



**RÉPUBLIQUE
FRANÇAISE**

*Liberté
Égalité
Fraternité*

IRSN

INSTITUT DE RADIOPROTECTION
ET DE SÛRETÉ NUCLÉAIRE

RAPPORT

PERTINENCE DE LA DOCTRINE POST ACCIDENTELLE POUR DES ACCIDENTS AUTRES QUE CEUX POUVANT SURVENIR SUR UN CNPE

**CAS DE REJETS D'EMETTEURS ALPHA, À PARTIR DE
L'EXEMPLE DU PLUTONIUM**

Pôle Santé Environnement

Rapport IRSN N° 2021-00248

RÉSUMÉ

Mots clés : plutonium, post accidentel, doctrine, mesure homme, mesure environnement

En 2019, le CODIRPA a émis de nouvelles recommandations sur la doctrine post-accidentelle, recommandations établies en premier lieu pour des accidents sur des CNPE. L'ASN a demandé à l'IRSN d'examiner dans quelle mesure ces recommandations restent pertinentes dans le cas de rejets accidentels de radionucléides émetteurs α , à partir de l'exemple du plutonium.

Le rapport fait état d'éléments de connaissance sur le comportement du plutonium dans l'environnement et dans l'organisme, sur la métrologie des radionucléides émetteurs α dans l'environnement et dans l'organisme ainsi que sur les voies d'exposition contribuant à la dose. Il comporte des éléments de retour d'expérience d'accidents passés ayant conduit à un rejet de plutonium dans l'environnement. Enfin la robustesse des recommandations du CODIRPA dans le cas de rejets accidentels de plutonium est discutée.

SUMMARY

Key-words : plutonium, post-accidental policy, human and environmental metrology

In 2019 the CODIRPA committee issued new recommendations related to post-accident policy, established in the first place for nuclear power plant accidents. ASN requested IRSN to analyse to what extent these recommendations remain relevant in case of accidental releases of alpha emitters, using the example of plutonium.

The report provides information on the environmental and human behaviour of plutonium, on the metrology of α -emitters in the environment and in the human body, and on the contributions of the different exposure pathways to the dose. It includes information about past accidents that caused a release of plutonium into the environment. Finally, the applicability of the CODIRPA recommendations to accidents with plutonium releases is discussed.

TABLE DES MATIÈRES

| | | |
|------------|---|-----------|
| 1 | INTRODUCTION..... | 9 |
| 2 | LE PLUTONIUM | 10 |
| 3 | INSTALLATIONS OU TRANSPORTS CIVILS POUVANT ÊTRE CONCERNÉS PAR DES REJETS ACCIDENTELS DE PLUTONIUM..... | 10 |
| 4 | PLUTONIUM ET ENVIRONNEMENT | 11 |
| 4.1 | Les éléments alpha dans l'environnement et leur comportement dans les différentes matrices..... | 11 |
| 4.1.1 | Activités massiques et surfaciques dans l'environnement français métropolitain..... | 11 |
| 4.1.2 | Mobilité dans le sol..... | 12 |
| 4.1.3 | Remise en suspension | 12 |
| 4.1.4 | Transfert dans le milieu aquatique continental | 13 |
| 4.1.5 | Transfert dans le milieu aquatique marin | 13 |
| 4.1.6 | Transferts aux végétaux | 13 |
| 4.1.7 | Transferts aux animaux terrestres | 14 |
| 4.2 | Les moyens et les capacités de mesures des éléments alpha pour les matrices environnementales et les aliments..... | 14 |
| 4.2.1 | Moyens de mesure | 14 |
| 4.2.2 | Stratégie de mesure | 16 |
| 4.2.3 | Les laboratoires hors IRSN potentiellement mobilisables..... | 17 |
| 5 | IMPACT À L'HOMME | 17 |
| 5.1 | Comportement dans l'organisme et toxicité chez l'homme | 18 |
| 5.1.1 | Devenir du plutonium et de l'américium après incorporation | 18 |
| 5.1.2 | La toxicité du plutonium et de l'américium | 18 |
| 5.2 | Les moyens de mesures de la population et les traitements..... | 19 |
| 5.2.1 | Mesure de la contamination interne..... | 19 |
| 5.2.2 | Les traitements suite à une contamination par le plutonium ou l'américium..... | 20 |
| 5.3 | Les voies d'exposition et leurs contributions..... | 21 |
| 5.3.1 | Exemples d'évaluation des doses susceptibles d'être reçues | 21 |
| 5.3.2 | L'exposition externe | 23 |
| 5.3.3 | Ingestion d'aliments contaminés | 24 |
| 5.3.4 | Ingestion involontaire de sol et de poussière | 24 |
| 5.3.5 | Remise en suspension | 24 |

| | | |
|------------|--|-----------|
| 6 | RETOUR D'EXPÉRIENCE DES ACCIDENTS PASSÉS AYANT CONDUIT À UN REJET DE PLUTONIUM..... | 25 |
| 6.1 | Accident de Palomares..... | 26 |
| 6.1.1 | Cartographie de la contamination..... | 26 |
| 6.1.2 | Décontamination des terrains et gestion des déchets après l'accident | 27 |
| 6.1.3 | Surveillance environnementale..... | 28 |
| 6.1.4 | Actions de protection et de surveillance de la population..... | 29 |
| 6.1.5 | Restrictions de mise sur le marché..... | 29 |
| 6.2 | Accident de Thulé | 29 |
| 6.2.1 | Cartographie de la contamination..... | 30 |
| 6.2.2 | Actions de protection et de surveillance des populations | 30 |
| 6.2.3 | Action de réduction de la contamination..... | 31 |
| 6.2.4 | Surveillance environnementale..... | 31 |
| 7 | PERTINENCE DE LA DOCTRINE POST-ACCIDENTELLE DANS LE CAS DE REJETS DE PLUTONIUM, IDENTIFICATION DES POINTS NÉCESSITANT RÉFLEXION | 32 |
| | SYNTHÈSE | 36 |
| | GLOSSAIRE..... | 38 |
| | RÉFÉRENCES | 39 |
| | ANNEXES | 41 |

TABLE DES FIGURES ET DES TABLEAUX

Figures

| | |
|---|----|
| Figure 1 : Dépôts de plutonium 239+240 en France métropolitaine au terme des essais nucléaires atmosphériques..... | 12 |
| Figure 2 : Schéma des analyses des émetteurs α réalisables sur le terrain et en laboratoire (Il est entendu par mesures directes, une mesure faite sans prélèvement de matière) . | 15 |
| Figure 3 : Localisation de Palomares | 26 |
| Figure 4 : Palomares - Zone d'impact (W pour « weapon ») [22] | 26 |
| Figure 5 : Palomares - Niveaux de contamination en 1966 [22] | 27 |
| Figure 6 : Palomares - Niveaux de contamination du sol de surface en 2007 [22]. Territoires expropriés (trait bleu) et territoires soumis à des restrictions (trait rouge) (\$6.1.4)..... | 28 |
| Figure 7 : Thulé - Localisation du crash | 30 |
| Figure 8 : Thulé - Niveaux de contamination du plutonium observés [25]..... | 30 |
| Figure 9 : Thulé - Photo aérienne du site accidenté..... | 30 |

Tableaux

| | |
|---|----|
| Tableau 1 : Doses susceptibles d'être reçues les deux premières années suivant la fin des rejets pour l'adulte et l'enfant de 2-7 ans | 21 |
| Tableau 2 : Mise en perspective de la dose reçue pendant le passage du panache (phase d'urgence) avec celles reçues les deux années suivant les rejets (phase post-accidentelle)..... | 23 |
| Tableau 3 : Évaluation de la dose externe selon le budget temps..... | 23 |
| Tableau 4 : Évolution de la dose inhalation par remise en suspension selon le budget temps pour un adulte | 25 |
| Tableau 5 : Évaluation de la dose inhalation par remise en suspension pour un adulte et un coefficient de remise en suspension évolutif | 25 |

1 INTRODUCTION

Dans le cadre de ses travaux engagés en 2005, le CODIRPA¹ a publié en 2012 des éléments de doctrine pour la gestion de la phase post-accidentelle d'un accident nucléaire [1].

L'accident de Fukushima et le retour d'expérience des exercices de crise ont conduit le CODIRPA à entamer une démarche de mise à jour de ces éléments de doctrine, en travaillant notamment sur un scénario conduisant à un rejet de longue durée sur un CNPE, et à proposer en 2019 de nouvelles recommandations pour la doctrine post-accidentelle appliquées à un rejet de CNPE [2]. L'évaluation de la pertinence de cette nouvelle doctrine pour des rejets autres que ceux susceptibles de se produire sur un CNPE va faire l'objet d'un nouveau groupe de travail (GT) au sein du CODIRPA.

Afin d'alimenter ce groupe de travail, l'IRSN a été saisi par l'ASN (cf. saisine figurant en annexe 1) pour réaliser une analyse de la pertinence de la doctrine dans le cas de rejets accidentels provenant d'autres installations que les CNPE et fournir aux membres du GT une base d'information permettant d'entrer dans le sujet. Cette première saisine porte sur le cas des rejets d'émetteurs α , avec pour exemple le plutonium, et demande plus précisément à l'IRSN :

- de recenser les installations pouvant être concernées par des rejets accidentels de plutonium ;
- de préciser les voies de transfert du plutonium dans l'environnement (transfert dans l'eau et dans les productions agricoles) et les moyens et capacités disponibles de mesure du plutonium dans les aliments et les matrices environnementales ;
- de préciser les effets sanitaires du plutonium sur l'homme et les conséquences à long terme, ainsi que les normes actuelles de protection, dans l'objectif d'avoir des éléments pertinents pour la révision de la doctrine ;
- d'analyser la pertinence de la doctrine post-accidentelle, à savoir l'identification des points de la doctrine post-accidentelle (dans sa version de 2019) qui nécessitent une réflexion du GT pour les rejets de plutonium en tenant compte du retour d'expérience des accidents et exercices passés.

Après la présentation d'éléments généraux sur le plutonium au chapitre 2, le chapitre 3 précise le type d'installations civiles² pouvant être concernées par des rejets accidentels de plutonium. Le chapitre 4 fait état des connaissances sur le comportement du plutonium dans les différents compartiments de l'environnement et les moyens de mesure disponibles pour évaluer les niveaux de contamination. Le chapitre 5 présente les effets sanitaires du plutonium sur l'homme, ses conséquences à long terme et les voies d'exposition. Le chapitre 6 expose le retour d'expérience de deux accidents ayant conduit à des rejets de plutonium dans l'environnement à la fin des années 1960. Enfin, à partir des différentes informations des précédents chapitres, le chapitre 0 propose une analyse de la pertinence de la doctrine post-accidentelle (dans sa version de 2019) dans le cas de rejets de radionucléides émetteurs alpha.

Les différentes annexes complètent les informations présentées dans différents chapitres du rapport.

¹ Une table des abréviations est disponible en fin de rapport.

² Le présent rapport ne traite pas le cas des installations de défense.

2 LE PLUTONIUM

Le plutonium, qui appartient à la famille des actinides transuraniens, se présente sous la forme d'un métal argenté qui s'oxyde au contact de l'air (Annexe 2). Ses isotopes sont tous radioactifs. Les isotopes principaux 238, 239 et 240 du plutonium émettent des rayonnements α de 5 MeV environ et des rayons X faiblement énergétiques (14-22 keV, 4,6 – 11 %). Le plutonium 241 est un émetteur beta, mais dont le descendant, l'américium 241, est un émetteur α plus irradiant que les isotopes 238, 239 et 240 du plutonium car il émet un rayonnement gamma (60 keV, 36 %) plus énergétique que les rayons X émis par ces derniers. Leurs périodes radioactives sont longues, de plusieurs années à plusieurs centaines de milliers d'années.

Le plutonium se caractérise par une très forte radiotoxicité³ (classe 1) [3] liée à son incorporation dans l'organisme. Il est produit artificiellement par l'homme (il existe cependant du plutonium d'origine naturelle, probablement apparu lors de la création de la Terre, est présent à l'état de trace).

Découvert en 1941 [4], le plutonium 239 est le principal composant de la bombe « Fat Boy » lancée au-dessus de Nagasaki en 1945. Au-delà de son utilisation à des fins de défense, des travaux français ont conduit dans les années 1990 à la mise en œuvre du recyclage du plutonium 239 pour créer du combustible MOX (Mélange d'Oxydes de plutonium et d'uranium), pour utilisation dans les réacteurs à eau sous pression.

Les propriétés thermiques du plutonium et la période radioactive de l'isotope 238 ont conduit à l'utiliser comme source d'énergie à bord de satellites ou de sondes spatiales, tels la sonde voyager 1, lancée en 1977 pour exploiter l'espace au-delà du système solaire, la sonde New Horizon lancée à proximité de Pluton, le robot Rover Curiosity ou le Perseverance Mars Rover dernièrement arrivé sur Mars. Aujourd'hui l'utilisation du plutonium 238 pour l'exploration spatiale fait face à sa disponibilité limitée, les stocks diminuant et son processus de production étant onéreux.

Dans le cadre d'un accord entre Alcatel, Metronic et le Commissariat à l'Energie Atomique, le premier stimulateur cardiaque au plutonium 238 a été implanté au début des années 1970 et jusqu'au début des années 1980. En 2009, certains de ces patients étaient toujours porteurs d'un pacemaker alimenté par du plutonium 238.

3 INSTALLATIONS OU TRANSPORTS CIVILS POUVANT ÊTRE CONCERNÉS PAR DES REJETS ACCIDENTELS DE PLUTONIUM

Le plutonium est l'une des matières valorisables présente dans les combustibles irradiés. En France, il est extrait dans les installations de traitement du combustible de La Hague puis va être utilisé pour l'élaboration de combustible MOX dans l'installation MELOX du centre de Marcoule.

Au cours des différentes étapes nécessaires à son recyclage, le plutonium va se retrouver sous différentes formes physiques, telles que des solutés ou des poudres, et sous des formes physico chimiques variées telles que des nitrates, des oxydes etc.

³ La radiotoxicité dépend de l'activité massique d'un radionucléide, très élevée dans le cas du plutonium comparativement à l'uranium par exemple. Les radionucléides sont classés en quatre classes en fonction de leur radiotoxicité : très forte (1), forte (2), modérée (3) et faible (4).

Au-delà de son utilisation pour la fabrication industrielle du combustible MOX, le plutonium est également présent au sein des laboratoires de recherche civils sur les sites de Cadarache (13), Marcoule (30), Saclay (91) ou Fontenay-aux-Roses (92).

Les compositions isotopiques et les quantités disponibles sont différentes selon les étapes du cycle ou des manipulations mises en œuvre dans les laboratoires de recherche.

Entre les différents sites où il est manipulé, le plutonium est transporté sur le domaine public, principalement dans des colis de type FS47 (poudre) ou FS41 (assemblage non irradié). D'autres colis circulant sur le territoire transportent du plutonium pour les besoins des travaux de R&D.

4 PLUTONIUM ET ENVIRONNEMENT

Aujourd'hui le plutonium observé dans l'environnement est majoritairement d'origine artificielle. Il a été dispersé dans l'environnement suite aux tirs d'armes nucléaires entre 1945 et 1975 (Annexe 2). Plus localement, des marquages sont observés suite aux accidents américains de pertes d'armes comme à Palomares en Espagne (1966) ou Thulé au Groenland (1968), mais également à proximité des sites de Windscale (UK, 1957), Tchernobyl (Ukraine, 1986) ou Fukushima (Japon, 2011) où du plutonium a été rejeté sous la forme de particules suivant des ampleurs et des phénoménologies différentes.

Dans l'environnement, l'origine du plutonium mesuré peut être identifiée à l'aide du rapport isotopique entre le plutonium 238 et le plutonium 239+240. Il permet notamment de différencier le plutonium imputable aux tirs d'armes nucléaires de celui imputable aux installations du cycle.

4.1 Les éléments alpha dans l'environnement et leur comportement dans les différentes matrices

Parmi tous les isotopes du plutonium, présents dans l'environnement, les isotopes 239 et 240 sont ceux qui présentent les activités mesurables les plus élevées. Les paragraphes qui suivent présentent les points clés du comportement du plutonium dans l'environnement. Pour plus de détail, le lecteur pourra se référer à l'annexe 2.

4.1.1 Activités massiques et surfaciques dans l'environnement français métropolitain

La figure 1 ci-dessous présente les dépôts de plutonium 239 et 240 en France métropolitaine au terme des essais nucléaires atmosphériques. En moyenne sur le territoire, le dépôt surfacique est de l'ordre d'une soixantaine de Bq/m² avec des dépôts pouvant dépasser très localement 200 à 300 Bq/m².

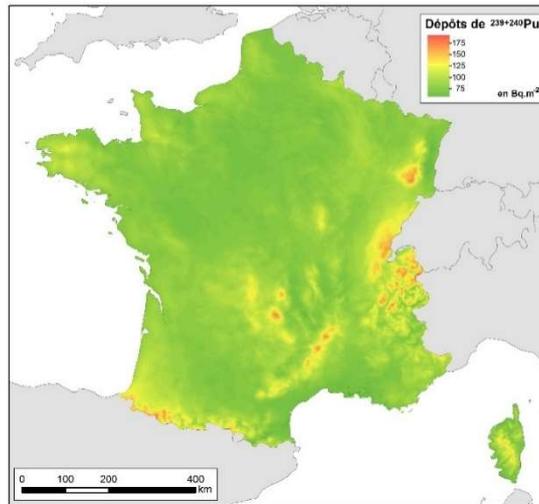


Figure 1 : Dépôts de plutonium 239+240 en France métropolitaine au terme des essais nucléaires atmosphériques

Au-delà des retombées des essais nucléaires atmosphériques, des activités plus élevées peuvent être mesurées à proximité d'installations mettant ou ayant mis en œuvre du plutonium (Annexe 2).

