par jour. En cas de sous-estimation de cette valeur, FT_{h-ani} devra être surestimé.

Afin de prendre en compte l'impossibilité d'alimenter le bétail en permanence avec de l'herbe fraîche, il a été considéré que de décembre à février de chaque année, le bétail était nourri avec de l'herbe récoltée à la fin du mois de juin précédent et stockée de 150 à 210 jours. Il s'ensuit que de décembre à mars, $C_{ani}(t)$ s'écrit :

$$C_{ani}(t) = 50 \cdot FT_{h-ani} \cdot C_h(\text{juin}_n) \cdot e^{-\lambda_p Ts} \quad (5)$$

où T_s est le temps de stockage de l'herbe récoltée à la fin du mois de juin de l'année n ($T_s=150$ j pour le mois de décembre de l'année n , 180 j pour le mois de janvier de l'année $n+1$, etc...). Il a également été supposé que les mois de novembre et mars étaient des périodes intermédiaires durant lesquelles le bétail était alimenté pour moitié avec de l'herbe fraîche et pour moitié avec de l'herbe récoltée à la fin du mois de juin précédent (moyenne des résultats des équations 4 et 5 avec $T_s=120$ ou 240 jours).

Ce choix a un impact principalement pour les radionucléides à vie courte. Dans le cas où les hypothèses émises ci-dessus seraient abusives, les valeurs de FT_{h-ani} devraient être augmentées pour les radionucléides à vie courte par rapport aux références disponibles dans la littérature.

La ration alimentaire du bétail ayant été définie en « équivalent herbe fraîche », il convient, préalablement à l'étude de la contamination des produits animaux de s'assurer de la validité des hypothèses émises sur la contamination de l'herbe.

4.3.1. L'herbe.

Les valeurs modélisées pour la Région parisienne et les résultats de mesures sur l'herbe en France sont présentés en annexe H.

Les paramètres caractérisant la contamination de l'herbe directement par le dépôt ont été estimés à l'aide des données relatives aux radionucléides à vie courte. Pour une période « biologique » de 14 jours et un temps de croissance de 90 jours, la valeur du rapport Rc/Rdt a été fixée à 0,35. Ces choix conduisent à un rapport valeurs calculées / mesurées de 1,35 pour l'ensemble des radionucléides à vie courte. De fortes disparités apparaissent entre les différents radionucléides puisque ce rapport varie de 0,23 pour l'¹³¹I à 3,44 pour le ¹⁴¹Ce (pour lequel les données disponibles proviennent de l'Essonne, non pas de l'ouest de Paris) ou 2,11 pour les ¹⁰⁶Ru+Rh. L'obtention de valeurs faibles pour ce rapport dans le cas des radionucléides de très courte période, inférieure au mois, s'explique par la variabilité des valeurs au sein d'un même mois et par le fait que les mesures sont ponctuelles alors que les valeurs calculées sont des moyennes mensuelles. Il est très vraisemblable que les valeurs fournies pour l'iode et le baryum correspondent aux pics de radioactivité pour ces radionucléides (figure H1, page 38). Une sous-estimation de ces pics d'un facteur voisin de 4 est donc peu surprenante.

L'abondance de mesures de ⁹⁵Zr+Nb permet de s'assurer de la validité des hypothèses sur la relation pluviométrie moyenne annuelle – dépôt (Renaud & Louvat, 2004) et surtout de mesurer la variabilité des dépôts entre les différentes stations de mesure du SCPRI. Celle-ci atteint au maximum un facteur 2 (hors Méandre, station pour laquelle l'enneigement ne permet pas de disposer de données durant les quatre mois d'hiver), la station la moins arrosée étant celle du Vésinet (figure H1, page 38).

En ce qui concerne les deux radionucléides à vie longue, les valeurs du facteur de transfert sol-plante ont été fixées à 10^{-3} et $2 \cdot 10^{-1}$ kg de sol sec par kg frais respectivement pour le ¹³⁷Cs et le ⁹⁰Sr, pour une profondeur d'horizon racinaire de 10 cm et une masse volumique du sol de 1400 kg m^{-3} . Ces valeurs sont notablement plus faibles que celles retenues dans ECOSYS ($5 \cdot 10^{-2}$ et $5 \cdot 10^{-1}$ respectivement) et différentes de celles utilisées dans FARMLAND ($3 \cdot 10^{-2}$ et $5 \cdot 10^{-2}$), mais elles permettent d'obtenir des rapports valeurs calculées / mesurées proches de 1 avec des périodes de disparition dans le sol de 8 et 6 ans.

Pour les 1810 données recueillies sur la région parisienne, le rapport moyen calcul / mesure est de 1,27.

Il est à noter que, pour les deux radionucléides à vie longue et contrairement aux autres catégories de végétaux évoquées jusqu'ici, l'herbe témoigne d'une variabilité interrégionale supérieure à celle attendue en liaison avec les dépôts (figure H3, page 40). Celle-ci peut atteindre un facteur 5 environ pour le ⁹⁰Sr entre les régions les plus contrastées (Région parisienne et lieu-dit « Anglade » sur la commune de Saint-laurent-de-Céris en Charente), ce qui signifie que la nature du sol ou les pratiques culturales peuvent engendrer des écarts susceptibles d'atteindre au moins un facteur 3. La recherche des facteurs pédologiques ou agroclimatiques et la compréhension des mécanismes permettant d'expliquer l'ensemble des écarts observés dépasse largement le cadre de ce travail et est l'objet d'un projet de recherche actuellement en cours (projet « SENSIB », Mercat-Rommens & Renaud, 2003). Pour ce qui concerne la présente étude, seule l'amplitude maximale des variations mesurées (c'est-à-dire un facteur 3) est à retenir.

4.3.2. Le lait.

Le lait constitue un élément essentiel de l'alimentation humaine en raison des quantités importantes consommées, sous des formes très diverses, et également de la part de cet aliment dans la ration alimentaire des jeunes enfants.

Seulement quelques radionucléides sont mesurés dans le lait. Il s'agit du césium, de l'iode, du couple baryum-lanthane et surtout des deux radiostrontiums. Ces radionucléides sont également, parmi ceux qui ont été émis lors des essais aériens d'armes nucléaires, ceux pour lesquels le facteur de transfert au lait de vache *via* l'alimentation du bétail est élevé (Müller & Pröhl, 1993 ; Brown & Simmonds, 1995). Les valeurs retenues pour ce paramètre dans le cadre de la présente étude et en accord avec les résultats de mesures disponibles sont très voisines de celles préconisées dans la littérature et notamment dans FARMLAND ou ECOSYS. La valeur relative au césium a été limitée à $4,5 \cdot 10^{-3}$ et celle relative au strontium à 10^{-3} (au lieu de $2 \cdot 10^{-3}$ dans ECOSYS ou FARMLAND).

Les valeurs modélisées pour la Région parisienne et les résultats de mesures sur le lait en France sont présentés en annexe I.

Dans le cas de l'iode, les résultats de mesures disponibles sur le lait, bien qu'abondants (490 données) sont très mal répartis dans le temps (19 dates de prélèvement distinctes uniquement, couvrant 7 années sur les 18 concernées par l'étude, figure I1, page 41). Par conséquent, ces données ont été complétées par des résultats de mesures sur les thyroïdes de bovins (316 données). Cet indicateur biologique puissant est en effet relié au lait par un facteur multiplicatif de 500 (kg frais de thyroïde par litre de lait) : $^{131}\text{I}]_{\text{thyroïde}} = 500 [^{131}\text{I}]_{\text{lait}}$ (Beninson *et al.*, 1972).

Pour l'iode, c'est une valeur de référence issue d'ECOSYS ($3 \cdot 10^{-3}$) qui a été adoptée pour le facteur de transfert, ce qui entraîne une légère surestimation (rapport valeurs calculées / mesurées de 1,34). Ce choix s'explique par l'importante variabilité du rapport valeurs calculées / mesurées (écart-type de 4,69 pour plus de 800 données). Comme dans le cas de l'herbe, cette variabilité est partiellement due au fait que d'importantes variations de l'activité de l'iode interviennent à une échelle de temps inférieure au pas de temps de l'étude. De plus, si globalement, à l'échelle de la France et pour les dix-huit années étudiées, la variabilité régionale des dépôts de radionucléides dus aux essais aériens peut être considérée comme proportionnelle à la variabilité régionale de la pluviométrie moyenne annuelle, ce constat ne peut être considéré comme exact dans le cas de l'iode où les dépôts sont proportionnels aux hauteurs de pluies précipitées localement dans les quelques semaines suivant chaque essai, lesquelles sont forcément largement plus variables que la pluviométrie moyenne annuelle.

L'obtention d'un rapport valeurs calculées / mesurées supérieur à 1 pour deux des trois radionucléides à vie courte sur lesquels des données sont disponibles valide les hypothèses émises sur l'alimentation du bétail (prise en compte d'une période de stabulation durant laquelle les végétaux consommés ne sont pas « frais »). L'obtention d'un résultat similaire pour l'ensemble des radionucléides avec des facteurs de transfert identiques à ceux de la littérature ou très proches valide *a posteriori* la valeur choisie pour la quantité d'aliments ingérée quotidiennement pour le bétail (50 kg d'équivalent herbe fraîche par jour).

Pour les 1 474 résultats de mesures relatifs au lait, le rapport moyen calcul / mesures est de 1,35, valeur largement influencée par les données sur l'iode discutées précédemment et par celles relatives au ^{89}Sr (rapport de 1,78) qui laissent croire à une surestimation. Celle-ci n'est qu'apparente et due au fait que les données utilisées concernent des régions plus arrosées que la région parisienne.

La variabilité régionale de l'activité du lait a déjà été évoquée dans les paragraphes précédents pour les radionucléides à vie courte, notamment en ce qui concerne l'iode.

Pour le ^{90}Sr , les données disponibles confirment le constat effectué pour l'herbe : à une variabilité d'un facteur 2 due à la pluviométrie moyenne annuelle s'ajoute une variabilité d'un facteur 3 liée vraisemblablement aux caractéristiques du sol ou aux pratiques culturales ou zootechniques (figure I2, page 42). L'activité du ^{90}Sr dans le lait est tout à fait proportionnelle à celle de l'herbe avec un facteur de transfert identique d'une région à une autre. En ce qui concerne le ^{137}Cs , alors que pour ce radionucléide l'herbe n'indiquait qu'une variabilité liée à la pluviométrie, le lait indique une variabilité régionale supérieure d'un facteur 3. Le facteur explicatif à ce phénomène dépasse largement le cadre de ce travail. On se contentera de noter que certaines pratiques zootechniques peuvent engendrer des écarts de cet ordre de grandeur.

4.3.3. La viande.

La contamination de la viande de bœuf, comme celle du lait, ne peut que résulter de processus de migration assez complexes des radionucléides au sein de l'animal. Si le modèle utilisé (équation 4, page 11) ne rend nullement compte de cette complexité, les valeurs faibles et très contrastées de $FT_{h\text{-ani}}$ témoignent de l'existence de multiples barrières qui peuvent limiter le transfert des radionucléides jusqu'au muscle de l'animal. Dans la littérature, ce paramètre varie sur 5 ordres de grandeur en fonction du radionucléide (de $3 \cdot 10^{-7}$ pour le niobium à 10^{-2} pour le césium dans ECOSYS par exemple).

Les résultats expérimentaux concernant les transferts des radionucléides à vie courte aux animaux sont peu nombreux (ce type d'expérience a surtout été réalisé avec le césium et le strontium), ce qui a pour conséquence que la fiabilité des valeurs obtenues pour $FT_{h\text{-ani}}$ est limitée (Müller & Pröhl, 1993). Cependant, aucun résultat de mesure ne vient non plus contredire les faibles valeurs de $FT_{h\text{-ani}}$ disponibles dans la littérature puisque le seul radionucléide décelé dans ce compartiment est le césium.

Par conséquent, pour la plupart des radionucléides étudiés ici, ce sont les valeurs préconisées par Brown & Simmonds (1995) pour FARMLAND qui ont été utilisées comme facteur de transfert à la viande de bœuf. Pour le césium, la valeur retenue, en accord avec les résultats de mesure disponibles est de $1,5 \cdot 10^{-2}$, c'est-à-dire deux fois moins que celle préconisée pour FARMLAND. Il en résulte un rapport valeurs calculées / mesurées de 0,96 issu de 118 valeurs relatives à la Région parisienne.