Selon le dernier bilan radiologique de l'environnement publié par l'IRSN [5], l'activité massique dans les sols pour le couple plutonium 239 et 240 est comprise entre 10 et 2 000 mBq/kg de sol sec. Dans les végétaux terrestres, les niveaux sont compris entre 0,005 et 50 mBq/kg de matière sèche.

Dans les eaux continentales, le bruit de fond moyen est de 0,01 Bq/m³ ; dans la Seine ou dans le Rhône les activités nucléaires passées conduisent à observer des activités légèrement plus élevées jusqu'à 0,5 Bq/m³. Ces activités volumiques peuvent fluctuer en fonction du débit ou de la quantité de matières en suspension transportée notamment lors d'épisodes de crue. Pour les végétaux ou les poissons de rivière, les niveaux d'activité observés sont très variables, les gammes s'étendent sur 6 ordres de grandeur (Tableau A2- 1 Annexe 2).

En milieu marin, dans les eaux de la Manche et de l'Atlantique, les niveaux d'activité sont plus élevés, du fait des opérations des usines de retraitement du combustible de La Hague et de Sellafield. Les niveaux varient entre 5 et 30 mBq/m³ pour le couple plutonium 239 et 240 dans la Manche et entre 6 et 9 mBq/m³ dans l'Atlantique. Les activités massiques en plutonium 239 et 240 dans les matières en suspension dans l'eau de mer sont comprises entre 1 et 10 Bq.kg⁻¹ en Manche. Le long des côtes françaises de la Manche, les concentrations sont actuellement inférieures à 1 Bq.kg⁻¹ sec (0,2 Bq.kg⁻¹ frais) dans les mollusques.

4.1.2 Mobilité dans le sol

Dans l'environnement, une fois déposé sur le sol, le plutonium est peu mobile. Sa forme oxydée, très peu soluble se fixe rapidement et sa forme soluble est rapidement adsorbée dans les sols argileux [4]. Sa migration dans le sol est faible (quelques dixièmes de centimètre par an). Le plutonium reste de fait présent dans les couches superficielles de sol de nombreuses années.

La mobilité des radionucléides dans les sols s'exprime via un coefficient de partage eau-sol (Kd en L/kg). L'AIEA fournit dans son Technical Report Series TRS 472 [6], une gamme de valeurs selon les radionucléides et les types de sol, issue d'une synthèse de publications scientifiques internationales.

4.1.3 Remise en suspension

Dans les mois qui suivent un dépôt significatif, la remise en suspension des radionucléides déposés contribue à entretenir un certain niveau d'activité dans l'air généralement à une échelle locale. Ce

niveau reste cependant bien inférieur à celui ayant existé au cours du passage du panache à l'origine du dépôt.

La remise en suspension est due aux effets du vent et peut également être causée par des activités anthropiques telles que les travaux agricoles, les actions de réduction de la contamination des territoires, voire la survenue d'incendies. Les particules remises en suspension vont être transportées sur des distances variables et se redéposer.

La remise en suspension est exprimée à l'aide d'un coefficient défini par le rapport de l'activité volumique dans l'air et de l'activité surfacique (dépôt). Connaissant le dépôt surfacique en un lieu, ce coefficient peut être estimé à l'aide de l'analyse de prélèvements d'air. L'analyse des coefficients de la littérature montre une diminution de la remise en suspension avec le temps suivant une loi exponentielle. En effet, les radionucléides sont, avec le temps, moins disponibles du fait du lessivage du sol et de la migration ou de la fixation du radionucléide dans les sols.

Le coefficient de remise en suspension étant dépendant du type de sol, de la végétation environnante, du temps écoulé depuis la formation des dépôts et des activités anthropiques, la gamme des valeurs de ce coefficient est très large, de 10^{-2} à 10^{-11} m^{-1} .

Pour un dépôt initial sur une surface marine, la remise en suspension sous forme d'embruns peut aussi contribuer à l'activité transportée dans l'air côtier.

4.1.4 Transfert dans le milieu aquatique continental

Dans les eaux douces superficielles, les formes insolubles dominent. En phase dissoute, le plutonium tend à s'associer avec des colloïdes. L'AIEA propose dans le TRS 472 [6] des coefficients de partage eau-sédiment (K_d).

Le transfert aux compartiments biotiques est peu documenté. Pour les poissons, les organes cibles sont le squelette et le foie ; les muscles ont en général des concentrations plus faibles.

L'AIEA propose dans le TRS 472 [6] des facteurs de concentration en L/kg pour les plantes aquatiques, les invertébrés et les poissons.

4.1.5 Transfert dans le milieu aquatique marin

Les concentrations en plutonium dans les sédiments dépendent de la surface spécifique, donc, en premier lieu, de l'abondance et de la nature de la fraction la plus fine, souvent riche en minéraux argileux, tout comme en milieu aquatique continental. Des coefficients de partage (K_d) de l'ordre de 10^5 à 10^6 L.kg^{-1} ont été souvent rapportés.

Les facteurs de concentration du plutonium obtenus in situ pour les organismes entiers sont dans les gammes suivantes : de 40 à 2 500 pour les crustacés, de 20 à 8 000 pour les mollusques, et de valeurs inférieures à 1 jusqu'à 600 pour les poissons. La distribution du plutonium n'est pas uniforme entre les différents organes et tissus d'un individu. Ainsi, chez les mollusques et les crustacés, les coquilles, les exosquelettes, les glandes digestives et les branchies sont les organes qui accumulent le plus ces isotopes alors que la chair présente en général les concentrations les plus faibles.

4.1.6 Transferts aux végétaux

Le transfert par voie foliaire a été très peu étudié. Quelques résultats montrent que le plutonium est faiblement incorporé et très peu mobile dans le végétal.

Le transfert racinaire du plutonium a été plus étudié, il est globalement plus faible d'environ deux ordres de grandeur comparativement à des radionucléides comme le césium. Le transfert racinaire s'exprime comme un rapport entre l'activité massique en poids sec du radionucléide dans la plante et l'activité massique en poids sec dans le sol.

L'AIEA fournit dans le TRS 472 [6] une gamme de valeurs du facteur de transfert selon les radionucléides, les types de sol et les productions végétales.

Cependant, il est à noter que, dans la majorité des études réalisées, au-delà de la première récolte qui suit la fin des rejets, dans le cas du plutonium, la contamination des végétaux semble plutôt imputable au phénomène de remise en suspension qu'au transfert racinaire vers la plante.

4.1.7 Transferts aux animaux terrestres

Le plutonium n'est pas un analogue chimique d'un élément essentiel au fonctionnement métabolique des animaux, de fait il est stocké dans le foie ou dans le squelette, après ingestion.

Le plutonium migrant peu dans le sol et se transférant relativement peu dans les végétaux, la contamination interne par ingestion de sol devient une voie de transfert significative pour les animaux. Par exemple, pour les bovins 5 % de la matière sèche de leur ration est constituée de sol, 10 % pour les moutons ou les chèvres.

Les transferts du plutonium aux productions animales (lait, viande, œufs), sont moins étudiés que pour le césium. Néanmoins, les facteurs de transfert observés pour le plutonium sont plus faibles d'environ deux ordres de grandeur comparativement au césium.

Le transfert aux productions animales est exprimé par un rapport entre l'activité massique ou volumique dans le produit animal (viande, lait, œufs) et l'activité quotidienne ingérée (Bq/j). L'AIEA fournit dans le TRS 472 [6] des valeurs selon les radionucléides et le produit animal.

4.2 Les moyens et les capacités de mesures des éléments alpha pour les matrices environnementales et les aliments

En cas de rejet de produits de fission dans l'environnement, majoritairement émetteurs de rayonnement gamma, il est facilement envisageable de caractériser *in situ* et de manière directe une partie du territoire contaminé à l'aide de spectromètres γ embarqués. Pour un dépôt d'émetteurs α pur, le rayonnement étant de faible portée, la mesure ne peut se faire en direct qu'au contact du sol ou à partir de prélèvement du dépôt par frottis et mesure *in situ*, ou de manière indirecte via le prélèvement d'échantillons de l'environnement ou de frottis puis leur analyse en laboratoire. En cas de pluie ou d'humidité de l'air, l'eau présente contribue à créer un écran qui peut limiter la mesure directe. Tout échantillon devra généralement être séché avant d'être analysé. En règle générale, les moyens disponibles pour la caractérisation des émetteurs de rayonnement α sont plus limités que pour le rayonnement gamma et, malgré le développement de nouvelles méthodes de mesure, les techniques employées restent plus complexes et plus longues à mettre en œuvre.

4.2.1 Moyens de mesure

En cas de rejet d'élément α pur, la mesure sur le terrain ne permettra pas de caractériser rapidement le territoire. En particulier, la mesure devra nécessairement se faire en laboratoire fixe pour des matrices telles que les végétaux ou les sédiments. Au-delà de la préparation de l'échantillon et de l'analyse en elle-même, l'acheminement jusqu'au laboratoire contribuera à allonger les délais nécessaires de restitution des résultats.

La figure 2 synthétise les analyses réalisables sur le terrain et en laboratoire pour des émetteurs α , des informations plus détaillées sont disponibles en annexe 3.

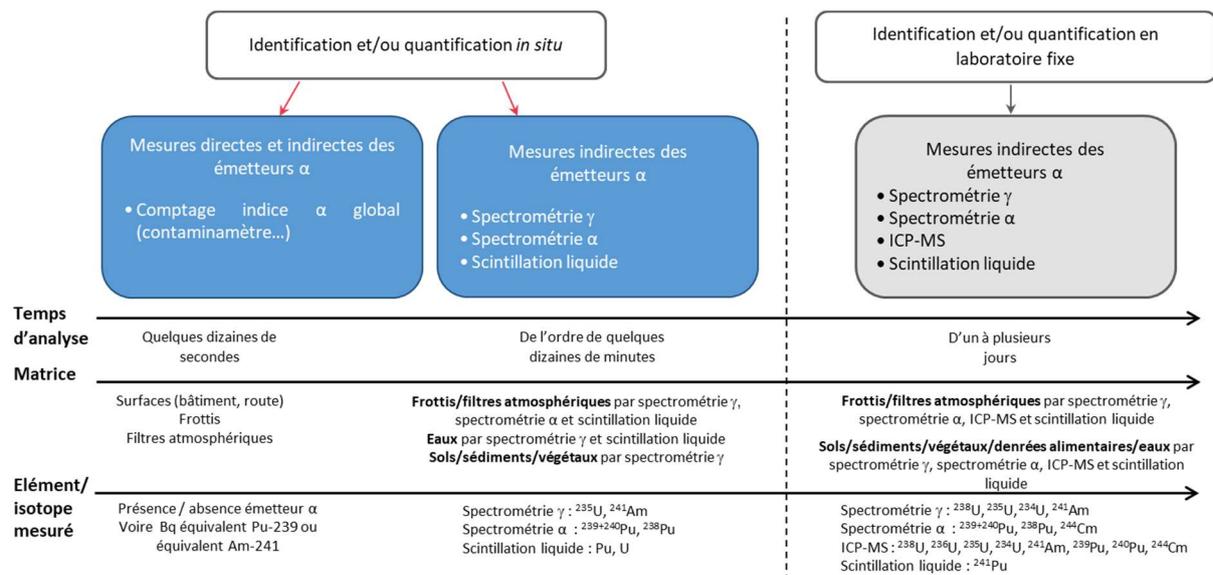


Figure 2 : Schéma des analyses des émetteurs α réalisables sur le terrain et en laboratoire (Il est entendu par mesures directes, une mesure faite sans prélèvement de matière)

4.2.1.1 Sur le terrain

Dans le cadre de sa mission en crise, l'IRSN met à disposition des pouvoirs publics, ses moyens humains et ses moyens métrologiques déployables sur le terrain. Pour la mesure des émetteurs α , plusieurs techniques sont disponibles et seront déployées en fonction des radionucléides rejetés.

Pour des rejets d'éléments émetteurs α pur, des mesures globales d'émetteurs α pourront être mises en œuvre directement sur le terrain au moyen de contaminamètres. Sur des surfaces planes et sèches, cette technique permettra, en quelques secondes, de détecter la présence de contamination α au-delà de $0,04 \text{ Bq/cm}^2$ (400 Bq/m^2)⁴. Au-delà de quelques centimètres de distance de la surface contaminée, le rayonnement α n'étant plus détectable, cette technique nécessite impérativement une bonne utilisation de l'instrument de mesure pour éviter les faux négatifs.

Ces mesures pourront être complétées par quelques mesures par spectrométrie α réalisées dans les camions laboratoire de l'IRSN pour déterminer le spectre des radionucléides rejetés. Ces mesures seront réalisées à partir de filtres aérosol ou de frottis après une étape de préparation (minéralisation des filtres ou frottis). Ce type de mesure permet de quantifier des dépôts de radionucléides émetteurs α au-delà de 70 Bq/m^2 et nécessite des délais importants, de l'ordre de la demi-journée.

Le dernier type de mesure réalisable sur le terrain pour mesurer l'activité globale α d'un liquide ou d'un frottis, est la scintillation liquide. Des évolutions techniques récentes des appareils de mesure transportables sur le terrain permettent dorénavant de distinguer les rayonnements α des rayonnements β . Pour le plutonium, cette technique permet de quantifier une activité globale au-delà de 200 Bq/m^2 dans un délai de 2 heures pour une dizaine d'échantillons.

En cas de présence d'émetteurs gamma dans le rejet, même en faible quantité, ceux-ci étant plus facilement mesurables que les émetteurs α , ils seront recherchés prioritairement afin de déterminer les zones impactées, soit par des mesures de spectrométrie gamma *in situ* fixe, soit par des mesures de frottis dans les camions laboratoire. Par exemple, la présence d'américium dans un rejet de plutonium permettra d'identifier et de quantifier plus rapidement les dépôts. La limite de détection

⁴ Niveau de propreté issu de l'ADR couramment utilisé en radioprotection opérationnelle.

des analyses dans le camion laboratoire dépendra du détecteur utilisé : elle est de 1 340 Bq/m² pour un détecteur de type NaI (iodure de sodium) et de 10 000 Bq/m² pour un détecteur de type HPGe (Germanium hyper-pur). Le délai de restitution des résultats est d'environ une heure pour une dizaine d'échantillons.

4.2.1.2 En laboratoire fixe

Contrairement au terrain, il sera possible d'analyser dans les laboratoires fixes l'ensemble des différentes matrices issues de l'environnement contenant des radionucléides émetteurs de rayonnement α , telles que les végétaux, le sol ou divers liquides. Les mesures en laboratoire permettront, en particulier, une détermination précise de la composition isotopique des radionucléides détectés.

Les moyens de mesures du rayonnement α sont du même type que ceux mis en œuvre dans les laboratoires mobiles, à savoir, la spectrométrie α , la scintillation liquide et la spectrométrie γ . Le traitement poussé des échantillons avant mesure permet d'atteindre des limites de détection bien plus faibles, en contrepartie d'un temps d'analyse significativement plus long. Le temps de mesure classique pour l'analyse des émetteurs de rayonnement α peut atteindre une dizaine de jours.

Cependant, l'IRSN a développé une méthode et une instrumentation couplant un ensemble de chromatographie ionique automatisé et un spectromètre de masse (ICP-MS) [7] permettant la mesure rapide et simultanée de ²³⁴U, ²³⁵U, ²³⁶U, ²³⁸U, ²³⁰Th, ²³²Th, ²³⁹Pu, ²⁴⁰Pu, ²³⁷Np, ²⁴¹Am, ²⁴⁴Cm. Cette technique ne permet pas la quantification de ²³⁸Pu mais elle peut être déduite, connaissant les autres isotopes, après une mesure du plutonium total, ou faire l'objet d'analyses complémentaires par spectrométrie α . Cette technique permet, pour les plutoniums ²³⁹Pu, ²⁴⁰Pu, ²⁴¹Pu, de réduire le temps d'analyse à une journée avec une capacité de 5 à 10 échantillons par jour. Pour les échantillons solides, les limites de détection sont de 0,4 Bq/kg_{centre} pour le ²³⁹Pu, 1,5 Bq/kg_{centre} pour le ²⁴⁰Pu et de 700 Bq/kg_{centre} pour le ²⁴¹Pu.

4.2.2 Stratégie de mesure

Une fois les rejets terminés, la mesure joue un rôle important dans l'évaluation de la contamination ambiante. La mesure est essentielle, en complément des capacités de modélisation du CTC de l'IRSN, pour proposer un zonage post accidentel.

Dans les cas de rejets avec des émetteurs gamma, le déploiement de spectromètres γ embarqués dans des dispositifs terrestres ou aériens couplés aux mesures et prélèvements *in situ* permettront une première cartographie des territoires en quelques jours. Dans le cas d'un rejet d'émetteurs α pur (sans émission gamma ou X accessibles à la mesure *in situ*) la caractérisation des territoires sera plus longue, du fait des moyens humains et matériels disponibles limités. Aussi, en cas de temps humide, la mesure directe n'étant pas possible, la caractérisation de la contamination des territoires prendra sensiblement plus de temps et nécessitera une stratégie de mesure distincte.

Les stratégies de mesure post-accidentelle en cas de rejet d'émetteurs α pur sont actuellement en cours de réflexion et nécessitent d'être testées. Cependant des points clefs sont identifiés ci-dessous.

4.2.2.1 Identification de la zone contaminée par temps sec en cas de rejet α pur

Par temps sec, l'identification de la zone contaminée sera réalisée par mesure directe à l'aide de contaminamètres. Afin de ne pas être tributaire du temps nécessaire pour trouver la tache de contamination et éventuellement engager des actions de protection sur les zones les plus habitées, il est proposé de contrôler en parallèle les zones urbaines pour déterminer si elles ont ou non été impactées par le rejet.

Les équipes déployées sur le terrain rechercheront la zone où le dépôt α total est supérieur à $0,04 \text{ Bq/cm}^2$ qui correspond à un niveau de propreté issu de la réglementation des transports des matières dangereuses (ADR) et habituellement utilisé en radioprotection opérationnelle. En termes de capacité, environ 5 points de mesure directe au contaminamètre pourraient être réalisés par heure et par équipe. Selon l'étendue de la tache de contamination, le temps d'identification minimal serait de 48 à 72 heures pour une zone comprise dans un rayon de 5 km autour de l'installation

Une fois la zone contaminée identifiée, la mesure par spectrométrie α de quelques frottis réalisés dans la zone, permettra de caractériser le spectre des radionucléides rejetés.

4.2.2.2 Identification de la zone contaminée par temps humide en cas de rejet α pur

Par temps humide le comptage direct de l'activité globale est impossible. Une solution pourrait être de réaliser des frottis dans des lieux abrités et ouverts (auvent, préau ...). Une autre possibilité serait de réaliser des frottis et de les sécher avant comptage ou de les mesurer par scintillation liquide. Cependant dans tous ces cas, il sera seulement possible d'avoir une identification de présence ou non de contamination, la quantification de l'activité surfacique en Bq/m^2 réellement déposée étant quasi impossible.

La nécessité de sécher les frottis avant de les compter, conduit potentiellement à multiplier par deux les délais de restitution des résultats (2 points de mesure par heure environ).

4.2.2.3 Mesure de végétaux

La mesure de végétaux sera réalisée uniquement dans les laboratoires fixes. Avec la méthode rapide mise en œuvre par l'IRSN, 5 à 10 échantillons pourront être analysés par jour après leur acheminement. Les capacités de mesure sont donc très limitées.

4.2.3 Les laboratoires hors IRSN potentiellement mobilisables

Différents acteurs seront impliqués en cas d'évènement entraînant une situation d'urgence radiologique (Annexe 3 §3.4). Il s'agit de laboratoires agréés par l'ASN, par la DGAL, la DGS et la DGCCRF, cela correspond à environ 70 laboratoires. Cependant, leur capacité de mesure d'émetteurs α ou β purs est limitée.

Après analyse des capacités, il apparaît que les laboratoires pouvant être effectivement mobilisés pour la mesure du plutonium se limitent à une dizaine, regroupant les exploitants nucléaires et des laboratoires universitaires ou privés. Leur délai d'analyse est de l'ordre d'une dizaine de jours par échantillon.

5 IMPACT À L'HOMME

Les rayonnements α des isotopes 238, 239 et 240 du plutonium sont arrêtés par la couche cornée de la peau. Leur toxicité est donc liée à leur incorporation dans l'organisme ; car ils sont peu irradiants. Le plutonium 241 est un émetteur beta, moins radiotoxique après incorporation mais dont le descendant, l'américium 241, est un émetteur α plus irradiant que les isotopes 238, 239 et 240 du plutonium car il est aussi un émetteur de rayonnement gamma (60 keV). Pour plus de précision sur les paragraphes qui vont suivre, le lecteur pourra s'intéresser à l'annexe 5 et à l'annexe 6.

5.1 Comportement dans l'organisme et toxicité chez l'homme

5.1.1 Devenir du plutonium et de l'américium après incorporation

Les radioéléments peuvent pénétrer dans l'organisme par inhalation, par ingestion, par passage transcutané ou via une plaie contaminée.

Suite à l'inhalation de plutonium, le poumon sera le premier organe irradié. L'importance de son exposition dépend de la forme physico-chimique sous laquelle le composé est inhalé. En effet, les formes solubles (comme les nitrates, les chlorures et les bicarbonates) passent plus rapidement la barrière pulmonaire pour entrer dans le sang, alors que les formes peu solubles du plutonium (comme les oxydes) restent longtemps au niveau pulmonaire pouvant entraîner des doses importantes. Les formes solubles conduiront donc à des doses au poumon moins importantes que les formes peu solubles et donc à un détrimement moindre. Les composés d'américium sont considérés comme plus solubles que ceux du plutonium sauf lorsqu'ils sont associés au plutonium sous forme d'oxyde.

Après ingestion, une très faible partie du plutonium et de l'américium passera la barrière digestive pour être absorbée dans le sang et le reste sera directement excrété dans les selles. Le taux d'absorption dépendra de la forme physico-chimique du contaminant et sera plus important chez l'enfant que chez l'adulte. Quel que soit l'âge du sujet et la forme du composé, pour une même activité incorporée, la dose efficace reçue est au moins cinquante fois plus faible après ingestion qu'après inhalation.

Une fois passée dans le sang, une fraction de l'activité incorporée est excrétée mais la majeure partie se dépose aux niveaux hépatique et osseux. Pour le plutonium, 60 % de la fixation a lieu dans le foie et 30 % dans le squelette [9]. Pour l'américium la fixation dans le foie est légèrement plus faible (50 %) et celle dans le squelette est identique (30 %). Dans ces deux organes, les périodes de rétention du plutonium et de l'américium sont très longues, de l'ordre de 50 ans au niveau osseux et de 20 ans au niveau hépatique.

Finalement, l'excrétion se fait principalement via les selles et dans une moindre mesure via les urines. La portion excrétée via les urines est plus importante pour l'américium, plus soluble, que pour le plutonium.

5.1.2 La toxicité du plutonium et de l'américium

Après incorporation dans l'organisme, la forte densité d'ionisation des particules α provoque sur l'ADN de multiples lésions. Comme pour les autres radionucléides, deux types d'effets peuvent apparaître : les effets déterministes précoces ou tardifs et les effets stochastiques à long terme.

La majorité des études permettant d'établir la toxicité du plutonium a été faite sur la base d'inhalation de plutonium et non d'ingestion.

5.1.2.1 Effets déterministes

Les effets déterministes chez l'homme ont été estimés à partir d'études animales.

Les études chez l'animal ont montré des effets déterministes tels que des pneumonies interstitielles précoces suivies par des fibroses pulmonaires tardives ainsi que des atteintes hématologiques, hépatiques et osseuses [10]. Il s'agit principalement d'études par inhalation de plutonium.

A partir des études animales des DL 50⁵ a été estimée pour l'homme. Il s'agit de la dose entraînant 50 % de décès sur la population étudiée pour différentes durées écoulées depuis l'exposition. Elle est de 21 MBq⁶ pour une période de 30 jours après l'exposition, 2,1 MBq pour une période de 100 jours après l'exposition et 0,85 MBq pour 1000 jours après l'exposition [4]. Une activité inhalée de 0,85 MBq de ²³⁹Pu conduirait à une dose aux poumons d'environ 5 Gy.

5.1.2.2 Les effets stochastiques à long terme

Les études animales expérimentales montrent que l'inhalation de plutonium ou d'américium peut conduire à l'apparition de cancers dans les poumons, le foie et le squelette.

Ces effets cancérogènes sur l'homme ont été confirmés par les études des cohortes de travailleurs de Sellafield (UK) ou de Mayak (Russie). A partir de ces deux cohortes, il a été montré que l'excès de risque de mortalité vie entière par cancer du poumon par unité de dose absorbée dans le poumon serait de l'ordre de 1,4-1,7 pour 10 000 individus par mGy, selon la solubilité (nitrate ou oxyde de plutonium) et le schéma temporel d'exposition (aigu ou chronique) [8].

Les études des travailleurs de Mayak ont également montré le lien entre l'exposition au plutonium et le risque de développer un cancer du foie ou des os. Cependant aucun lien n'a été observé quant au risque de développer une leucémie.

Un autre effet stochastique à long terme est le risque de développer une maladie cardiovasculaire. Certains résultats de la cohorte des travailleurs de Mayak suggèrent une association entre l'exposition au plutonium et l'apparition de maladies cérébro-vasculaires et de cardiopathies ischémiques. Néanmoins, ces résultats restent à confirmer.

Malgré le relais par la presse ou via des pétitions d'effets sanitaires sur les intervenants participant aux actions de réduction de la contamination suite aux accidents de Palomares [11] ou de Thulé [12], ces populations ne font pas partie des cohortes étudiées.

5.2 Les moyens de mesures de la population et les traitements

Une fois inhalé ou ingéré, deux types d'examen permettront de quantifier la contamination interne d'une personne par du plutonium ou de l'américium : la mesure de l'activité excrétée et la mesure directe dans l'organisme par anthroporadiométrie.

5.2.1 Mesure de la contamination interne

5.2.1.1 Mesure dans les excréta

La mesure dans les excréta est la mesure de référence suite à une contamination interne par des isotopes émetteurs α . Les isotopes émetteurs α sont détectables à des bas niveaux d'activité. Cependant pour l'obtention des résultats par les analyses radiotoxicologiques, le recueil, la préparation et la mesure d'échantillon nécessitent un délai minimum d'une dizaine de jours.

5.2.1.2 Mesure par anthroporadiométrie

Les techniques d'anthroporadiométrie permettent de mesurer les émissions gamma ou X avec des limites de détection dépendant de l'énergie et de l'intensité des rayonnements. Le plutonium émettant des rayonnements X de faible énergie, les mesures par anthroporadiométrie ne pourront mesurer que des contaminations internes très importantes.

⁵ Dose entraînant le décès de la moitié d'une population exposée.

⁶ 1 MBq = 1 000 000 Bq.

Toutefois, l'américium 241 descendant du plutonium 241 émet un rayonnement gamma assez intense qui lui permet d'être détectable par anthroporadiométrie. En comparaison, via ce type de mesure, la limite de détection du plutonium 239 dans les poumons est de 3 000 Bq alors qu'elle est de 10 Bq pour l'Américium 241. En cas de rejet contenant des isotopes du plutonium et/ou de l'américium 241 et en connaissant le spectre rejeté, l'activité incorporée pour les isotopes du plutonium pourra être évaluée à partir de la mesure d'activité incorporée d'américium 241. Cependant les limites de détection seront plus élevées qu'avec les mesures radiotoxicologiques.

5.2.1.3 L'estimation de la dose par l'interprétation des mesures

Les mesures dans les excréta ou par anthroporadiométrie fournissent l'activité présente dans l'organisme ou excrétée à un instant donné. A partir de ces résultats, la dose pourra être évaluée selon les caractéristiques de la contamination et de l'individu concernés à l'aide des modèles biocinétiques et dosimétriques de la CIPR [9].

5.2.1.4 Les capacités de mesure de la contamination interne à l'IRSN

L'IRSN dispose de moyens de mesures fixes et mobiles permettant de détecter la contamination interne individuelle par le plutonium et l'américium.

Pour la mesure interne par anthroporadiométrie, l'IRSN utilisera ses deux Laboratoires Mobiles Anthroporadiométriques (LMA) équipés de détecteurs au germanium ou son laboratoire fixe au Vésinet. Les véhicules légers ou shelters équipés de détecteurs de type NaI, utilisables en cas de rejet de produits de fission, ne sont pas adaptés pour des rejets de plutonium ou d'américium. Dans les laboratoires fixes comme mobiles, la limite de détection dépendra du temps de comptage. Dans le LMA, pour 20 minutes de comptage elle est de 10 Bq dans les poumons pour l'Am-241 et de 3000 Bq pour le Pu-239. Avec ces limites de détection, 20 personnes peuvent être contrôlées en 10 heures de temps dans chacun des laboratoires mobiles

La mesure des excréta sera réalisée dans les laboratoires fixes au Vésinet par l'utilisation de spectromètres α ou par scintillation liquide. Les limites de détection dans les urines sont de 47 Bq/l via l'utilisation de la scintillation liquide pour le plutonium 241 et sont comprises entre 0,5 et 1,3 mBq/l pour les autres isotopes du plutonium et pour l'américium 241 en utilisant un spectromètre α . Dans les selles la limite de détection est de 0,3 mBq/g.

Après la réception des échantillons (prélèvements de 24 h) les premiers résultats sont attendus sous une dizaine de jours. L'IRSN envisage aujourd'hui à partir de ce délai de rendre de l'ordre de 24 résultats tous les trois jours, pour une affectation exclusive du laboratoire à la gestion post-accidentelle.

Comme pour les mesures dans l'environnement, les capacités pour la mesure de la contamination interne sont donc limitées en cas de rejet α .

5.2.1.5 Les capacités de mesure de la contamination interne au-delà de l'IRSN

Au-delà de l'IRSN, les exploitants nucléaires réalisent des anthroporadiométries et des analyses radiotoxicologiques au sein de leurs services de santé au travail et/ou de leurs laboratoires médicaux pour le suivi de leurs employés. Ils pourraient être sollicités en cas d'accident.

5.2.2 Les traitements suite à une contamination par le plutonium ou l'américium

En cas de contamination interne par du plutonium ou de l'américium, le traitement recommandé est l'administration d'un traitement décorporant, le Ca-DTPA (acide diéthylène triamine penta acétique, sel monocalcique trisodique). Ce traitement sera administré par voie intraveineuse ou sous forme nébulisée. La molécule forme un complexant avec le plutonium ou l'américium puis est facilement éliminée via les urines. Suite à une incorporation de plutonium ou d'américium, le traitement doit être

rapidement administré pour une efficacité maximale. L'administration de Ca-DTPA et la durée du traitement doivent être adaptées à chaque situation et aux personnes contaminées.

Il apparaît que les traitements par CA-DTPA sont nettement moins efficaces pour le plutonium inhalé sous forme insoluble PuO₂ [4].

En cas de contamination cutanée, une décontamination sera réalisée par un lavage de la peau avec de l'eau et du savon, du CA-DTPA sous forme d'ampoule ou par l'utilisation de la crème Cevindra® au calixarène⁷.

5.3 Les voies d'exposition et leurs contributions

5.3.1 Exemples d'évaluation des doses susceptibles d'être reçues

Dans le cadre des travaux du CODIRPA, l'IRSN a fourni plusieurs études de scénarios accidentels en support aux réflexions. Après des scénarios sur des accidents de réacteurs de puissance [13], l'IRSN a publié en 2008 une note [14] présentant les conséquences d'un rejet de 4 grammes de plutonium vieilli de 10 ans issu du retraitement d'un combustible nucléaire UOX2 (Pu + Am).

Les évaluations dosimétriques réalisées en 2008 sont présentées pour chaque voie d'exposition dans le tableau 1. Ces résultats sont présentés à titre illustratif afin de mettre en regard les différentes voies d'exposition.

Les doses susceptibles d'être reçues par le nourrisson ne sont pas présentées, car les paramètres de régimes alimentaires considérés dans les évaluations ne correspondent pas à ses six premiers mois de vie.

Tableau 1 : Doses susceptibles d'être reçues les deux premières années suivant la fin des rejets pour l'adulte et l'enfant de 2-7 ans

| Dose efficace 1 ^{ère} année (2-7 ans) – mSv | | | | |
|--|-----------------------------------|---|-------------------------------------|--------------------|
| Distance au point de rejet | Ingestion de denrées alimentaires | Ingestion involontaire de sol et de poussière | Inhalation par remise en suspension | Exposition externe |
| 1 km | 6,9E+00 | 2,1E+00 | 3,2E-01 | 2,8E-03 |
| 2 km | 1,9E+00 | 5,8E-01 | 8,7E-02 | 7,7E-04 |
| 5 km | 3,1E-01 | 9,3E-02 | 1,4E-02 | 1,2E-04 |
| 10 km | 6,9E-02 | 2,1E-02 | 3,2E-03 | 2,8E-05 |
| Dose efficace 2 ^{ème} année (2-7 ans) – mSv | | | | |
| Distance au point de rejet | Ingestion de denrées alimentaires | Ingestion involontaire de sol et de poussière | Inhalation par remise en suspension | Exposition externe |
| 1 km | 2,0E-01 | 2,1E+00 | 3,1E-01 | 2,8E-03 |
| 2 km | 5,5E-02 | 5,8E-01 | 8,6E-02 | 7,7E-04 |
| 5 km | 8,9E-03 | 9,3E-02 | 1,4E-02 | 1,2E-04 |
| 10 km | 2,0E-03 | 2,1E-02 | 3,1E-03 | 2,8E-05 |

⁷ Crème lavante et décontaminante au calixarène sous brevet IRSN <https://www.cevidranuclear.com/fr/produit>.

| Dose efficace 1^{ère} année (Adulte) – mSv | | | | |
|---|--|--|--|---------------------------|
| Distance au point de rejet | Ingestion de denrées alimentaires | Ingestion involontaire de sol et de poussière | Inhalation par remise en suspension | Exposition externe |
| 1 km | 7,1E+00 | 1,3E+00 | 1,3E+00 | 3,9E-03 |
| 2 km | 2,0E+00 | 3,6E-01 | 3,4E-01 | 1,1E-03 |
| 5 km | 3,2E-01 | 5,8E-02 | 5,6E-02 | 1,7E-04 |
| 10 km | 7,0E-02 | 1,3E-02 | 1,2E-02 | 3,9E-05 |

| Dose efficace 2^{ème} année (adulte) – mSv | | | | |
|---|--|--|--|---------------------------|
| Distance au point de rejet | Ingestion de denrées alimentaires | Ingestion involontaire de sol et de poussière | Inhalation par remise en suspension | Exposition externe |
| 1 km | 3,9E-01 | 1,3E+00 | 1,1E+00 | 3,5E-03 |
| 2 km | 1,1E-01 | 3,6E-01 | 3,0E-01 | 9,7E-04 |
| 5 km | 1,7E-02 | 5,8E-02 | 4,9E-02 | 1,6E-04 |
| 10 km | 3,9E-03 | 1,3E-02 | 1,1E-02 | 3,5E-05 |

Il apparait dans les résultats de cette étude que :

- l'irradiation externe est une voie d'exposition négligeable par rapport aux autres voies d'exposition malgré la présence d'américium ;
- l'ingestion de denrées alimentaires contaminées est la voie prépondérante la première année suivant les rejets avec une contribution d'environ 75 % à la dose efficace totale quelle que soit la population concernée. La seconde année cependant, cette voie d'exposition devient secondaire puisqu'elle ne contribue plus qu'à environ 10 % de la dose totale. Cela s'explique par le fait que l'exposition la première année est essentiellement due à l'ingestion de légumes à feuilles directement exposés aux retombées du panache. De plus, le plutonium se transférant peu dans les productions animales et les végétaux, la contamination des denrées les années suivantes sera significativement plus faible ;
- les doses reçues par ingestion involontaire de sol et de poussières et par inhalation des particules remises en suspension sont quasi constantes au cours du temps. En effet, la décroissance radioactive étant négligeable à l'échelle des deux premières années et le plutonium restant dans les premiers centimètres du sol, nos modèles aujourd'hui considèrent une disponibilité identique quelle que soit l'année ;
- la sensibilité de la population aux voies d'exposition va dépendre de la classe d'âge. En effet les enfants seront plus sensibles à l'exposition par ingestion involontaire alors que les adultes seront plus sensibles à l'inhalation par remise en suspension. En comparant ces deux voies d'exposition, il apparait que l'exposition de l'adulte du fait de l'inhalation de particules remises en suspension est quasiment équivalente à l'exposition par ingestion involontaire chez l'enfant.