Les valeurs modélisées pour la Région parisienne et les résultats de mesures sur la viande de bœuf en France sont présentés en annexe J.

De façon générale, la dispersion des résultats de mesure sur la viande tend à être supérieure à celle caractérisant le lait de vache, pour une région donnée. Ceci s'explique par le fait que les échantillons de viande proviennent généralement d'un seul animal. À la variabilité régionale voire locale s'ajoute donc une probable variabilité individuelle qui n'apparaît pas pour le lait, les productions d'un troupeau étant regroupées au sein de l'exploitation voire au sein d'une coopérative avant échantillonnage. Hormis cette particularité, les mesures de ^{137}Cs dans la viande témoignent des mêmes caractéristiques que celles relatives au lait en ce qui concerne la variabilité régionale, et ceci alors que les régions prospectées pour l'étude de la viande sont quelque peu différentes de celles du lait : l'impact des variations régionales des dépôts apparaît modéré en regard de celui qui pourrait être imputé vraisemblablement aux caractéristiques du sol, voire à des pratiques zootechniques particulières. En effet, les résultats des mesures effectuées dans des régions à la pluviométrie moyenne très contrastée (Toulouse et Paris mais aussi Strasbourg et la Normandie) sont très voisins, alors que les données provenant de Clermont-Ferrand et Lyon s'en distinguent nettement, d'un facteur voisin de 10 (figure J1, page 43).

5. SYNTHÈSE ET PERSPECTIVES.

Le présent travail a permis de décrire la contamination de quelques compartiments représentatifs de la chaîne alimentaire de l'homme, en s'appuyant sur une modélisation simple et robuste, proche de celles qui font référence en la matière, et sur près de 40 000 résultats de mesures réalisées en France. Même s'il n'a rien d'exhaustif, ce travail apparaît suffisant pour pouvoir estimer avec une précision satisfaisante les doses reçues par la population française entre 1961 et 1978 et les comparer à celles estimées par l'UNSCEAR pour l'hémisphère nord. Ceci fera l'objet d'un prochain rapport.

L'intérêt de cette démarche réside dans le fait que les valeurs estimées de la contamination des différentes denrées alimentaires sont validées par des mesures locales. Pour les radionucléides pour lesquels aucune donnée n'est disponible (cas des transuraniens, du tritium et du carbone-14), la seule approche possible est celle fondée sur l'utilisation conjointe de la littérature et de la modélisation. C'est pourquoi il n'est pas prévu à ce stade d'élargir ce travail à ces radionucléides.

L'exploitation de ces longues séries de données permet de confirmer et d'affiner les valeurs des facteurs de transfert fournis dans la littérature. Elle offre également l'opportunité de rappeler le bilan global de l'impact des essais sur l'environnement français, à la lumière des connaissances actuelles en radioécologie.

Dans l'air et consécutivement dans les dépôts, les activités les plus importantes ont été dues aux radionucléides à vie courte. Le ^{95}Zr , les ruthéniums et les cériums notamment sont présents, durant les années 60 et 70, à des activités dix fois supérieures à celles du ^{137}Cs et du ^{90}Sr . Néanmoins, la contamination de la chaîne alimentaire par ces radionucléides est demeurée limitée, d'une part en raison de leur courte durée de vie, d'autre part en raison de leur mobilité réduite qui a pour conséquence de faibles valeurs de leurs facteurs de transfert. Si les données disponibles sur les légumes indiquent leur détection ponctuelle dans ce compartiment, des contaminations de surface sont susceptibles de les expliquer partiellement et les activités mesurées demeurent de toutes façons modérées.

Bien que les dépôts mensuels de ^{137}Cs et de ^{90}Sr soient systématiquement 10 fois moindres que ceux des radionucléides à vie courte, le ^{137}Cs et le ^{90}Sr ont été mesurés dans quasiment tous les compartiments de la chaîne alimentaire durant toute la période étudiée. Ceci s'explique par des facteurs de transfert élevés et également par leur accumulation progressive dans le sol, liée à leur période de disparition voisine d'une dizaine d'années pour le « scénario moyen ».

Très globalement, pour l'ensemble des radionucléides, les activités mesurées n'excèdent guère 1 à 10 Bq kg^{-1} frais en fonction des compartiments de la chaîne alimentaire (les valeurs maximales étant observées sur les parties aériennes des végétaux, donc dans les légumes feuilles où quelques valeurs pouvant atteindre 100 ont pu être observées). Dans l'herbe cependant, des valeurs de 100 à 1000 Bq kg^{-1} frais ont été régulièrement mesurées au début des années 60, sans que ceci n'ait de répercussions importantes possibles sur les denrées alimentaires, les radionucléides concernés n'étant guère transférés aux produits animaux.

À l'échelle de la France, des variations sont observées autour du scénario moyen. Celles-ci sont dues à la variabilité des dépôts, liée à la variabilité de la pluviométrie. Pour les radionucléides à vie moyenne (de quelques mois à 1 ou 2 ans) ou longue, c'est la pluviométrie moyenne annuelle qui est à considérer comme référence. Ses variations ne dépassent guère un facteur 2 ce qui est une bonne indication de la variabilité maximale des dépôts de ces radionucléides. Pour l' ^{131}I , dont la durée de vie est de 8 jours, cette variabilité est vraisemblablement supérieure, la gamme de variation de la pluviométrie des périodes consécutives à chaque essai étant sans nul doute plus étendue. Pour les

radionucléides à vie longue, d'autres sources de variabilité peuvent intervenir, liées aux caractéristiques agronomiques ou pédologiques. L'impact de la nature du sol est relativement faible pour les cultures fruitières et maraîchères de même que pour les cultures céréalières, pour diverses raisons (variabilité interspécifique pour les légumes et les fruits, laquelle masque la variabilité régionale, regroupement des productions au sein de grandes coopératives pour les céréales, apports d'engrais qui contribuent à uniformiser certaines des caractéristiques des sols...). En revanche, la nature du sol influence de manière sensible la contamination de l'herbe et donc du lait et de la viande. Les écarts maximaux observés pour l'activité du lait en ^{137}Cs mais surtout en ^{90}Sr entre régions françaises peuvent atteindre au total un facteur 10 à la fin de la période étudiée.

Ces variations, liées à la sensibilité des différentes surfaces agricoles, seront prises en compte dans l'estimation de l'impact dosimétrique des essais sur le territoire français.

6. LISTE DES ANNEXES

ANNEXE A : ÉVALUATION PERTINENTE DES BAS NIVEAUX DE CONTAMINATION RADIOACTIVE DANS LE CAS DE MATRICES BIOLOGIQUES.	25
ANNEXE B : RECONSTRUCTION DE SERIES CHRONOLOGIQUES COMPLETES SUR L'ACTIVITE DES RADIONUCLEIDES DANS L'AIR DE 1961 A 1978 : ÉTUDE DES RAPPORTS D'ACTIVITES DES RADIONUCLEIDES A VIE COURTE.	27
ANNEXE C : SERIES CHRONOLOGIQUES COMPLETES SUR L'ACTIVITE DES RADIONUCLEIDES DANS L'AIR DE 1961 A 1978.	29
ANNEXE D : VALEURS UTILISEES POUR LES PARAMETRES DES MODELES DE TRANSFERT DES RADIONUCLEIDES DANS LA CHAINE ALIMENTAIRE.	31
ANNEXE E : RAPPORT MOYEN ENTRE LES VALEURS CALCULEES POUR LA CONTAMINATION DE LA CHAINE ALIMENTAIRE ET LES VALEURS MESUREES.	32
ANNEXE F : ÉVOLUTION DE LA CONTAMINATION DES LEGUMES ET DES FRUITS ENTRE 1961 ET 1978. VALEURS CALCULEES POUR LA REGION PARISIENNE ET VALEURS MESUREES EN FRANCE.	33
ANNEXE G : ÉVOLUTION DE LA CONTAMINATION DES CEREALES EN FRANCE ENTRE 1961 ET 1978. VALEURS CALCULEES POUR PARIS ET MESURES.	37
ANNEXE H : ÉVOLUTION DE LA CONTAMINATION DE L'HERBE EN FRANCE ENTRE 1961 ET 1978. VALEURS CALCULEES POUR PARIS ET MESURES.	38
ANNEXE I : ÉVOLUTION DE LA CONTAMINATION DU LAIT DE VACHE EN FRANCE ENTRE 1961 ET 1978. VALEURS CALCULEES POUR PARIS ET MESURES.	41
ANNEXE J : ÉVOLUTION DE LA CONTAMINATION DE LA VIANDE DE BOEUF EN FRANCE ENTRE 1961 ET 1978. VALEURS CALCULEES POUR PARIS ET MESURES.	43

7. LISTE DES TABLEAUX

TABLEAU 1 – NOMBRE DE RESULTATS DE MESURES RELATIFS AU TERRITOIRE FRANÇAIS DISPONIBLES POUR L'ETUDE DE LA CONTAMINATION DE LA CHAINE ALIMENTAIRE ENTRE 1961 ET 1978.	10
---	----

8. LISTE DES REFERENCES.

1. Aarkrog A., 1969. On the direct contamination of rye, barley, wheat and oats with strontium-89, caesium-134, manganese-54 and cerium-141. *Radiat. Bot.*, **9**, 357.
2. Baugh J.O., Yoshikawa K. & Kuroda P.K., 1967. Single Fallout Particles and Zirconium-95 from the Chinese Nuclear Explosion of 9 May 1966. *Science*, **155**, 1405-1407.
3. Beck J.N., Thein M. & Kuroda P.K., 1971. Radioactive Cerium Fallout. *Health Physics*, **21**, 466-470.
4. Beninson D., Migliori de Beninson A. & Menossi C., 1972. Fallout radiactivo debido a las explosiones en el Pacifico Sur en el período 1966-1970. Comisión Nacional de Energía Atómica, Buenos Aires, report CNEA-321.
5. Brown J. & Simmonds J.R., 1995. FARMLAND : A dynamic model for the transfer of radionuclides through terrestrial foodchains. NRPB-R273.
6. Bukovac M.J., 1957. Absorption and mobility of foliar applied nutrients. *Plant Physiology*, **32**, 428-437.
7. Bunzl K. , Kracke W., 1988. Cumulative deposition of ^{137}Cs , ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$ and ^{241}Am from global fallout in soils from forest, grassland and arable land in Bavaria (FRG). *Journal of Environmental Radioactivity* **8**, 1-14.
8. Chester R., Nimmo M., Corcoran P.A., 1997. Rainwater-aerosol trace metal relationship at Cap-Ferrat : a coastal site in the western Mediterranean. *Marine Chemistry*, **58**, 293-312.
9. Clark R.S., Yoshikawa K., Rao M.N., Palmer B.D., Thein M. & Kuroda P.K., 1967. Time Interval between Nuclear Detonation and Formation of Single Falout Particles. *Journal of Geophysical Research*, **72** (6), 1793-1796.
10. Cooper W.W., Beck J.N., Chen T.S. & Kuroda P.K., 1970. Radioactive strontium and barium fallout. *Health Physics*, **19**, 625-632.
11. Département de Protection Sanitaire (CEA / IPSN / DPS), 1965-1978. Surveillance de la radioactivité de la chaîne alimentaire et de prélèvements divers. Bulletins trimestriels de mesure du Service d'Hygiène Atomique, Fontenay-aux-Roses.
12. Descamps B. & Guillet F., 2003. Enquête alimentaire dans trois secteurs de la basse vallée du Rhône : Codolet, Tresques, Camargue. Consommation/auto-consommation. *Radioprotection*, **38** (3), 299-322.
13. Hecht H. & Honikel K.O., 1995. Assessment of data sets containing many values below the detection limits. *Z. Lebensm. Unters. Forsch.*, **201** (6), 592-597.
14. Leprieur F., 2004. Aérosols atmosphériques et radioactivité : Techniques de prélèvement - Réseaux de surveillance. Rapport IRSN DEI / SESURE 2004-10.
15. Mamuro T., Yoshikawa K., Matsunami T. & Fujita A., 1966. Radionuclide fractionation in debris from a land surface burst. *Health Physics*, **12**, 757-763.
16. Mercat-Rommens C. & Renaud P., 2003. Lancement du projet sensibilité radioécologique. Rapport IRSN DEI / SESURE 2003-2.
17. Mitchell PI, Sanchez-Cabeza JA, Ryan TP, McGarry AT, Vidal-Quatras A., 1990. Preliminary estimates of cumulative caesium and plutonium deposition in the irish terrestrial environment. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, **138**, 241-256.