Pour un tel scénario, les doses susceptibles d'être reçues pendant la phase post-accidentelle, c'est-à-dire après la fin des rejets, sont faibles en comparaison de la dose susceptible d'être reçue pendant le passage du panache. Le tableau 2 compare les doses susceptibles d'être reçues pendant la phase d'urgence à celles évaluées pour les deux années suivantes pour les populations adulte et enfant 2-7 ans. Les doses reçues pendant la phase d'urgence sont bien plus importantes que celles reçues la

première année suivant les rejets, contrairement à ce que l'on peut observer sur des scénarios d'accident sur un CNPE.

Tableau 2 : Mise en perspective de la dose reçue pendant le passage du panache (phase d'urgence) avec celles reçues les deux années suivant les rejets (phase post-accidentelle)

| Distance au point de rejet | Exposition au panache (mSv) | Adulte | | Exposition au panache (mSv) | Enfant de 2-7 ans | |
|----------------------------|-----------------------------|---|---|-----------------------------|---|---|
| | | Dose efficace totale 1 ^{ère} année (mSv) | Dose efficace totale 2 ^{ème} année (mSv) | | Dose efficace totale 1 ^{ère} année (mSv) | Dose efficace totale 2 ^{ème} année (mSv) |
| 1 km | 142 | 9,7 | 2,8 | 66 | 9,3 | 2,6 |
| 2 km | 39 | 2,7 | 0,8 | 18 | 2,6 | 0,7 |
| 5 km | 6,3 | 0,4 | 0,1 | 2,9 | 0,4 | 0,1 |
| 10 km | 1,4 | 0,1 | 0,03 | 1,3 | 0,09 | 0,03 |

Toutefois, il convient de rester prudent dans l'interprétation des résultats de ces évaluations dosimétriques, celles-ci étant dépendantes du choix de paramètres discutables pouvant contribuer à surestimer ou sous-estimer les voies d'expositions. Les paragraphes suivants mettent en avant les points clefs et les limites des différents paramètres utilisés pour les évaluations dosimétriques. Des informations plus détaillées sur les approches utilisées sont disponibles en annexe 6.

5.3.2 L'exposition externe

Par définition, en cas de rejet de plutonium seul, l'exposition externe n'est pas une problématique. L'évaluation dosimétrique de l'exposition externe va dépendre d'un budget temps (temps quotidien passé à l'extérieur ou à l'intérieur des habitations), de l'efficacité de protection des habitats, et enfin des coefficients de dose utilisés.

Pour des radionucléides émetteurs gamma de haute énergie, le budget temps et l'efficacité de protection des habitats pourront avoir un impact fort. Dans le cas de l'américium, ces paramètres n'ont qu'un faible impact comme indiqué dans le tableau 3. En effet en supposant les personnes à l'extérieur exposées 24 h sur 24 h pendant 1 an sans protection, la dose due à l'exposition externe est simplement multipliée par un facteur 2. Le facteur de protection de l'habitat⁸ diffère selon l'énergie du rayonnement gamma : l'écran sera d'autant plus efficace que l'énergie est plus faible.

Tableau 3 : Évaluation de la dose externe selon le budget temps

| Dépot d'Am241 | Coefficient de dose (Sv/s)/(Bq/m ²) ⁹ | Temps à l'extérieur (h/j) | Temps à l'intérieur(h/j) | Facteur de protection de l'habitat(-) | Dose efficace annuelle (mSv) |
|--------------------------|--|---------------------------|--------------------------|---------------------------------------|------------------------------|
| 10 000 Bq/m ² | 2,75E-17 | 24 | 0 | - | 8,7E-3 |
| 10 000 Bq/m ² | 2,75E-17 | 10 | 14 | 0,1 ¹⁰ | 4,1E-3 |
| 10 000 Bq/m ² | 2,75E-17 | 10 | 14 | 0,4 ¹¹ | 5,6E-3 |

Concernant les coefficients de dose (Annexe 6 §6.7), des publications récentes US EPA Federal Guidance 15 [16] et CIPR 144 [17] vont conduire à la modification des coefficients de dose actuellement

⁸ Le facteur de protection est défini comme le débit de dose irradiation à l'intérieur de l'habitat rapporté au débit de dose irradiation à l'extérieur. Ainsi une protection nulle est associée à un facteur de 1, une protection totale est associée à un facteur de 0.

⁹ Coefficients de dose issus du FG 12 [15] actuellement utilisés dans nos outils de crise.

¹⁰ Facteur de protection de l'habitat utilisé dans nos outils de crise.

¹¹ Facteur de protection de l'habitat utilisé pour les évaluations dosimétriques à Fukushima.

utilisés dans nos outils de crise, qui sont encore issus à cette date de l'US EPA Federal Guidance 12 [15]. Pour l'américium 241, le coefficient de dose du FG 12 est légèrement plus pénalisant.

5.3.3 Ingestion d'aliments contaminés

L'évaluation de la dose par ingestion d'aliments contaminés est, comme pour tous les types de rejets, dépendante du régime alimentaire des populations et de la part des aliments produits localement dans le panier consommé.

Les modèles utilisés montrent que la dose reçue par ingestion des denrées alimentaires devient négligeable la deuxième année ; cela vient du fait qu'en cas de rejet de plutonium ou d'américium les transferts dans les végétaux et les productions animales sont faibles. Une limitation de la consommation des productions végétales exposées au panache réduirait sensiblement la dose reçue par ingestion.

Nos modèles ne considèrent pas aujourd'hui le dépôt secondaire par remise en suspension sur les végétaux ni l'ingestion de sol par les animaux qui sont des voies de contamination potentiellement sensibles pour le plutonium. Des études complémentaires pourraient être menées pour évaluer l'impact de ces contaminations secondaires.

5.3.4 Ingestion involontaire de sol et de poussière

L'ingestion involontaire de sol et de poussière couvre l'ingestion de particules déposées sur les surfaces puis portées par inadvertance à la bouche via la main et de celles attachées à des aliments végétaux non lavés. Cette voie d'exposition est particulièrement sensible pour les enfants jouant au sol et portant plus souvent leurs mains à la bouche que les adultes. Elle est étudiée pour les polluants chimiques, particulièrement le plomb du fait des problématiques de plombémie.

Au-delà des niveaux de contamination du sol, l'évaluation de cette voie d'exposition nécessite la connaissance de plusieurs paramètres tels que la quantité de poussières ingérée et la fréquence des contacts main-bouche. Différentes valeurs de ces paramètres sont disponibles dans la littérature mais dépendent fortement des modes de vie (en maison ou en immeuble), des habitudes de vie (tabagisme¹²), des populations exposées et également des saisons. Les données d'aujourd'hui sont imparfaites et ne sont pas encore complètement recensées ni analysées, ce qui conduit à une incertitude significative.

L'évaluation de la dose par ingestion involontaire est directement proportionnelle au niveau d'activité du sol et de la poussière. Cette activité est un rapport entre le dépôt, la densité du sol et la profondeur d'homogénéisation du dépôt. Même si le plutonium ou l'américium migre peu profondément dans le sol en conditions naturelles, ce dernier paramètre est difficilement quantifiable a priori car il dépendra de la manipulation éventuelle du sol. Par défaut une valeur très faible de hauteur d'homogénéisation peut être proposée ; cependant une erreur d'appréciation pourrait entraîner un biais proportionnel sur l'estimation de cette activité et donc directement sur l'estimation de la dose qui en découle.

5.3.5 Remise en suspension

Au-delà de la première année, en cas de rejets d'éléments émetteurs α , l'inhalation des particules remises en suspension apparaît être la voie d'exposition prédominante pour l'adulte.

La dose qui en résulte est proportionnelle à la quantité de radionucléides inhalée par les personnes exposées. Les débits respiratoires des populations utilisés dans nos outils sont issus de la publication 66 de la CIPR [18], les budgets temps sont ceux habituellement utilisés dans les outils du centre de crise de l'IRSN. Cependant, modifier le budget temps en supposant la population cible en extérieur

¹² Un fumeur porte un grand nombre de fois sa main à la bouche.

pendant 1 an ne conduirait à augmenter la dose que de 40 % en cas d'exposition à du plutonium 239 (tableau 4).

Tableau 4 : Évolution de la dose inhalation par remise en suspension selon le budget temps pour un adulte

| Dépôt de ²³⁹ Pu (Bq/m ²) | Coefficient remise en suspension K (m ⁻¹) | Coefficient de dose Sv/Bq [19] | Temps à l'extérieur (h/j) | Temps à l'intérieur (h/j) | Débit respiratoire extérieur (m ³ /h) | Débit respiratoire intérieur (m ³ /h) | Dose efficace annuelle (mSv) |
|---|---|--------------------------------|---------------------------|---------------------------|--|--|------------------------------|
| 10 000 | 10 ⁻⁷ | 5E-5 | 10 | 14 | 1,6 | 0,8 | 0,5 |
| 10 000 | 10 ⁻⁷ | 5E-5 | 24 | 0 | 1,6 | 0,8 | 0,7 |

Pour les évaluations dosimétriques, le choix du facteur de remise en suspension, comme explicité au §4.1.3, en annexe 2 et annexe 6, est plus délicat. La disponibilité des particules déposées diminue au cours du temps. Or le facteur utilisé habituellement dans nos outils de crise « 10⁻⁷ » ne semble pas protéger les premiers mois de l'exposition. Le tableau 5 présente l'évaluation de la dose en prenant en compte une évolution du facteur de remise en suspension au cours de la première année, en suivant les recommandations du Tableau A2- 2 en annexe 2. Comme attendu, une sous-estimation de la dose reçue par inhalation des particules remises en suspension est observée entre l'utilisation d'un facteur constant et d'un facteur évolutif la première année, de plus d'un facteur 10 dans l'exemple étudié. Quelques années après la formation des dépôts le facteur de remise en suspension est de l'ordre de 10⁻⁹ (Tableau A2- 2 annexe 2), aussi l'évaluation de la dose reçue au bout de quelques années est surestimée.

Tableau 5 : Évaluation de la dose inhalation par remise en suspension pour un adulte et un coefficient de remise en suspension évolutif

| Dépôt de Pu239 (Bq/m ²) | Coefficient remise en suspension K(m ⁻¹) | Coefficient de dose Sv/Bq[19] | Temps à l'extérieur (h/j) | Temps à l'intérieur(h /j) | Débit respiratoire extérieur (m ³ /h) | Débit respiratoire intérieur (m ³ /h) | Dose efficace annuelle (mSv) |
|-------------------------------------|--|-------------------------------|---------------------------|---------------------------|--|--|------------------------------|
| 10 000 | 10 ⁻⁵ [1-30 j] 10 ⁻⁶ [31-183 j] 10 ⁻⁷ [184-365 j] | 5E-5 | 10 | 14 | 1,59 | 0,8 | 6 |

6 RETOUR D'EXPÉRIENCE DES ACCIDENTS PASSÉS AYANT CONDUIT À UN REJET DE PLUTONIUM

Les accidents sur les réacteurs de Windscale (UK, 1957), Tchernobyl (Ukraine, 1986) et Fukushima Daiichi (Japon, 2011) ont conduit à des rejets de plutonium dans l'environnement. Cependant, ces rejets étaient limités en comparaison des rejets de produits de fission.

Une explosion chimique conduisant à des rejets de plutonium a également eu lieu sur le site d'Oak Ridge aux États-Unis en 1959 [20]. Les rejets se sont limités au site industriel et ont conduit l'exploitant à mettre en œuvre des actions de réduction de la contamination sur les différents bâtiments entourant celui qui était accidenté.

Par ailleurs des accidents impliquant des satellites et des sondes spatiales porteurs de plutonium se sont produits dès les années 60. Certains de ces accidents ont conduit à un rejet de ²³⁸Pu lors de

l'entrée de l'appareil dans l'atmosphère ; ce fut le cas pour le satellite SNAP-9A en 1964 et pour la mission Russe vers Mars en 1996 [4].

Enfin, en pleine guerre froide dans les années 60, des vols de bombardiers B52 américains ont conduit à plusieurs accidents avec des pertes d'armes. Ces bombardiers se relayaient 24 heures sur 24 pour assurer une surveillance aux frontières de l'Union Soviétique dans le cadre de l'opération *Chrome Dome* [21]. Trois routes étaient empruntées par les bombardiers qui partaient des bases aériennes américaines. La première route survolait le Groenland, la deuxième l'Alaska et la dernière courrait jusqu'en méditerranée. Les avions étaient ravitaillés en vol. Ces vols de longue durée ont conduit à plusieurs accidents avec des pertes d'armes, la plupart sans conséquences radiologiques. Cependant deux accidents sont responsables d'une contamination significative de l'environnement : l'accident de Palomares (Espagne, 1966) et de Thulé (Groenland, 1968). Les principes de gestion des territoires lors de ces deux accidents sont présentés ci-après (caractérisation du territoire, actions de réduction de la contamination, surveillance ...). Pour plus de détail le lecteur pourra se référer à l'annexe 7.

6.1 Accident de Palomares

Le 17 janvier 1966 au matin, au cours d'un ravitaillement de carburant en vol au large de Palomares dans la province d'Almeria, en Espagne, un KC-135 américain percute le B-52 qu'il ravitaille. Le KC-135 est complètement détruit lorsque ses réservoirs s'embrasent. Le B-52 se brise en plusieurs morceaux. Il transportait quatre bombes H de type Mark 28. Trois sont retrouvées à terre près du village de Palomares. Deux, dont les parachutes ne se déploient pas, sont détruites lors de l'impact au sol : leurs explosifs conventionnels explosent. La troisième bombe dont le parachute s'est déployé touche le sol et reste presque intacte près de Palomares. La quatrième bombe est retrouvée intacte dans la mer méditerranée après une campagne de recherche presque trois mois plus tard. La figure 3 présente la position de la ville de Palomares. Le positionnement des bombes et les zones impactées sont présentés sur la figure 4.

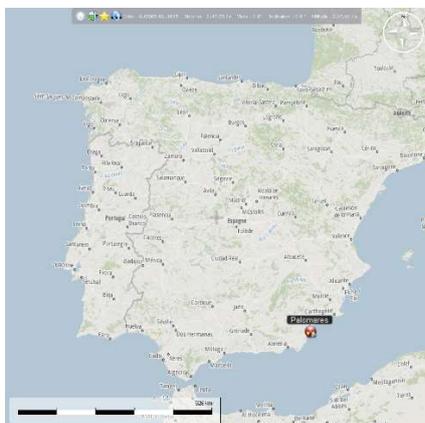


Figure 3 : Localisation de Palomares

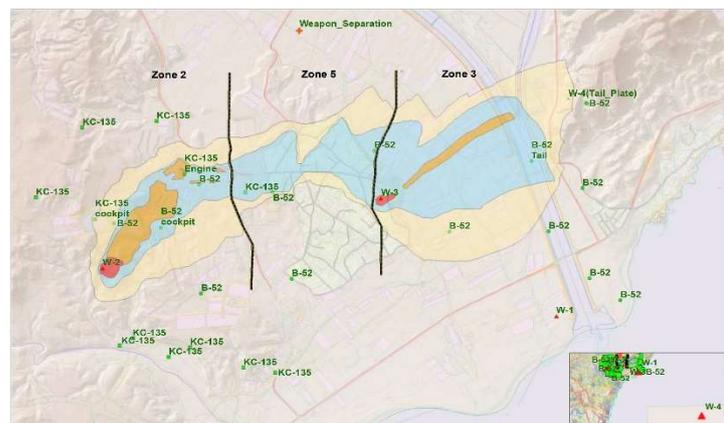


Figure 4 : Palomares - Zone d'impact (W pour « weapon ») [22]

6.1.1 Cartographie de la contamination

Dès l'après-midi de l'accident, des militaires américains positionnés sur une base espagnole dans le centre du pays sont dépêchés sur la zone accidentée. Quasiment un mois sera nécessaire pour caractériser la contamination du territoire, à l'aide de contaminamètres. La zone dite « contaminée » est appelée la « zero line », elle correspond à la zone au-delà de laquelle les niveaux mesurés sont au bruit de fond de l'appareil utilisé.