18. Müller H. & Pröhl G., 1993. ECOSYS-97 : a dynamic model for assessing radiological consequences of nuclear accidents. *Health Phys.* **66** (1), p.232.
19. Noyce J.R., Moore D.T., Sherwood J.D., Daniel P.R., Beck J.N. & Kuroda P.K., 1973. Fallout from nuclear weapons testing and interhemispheric transport of nuclear debris. *Health Physics*, **25**, 109-114.
20. Peckar M., 1996. Regional models LPMOD and ASIMD algorithms, parameterization and results of application to Pb and Cd in Europe scale. Co-operative Program for Monitoring and evaluation of the long range transmission of air-pollutants in Europe. EMEP/MSC-E Report 9/96.
21. Peirson D.H., Cambay R.S. & Hawson C.L., 1970. Transfer of Nuclear Debris from Southern to Northern Troposphere during 1968. *Journal of Geophysical Research*, **75** (9), 1760-1765.
22. Quinault J.M., Cartier Y. & Bourdeau F., 1989. Guide d'évaluation de l'impact de rejets atmosphériques. IPSN/CEA et EDF, Département Sites, Environnement, Information, note d'étude EESISE/3861.
23. Rao M.N., Yoshikawa K., Sabu D.D., Clark R & Kuroda P.K., 1966. Mass-Yield Distribution of the Fission Products in Fallout from the 14 May 1965 Nuclear Explosion. *Science*, **153**, 633-635.
24. Renaud P., Réal J., Maubert H. & Roussel-Debet S., 1999 a. Dynamic modelling of the caesium, strontium and ruthenium transfer to grass and vegetables. *Health Phys.* **76** (4), 1-7.
25. Renaud Ph., Stapel R., Maubert H., Bleher M & Wirth E, 1999 b. Comparative study of the PARK and ASTRAL post-accidental decision support softwares, *Health Phys.* **76**(4), 8-12.
26. Renaud Ph. & Vray F., 2001. Évolution des activités de ¹³⁷Cs et ⁹⁰Sr dans le lait et la viande produits en France avant l'accident de Tchernobyl. Rapport IPSN DPRE / SERNAT 2001-31.
27. Renaud Ph. & Louvat D., 2004. Magnitude of fission product depositions from atmospheric nuclear weapon test fallout in France. *Health Phys.* **86**(4), 353-358.
28. Renaud Ph., Louvat D. & Vray F., 2003. Les retombées en France des essais atmosphériques d'armes nucléaires. Production, fractionnement, dispersion atmosphérique et dépôt des produits de fission. Rapport IRSN DEI / SESURE 2003-03.
29. Rommens C., 1997. Étude bibliographique et choix des données par défaut pour les logiciels de calcul des impacts dosimétriques. IPSN/CEA, note technique SEGR/SAER/97-25.
30. Rommens C., Morin A., Merle-Szeremeta A., 1999. Le modèle FOCON d'évaluation de l'impact dosimétrique des rejets radioactifs atmosphériques des installations nucléaires en fonctionnement normal, *Radioprotection*, **34** (2), 195-209.
31. Santucci P., 1995. Manuel d'utilisation du code ABRICOT, version 2.0. IPSN, Rapport DPEI/SERGD/LESTES 95-03.
32. Service Central de protection contre les Rayonnements Ionisants (SCPRI), 1961-1978. Bulletins mensuels de résultats de mesures. République Française, Ministère de la Santé.
33. Sehmel GA., 1980. Particles and gas dry deposition: a review. *Atmospheric Environment*, **14**, 983-1011.

34. Sous Comité Interministériel de Protection Sanitaire, 1961-1965. Surveillance de la radioactivité de la chaîne alimentaire. Bulletins trimestriels de mesure. Fontenay-aux-Roses.
35. United Nation Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation (UNSCEAR), 2000. Sources, Effects and Risks of Ionizing Radiation. Report of the General Assembly. New York. United Nation Publication.
36. Vlachonikolis I.G. & Mariott F.H.C., 1995. Evaluation of censored contamination data. *Journal of Food Additives and Contaminants*, **12**, 637-644.
37. Vray F., 2002. Contamination des végétaux par dépôt atmosphérique chronique de ⁹⁰Sr : informations tirées de l'étude de la période 1961-1980. Rapport IRSN DPRE / SERNAT 2002-29.

ANNEXE A : ÉVALUATION PERTINENTE DES BAS NIVEAUX DE CONTAMINATION RADIOACTIVE DANS LE CAS DE MATRICES BIOLOGIQUES.

Les informations suivantes sont issues du second séminaire consacré aux « estimations pertinentes des bas niveaux de contamination des aliments » organisé dans le cadre du programme européen GEMS/Food EURO (« Mise en évidence et estimation des expositions alimentaires à des substances potentiellement dangereuses ») organisé par l'Organisation Mondiale de la Santé (Kulmbach, Germany, 26-27 May 1995).

Dans le cadre de ce programme, de nombreuses données sur la contamination de denrées alimentaires diverses sont collectées. Parmi elles, certaines sont fournies sous la forme de valeurs inférieures aux limites de détection ou de quantification (LD ou LQ). Le séminaire a conduit à adopter des méthodes destinées à améliorer le potentiel explicatif de cet ensemble très imparfait de données en combinant les valeurs mesurées réelles aux données qualitatives constituées par des valeurs < LD.

Les procédures recommandées garantissent la fiabilité et la comparabilité des jeux de données traités. Elles visent à permettre l'estimation de moyennes, médianes, écarts-types et autres grandeurs statistiques, de jeux de données contenant des valeurs inférieures aux LD.

Les jeux de données concernant des polluants pour lesquels l'existence de vraies valeurs « nulles » (polluants absents) est concomitante avec l'existence de valeurs très significatives sont à traiter différemment (cas des pesticides, fongicides ou autres substances très spécifiques dont la présence est liée à leur utilisation ou non à l'échelle locale).

Les jeux de données provenant de différents laboratoires utilisant des techniques différentes conduisant à des limites de détection très différentes ne peuvent être traités de cette façon.

Dans les autres situations, il est recommandé de se conformer aux méthodes préconisées dans le tableau suivant, en fonction de la proportion de valeurs inférieures aux LD.

Proportion de valeurs < LD	Estimation de la moyenne	Estimation des grandeurs statistiques autres
Aucune	Moyenne réelle	Fournir une description des méthodes
≤ 60%	Remplacer les valeurs <LD par LD/2	Cf. Hecht & Honikel, 1995 ; Vlachonikolis & Mariott, 1995 par ex.
> 60% mais ≤ 80% (avec au moins 25 valeurs quantifiées)	Fournir 2 estimations utilisant 0 et LD pour tous les résultats <LD	Idem ci-dessus Attention si le nombre total de mesures est <100.
> 80%	Fournir 2 estimations utilisant 0 et LD pour tous les résultats <LD	Non réalisable

Ces choix reposent sur le constat que les polluants sont, en règle générale, distribués de façon log-normale dans les systèmes biologiques, avec un écart-type voisin de 1 après transformation en logarithmes (népériens). Ceci permet de constater que le remplacement des valeurs non quantifiées par LD/2 permet une bonne estimation de la moyenne si la proportion de valeurs non quantifiées est faible et si l'échantillon ne comprend qu'une seule LD ou des LD voisines.

La série chronologique de données sur le ^{90}Sr dans l'air répond aux critères justifiant le remplacement des valeurs inférieures aux limites de détection par LD/2 (moins de 60% des cas, limites de détection évoluant peu sur la période). Les valeurs ainsi comblées ne peuvent être considérées comme des valeurs exactes, mais ce remplacement ne modifie pas globalement l'activité moyenne dans l'air en France pour ce radionucléide et cette période. Il est évident que cette méthode ne pourrait nullement être appliquée pour estimer l'activité du ^{90}Sr dans l'air postérieurement à juillet 1978.

ANNEXE B : RECONSTRUCTION DE SERIES CHRONOLOGIQUES COMPLETES SUR L'ACTIVITE DES RADIONUCLEIDES DANS L'AIR DE 1961 A 1978 : ÉTUDE DES RAPPORTS D'ACTIVITES DES RADIONUCLEIDES A VIE COURTE.

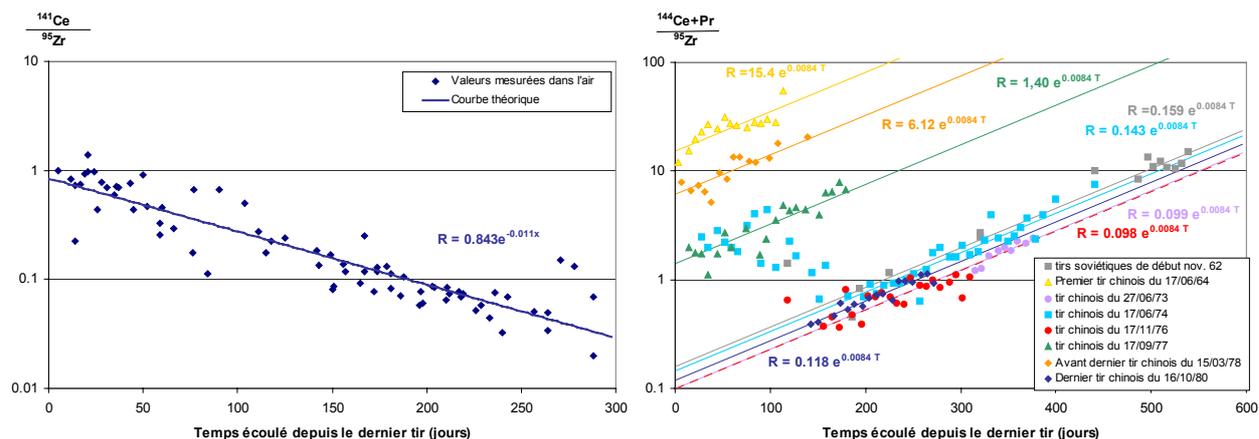


Figure B1 – Rapport entre les activités des isotopes du cérium et du ^{95}Zr mesurées dans l'air en région parisienne entre 1961 et 1978. Évolution en fonction de l'âge de la contamination.

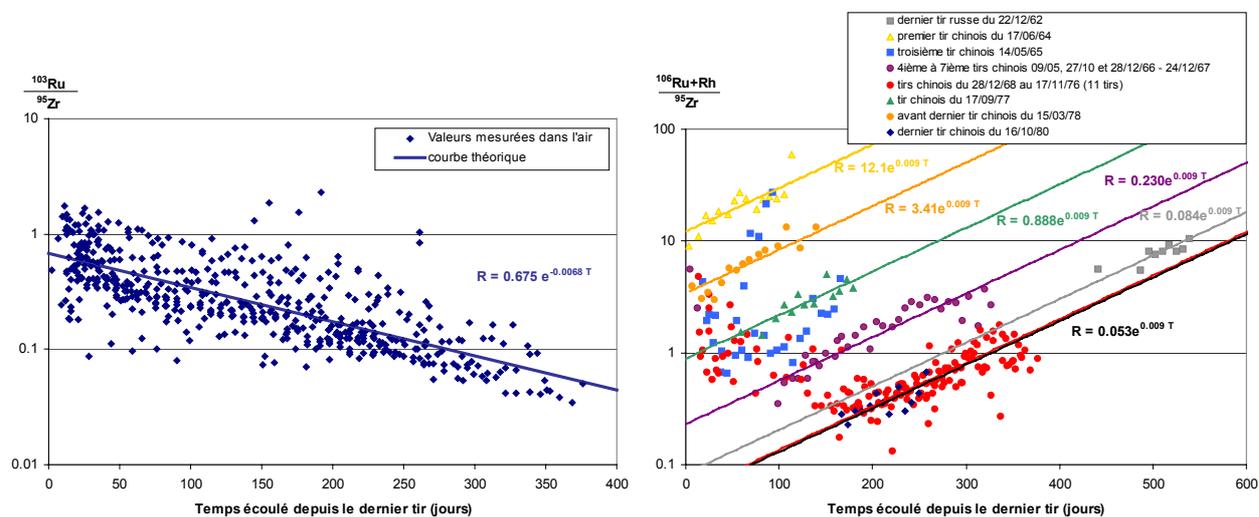


Figure B2 – Rapport entre les activités des isotopes du ruthénium et du ^{95}Zr mesurées dans l'air en région parisienne entre 1961 et 1978. Évolution en fonction de l'âge de la contamination.

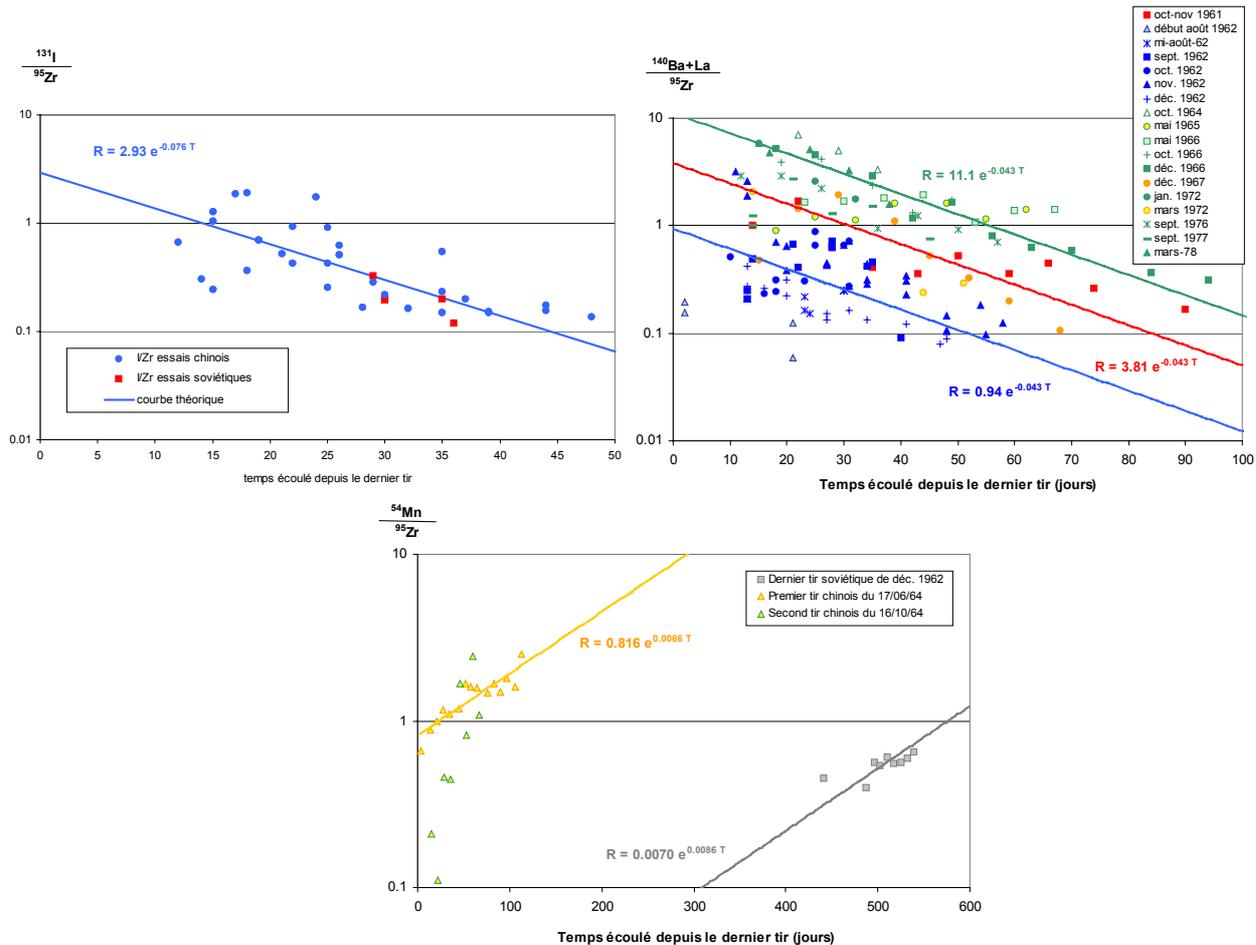


Figure B3 - Rapport entre les activités de l' ^{131}I , du $^{140}\text{Ba+La}$, du ^{54}Mn et du ^{95}Zr mesurées dans l'air en région parisienne entre 1961 et 1978. Évolution en fonction de l'âge de la contamination.

ANNEXE C : SERIES CHRONOLOGIQUES COMPLETES SUR L'ACTIVITE DES RADIONUCLEIDES DANS L'AIR DE 1961 A 1978.

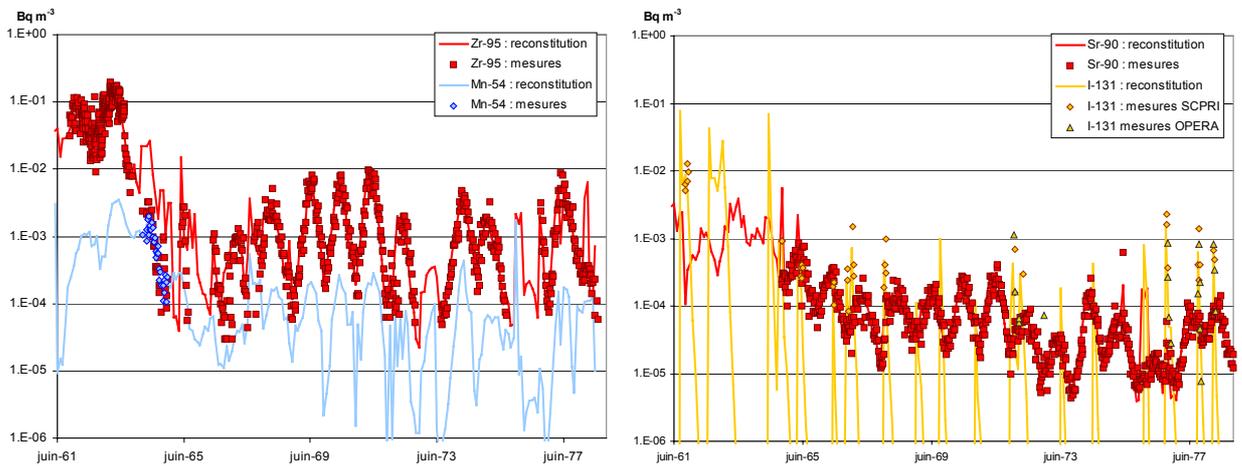


Figure C1 – Activité du ⁹⁵Zr, du ⁵⁴Mn, du ⁹⁰Sr et de l'¹³¹I dans l'air de 1961 à 1978 : séries chronologiques complètes reconstituées au pas de temps mensuel et mesures hebdomadaires au Vésinet.

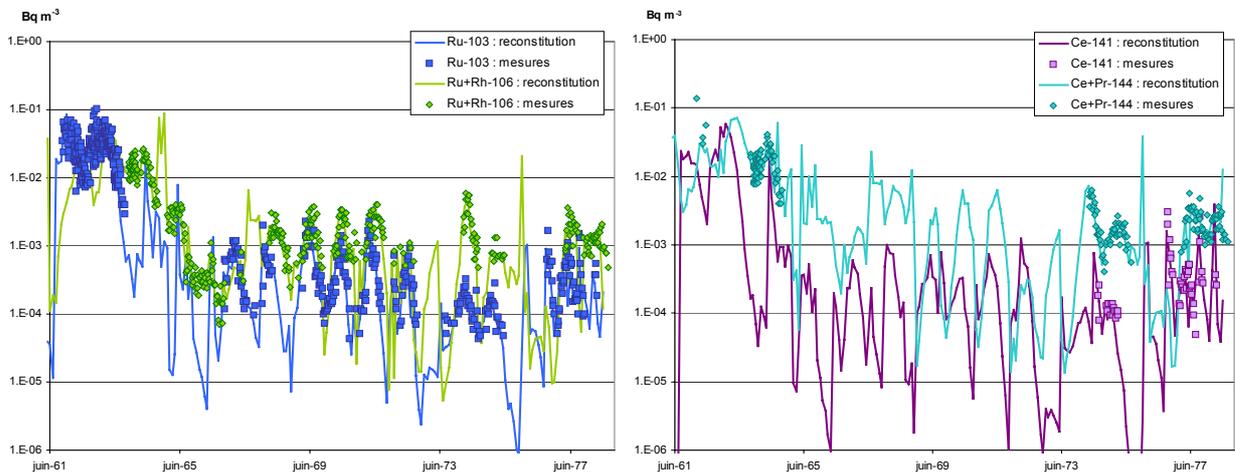


Figure C2 – Activité du ¹⁰³Ru, des ¹⁰⁶Ru+Rh, du ¹⁴¹Ce et des ¹⁴⁴Ce+Pr dans l'air de 1961 à 1978 : séries chronologiques complètes reconstituées au pas de temps mensuel et mesures hebdomadaires au Vésinet.

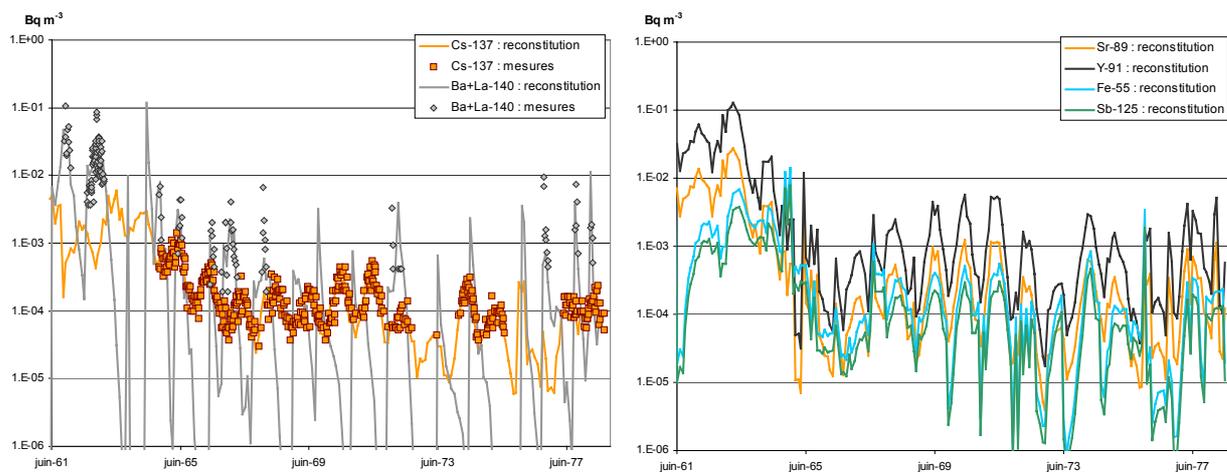


Figure C3 – Activité du ¹³⁷Cs, des ¹⁴⁰Ba+La, du ⁸⁹Sr, de l'⁹¹Y, du ⁵⁵Fe et de l'¹²⁵Sb dans l'air de 1961 à 1978 : séries chronologiques complètes reconstituées au pas de temps mensuel et mesures hebdomadaires au Vésinet.

ANNEXE D : VALEURS UTILISEES POUR LES PARAMETRES DES MODELES DE TRANSFERT DES RADIONUCLEIDES DANS LA CHAINE ALIMENTAIRE.