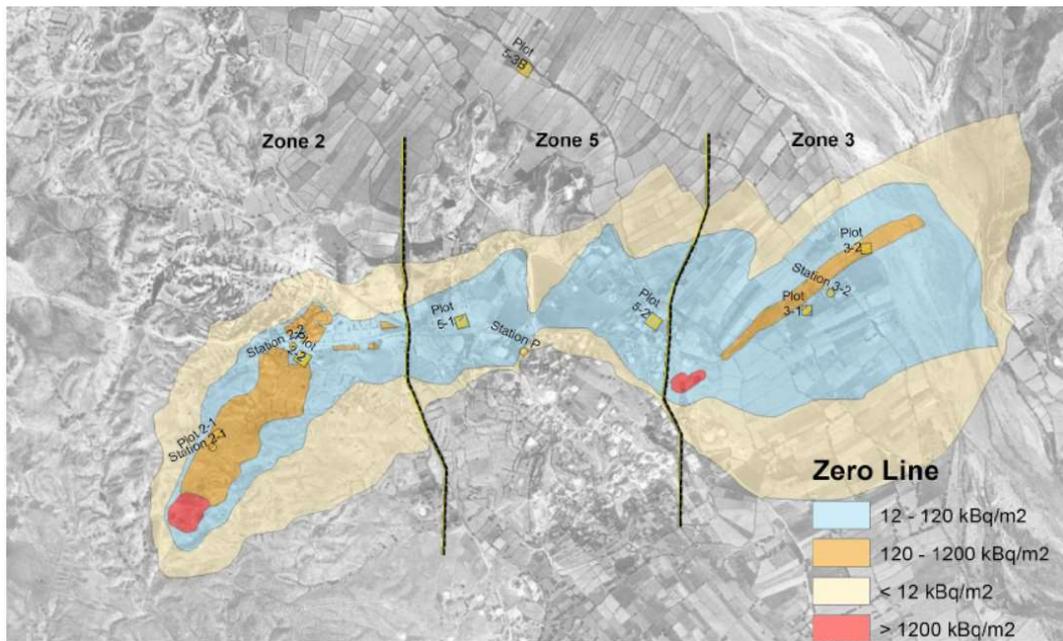


Figure 5 : Palomares - Niveaux de contamination en 1966 [22]

Les critères utilisés ont été proposés par les américains en accord avec JEN, autorité espagnole compétente de l'époque. Ces critères, initialement défini en cpm (coups par minute), ont été établis pour mettre en œuvre les actions de réduction de la contamination. Des facteurs de conversion des cpm vers les concentrations d'activité ont été établis¹³ ultérieurement donnant ainsi les niveaux exprimés en kBq.m⁻² sur la figure 5.

6.1.2 Décontamination des terrains et gestion des déchets après l'accident

La décontamination des terrains (sols et végétaux) impactés commença quelques jours après l'événement, la priorité étant d'éliminer les débris des avions et des armes.

Dans les zones où la contamination était supérieure à 1 200 kBq/m² (>~60 000 cpm) (points d'impact n°2 et n°3, taches rouges sur la figure 4), les 10 premiers centimètres de sol ont été retirés, ce qui représentait un volume de 827 m³.

Là où les niveaux de contamination étaient compris entre 1 200 kBq/m² et 120 kBq/m² (7 000 cpm), le sol devait être labouré sur une profondeur de 25 à 30 cm. Pour des niveaux de contamination compris entre 120 kBq/m² et 12 kBq/m², le sol était également labouré (gain par dilution également) mais sur des épaisseurs non prescrites.

Juste après l'accident, dans les zones où les niveaux de contamination étaient inférieurs à 12 kBq/m², le sol a été aspergé d'eau ou de « light diesel oil » [22].

La végétation présente dans les zones où l'activité au sol était supérieure à 7 kBq/m² a été retirée et entreposée dans la zone 2 (figure 5, zone la plus impactée et la plus éloignée de la zone urbaine). Une partie des sols et végétaux a été disposée dans deux tranchées de cette zone (figure 5), la majorité a été transportée aux USA pour y être stockée [21].

¹³ Equivalence employée à Palomares pour le contaminamètre (PAC-1S) 100 000 cpm = 770µG/m² [21].

La végétation présente dans des zones où le dépôt était inférieur à 7 kBq/m² a été enlevée puis incinérée dans le lit de la rivière Almanzora, près de son embouchure, profitant des brises nocturnes de terre à mer afin d'éviter une contamination de la zone urbaine [22] [23].

Lors de travaux de décontamination, pour limiter la remise en suspension et fixer la contamination, de l'eau était pulvérisée sur les routes et la zone des travaux [21].

Un nettoyage haute pression été mis en œuvre pour laver les buissons, les arbres fruitiers et les surfaces extérieures des habitations. Pour fixer la contamination, plusieurs couches de peinture ont été appliquées sur les façades des maisons [23].

En avril 1966, soit environ 3 mois après l'accident, les travaux de décontamination étaient jugés terminés.

6.1.3 Surveillance environnementale

Un suivi régulier de l'environnement a été mis en œuvre dès 1966. Des prélèvements de sol, d'eau, de productions agricoles, de plantes sauvages ainsi que d'animaux « sauvages » tels les escargots ont été réalisés. Des collecteurs atmosphériques ont été utilisés dans le but de caractériser les taux de remise en suspension.

A la fin des années 90, en perspective de potentiels travaux d'aménagement du territoire (modification de pratiques agricoles, demande touristique croissante ...), une campagne de mesure visant à réévaluer la contamination des sols a été engagée et a montré que cette dernière se trouvait être plus importante que celle identifiée initialement [22] [23]. De nouveaux critères de gestion ont alors été établis par l'autorité espagnole CSN (cf. §6.1.4).

En 2004, à la lumière de ces résultats préliminaires, une campagne de mesure intensive a été engagée afin de réévaluer les niveaux de contamination de l'ensemble des compartiments de l'environnement. Des mesures intensives d'américium 241 ont été réalisées. La cartographie actualisée de la contamination du sol de surface est présentée sur la figure 6. Pour connaître la contamination des sols en profondeur, une caractérisation 3D a été réalisée et un plan de surveillance a été approfondi afin de mieux maîtriser la reconquête des territoires.

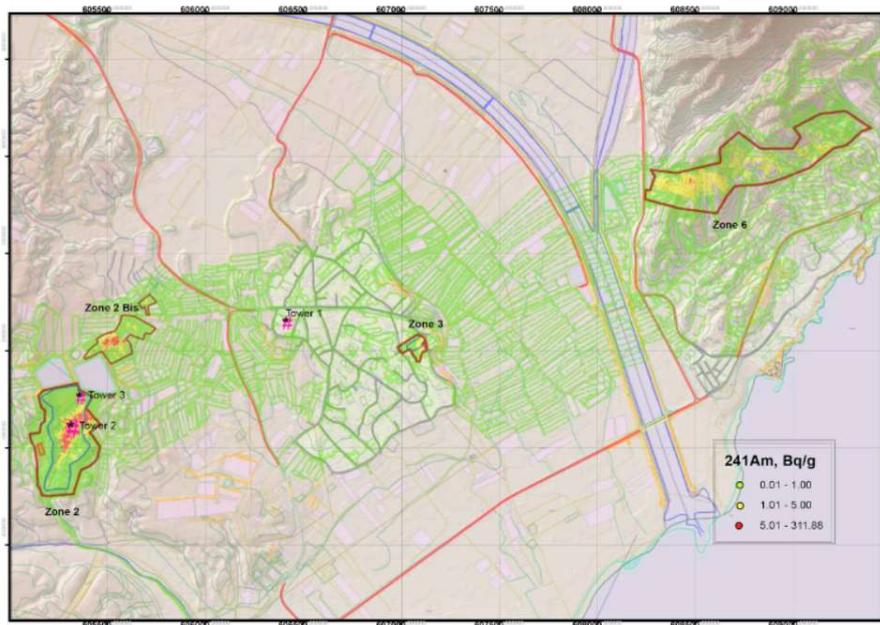


Figure 6 : Palomares - Niveaux de contamination du sol de surface en 2007 [22]. Territoires expropriés (trait bleu) et territoires soumis à des restrictions (trait rouge) (§6.1.4)

6.1.4 Actions de protection et de surveillance de la population

La bibliographie disponible ne précise pas si des actions de protection de la population ont été mises en œuvre et si des précautions de vie particulières ont été recommandées aux populations.

Après l'événement, un programme de surveillance de la population présente au moment de l'accident a été initié et s'est poursuivi au moins jusqu'en 2010. Il consistait en des contrôles de l'état de santé ainsi que des estimations de dose interne via des prélèvements urinaires. Cela concernait environ 150 personnes par an [23]. Une estimation de la dose efficace annuelle sur la période 1995-2010 faisait état d'une dose d'environ 6 $\mu\text{Sv}/\text{an}$ [24].

Entre 1966 et les années 2000, aucun territoire ne faisait l'objet de restriction de circulation ou de séjour pour les populations. En 2003, sur la base des nouvelles estimations de contamination, de nouveaux critères de gestion du territoire ont été mis en place [22] [23] :

- restriction totale de l'utilisation des territoires dont la contamination donnerait lieu à une dose annuelle totale de 5 mSv, ce qui correspondrait à une concentration de 25 Bq/g de sol pour le $^{239+240}\text{Pu}$ et de 5 Bq/g pour ^{241}Am ;
- restriction partielle de l'utilisation des territoires dont la contamination donnerait lieu à une dose annuelle totale de 1 mSv, ce qui correspondrait à une concentration de 5 Bq/g de sol pour le $^{239+240}\text{Pu}$ et de 1 Bq/g pour ^{241}Am .

Suite à la définition de ces nouveaux critères, des habitants ont été expropriés. La figure 6 présente en bleu les territoires sur lesquels les habitants ont été expropriés et en rouge les territoires qui ont été soumis à des restrictions partielles. Au-delà de ces interdictions ou restrictions, des actions ont été mises en place pour la réappropriation des territoires.

6.1.5 Restrictions de mise sur le marché

A ce stade, seules des informations parcellaires sur le sujet ont pu être relevées dans les ressources disponibles, et l'établissement de liens entre ces informations n'est pas évident. Selon le compte rendu de la gestion de l'accident publié en 1975 [21], des mesures de restriction ont été mises en place. Néanmoins il est fait état d'incertitudes sur la période de mise en œuvre. Une interdiction de non commercialisation aurait été prononcée par l'autorité espagnole JEN, pour l'ensemble du territoire de Palomares, dès le lendemain de l'accident. Une fois la zone « zero line » identifiée, début février 1966, les interdictions auraient été levées pour les exploitations extérieures à cette zone. Toutefois la communication relative à la levée des interdictions ne semble pas avoir été diffusée de manière à être bien comprise par la population. A partir du 21 février, il semblerait que de premières récoltes et de premières ventes aient été réalisées. Cependant, les ventes se seraient apparemment terminées fin février, les tomates et haricots récoltés étant alors trop mûrs pour être vendus.

6.2 Accident de Thulé

Le 21 janvier 1968, un bombardier B52 de l'armée américaine prend feu au cours d'un vol au-dessus du Groenland. Voulant atterrir d'urgence au niveau de la base militaire de Thulé, l'avion s'écrase sur la mer de glace (Figure 7).

L'impact, déclenchant les explosions conventionnelles des 4 bombes transportées par le bombardier, conduit à la dispersion d'une partie du plutonium et du tritium qu'elles contenaient. Dans la zone de l'incendie, la fonte des glaces entraîne une contamination de l'environnement marin [4].



Figure 7 : Thulé - Localisation du crash

6.2.1 Cartographie de la contamination

Malgré les difficultés rencontrées (froid, nuit continue, indisponibilité de matériel et difficulté de réalisation de la mesure), une première carte de la zone contaminée est établie rapidement après l'accident. La cartographie de la contamination en plutonium issue des mesures est représentée sur la figure 8. Le maximum de contamination est observé au niveau de la zone d'incendie, notamment là où la glace fondue s'est recongelée. La zone noircie (Figure 9) représentait environ 150 m sur 600 m [25].

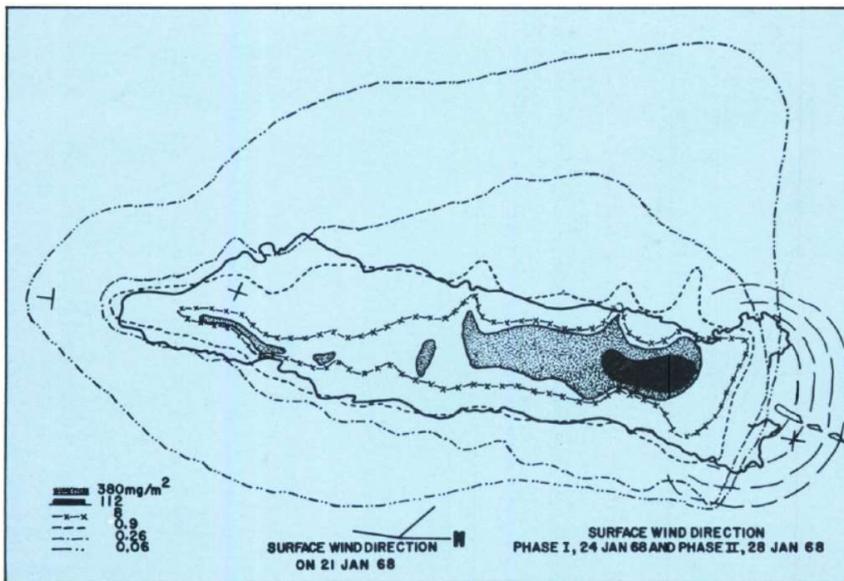


Figure 8 : Thulé - Niveaux de contamination du plutonium observés [25]

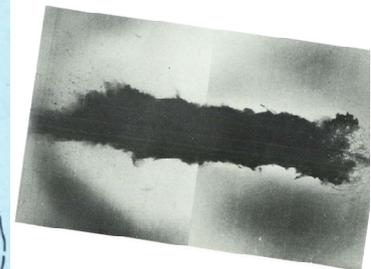


Figure 9 : Thulé - Photo aérienne du site accidenté

6.2.2 Actions de protection et de surveillance des populations

Une semaine après le crash, une interdiction de pénétrer dans les îles Manson, le Mont Dundas, Alanguarsuk et Inersussat a été prononcée par les autorités danoises. Une recommandation de ne pas collecter d'objets d'origine inconnue a également été émise.

Une semaine plus tard, il a été décidé d'interdire la chasse aux renards et aux corbeaux, produits consommés par les inuits. Ces restrictions progressivement assouplies ont finalement été annulées à mesure que l'opération de nettoyage progressait.

Pour vérifier l'exposition des populations avoisinantes pendant la phase de rejet, des prélèvements urinaires ont été réalisés. Aucune présence de plutonium n'a été détectée.

6.2.3 Action de réduction de la contamination

A la demande des danois, la glace contaminée par le fuel et les éléments radioactifs a été retirée et stockée avant d'être expédiée aux États-Unis. Les actions de décontamination se sont terminées au mois de mars 1968 et les derniers containers de déchets ont quitté le Groenland au mois de septembre. Au total, plus de 2 100 m³ de liquide contaminé, ainsi que trente réservoirs de matières diverses dont une partie contaminée, ont été collectés.

6.2.4 Surveillance environnementale

Quelques jours après l'accident, les autorités danoises ont mis en place des actions de caractérisation de la contamination en vue d'identifier l'impact possible pour les populations inuits. Plusieurs prélèvements de neige et de glace ont été réalisés dans des endroits représentatifs (principalement dans les zones sous le vent) en dehors du point d'impact. Des échantillons d'eau de mer, de sédiments et de plancton (pour l'impact de la chaîne alimentaire marine) puis des prélèvements d'animaux sauvages tels les morses, les phoques et les renards, consommés par les foyers groenlandais, ont également été prélevés et analysés. Les concentrations les plus élevées ont été relevées dans les sédiments de fond, les mollusques et les crustacés. Les niveaux de plutonium dans les échantillons prélevés étaient néanmoins à des niveaux faibles jugés sans nocivité pour les populations [25].

Des campagnes de mesures ont régulièrement été réalisées depuis. Elles consistaient à vérifier les niveaux de contamination dans les sédiments, dans l'eau de mer et les algues, dans les animaux benthiques et les sols. La campagne de 2003-2005 [26] a montré que les plus forts niveaux de concentrations en plutonium se trouvaient dans les sédiments marins sous l'endroit où l'avion s'est écrasé. Pour l'institut danois Risø, la contamination dans le milieu marin ne présente pas de risque pour la population car le plutonium reste fixé dans les sédiments. Sur le domaine terrestre, les niveaux de contamination du sol pourraient constituer un faible risque du fait de la remise en suspension. Dans les sols de surface, la gamme de valeur de ^{239,240}Pu observée est de 10 à 80 Bq/kg.

7 PERTINENCE DE LA DOCTRINE POST-ACCIDENTELLE DANS LE CAS DE REJETS DE PLUTONIUM, IDENTIFICATION DES POINTS NÉCESSITANT RÉFLEXION

En 2019, le CODIRPA a recommandé [2] plusieurs évolutions des éléments de la doctrine post-accidentelle [1]. Ces recommandations concernent les rejets accidentels de CNPE. Dans le cadre de ses futurs travaux, le CODIRPA souhaite vérifier la pertinence de ces recommandations pour des situations de rejets accidentels pouvant survenir sur des installations autres que des CNPE, et notamment pour des situations de rejet accidentel de plutonium.

L'IRSN estime que les principes de gestion post-accidentelle présentés dans les nouvelles recommandations du CODIRPA [2] restent globalement valables et applicables dans le cas d'un rejet d'émetteurs alpha.

Cependant, les spécificités des radionucléides émetteurs alpha conduisent à des difficultés particulières de mise en œuvre de certaines de ces recommandations [2] liées d'une part à l'évaluation des doses et d'autre part à la réalisation de la mesure.

Ci-dessous les points relevés dans les recommandations 2019 du CODIRPA [2] qui appellent un commentaire de l'IRSN au regard de la spécificité d'une contamination en radionucléides émetteurs α .