	¹⁰³ Ru	¹⁰⁶ Ru+Rh	⁹⁵ Zr+Nb	⁵⁴ Mn	¹⁴⁴ Ce+Pr	¹⁴¹ Ce	¹⁴⁰ Ba+La	¹³⁷ Cs	⁹⁰ Sr	¹³¹ I	⁸⁹ Sr	⁹¹ Y	⁵⁵ Fe	¹²⁵ Sb
Période physique	39,3 j	372,6 j	64 j	312,2 j	285 j	32,5 j	12,8 j	30 ans	28 ans	8 j	50,7 j	58,5 j	2,7 ans	2,8 ans
Légumes feuille														
Période effect. sols ⁽¹⁾	p.p.	p.p.	p.p.	p.p.	p.p.	p.p.	p.p.	10 ans	10 ans	p.p.	p.p.	p.p.	p.p.	p.p.
Rc/Rdt (m ² kg ⁻¹ frais)	< 0,1 >													
Ft	< 1 >													
Tb (jours)	< 7 >													
Tc (jours)	< 60 >													
h (cm)	< 20 >													
FTr (kg sec/kg ⁻¹ frais)	< 1E-2 >	1E-4	4E-2	< 1E-3 >	1E-2	5E-2	9,2E-2	2E-2	9,2E-2	1E-2	2E-4	1E-5		
Légumes racine														
Période effect. sols ⁽¹⁾	p.p.	p.p.	p.p.	p.p.	p.p.	p.p.	p.p.	15 ans	12 ans	p.p.	p.p.	p.p.	p.p.	p.p.
Rc/Rdt (m ² kg ⁻¹ frais)	< 0,1 >													
Ft	< 0,05 >	0,2	< 0,05 >	0,2	0,05	0,2	< 0,05 >							
Tb (jours)	< 14 >													
Tc (jours)	< 180 >													
h (cm)	< 25 >													
FTr/μh (m ² kg ⁻¹ frais)	< 1,5E-2 >	1E-4	1,5E-2	< 1E-3 >	5E-3	1,5E-2	7E-2	2E-2	7E-2	1E-2	3E-4	5E-5		
Légumes fruit														
Période effect. sols ⁽¹⁾	p.p.	p.p.	p.p.	p.p.	p.p.	p.p.	p.p.	15 ans	12 ans	p.p.	p.p.	p.p.	p.p.	p.p.
Rc/Rdt (m ² kg ⁻¹ frais)	< 0,1 >													
Ft	< 0,05 >	0,15	< 0,05 >	0,15	0,05	0,15	< 0,05 >							
Tb (jours)	< 14 >													
Tc (jours)	< 120 >													
h (cm)	< 25 >													
FTr (kg sec/kg ⁻¹ frais)	< 7E-3 >	5E-5	5E-2	< 2E-2 >	3E-2	7E-3	9E-3	2E-2	9E-3	1E-2	3E-2	5E-6		
Céréales														
Période effect. sols ⁽¹⁾	p.p.	p.p.	p.p.	p.p.	p.p.	p.p.	p.p.	15 ans	12 ans	p.p.	p.p.	p.p.	p.p.	p.p.
Rc/Rdt (m ² kg ⁻¹ frais)	< 1 >													
Ft	< 0,01 >	0,15	< 0,01 >	0,2	0,15	0,15	< 0,01 >							
Tb (jours)	< 14 >													
Tc (jours)	< 120 >													
h (cm)	< 25 >													
FTr (kg sec/kg ⁻¹ frais)	< 4,3E-3 >	1E-4	2,6E-1	< 1E-3 >	1E-2	2E-2	7,5E-2	2E-2	7,5E-2	1E-2	4E-4	1E-2		
Herbe														
Période effect. sols ⁽¹⁾	p.p.	p.p.	p.p.	p.p.	p.p.	p.p.	p.p.	8 ans	6 ans	p.p.	p.p.	p.p.	p.p.	p.p.
Rc/Rdt (m ² kg ⁻¹ frais)	< 0,35 >													
Ft	< 1 >													
Tb (jours)	< 14 >													
Tc (jours)	< 90 >													
h (cm)	< 10 >													
FTr (kg sec/kg ⁻¹ frais)	< 1E-2 >	1E-4	1,5E-2	< 1E-3 >	5E-3	1E-3	2E-1	2E-2	2E-1	1E-2	3E-4	5E-5		
Lait														
	Consommation d'herbe fraîche (50 kg) d'avril à octobre – Pour les autres périodes, voir page 15													
FT (j/l)	< 1E-4 >	6E-7	1E-4	< 2E-5 >	5E-4	4,5E-3	1E-3	3E-3	1E-3	2E-5	3E-4	1E-4		
Viande														
	Consommation d'herbe fraîche (50 kg) d'avril à octobre – Pour les autres périodes, voir page 15t													
FT (j/kg)	< 1E-3 >	1E-5	5E-3	< 1E-3 >	5E-4	1,5E-2	3E-4	2E-3	3E-4	1E-3	1E-3	1E-3		

⁽¹⁾ la valeur n'est fournie que si elle est significativement différente de la période physique du radionucléide. Sinon, la mention « p.p. » apparaît.
⁽²⁾ La masse volumique du sol (μ) a été prise égale à 1400 kg sec m⁻³

ANNEXE E : RAPPORT MOYEN ENTRE LES VALEURS CALCULEES POUR LA CONTAMINATION DE LA CHAINE ALIMENTAIRE ET LES VALEURS MESUREES.

Rapport calc/ mes	¹⁰³ Ru	¹⁰⁶ Ru+Rh	⁹⁵ Zr+Nb	¹⁴⁴ Ce+Pr	¹⁴¹ Ce	¹⁴⁰ Ba+La	¹³⁷ Cs	⁹⁰ Sr	¹³¹ I	⁸⁹ Sr	Moy.
Légumes feuille											
moyenne	0,86	2,54	1,52	1,54	1,49		1,27	1,11			1,44
écart-type	1,23	3,85	3,26	2,67	3,79		2,92	0,52			
nombre de mesures	87	133	428	228	129		434	267			4 178
Légumes racine											
moyenne	0,24	0,43	0,43	0,54	0,12		1,02	1,05			1,02
écart-type	0,31	0,32	0,63	1,31	0,15		0,94	0,88			
nombre de mesures	6	9	27	21	9		386	1047			1 505
Légumes fruit											
moyenne	0,25		1,40	1,44	0,22		1,60	1,12			1,33
écart-type	0,20		2,12	1,27	0,12		1,55	0,74			
nombre de mesures	3		19	6	7		267	309			611
Fruits											
moyenne	0,19	2,46	0,83	1,51	0,20		0,80	1,20		0,86	0,91
écart-type	0,13	2,00	1,47	1,64	0,33		1,13	0,80		0,56	
nombre de mesures	19	5	34	31	22		160	69		16	356
Céréales											
moyenne							1,17	1,01			1,09
écart-type							0,48	0,33			
nombre de mesures							79	81			160
Herbe											
moyenne	1,56	2,11	1,54	0,65	3,44	0,51	1,05	1,11	0,23	0,91	1,27
écart-type	1,30	4,52	3,51	0,73	4,94	0,72	0,92	0,53	0,51	0,94	
nombre de mesures	254	68	538	34	18	84	501	305	75	4	1 881
Lait											
moyenne						0,73	1,07	1,06	1,34	1,78	1,35
écart-type						1,22	0,44	0,38	4,69	6,74	
nombre de mesures						50	114	214	806	290	1 474
Viande											
moyenne							0,96				0,96
écart-type							0,65				
nombre de mesures							118				118

Les valeurs présentées avec une trame gris foncé sont relatives à la Région parisienne uniquement, celles dans une trame gris clair au Bassin parisien élargi. Les valeurs présentées sur fond blanc sont relatives à des mesures recueillies dans d'autres régions ou sur la France entière.

ANNEXE F : ÉVOLUTION DE LA CONTAMINATION DES LEGUMES ET DES FRUITS ENTRE 1961 ET 1978. VALEURS CALCULEES POUR LA REGION PARISIENNE ET VALEURS MESUREES EN FRANCE.

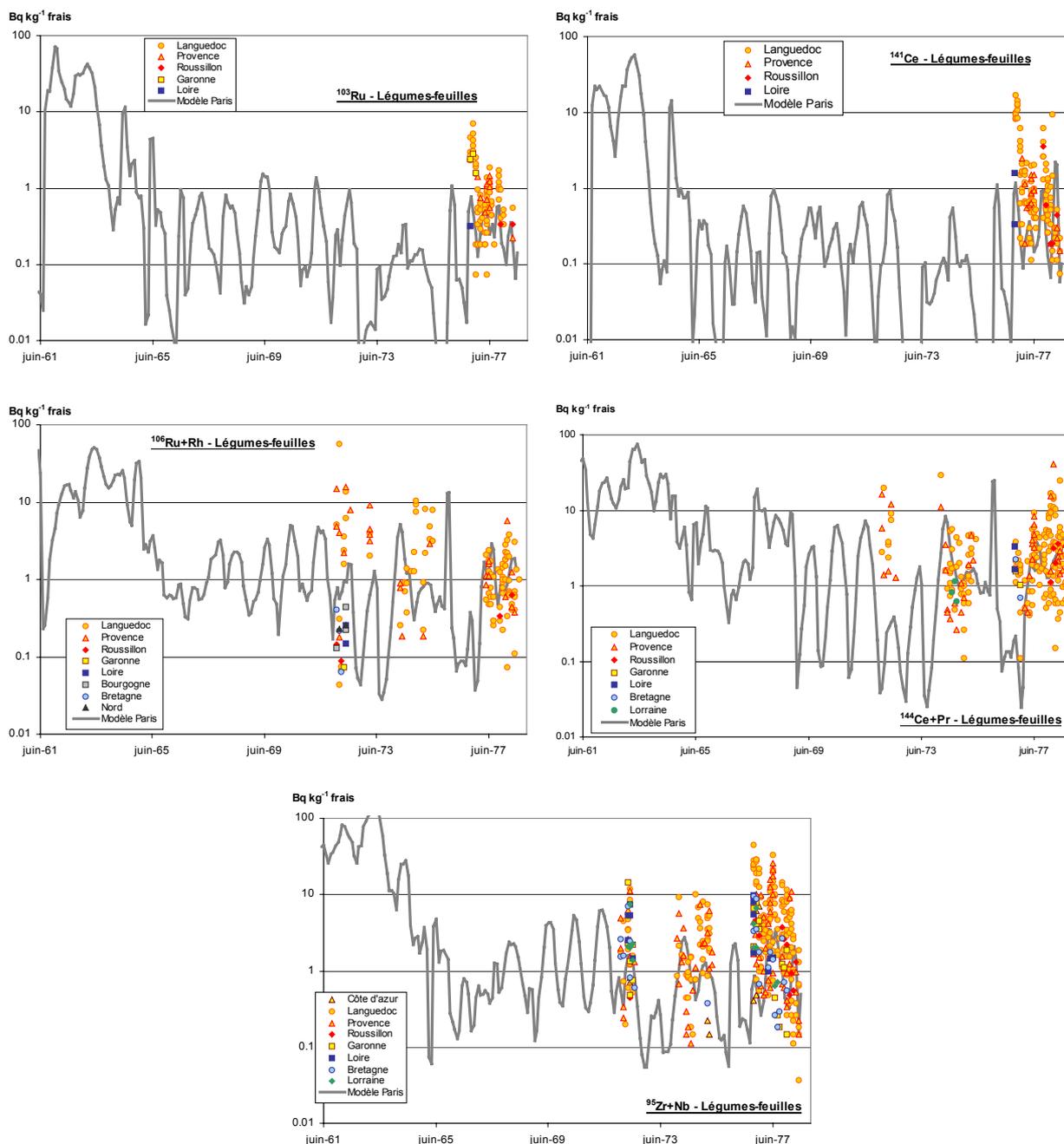


Figure F1 – Activités des radionucléides à vie courte dans les légumes-feuilles de 1961 à 1978 : valeurs mesurées en France et valeurs calculées pour la région parisienne.

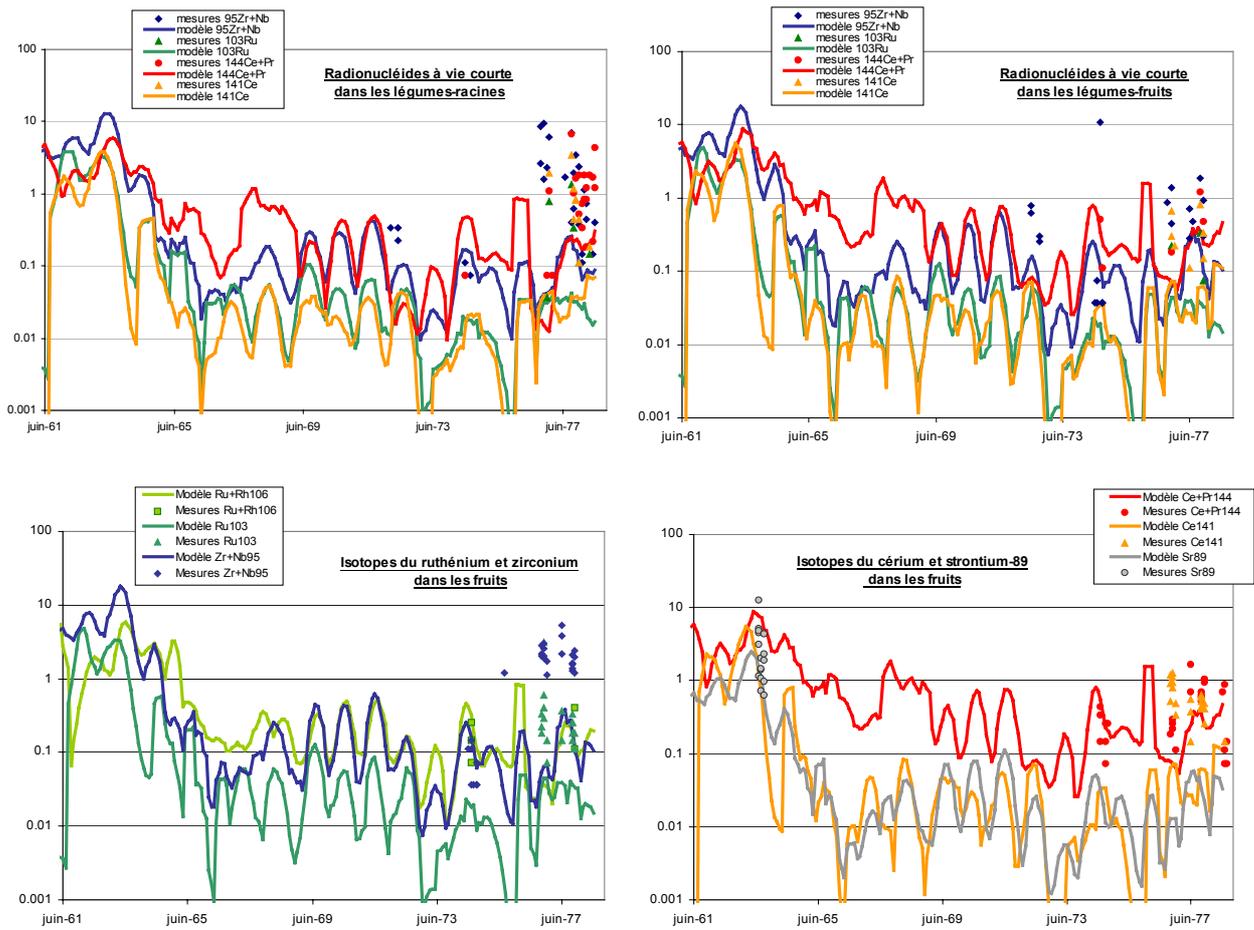


Figure F2 – Activités des radionucléides à vie courte dans les légumes-racines, les légumes fruits et les fruits de 1961 à 1978 : valeurs mesurées en Languedoc et Provence et valeurs calculées pour la région parisienne.

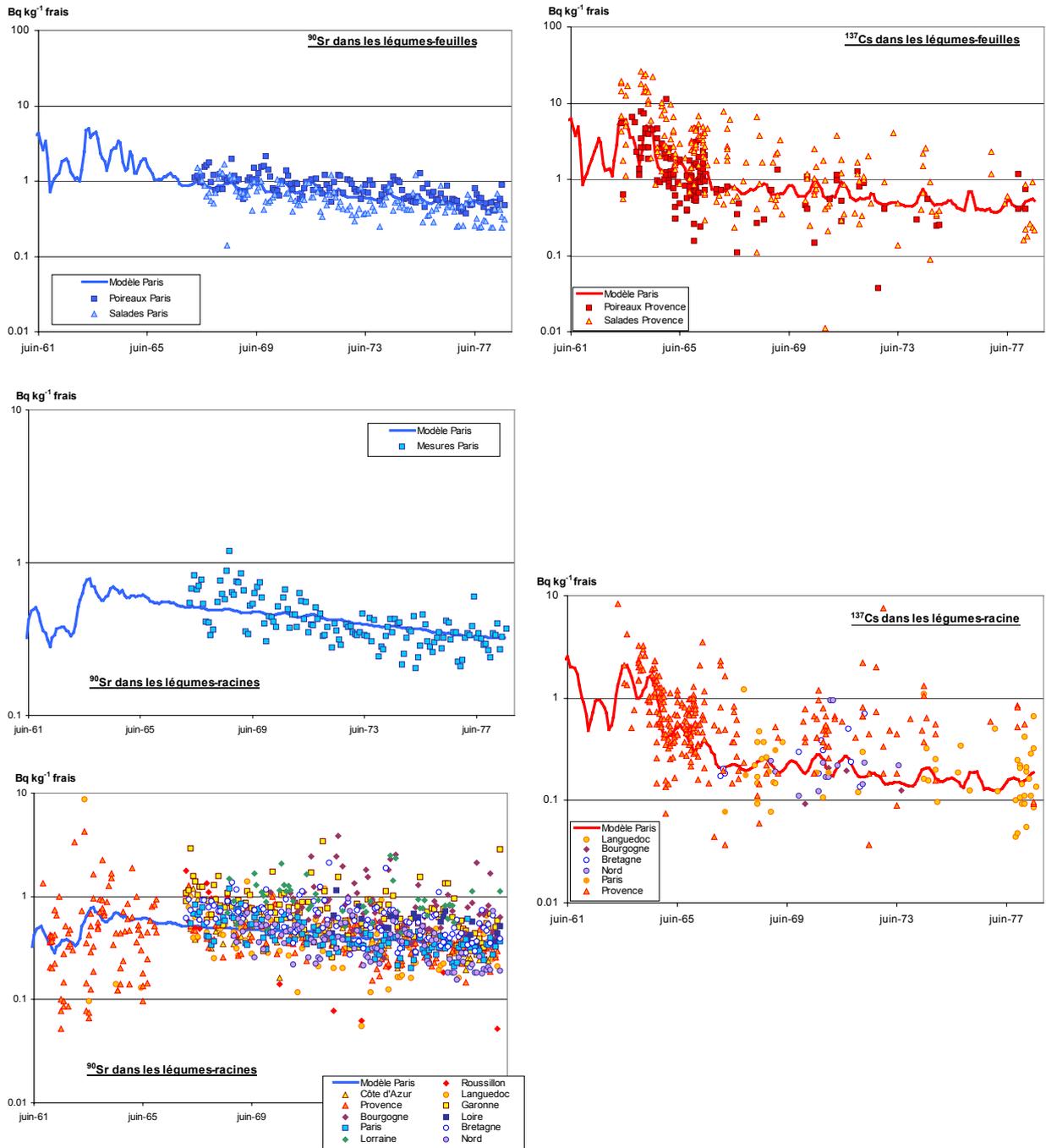


Figure F3 – Activités du ^{90}Sr et du ^{137}Cs dans les légumes-feuilles et les légumes racines de 1961 à 1978 : valeurs mesurées en France et valeurs calculées pour la région parisienne.

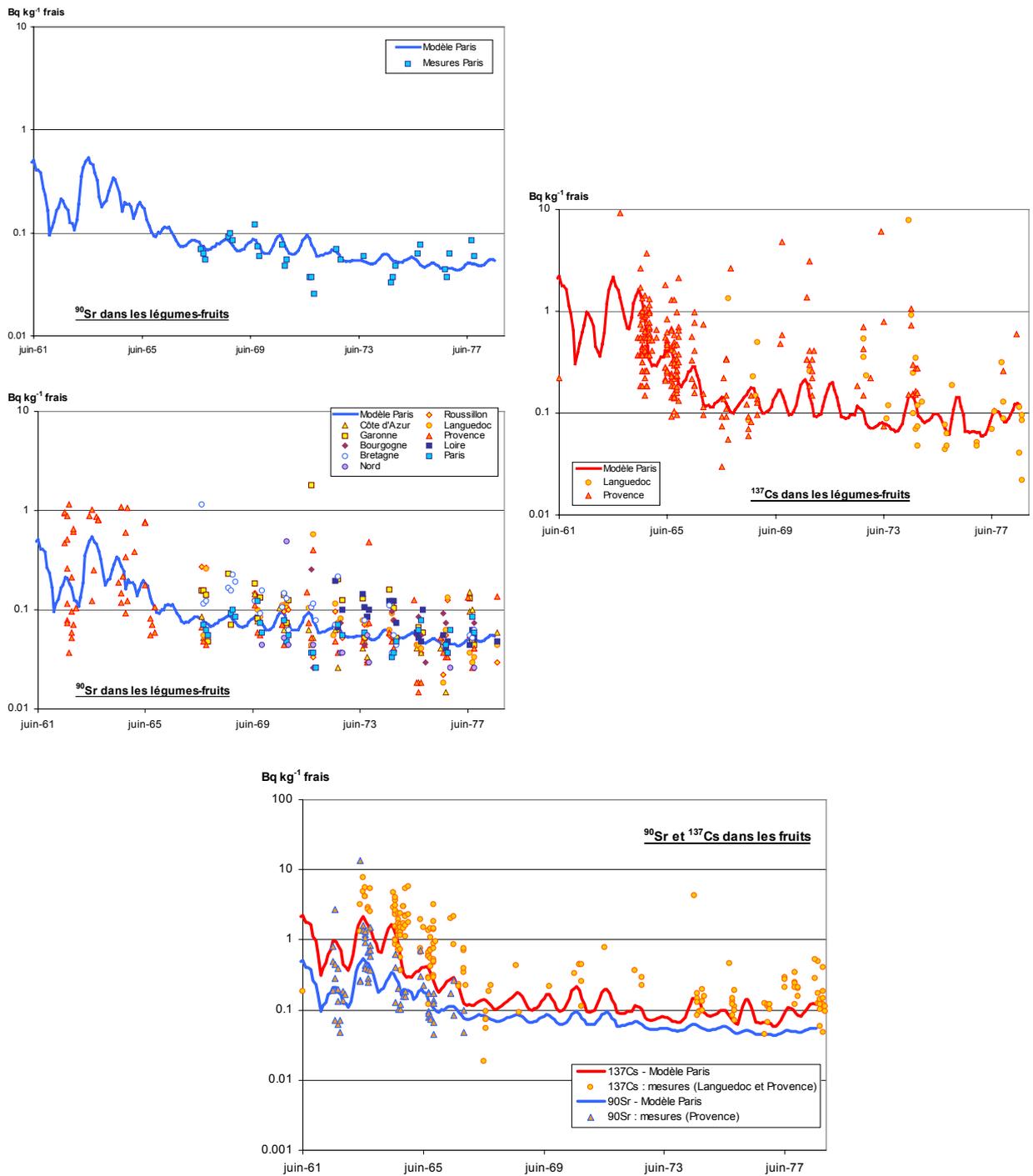


Figure F4 – Activités du ^{90}Sr et du ^{137}Cs dans les légumes-fruits et les fruits de 1961 à 1978 : valeurs mesurées en France et valeurs calculées pour la région parisienne.

ANNEXE G : ÉVOLUTION DE LA CONTAMINATION DES CEREALES EN FRANCE ENTRE 1961 ET 1978. VALEURS CALCULEES POUR PARIS ET MESURES.

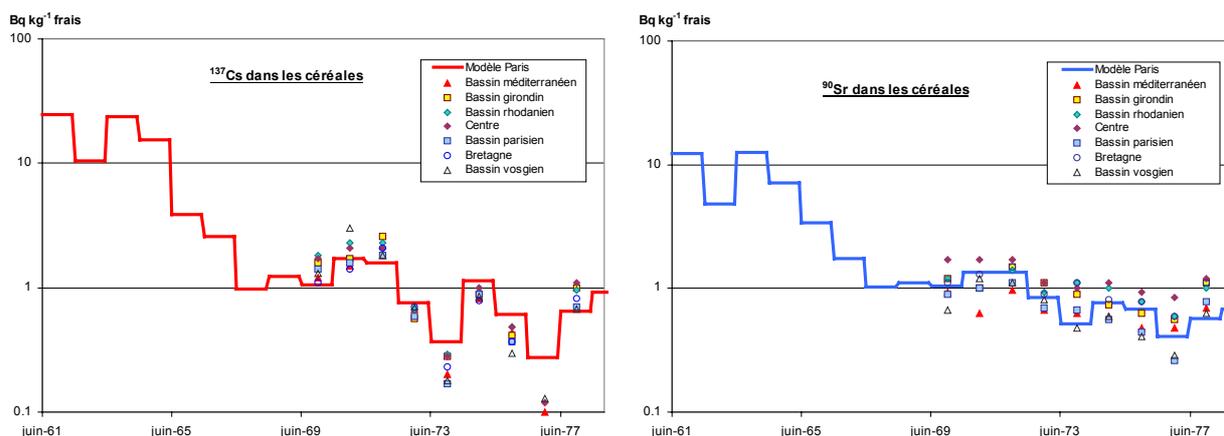


Figure G1 – Activités du ^{90}Sr et du ^{137}Cs dans les céréales de 1961 à 1978 : valeurs mesurées en France et valeurs calculées pour la région parisienne.