Établissement du zonage post-accidentel

« Le zonage post-accidentel pourra être mis en œuvre progressivement, sur la base d'une modélisation ajustée par des résultats de mesure, en définissant prioritairement le périmètre d'éloignement des populations en dehors de leur lieu de vie et le périmètre de non consommation des denrées fraîches locales » [2].

Le principe de mise en œuvre progressive d'un zonage post-accidentel et le caractère essentiel de la mesure dans l'établissement puis l'ajustement de ce zonage restent des principes pertinents dans le cas de rejets de radionucléides émetteurs alpha. Les spécificités de ces radionucléides conduisent néanmoins à des délais plus longs et des moyens plus réduits (§4.2.2) pour réaliser la mesure, en comparaison de rejets de radionucléides émetteurs gamma.

En effet, en cas de dépôt d'émetteurs gamma, l'utilisation de radiamètres et la mise en œuvre de moyens embarqués (terrestres ou aériens) permettent de caractériser rapidement le champ d'irradiation voire la contamination surfacique par les radionucléides déposés. En revanche, en cas de dépôt d'émetteurs α purs, les délais de mesure seront significativement allongés, d'autant plus par temps humide (§4.2 et Annexe 3), ce qui se traduit par une caractérisation de l'état radiologique de l'environnement beaucoup plus lente. De plus, les moyens disponibles sur le territoire sont beaucoup plus limités que ceux utilisables lorsque les rayonnements gamma des radionucléides déposés peuvent être exploités.

Par ailleurs, la priorité affichée par la recommandation de définir un périmètre d'éloignement et un périmètre de non consommation reste valable dans le cas d'un rejet de radionucléides émetteurs alpha, malgré les différences des contributions relatives des voies d'exposition à la dose susceptible d'être reçue (§ 5.3).

Périmètre d'éloignement (PE)

« Le Codirpa estime que le critère de délimitation du périmètre d'éloignement (dose efficace annuelle basée uniquement sur l'exposition externe due aux dépôts) présente l'avantage d'être dérivable en quantités directement mesurables (débit de dose par exemple). [...] La délimitation du périmètre d'éloignement (PE) est établie sur la base d'une valeur repère de dose efficace de 20 mSv/an pour la première année, due à la seule exposition externe, en tenant compte cependant de la cinétique de décroissance attendue, notamment au cours des premiers mois » [2].

La doctrine CODIRPA publiée en 2012 [1] faisait état d'un critère basé sur l'estimation de l'exposition « toutes voies hors ingestion de denrées alimentaires contaminées » pour l'établissement du PE. Cela incluait donc implicitement les voies d'exposition comme l'irradiation externe, l'inhalation des particules remises en suspension et l'ingestion involontaire de sol et de poussières. Les recommandations du CODIRPA de 2019 [2] introduisent donc une évolution dans le calcul de la dose efficace pour délimiter le PE puisqu'elles restreignent l'estimation de la dose à la seule exposition externe.

Dans le cas des rejets accidentels de CNPE, la voie externe étant le contributeur prépondérant à la dose, cette évolution ne conduit pas en pratique à des différences notables sur la dose efficace calculée. En revanche, comme observé au paragraphe 5.3.2 et en annexe 6, en cas de rejet de plutonium ou de plutonium et d'américium, la dose susceptible d'être reçue par voie externe est minoritaire par rapport à celle résultant d'autres voies d'exposition comme l'inhalation des particules remises en suspension ou l'ingestion involontaire de sol et de poussières. **Aussi l'IRSN estime que ces autres voies d'exposition doivent être considérées dans l'estimation de la dose efficace, quel que soit le type de rejets et a fortiori dans le cas de rejets d'émetteurs alpha.** Dans l'attente des conclusions du « GT rejet hors CNPE » du CODIRPA, le centre de crise de l'IRSN continuera donc d'estimer le PE sur la base de l'évaluation de l'exposition « toutes voies hors ingestion alimentaire ».

Il demeure néanmoins que les paramètres nécessaires à l'estimation de l'exposition des populations par inhalation des particules remises en suspension et par ingestion involontaire de sol et de poussières (voies d'exposition non négligeables dans le cas de rejets d'émetteurs alpha) sont actuellement entachés d'incertitudes. Des travaux complémentaires paraissent nécessaires pour affiner les valeurs à retenir pour certains paramètres utilisés dans cette estimation. Dans ce cadre, il serait pertinent d'examiner l'opportunité d'orienter la stratégie de mesure pour répondre à cette difficulté. Par exemple, il serait utile de mettre en place une surveillance de l'activité dans l'air permettant d'apprécier les valeurs du coefficient de remise en suspension.

Du fait de sa faible migration dans le sol et sa longue demie vie, le plutonium va rester pendant plusieurs années dans la couche de surface du sol. Au-delà de la première année où le coefficient de remise en suspension peut varier de deux ordres de grandeur (§4.1.3, Annexe 2, Tableau A2- 2), les années suivantes, le critère dosimétrique permettant l'établissement d'un PE devrait faiblement varier d'une année sur l'autre.

Par ailleurs, compte tenu des spécificités du plutonium, en cas d'incorporation, certains organes sont plus particulièrement exposés (poumons, foie, os) (§5.1.1 et §5.1.2.2).

La dose efficace est un indicateur approximatif du risque d'effets stochastiques (principalement les cancers), mais son utilisation reste pertinente pour caractériser et gérer la très grande majorité des situations d'exposition aux rayonnements ionisants. Pour les situations d'urgence, la CIPR [27] indique que la dose efficace est une donnée d'entrée pour le processus d'optimisation et pour la comparaison avec les niveaux de référence. Elle souligne toutefois, qu'en fonction des rejets, il peut être utile d'estimer la dose à des organes ou tissus spécifiques. Elle indique, à titre d'exemple, qu'en cas d'accident conduisant à des rejets d'iode 131, il est important de considérer spécifiquement la dose

équivalente à la thyroïde. **A ce stade l'IRSN n'identifie pas de situation d'exposition post-accidentelle du public à des radionucléides émetteurs alpha pour lesquelles la connaissance de la dose efficace ne serait pas suffisante pour gérer la situation et où il serait nécessaire d'évaluer les doses équivalentes à des organes spécifiques (et d'introduire des critères associés).**

Zone de non commercialisation avant contrôle

« S'agissant de la commercialisation des biens de consommation : sur la base des modélisations prédictives, ajustées par des premières mesures, une surveillance des productions agricoles et des élevages (les plus sensibles à la contamination radioactive) sera mise en place progressivement en tenant compte notamment des niveaux maximaux admissibles (NMA) européens. » [2]

Comme indiqué au paragraphe 4.2 et en annexe 3, **les mesures de contamination en émetteurs α purs dans les productions agricoles pourront se faire uniquement en laboratoire fixe, et nécessiteront un temps de réalisation plus long que pour les contaminations comportant des émetteurs gamma. Pour le contrôle des productions agricoles, ces limitations conduiront à rendre encore plus prégnante la nécessité de cibler et prioriser les échantillons à prélever et analyser.**

Zone de non consommation

« Le périmètre de non consommation des denrées fraîches locales, dans un premier temps, pourrait être fondé sur une première estimation de l'étendue de la zone contaminée. [...] Ce périmètre devra ensuite être affiné en considérant les résultats des premières mesures de décontamination. » [2]

La zone de non consommation sera définie suivant un critère qui n'est pas encore arrêté. A ce stade deux pistes, pas forcément exclusives, sont en effet envisagées au sein des groupes de travail du CODIRPA : recourir à un indicateur dosimétrique sur la base d'une exposition toutes voies, d'une part, ou à un indicateur de contamination des denrées issues des jardins potagers (plus particulièrement des légumes à feuilles qui sont à la fois parmi les plus courants et dont les parties comestibles sont les plus exposées aux retombées atmosphériques), d'autre part.

Les réflexions en cours au sein du CODIRPA sur les indicateurs à considérer pour établir la zone de non-consommation ne sont pas spécifiques au type de rejet et devraient donc être applicables au cas des rejets d'émetteurs alpha. En pratique, la détermination de la zone va néanmoins se heurter aux difficultés métrologiques précitées liées aux spécificités de ces types d'émetteurs.

Par ailleurs, à l'instar de la problématique déjà exposée pour l'estimation du périmètre d'éloignement, il s'agira, dans l'hypothèse où un indicateur dosimétrique serait retenu, de traiter les difficultés liées à l'estimation de l'exposition des populations. Ces difficultés concernent, en premier lieu dans le cas des rejets de radionucléides émetteurs alpha, **le choix des paramètres pour caractériser l'exposition par inhalation des particules remises en suspension et pour caractériser l'exposition par ingestion involontaire de sol et de poussières.** Elles concernent également, pour les types de rejet, **le choix des paramètres utilisés pour évaluer la contamination des denrées alimentaires** (contamination foliaire par remise en suspension, ingestion de sol par les animaux ...) **et la dose ingestion en résultant** (régimes alimentaires, taux d'autarcie ...).

Contrôle des populations

« Les actions de recensement sont à engager dès la mise en place des centres d'accueil, de regroupement et de recensement, notamment pour la collecte des données individuelles d'exposition. Celles-ci, qui tiendront compte notamment des doses susceptibles d'avoir été reçues lors de la phase

d'urgence et de celles pouvant résulter de l'exposition externe due aux dépôts, permettront de reconstituer les doses et ainsi d'évaluer périodiquement l'efficacité des mesures de protection mises en œuvre, au regard des niveaux de référence réglementaires établis pour la phase d'urgence et la phase post-accidentelle. » [2]

Par ailleurs, comme indiqué au paragraphe II des recommandations du CODIRPA [2] « *Ainsi, la mise en place rapide de centres d'accueil, de regroupement et de recensement définis en matière de gestion des crises majeures (reprenant les fonctions des Centres d'Accueil et d'Information du public dans la doctrine 2012) ainsi qu'une organisation dédiée pour les mesures de contamination des personnes (mesure de contamination externe, anthroporadiométrie ...) est déterminante pour organiser la prise en charge des populations ; en plus de la mise en œuvre des mesures de protection, d'information et d'accompagnement, l'identification et l'enregistrement des personnes concernées facilitera non seulement leur relogement, leur indemnisation mais aussi ensuite leur suivi médical et épidémiologique si besoin. »*

Les recommandations du CODIRPA suggèrent la mise en place rapide de centres d'accueil et d'information avec une prise en charge des populations et la mise en œuvre de mesures de contamination des personnes. En cas de rejet de radionucléides émetteurs alpha non accompagnés d'émetteurs gamma, la mesure par anthroporadiométrie n'est pas pertinente (§5.2.1.2). Seules des mesures radiotoxicologiques sur des excréta (urines et selles) permettent d'évaluer les niveaux de contamination. **Or ces mesures nécessitent des étapes de radiochimie et des comptages conduisant à des délais de plusieurs jours pour fournir les résultats et en nombre limité (§5.2.1.4), ce qui, compte tenu également des capacités restreintes pour réaliser ce type de mesures, rendra d'autant plus nécessaire la priorisation des mesures de contrôle suivant une stratégie qui mérite d'être précisée.** En corollaire il conviendra de se pencher sur l'impact de ces spécificités sur les modalités d'organisation de la prise en charge et du suivi sanitaire des populations exposées.

Mise à disposition des populations de dispositifs de mesure radiologique des denrées alimentaires

« En fonction de l'ampleur de l'accident, du résultat des mesurages et de la perception de la situation par les populations, seront identifiés progressivement les différents territoires où seront recommandées [...] la mise à disposition des populations concernées de dispositifs de mesure radiologique des denrées alimentaires autoproduites ou prélevées dans le milieu naturel » ;

Aujourd'hui, les mesures de contamination des denrées en radionucléides émetteurs alpha nécessitent des opérations de préparation longues et exigent la mise en œuvre de moyens peu répandus, aussi la mise à disposition de dispositifs destinés à l'autocontrôle des denrées par la population ne s'envisagerait que difficilement.

L'ensemble des remarques précédentes de l'IRSN sur la doctrine relèvent de considérations techniques. D'autres aspects, tels que la perception des risques liés au plutonium par la société, pourraient devoir être pris en compte lors de la mise en œuvre de la doctrine.

SYNTHÈSE

En 2019, le CODIRPA a émis de nouvelles recommandations sur la doctrine post-accidentelle, recommandations établies en premier lieu pour des accidents sur des CNPE. L'ASN a demandé à l'IRSN de produire des éléments techniques sur les spécificités des rejets accidentels de radionucléides émetteurs alpha, à partir de l'exemple du plutonium et d'identifier dans quelle mesure les nouvelles recommandations restent pertinentes pour de tels rejets. Cette étude permet d'identifier une première liste de points méritant d'être étudiés par le nouveau groupe de travail mis en place au sein du CODIRPA sur ce sujet, et de fournir à ce GT des informations techniques nécessaires à ses travaux.

Le rapport fait état d'éléments de connaissance sur le comportement du plutonium dans l'environnement et dans l'organisme, sur la métrologie des radionucléides émetteurs α dans l'environnement et dans l'organisme ainsi que sur les voies d'exposition contribuant à la dose. Il comporte des éléments de retour d'expérience d'accidents passés ayant conduit à un rejet de plutonium dans l'environnement. Enfin la robustesse des recommandations du CODIRPA dans le cas de rejets accidentels de plutonium est discutée

Le plutonium est manipulé sous différentes formes physiques et physico-chimiques, dans des installations de R&D comme à une échelle industrielle dans les usines du cycle du combustible. De fait les transports relatifs aux types d'activités précités sont également susceptibles d'être concernés par des rejets accidentels de plutonium. L'origine de rejets accidentels de plutonium dans l'environnement ne se limite donc pas géographiquement aux seules installations qui le manipulent.

Le plutonium est un élément présent en faible concentration dans l'environnement. Il est peu soluble et migre peu en profondeur dans le sol et, en milieu aquatique, il se complexifie assez rapidement dans les sédiments. Le plutonium est, d'une manière générale, peu mobile dans la biosphère, se transférant peu aux végétaux et aux animaux. Après la formation des dépôts résultant de rejets accidentels, le plutonium remis en suspension peut se déposer à plus ou moins longue distance sur des sols, des surfaces urbaines ou des végétaux. Sa remise en suspension, notamment dans des temps courts après un dépôt, constitue l'enjeu majoritaire de l'exposition des populations par inhalation ainsi, la prévention de cette resuspension devrait faire partie des préoccupations de la gestion des territoires.

Lorsque les méthodes de mesure ne peuvent s'appuyer sur aucun radionucléide émetteur gamma, les opérations de mesurage de la contamination alpha nécessitent un temps significativement plus long que dans le cas des rejets accidentels de CNPE. Pour les mesures in situ et pour certains échantillons (frottis, prélèvements d'air ou d'eau), les analyses peuvent être réalisées par comptage, respectivement direct et indirect, avec des moyens de terrain. Des conditions atmosphériques humides ou des surfaces humides conduisent à allonger les délais de fourniture de résultats. Pour la caractérisation de la contamination des matrices environnementales (sols, végétaux ...), les prélèvements doivent être traités dans les laboratoires fixes, avec des contraintes sur le délai de réalisation des analyses et sur le nombre d'échantillons pouvant être traités en parallèle. En outre, la difficulté de mesurage limitera de fait la possibilité de mise à disposition de dispositifs de mesure radiologique pour l'autocontrôle, par la population, des denrées alimentaires autoproduites.

Pour ce qui concerne les effets sanitaire du plutonium, il présente une très forte radiotoxicité liée à son incorporation dans l'organisme. En revanche, un environnement contaminé par du plutonium ne conduira pas à une exposition externe significative des populations. Le risque pour une population exposée est essentiellement de développer des cancers des poumons, des os ou du foie.

La mesure par anthroporadiamétrie n'étant pas pertinente en cas de rejet alpha pur, seules des analyses de laboratoire (radiotoxicologie) réalisées sur des excréta sont envisageables pour caractériser la contamination des individus. Comme pour l'analyse des matrices environnementales, ces mesures radiotoxicologiques sont soumises à des contraintes en termes de délai de réalisation des analyses et de nombre d'échantillons pouvant être traités en parallèle. Ces difficultés nécessiteront de réfléchir à l'organisation de la prise en charge et du suivi sanitaire des populations exposées.

Les résultats des évaluations réalisées par l'IRSN avec ses méthodes et ses outils de crise montrent que, quel que soit le type de rejet, l'ingestion de denrées alimentaires contaminées est la voie d'exposition prédominante dans l'estimation de la dose totale susceptible d'être reçue la première année. Dans le cadre d'un rejet de radionucléides émetteurs alpha, la contribution de la dose reçue par exposition externe est minoritaire. Des voies d'exposition (inhalation des particules remises en suspension et ingestion involontaire de sol et de poussière) considérées secondaires pour des rejets d'émetteurs gamma, deviennent prépondérantes notamment au-delà de la première année. Des travaux complémentaires paraissent nécessaires pour affiner les valeurs à retenir pour certains paramètres, actuellement entachés d'incertitudes, utilisés pour ces évaluations dosimétriques

L'analyse des documents sur les accidents de Palomares et de Thulé montre qu'immédiatement après l'accident la mise en œuvre des actions visant à réduire l'exposition de la population (restriction alimentaire, actions de réduction de la contamination) semblait être adossée à des critères météorologiques et ne reposait pas directement sur des critères dosimétriques

Sur la base des différents éléments étudiés dans ce rapport, il apparaît que les principes de gestion post-accidentelle présentés dans les nouvelles recommandations du CODIRPA restent globalement valables et applicables dans le cas d'un rejet de radionucléides émetteurs alpha.

Cependant, deux points principaux appellent des commentaires.

Le premier concerne la prise en compte de la seule dose externe pour la définition d'un périmètre d'éloignement. L'IRSN estime que, comme retenu dans la doctrine CODIRPA de 2012, d'autres voies d'exposition comme l'inhalation de particules remises en suspension et l'ingestion involontaire de sol et de poussières doivent être considérées, quel que soit le type de rejets et a fortiori dans le cas de rejets de radionucléides émetteurs alpha pour lesquels ces voies d'exposition présentent une contribution notable à la dose efficace totale.

Le second porte sur l'établissement du zonage post accidentel consolidé par les mesures. Le caractère essentiel de la mesure dans l'établissement puis l'ajustement de ce zonage reste un principe pertinent dans le cas de rejets de radionucléides émetteurs alpha. Les spécificités de ces radionucléides conduisent néanmoins à des délais plus longs et des moyens plus réduits pour caractériser des niveaux de contamination du territoire, en comparaison de rejets de radionucléides émetteurs gamma.

L'ensemble des remarques précédentes de l'IRSN sur la doctrine relèvent de considérations techniques. D'autres aspects tels que la perception des risques liés au plutonium par la société pourrait devoir être pris en compte lors de la mise en œuvre de la doctrine.

GLOSSAIRE

| | |
|---------|--|
| AIEA | Agence Internationale à l'Énergie Atomique |
| ASN | Autorité de Sûreté Nucléaire |
| CA-DTPA | Acide diéthylène triamine penta acétique |
| CODIRPA | Comité DIrecteur pour la gestion de la phase Post-Accidentelle |
| CNPE | Centre Nucléaire de Production d'Électricité |
| CSN | Consejo de Seguridad Nuclear |
| CTC | Centre Technique de Crise |
| HPGe | Germanium hyper-pur |
| IRSN | Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire |
| JEN | Junta de Energia Nuclear |
| GT | Groupe de Travail |
| NaI | Iodure de sodium |
| MOX | Combustible « Mélange d'Oxydes » |
| REP | Réacteur à Eau sous Pression |
| TRS | Technical Reports Series |

RÉFÉRENCES

- [1] ASN, 2012. *Eléments de doctrine pour la Gestion Post-Accidentelle d'un Accident Nucléaire*.
- [2] ASN, 2019. *Recommandations du CODIRPA relatives à la gestion post-accidentelle d'un accident nucléaire*. CODEP-ASN-DEU-2019-043679.
- [3] IRSN, 2004. *Fiche radionucléide. Plutonium et environnement. Version 2*. Institut de Radioprotection et de Sécurité Nucléaire – Fontenay-aux-Roses. 31 pages.
https://www.irsn.fr/FR/Larecherche/publications-documentation/fiches-radionucleides/Documents/environnement/Plutonium_Pu239_v2.pdf .
- [4] H. Métivier, 2010, *Plutonium - Mythes et Réalités*, EDP Sciences.
- [5] IRSN, 2018. *Bilan de l'état radiologique de l'environnement français de 2015 à 2017*. Rapport DG/2018-00006. Institut de Radioprotection et de Sécurité Nucléaire, Fontenay-aux-Roses. 354 pages.
https://www.irsn.fr/FR/expertise/rapports_expertise/Documents/environnement/IRSN-ENV_Bilan-Radiologique-France-2015-2017.pdf.
- [6] IAEA. (2010). *Handbook of parameter values for the prediction of radionuclide transfer in terrestrial and freshwater environments*. International Atomic Energy Agency, Vienna, Technical Report Series N° 472.
- [7] Azza Habibi, 2015, *Analyse rapide des actinides par couplage chromatographie liquide/ICP-MS et de ⁹⁰Sr par compteur proportionnel à gaz, dans les échantillons de l'environnement, en situation post-accidentelle*. Thèse de doctorat en Chimie analytique et radiochimie
- [8] Gillies, M., Kuznetsova, I., Sokolnikov, M., et al., 2018. *Lung Cancer Risk from Plutonium: A Pooled Analysis of the Mayak and Sellafield Worker Cohorts*. Radiation Research, 188(6), 725-740, 2017
- [9] ICRP, 2019. *Occupational intakes of radionuclides: Part 4*. ICRP Publication 141. Ann. ICRP 48(2/3)
- [10] Agency For Toxic Substances and Disease Registry, *Toxicological Profile for Plutonium*, United States Department of Health and Human Services, Atlanta, GA (2010), www.atsdr.cdc.gov/toxprofiles/tp143.pdf
- [11] Dave Philips, 2016. *Las consecuencias ocultas de un accidente nuclear en España causado por Estados Unidos*. The New York Times. <https://www.nytimes.com/es/2016/06/21/espanol/las-consecuencias-ocultas-de-un-accidente-nuclear-en-espana-causado-por-estados-unidos.html>
- [12] Parlement Européen, 2007. *Conséquences de l'accident aérien de Thulé de 1968 pour la santé publique*. Résolution du Parlement européen du 10 mai 2007 sur les conséquences de l'accident aérien de Thulé de 1968 pour la santé publique (pétition 720/2002) (2006/2012(INI)) (P6_TA(2007)0182)
- [13] IRSN, 2007. *CODIRPA : Présentation de deux scénarios d'accident affectant une centrale nucléaire française*. Note technique DEI/SARG/07-026, DEI/SESUC/07-053

- [14] IRSN, 2008. *CODIRPA : Conséquences à court et moyen termes d'un rejet de plutonium dans l'atmosphère*. Note technique DEI/SESUC/08-067
- [15] EPA, 1993. *External Exposure to Radionuclides in Air, Water, and Soil*, Federal Guidance Report No. 12 (No. EPA-402-R-93-081). U.S. Environmental Protection Agency, Washington, DC.
- [16] EPA, 2019. *External Exposure to Radionuclides in Air, Water, and Soil*, Federal Guidance Report No. 15 (No. EPA 402-R-19-002). U.S. Environmental Protection Agency, Washington, DC.
- [17] ICRP, 2020. *Dose coefficients for external exposures to environmental sources*. ICRP Publication 144. Ann. ICRP 49(2).
- [18] ICRP, 1994. *Human Respiratory Tract Model for Radiological Protection*. ICRP Publication 66. Ann. ICRP 24 (1-3).
- [19] Arrêté du 1er septembre 2003 définissant les modalités de calcul des doses efficaces et des doses équivalentes résultant de l'exposition des personnes aux rayonnements ionisants
- [20] L.J. King & W.T. McCarley, 1961, *Plutonium release incident of November 20, 1959*. Oak Ridge National Laboratory
- [21] Defense Nuclear Agency, 1976. *Palomares Summary Report*.
- [22] C. Sancho & R. García-Tenorio, 2003. *Radiological evaluation of the transuranic remaining contamination in Palomares (Spain): A historical review*. Journal of Environmental Radioactivity Volume 203, July 2019, Pages 55-70
- [23] Nuclear Safety Council. *Palomares : desde el accidente al plan de restauracion*.
- [24] Nuclear Safety Council, 2013. *1966/2013 Palomares. En el camino de la normalización radiológica*. CSN, Madrid, Spain.
- [25] USAF Nuclear Safety, 1970. *Project Crested Ice*. AFRP 122-1 1970 n° 1 Vol.65(part2) special edition
- [26] Sven P. Nielsen and Per Roos, 2006. *Thule-2003 - Investigation of Radioactive Contamination*. Rapport Risø-R-1549(EN).
- [27] CIPR, 2021. *Use of dose quantities in radiological protection* CIPR Publication 147 (2021)

ANNEXES

| | |
|------------------------------------|-----------|
| Annexe 1. Saisine ASN | 43 |
|------------------------------------|-----------|

| | |
|---|-----------|
| Annexe 2. Comportement du plutonium dans les différents compartiments de l'environnement | 45 |
|---|-----------|

| | |
|---|----|
| 2.1. Caractéristiques générales | 45 |
| 2.2. Origines | 45 |
| 2.3. Concentrations dans l'environnement | 45 |
| 2.4. Mobilité dans le sol | 47 |
| 2.5. Remise en suspension | 47 |
| 2.6. Transferts aux végétaux | 51 |
| 2.7. Transferts aux animaux | 51 |
| 2.8. Mobilité et biodisponibilité en milieu aquatique continental | 52 |
| 2.9. Mobilité et biodisponibilité en milieu marin | 53 |
| 2.10. Outils de modélisation IRSN | 54 |
| 2.11. Conclusion | 54 |
| 2.12. Références | 54 |

| | |
|---|-----------|
| Annexe 3. Moyens et capacités de mesures des éléments α pour les matrices environnementales et les aliments..... | 58 |
|---|-----------|

| | |
|--|----|
| 3.1. Sur le terrain..... | 58 |
| 3.1.1. Techniques de mesures des émetteurs α sur le terrain | 58 |
| 3.1.1.1. Mesure globale des émetteurs α (non discriminante) | 58 |
| 3.1.1.2. Mesure des émetteurs α par spectrométrie γ | 58 |
| 3.1.1.3. Mesure des émetteurs α par spectrométrie α | 58 |
| 3.1.1.4. Mesure des émetteurs α par scintillation liquide..... | 59 |
| 3.1.2. Seuil de décision des mesures des émetteurs α sur le terrain | 61 |
| 3.2. En laboratoire | 63 |
| 3.2.1. Isotopes de l'uranium | 63 |
| 3.2.2. Isotopes du plutonium et de l'américium | 65 |
| 3.3. Les laboratoires hors IRSN | 67 |
| 3.3.1. Le Réseau National de Mesures de la Radioactivité de l'Environnement (RNM) | 67 |
| 3.3.2. Les laboratoires DGAL | 69 |
| 3.3.3. Les laboratoires DGCCRF | 69 |
| 3.3.4. Les laboratoires DGS | 70 |
| 3.3.5. Synthèse sur les laboratoires hors IRSN | 70 |
| 3.4. Laboratoires potentiellement mobilisables..... | 70 |
| 3.4.1. Potentiel des Laboratoires mobilisables pour la mesure de l'uranium | 71 |
| 3.4.2. Potentiel des laboratoires mobilisables pour la mesure du plutonium et de l'américium par détection du rayonnement α | 71 |
| 3.4.3. Potentiel des laboratoires mobilisables pour la mesure de l'américium par détection du rayonnement gamma | 72 |
| 3.4.4. Potentiel des laboratoires mobilisables pour la mesure de l'activité « α globale » d'un échantillon | 73 |
| 3.5. Lexique | 73 |
| 3.6. Références bibliographiques | 73 |

| | |
|---|-----------|
| Annexe 4. Fiches "Métrologie Crise" de l'IRSN..... | 75 |
|---|-----------|

| | |
|--|-----------|
| Annexe 5. Effets sanitaires des émetteurs α sur l'homme et conséquences à long terme (effets stochastiques) - Moyens de mesures de la population et traitements . | 82 |
|--|-----------|

| | |
|---|----|
| 5.1. Comportement dans l'organisme du plutonium et de l'américium et toxicité chez l'homme | 82 |
| 5.1.1. Devenir du plutonium et de l'américium après incorporation par inhalation ou par ingestion | 82 |
| 5.1.2. Toxicité du plutonium et de l'américium | 82 |
| 5.1.2.1. Effets déterministes | 83 |
| 5.1.2.2. Effets stochastiques à long terme..... | 83 |

| | |
|--|----|
| 5.2. Moyens de mesures de la contamination interne des personnes par le plutonium et l'américium et traitements disponibles | 84 |
| 5.2.1. Mesures de la contamination interne | 84 |
| 5.2.1.1. Les différents types d'examen | 84 |
| a. Mesure dans les excréta | 84 |
| b. Mesures anthroporadiométriques | 84 |
| 5.2.1.2. Interprétation des mesures : l'estimation de la dose..... | 85 |
| 5.2.2. Capacités des moyens de mesures individuels de l'IRSN pour le contrôle de la population environnante en cas d'accident nucléaire..... | 85 |
| 5.2.2.1. Mesures anthroporadiométriques | 85 |
| 5.2.2.2. Mesures dans les excréta | 86 |
| 5.2.3. Traitements des contaminations par le plutonium et l'américium | 86 |
| 5.3. Références..... | 87 |

Annexe 6. Voies d'exposition de la population en phase post accidentelle après un rejet de plutonium..... 88

| | |
|---|----|
| 6.1. Demande | 88 |
| 6.2. Simulation d'un scénario accidentel..... | 88 |
| 6.3. Ingestion d'aliments contaminés | 90 |
| 6.3.1. Introduction | 90 |
| 6.3.2. Voies de contamination des végétaux | 90 |
| 6.3.3. Voies de contamination des animaux | 90 |
| 6.3.4. Adhésion de sol aux végétaux..... | 90 |
| 6.3.5. Contribution à l'exposition..... | 91 |
| 6.4. Ingestion involontaire..... | 92 |
| 6.4.1. Introduction | 92 |
| 6.4.2. Activité massique du sol..... | 92 |
| 6.4.3. Contact main-bouche..... | 92 |
| 6.4.4. Quantité ingérée de sol et poussière | 93 |
| 6.4.5. Conclusion..... | 93 |
| 6.5. Remise en suspension | 94 |
| 6.5.1. Introduction | 94 |
| 6.5.2. Coefficient de remise en suspension | 94 |
| 6.5.3. Granulométrie des aérosols | 95 |
| 6.5.4. Empoussièrément | 95 |
| 6.5.5. Conclusion..... | 96 |
| 6.6. Coefficients de dose interne..... | 97 |
| 6.7. Irradiation externe | 98 |
| 6.8. Conclusion | 99 |
| 6.9. Références..... | 99 |

Annexe 7. Les accidents de Palomares et de Thulé 102

| | |
|--|-----|
| 7.1. Accident de Palomares | 102 |
| 7.1.1. Zone d'impact | 103 |
| 7.1.2. Caractérisation de la contamination en 1966 | 103 |
| 7.1.3. Décontamination des terrains et gestion des déchets | 104 |
| 7.1.4. Surveillance environnementale | 105 |
| 7.1.5. Action de protection de la population | 106 |
| 7.1.6. Restriction de mise sur le marché..... | 107 |
| 7.2. Accident de Thulé..... | 108 |
| 7.2.1. Actions de protection des populations | 109 |
| 7.2.2. Action de réduction de la contamination..... | 109 |
| 7.2.3. Suivi environnemental | 109 |
| 7.3. Références..... | 110 |

Annexe 1. Saisine ASN



RÉPUBLIQUE FRANÇAISE

DIRECTION DE L'ENVIRONNEMENT
ET DES SITUATIONS D'URGENCE

CODEP-DEU-2020-013184
SAISI-DEU-2020-0040
Affaire suivie par : Florence Gabillaud-Poillion
Tél : 01 46 16 40 59
Fax : 01 41 16 44 29
Mel : florence.gabillaud-poillion@asn.fr

Montrouge, le 19 mai 2020

Monsieur le Directeur Général
Institut de radioprotection et de sûreté nucléaire
BP 17
92262 Fontenay-aux-Roses Cedex

Objet : Saisine relative à la doctrine post-accidentelle pour des accidents autres que ceux pouvant intervenir sur un CNPE

Les travaux menés dans le cadre du CODIRPA depuis 2005 ont abouti à l'élaboration d'éléments de doctrine pour la gestion post-accidentelle d'un accident nucléaire. Après la publication de nouvelles recommandations¹ en 2019 concernant la gestion post-accidentelle d'un accident nucléaire, le CODIRPA souhaite mettre en place un groupe de travail pluraliste afin d'examiner la pertinence de la doctrine pour des accidents nucléaires ou radiologiques autres que ceux pouvant intervenir sur un CNPE. Ceux-ci concernent principalement les installations nucléaires de base (INB, INBS) pouvant rejeter des produits radioactifs émetteurs alpha, du tritium, ou des produits de fission à vie longue (cycle aval du combustible) ainsi que les sources de haute activité et les transports de substances radioactives, etc.

Compte-tenu de l'étendue du sujet et des enjeux, l'ASN et l'IRSN ont convenu du périmètre de l'appui technique qui devra être apporté par l'IRSN aux membres du Codirpa :

- Analyser la pertinence de la doctrine post-accidentelle en cas de rejets d'émetteurs alphas à partir de l'exemple du plutonium;
- Recenser et classer les autres types de rejets pour lesquels il conviendrait de s'interroger ;
- Analyser la pertinence de la doctrine post-accidentelle pour les radionucléides identifiés dans l'étape précédente (autres que le plutonium).

La présente saisine concerne uniquement le premier point, pour lequel des difficultés ont d'ores-et-déjà été identifiées dans la doctrine actuelle. Les deux autres points feront l'objet d'une saisine ultérieure, une fois les travaux de valorisation de la présente saisine avancés.

Dans le cadre de la présente saisine, je vous demande donc :

- De recenser les installations pouvant être concernées par des rejets de plutonium accidentels ;
- De préciser les voies de transfert du plutonium dans l'environnement (transfert dans l'eau et dans les productions agricoles) et les moyens et capacité disponibles de mesure du plutonium dans les aliments et les matrices environnementales.
- De préciser les effets sanitaires du plutonium sur l'homme et les conséquences à long terme (effets stochastiques), les moyens de s'en protéger, ainsi que les normes actuelles de protection (DPUI et limites selon les voies d'exposition), dans l'objectif d'avoir des éléments pertinents pour la révision de la doctrine.

¹ Réf. CODEP-ASN-DEU-2019-043679 du 14 juin 2019

D'analyser la pertinence de la doctrine post-accidentelle, à savoir l'identification des points de la doctrine post-accidentelle (dans sa version de 2019) qui nécessitent une réflexion du GT pour les rejets de plutonium en tenant compte du retour d'expérience des accidents et exercices passés.

Les travaux que vous mènerez permettront notamment d'apporter au GT des éléments techniques nécessaires à la définition des actions de protection de la population en se basant sur des scénarios de contamination fictifs, décorellés des scénarios d'accident.

Par cette saisine, l'ASN demande également que l'IRSN participe aux travaux du GT qui sera mis en place concernant les rejets émanant d'installations autres que les CNPE et que l'IRSN puisse produire au cours des travaux de ce GT les éléments techniques utiles.