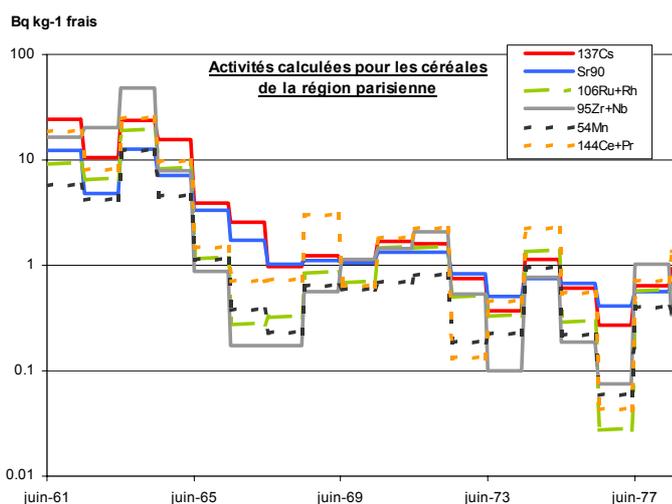


Figure G2 – Activités des radionucléides de période radioactive supérieure à 2 mois dans les céréales : valeurs calculées de 1961 à 1978 pour la région parisienne.

ANNEXE H : ÉVOLUTION DE LA CONTAMINATION DE L'HERBE EN FRANCE ENTRE 1961 ET 1978. VALEURS CALCULEES POUR PARIS ET MESURES.

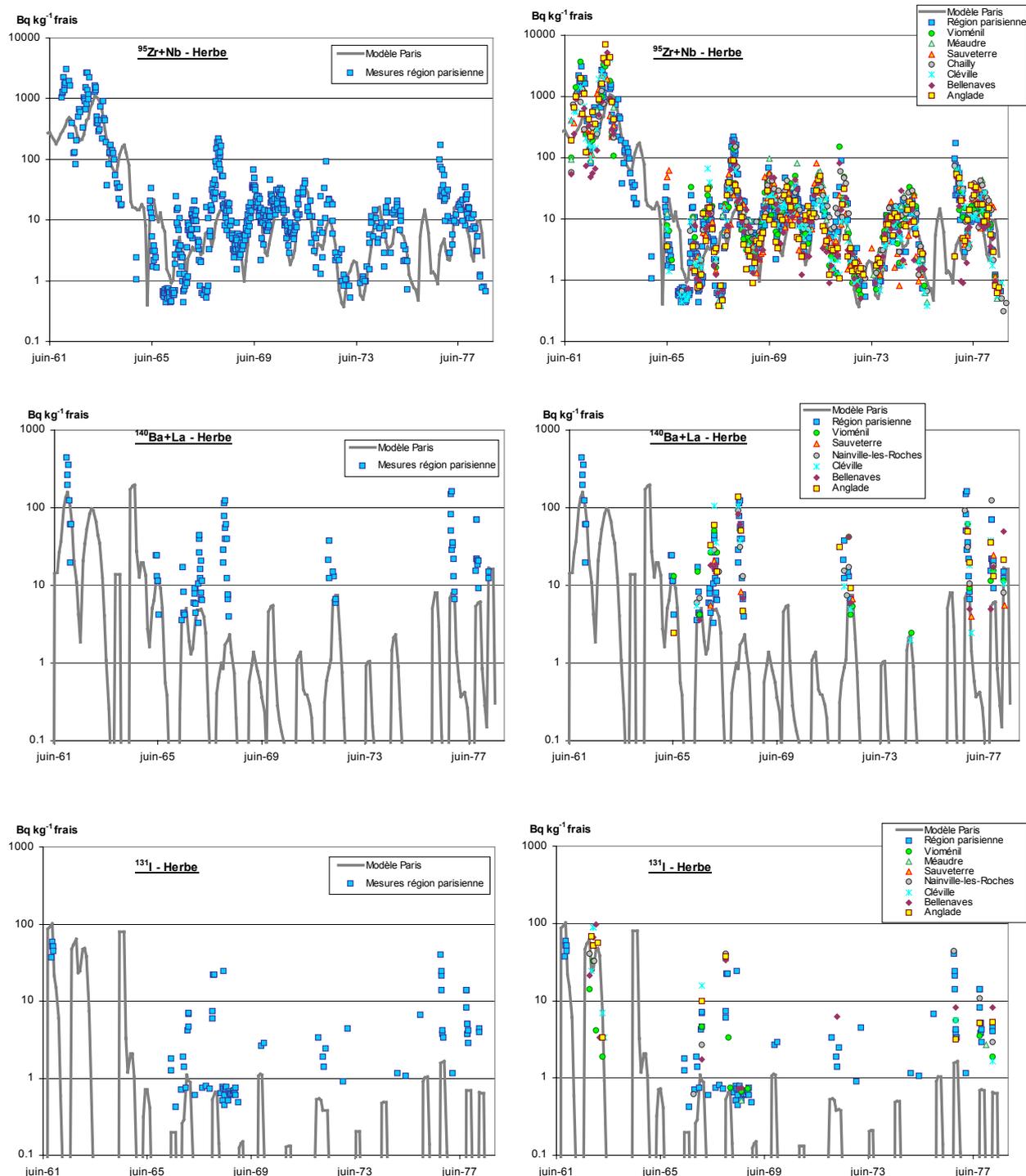


Figure H1 – Activités du zirconium, du baryum et de l'iode dans l'herbe de 1961 à 1978 : valeurs mesurées en France et valeurs calculées pour la région parisienne.

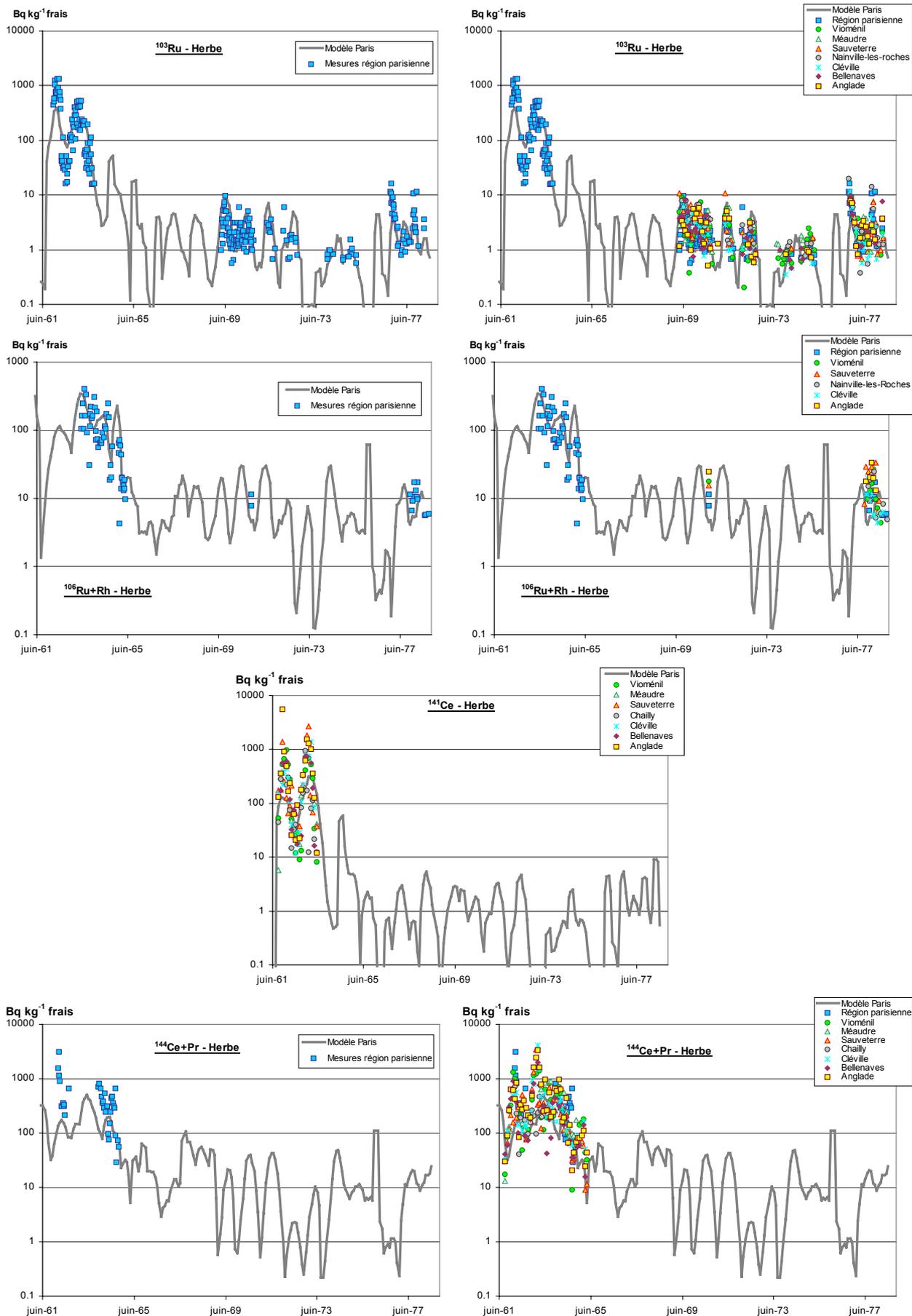


Figure H2 – Activités des isotopes du ruthénium et du cérium dans l’herbe de 1961 à 1978 : valeurs mesurées en France et valeurs calculées pour la région parisienne.

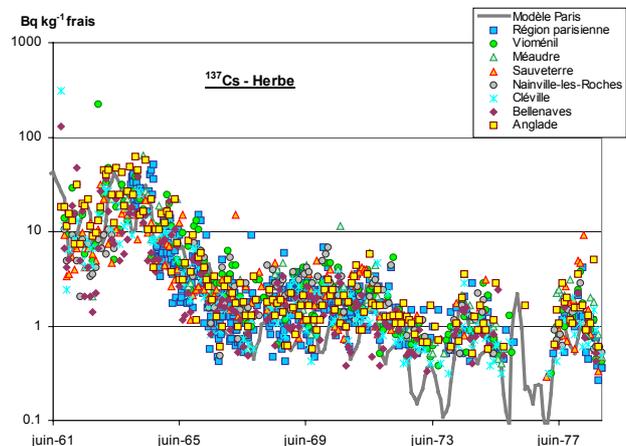
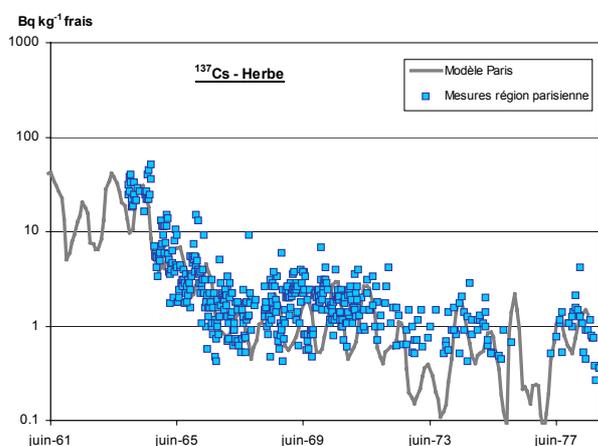
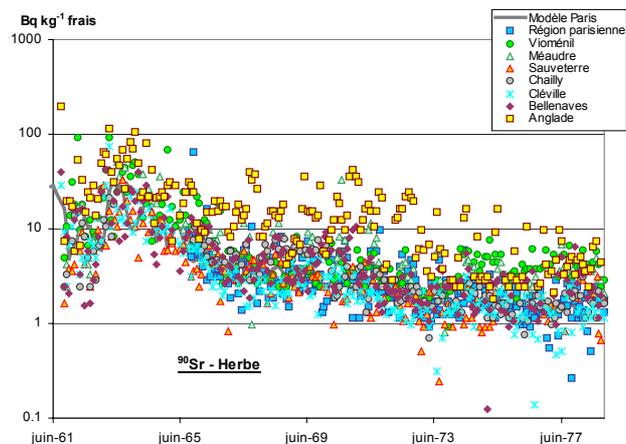
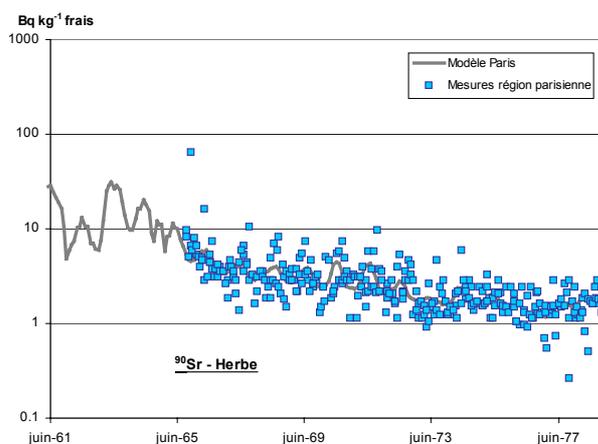
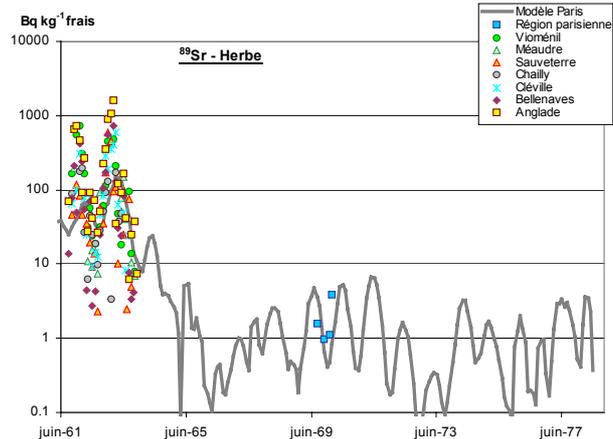
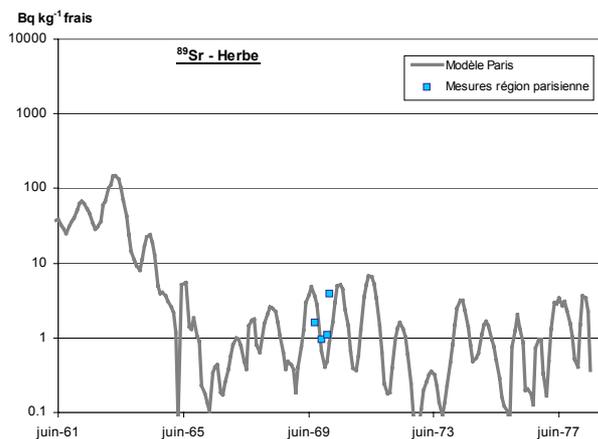


Figure H3 – Activités des isotopes du strontium et du césium dans l'herbe de 1961 à 1978 : valeurs mesurées en France et valeurs calculées pour la région parisienne.

ANNEXE I : ÉVOLUTION DE LA CONTAMINATION DU LAIT DE VACHE EN FRANCE ENTRE 1961 ET 1978. VALEURS CALCULEES POUR PARIS ET MESURES.

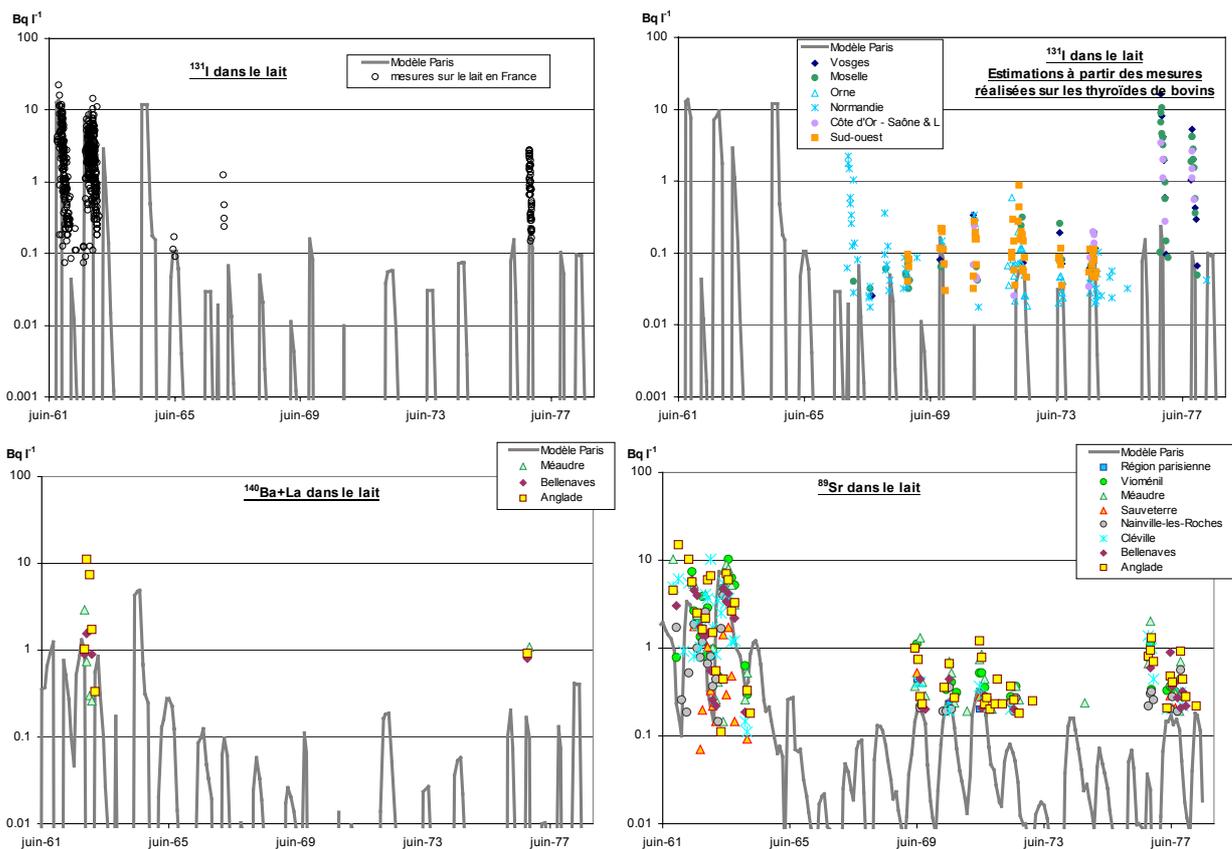


Figure I1 – Activités des radionucléides à vie courte décelés dans le lait en France de 1961 à 1978. Valeurs calculées pour l'activité de ces mêmes radionucléides en région parisienne.

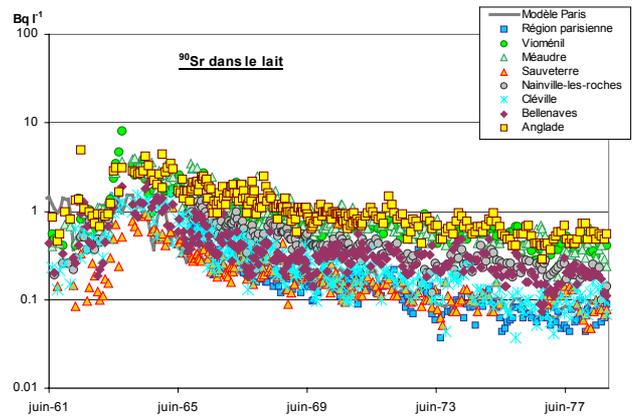
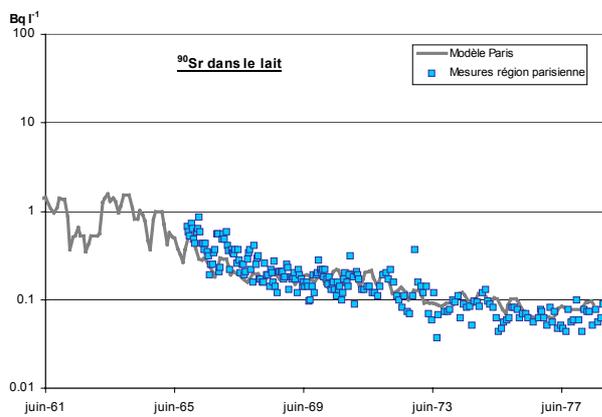
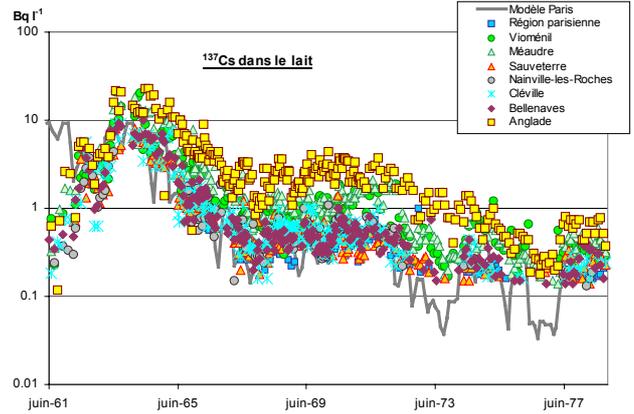
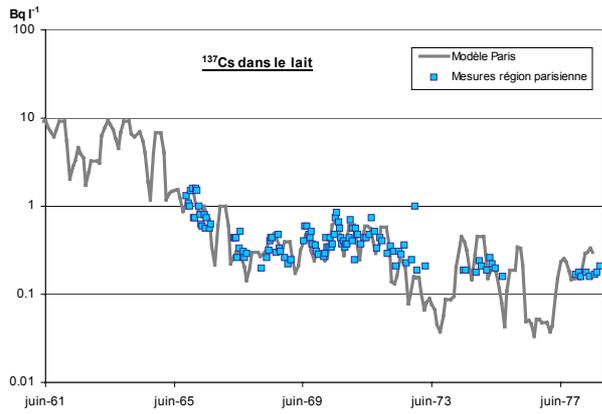


Figure I2 – Activités du ^{137}Cs et du ^{90}Sr dans le lait en France de 1961 à 1978.
Valeurs mesurées en France et calculées pour la région parisienne.

ANNEXE J : ÉVOLUTION DE LA CONTAMINATION DE LA VIANDE DE BOEUF EN FRANCE ENTRE 1961 ET 1978. VALEURS CALCULEES POUR PARIS ET MESURES.

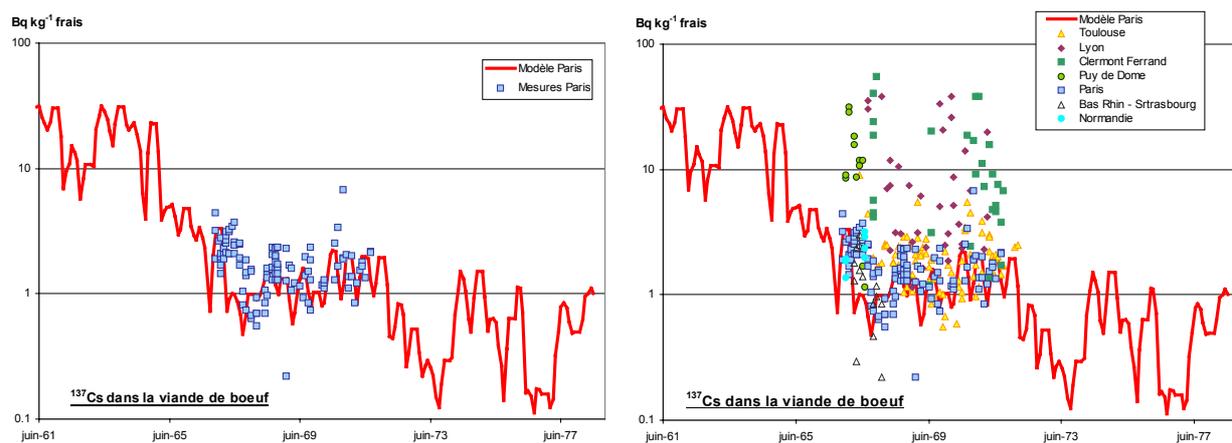


Figure J1 – Activité du ¹³⁷Cs dans la viande de bœuf de 1961 à 1978 : valeurs mesurées en France et valeurs calculées pour la région parisienne.