Je vous saurais gré de bien vouloir nous présenter un point d'avancement début novembre 2020 en vue de l'exercice de la base d'Avord puis une présentation et des premières conclusions lors d'une première réunion du GT prévue début décembre 2020.

Un rapport définitif présentant ces éléments est attendu pour fin mars 2021.

**Le Directeur de l'environnement
et des situations d'urgence**



Olivier RIVIERE

Annexe 2. Comportement du plutonium dans les différents compartiments de l'environnement

2.1. Caractéristiques générales

Le plutonium appartient à la famille des actinides transuraniens et se présente sous la forme d'un métal argenté. Il s'oxyde au contact de l'air. Les isotopes du plutonium sont tous radioactifs. Ils sont émetteurs α , sauf le ^{241}Pu qui est émetteur β^- . Leurs périodes radioactives sont longues, de plusieurs années à plusieurs centaines de milliers d'années. Le plutonium se caractérise par une très forte radiotoxicité¹⁴ (classe 1 de radiotoxicité) (IRSN 2004).

| | Pu-238 | Pu-239 | Pu-240 | Pu-241 | Pu-242 |
|------------------------------|--------|--------|--------|--------|---------|
| Période radioactive (années) | 87,76 | 24130 | 6567,5 | 14,4 | 373 000 |

2.2. Origines

Le plutonium est en quasi-totalité d'origine artificielle même si on peut trouver, de manière très exceptionnelle, des traces de plutonium naturel dans des minerais d'uranium (réacteur naturel d'Oklo). Du plutonium a été disséminé dans l'environnement mondial lors des tirs atmosphériques d'armes nucléaires de 1945 à 1975, par un accident de satellite propulsé à l'aide de combustible nucléaire (tel le SNAP-9A) et plus localement, par deux accidents d'avions portant des engins nucléaires (Palomarès et Thulé) ainsi que par les usines de traitement du combustible nucléaire telles que les usines d'Orano à la Hague. Les accidents de Windscale, de Tchernobyl et de Fukushima ont libéré du plutonium sous forme aérosol, mais également à proximité du réacteur sous la forme de particules de combustible de plus grand diamètre et plus lourdes, dites particules chaudes. Enfin, les usines de retraitement du combustible nucléaire génèrent des rejets de plutonium, essentiellement sous forme d'effluents liquides rejetés en mer.

Il est possible de tracer l'origine du plutonium à l'aide des rapports entre ses différents isotopes. Une origine liée aux retombées des essais nucléaires aériens est caractérisée par un rapport isotopique $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ de 0,03 ou bien par un rapport isotopique $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ de l'ordre de 0,18. Un rapport isotopique $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ de 0,42 est spécifique à l'accident de Tchernobyl. Un rapport $^{241}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ de l'ordre de 30 est spécifique des rejets des usines de retraitement, alors qu'un rapport de 16 signe les retombées des essais atmosphériques d'armes nucléaires (IRSN, 2004).

2.3. Concentrations dans l'environnement

De tous les isotopes du plutonium, ce sont les isotopes 239 et 240 qui ont les concentrations les plus élevées et qui sont ainsi les plus facilement mesurables dans l'environnement. C'est pourquoi les données les plus nombreuses concernent ces deux isotopes. Ils ne sont pas dissociables. La plupart des

¹⁴ La radiotoxicité dépend de l'activité massique d'un radionucléide, très élevée dans le cas du plutonium comparativement à l'uranium par exemple. Les radionucléides sont classés en quatre classes en fonction de leur radiotoxicité : très forte (1), forte (2), modérée (3) et faible (4).

données sur le Pu dans l'environnement concerne la somme des deux isotopes ($^{239+240}\text{Pu}$) accessible par spectrométrie α .

En France, l'origine du $^{239+240}\text{Pu}$ dans la biosphère terrestre est imputable aux essais atmosphériques d'armes nucléaires (IRSN, 2018). Les activités en $^{239+240}\text{Pu}$ sont de 10 à 2000 mBq.kg⁻¹ sec dans les sols. Cette gamme de concentrations est à mettre en relation avec les cumuls de précipitations annuelles et le phénomène de lessivage des aérosols atmosphériques par les pluies. Dans les végétaux terrestres (cf. Tableau A2- 1), les concentrations en $^{239+240}\text{Pu}$ sont comprises entre 0,005 et 50 mBq.kg⁻¹ sec, dont la variabilité principale est liée à l'intensité des dépôts.

La présence de plutonium dans l'eau a été étudiée dans quelques fleuves en France. Dans le bas-Rhône (aval de la confluence de la Durance et du Gard), la concentration en $^{239+240}\text{Pu}$ de l'eau du Rhône a varié de 0,3 à 0,03 Bq.m⁻³ de 1961 à 1998, sa valeur maximale étant de 1,3 Bq.m⁻³ en 1965 (Duffa, 2001). Ces concentrations reflètent le drainage des retombées anciennes sur le bassin versant, ainsi que les rejets d'effluents de l'usine de retraitement de Marcoule (Duffa, 2001). Dans les eaux de la Seine, les concentrations en $^{239+240}\text{Pu}$ sont de l'ordre de 0,5 à 0,01 Bq.m⁻³ (années 1980-1994) ; par fort débit, elles peuvent descendre à moins de 0,01 Bq.m⁻³ (Garcia 1997). Ces activités sont dues aux retombées anciennes et aux rejets du CEA de Fontenay-aux-Roses de 1954 à 1990, qui ont culminé en 1975 et nettement diminué à partir de 1980 (Boust et al., 2012). La valeur de 0,01 Bq.m⁻³ correspond au bruit de fond moyen des eaux continentales en France, hors influence industrielle. La concentration en plutonium des sédiments est très variable, de non mesurable à 4.10³Bq.kg⁻¹ (Coughtrey, 1984).

Les concentrations de plutonium rapportées dans les végétaux d'eau douce sont extrêmement variables, de 10⁻² à 10⁴ Bq.kg⁻¹ sec (Coughtrey, 1984). Pour les poissons, la gamme de variation des concentrations de plutonium s'étend de 10⁻⁶ à 10² Bq.kg⁻¹ frais.

Dans le milieu marin, en Manche, les concentrations en $^{239,240}\text{Pu}$ dans l'eau se situent entre 5 et 30 mBq.m⁻³ et entre 6 et 9 mBq.m⁻³ dans les eaux de l'Atlantique (Boust et al, 1996 ; Bourlat et al, 1996), dont l'origine est liée aux retombées anciennes et aux deux usines de retraitement du combustible usé de La Hague et de Sellafield.

Les activités massiques en $^{239,240}\text{Pu}$ dans les matières en suspension dans l'eau de mer sont comprises entre 1 et 10 Bq.kg⁻¹ en Manche. Dans les sédiments sableux de la Manche, les activités massiques dépassent rarement 1 pour le $^{239,240}\text{Pu}$ et 0,8 Bq.kg⁻¹ pour le ^{238}Pu , à comparer avec 0,3 et 0,008 Bq/kg hors de toute influence industrielle (Boust, 1999). Le long des côtes françaises de la Manche, les concentrations sont actuellement inférieures à 1 Bq.kg⁻¹ sec (0,2 Bq.kg⁻¹ frais) chez des espèces indicatrices, mollusques patelles et moules.

Le bilan de l'état radiologique de l'environnement français (IRSN, 2018) donne les gammes d'activités massiques en $^{239+240}\text{Pu}$ dans différents produits susceptibles d'être consommés par l'homme (cf. Tableau A2- 1).

Tableau A2- 1 : Gammes d'activités en $^{239+240}\text{Pu}$ dans différents produits de consommation.

| Produits alimentaires | Activité spécifique en $^{239+240}\text{Pu}$ (en mBq.kg^{-1} frais) | |
|-----------------------|--|---------|
| | Gamme Min-Max | Moyenne |
| Lait | 0,007 à 0,01 | 0,008 |
| Viandes et gibiers | 0,15 à 0,36 | 0,25 |
| Céréales | 0,013 à 3,5 | 1,2 |
| Légumes feuilles | 0,0062 à 10 | 3,2 |
| Fruits | 0,0086 à 0,053 | 0,025 |
| Légumes racines | 0,034 à 0,15 | 0,085 |
| Autres légumes | 0,026 à 1,5 | 0,57 |
| Poissons de rivières | 0,0071 à 0,4 | 0,092 |
| Poissons marins | 0,0091 à 0,013 | 0,012 |
| Mollusques | 10 à 20 | 12 |

2.4. Mobilité dans le sol

Dans l'environnement, une fois déposé sur le sol, le plutonium forme des complexes peu solubles dans l'eau, entraînant une migration particulièrement faible dans les sols. La vitesse de migration du plutonium est de quelques dixièmes de centimètres par an (Komosa, 1999), maintenant ce radionucléide dans les couches superficielles du sol pendant de nombreuses années.

Le coefficient de partage¹⁵ eau-sol (Kd) du plutonium dans les sols se situe dans une gamme variant de 32 à 9600 L.kg^{-1} en lien avec la texture du sol, selon le TRS 472 de l'AIEA (IAEA, 2010).

2.5. Remise en suspension

Dans les mois qui suivent un dépôt significatif, comme dans le cas d'un accident nucléaire, la remise en suspension des radionucléides déposés lors de l'accident et dans les jours qui suivent contribue à entretenir leurs niveaux dans l'air essentiellement à une échelle locale. Pour autant qu'il soit secondaire en amplitude, retardé et étalé dans le temps et dans l'espace, le « terme source » résultant de ce mécanisme est parfaitement quantifiable (en masse comme en activité)¹⁶.

Parmi les activités anthropiques participant momentanément à la ré-émission de radionucléides dans l'air on signalera les opérations de décontamination (Doi et al., 2019) ainsi que les travaux agricoles (Garger, 1998, 1999). On peut également citer des événements sporadiques particuliers comme des feux de biomasse sur des territoires contaminés (Kashparov et al., 2015, Buzdalkin et al., 2019), l'émission saisonnière de pollens (Wershofen & Arnold, 2005), de spores, ou de débris végétaux microscopiques (Igarashi et al., 2019). Enfin, l'émission d'embruns depuis des surfaces maritimes (Kierepko et al., 2009) peut également être une source d'alimentation du compartiment atmosphérique. Mais le mécanisme intervenant de façon quasi ubiquiste et quasi permanente est la mise en suspension de particules depuis les sols sous l'action du vent. A un instant donné, cela concerne uniquement la couche de surface (typiquement de quelques millimètres à 1 cm). La mise en

¹⁵ Le coefficient de partage est le rapport entre les activités dans les phases solides et liquides. Il est utilisé en radioécologie comme paramètre de migration dans les sols.

¹⁶ Dans les années qui ont suivi l'accident de Fukushima, ce mécanisme a notamment permis d'expliquer des augmentations significatives des niveaux dans l'air (Kinase et al., 2018).

suspension éolienne est un phénomène à seuil pour lequel on considère une vitesse de vent minimale nécessaire de 6 à plus de 10 m.s⁻¹, selon les caractéristiques du sol et du couvert végétal, pour vaincre les forces de cohésion entre les matériaux constitutifs du sol (Arimoto et al., 2002, Bergametti & Forêt, 2014). Toute particule mise en suspension ou émise dans l'atmosphère est immédiatement appelée à se (re)déposer dès lors que les forces la maintenant en suspension diminuent ou sont insuffisantes au regard de celle exercée par la gravité. Le flux vers l'atmosphère est ainsi contrebalancé par des mécanismes de dépôt.

L'évaluation de la remise en suspension des radionucléides déposés, par érosion éolienne, est exprimée à l'aide d'un coefficient K (en m⁻¹) défini par le rapport de l'activité dans l'air (Bq.m⁻³) à la densité surfacique de dépôt (Bq.m⁻²). L'éventail des valeurs proposées dans la littérature scientifique est considérable et s'étale sur 5 à 6 ordres de grandeur entre les semaines et les années qui suivent le dépôt. La raison principale est liée à l'évolution temporelle de ce coefficient qui traduit l'atteinte progressive d'un niveau d'équilibre entre l'épuration du compartiment atmosphérique et son alimentation par les émissions diverses (depuis un stock considéré en première approximation comme relativement constant s'agissant du plutonium). Une autre source de variabilité des valeurs repose sur la méthodologie ayant permis l'obtention du coefficient K. L'activité mesurée dans l'air dépend en effet de plusieurs paramètres :

- de la hauteur au-dessus du sol à laquelle la mesure d'activité est réalisée. Le profil vertical de concentration en aérosols issus de la remise en suspension décroît avec la hauteur. Par exemple, l'activité volumique en ¹³⁷Cs à 3 m au-dessus du sol est seulement de 40 % de la valeur trouvée à 1 m. Cette activité volumique est d'autant plus variable que la taille de l'aérosol mis en suspension est importante et que l'écoulement est inhomogène et de faible vitesse ;
- de l'homogénéité ou non de la répartition des dépôts à partir desquels il convient d'estimer un niveau de contamination surfacique moyen ;
- de la contribution locale de la remise en suspension et de celle plus ou moins distante acquise au cours du transport de la masse d'air jusqu'à l'endroit du prélèvement d'aérosols. Cette difficulté peut difficilement être contournée. Elle est d'autant plus marquée que la vitesse du vent est élevée (par conséquent la remise en suspension) et que l'activité des territoires survolés par les masses d'air avant leur arrivée au point de prélèvement est plus importante que celle du sol au point de prélèvement.

Les revues de synthèse sur la remise en suspension des radionucléides antérieurement déposés montrent que l'évolution temporelle des valeurs du coefficient de remise en suspension suit une loi exponentielle décroissante (Maxwell & Anspaugh, 2011). Cette décroissance reflète d'une part la période de décroissance du radionucléide lorsque celle-ci est suffisamment courte ou du même ordre de grandeur que celle d'observation (cas du ¹³⁷Cs par exemple), ainsi que la moindre disponibilité du radionucléide considéré consécutive au lessivage des sols et à la migration du radionucléide dans les sols à l'échelle de plusieurs années. La revue de synthèse réalisée par Maxwell & Anspaugh en 2011 sur les coefficients de remise en suspension obtenus expérimentalement montre, à une date donnée, une variabilité de deux à trois ordres de grandeur des valeurs du coefficient K (cf. Figure A2- 1). Afin de restreindre l'éventail de valeurs proposées on privilégiera celles obtenues :

1. dans des conditions environnementales proches ou susceptibles de rendre compte des spécificités de l'environnement français (en excluant par exemple les valeurs obtenues en milieux arides ou tropicaux, ou celles obtenues en laboratoire sur des amas de poudres de Pu),
2. en bornant l'analyse des données dans un cadre post-accidentel à court terme (période de fort gradient de variation de la valeur du coefficient de remise en suspension).

Le tableau A2- 2 fournit des fourchettes de valeurs et l'ordre de grandeur des valeurs conservatives préconisées. Les valeurs à très court terme sont entachées d'une grande incertitude car l'aérosol marqué par un radionucléide et récemment déposé peut ne pas encore être complètement fixé sur son matériau récepteur (matériau constitutif de la couche superficielle du sol et susceptible d'être mis en suspension). Les valeurs à T0 + 1 jour restent théoriques et entachées d'une variabilité très importante. Walsh (2002) propose une valeur de $1,2 \cdot 10^{-6} \text{m}^{-1}$ pour caractériser la remise en suspension le premier jour après un dépôt. Cette valeur est parfois étendue à toute la première année (Linsley 1978).

Tableau A2- 2 : Fourchettes de valeurs du coefficient de remise en suspension $K \text{ (m}^{-1}\text{)}$ et préconisation pour une approche conservatrice correspondant à un flux maximal vers l'atmosphère.

| Délai après dépôt initial | $K \text{ (m}^{-1}\text{)}$ | Valeurs conservatives |
|---------------------------|--------------------------------|-----------------------|
| 1 jour | 10^{-4} à 10^{-7} | 10^{-5} |
| 1 mois | 10^{-6} à 10^{-7} | 10^{-6} |
| 6 mois | 10^{-7} à 10^{-8} | 10^{-7} |
| 1 an | 10^{-8} à $5 \cdot 10^{-9}$ | 10^{-8} |
| 2 ans | $5 \cdot 10^{-9}$ à 10^{-9} | $5 \cdot 10^{-9}$ |
| 5 ans | 10^{-9} à $5 \cdot 10^{-10}$ | 10^{-9} |
| >5 ans | 10^{-9} à $5 \cdot 10^{-11}$ | 10^{-9} |

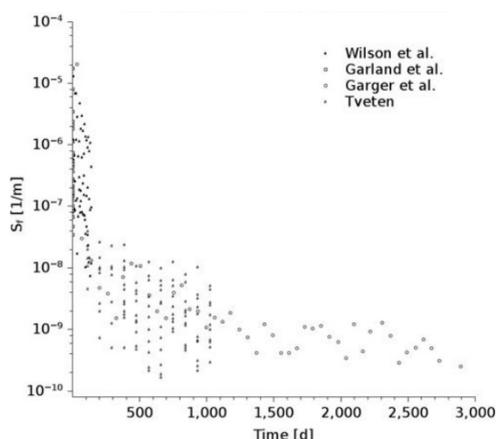


Figure A2- 1 : Exemple de synthèse sur l'évolution temporelle de $K \text{ (m}^{-1}\text{)}$ d'après Marshall et al. (2018).

On considère généralement que le processus de remise en suspension n'est pas radionucléide dépendant et qu'il reflète principalement les conditions environnementales : caractéristiques édaphiques (texture, composition et humidité du sol), topographiques, météorologiques, climatiques, couverture végétale ainsi que les activités humaines. Le ^{137}Cs est souvent utilisé comme traceur de la mise en suspension ou pour quantifier ce mécanisme (Chappell, 2003)¹⁷. Le cas des isotopes du Pu est a priori assez proche de celui des isotopes du césium compte tenu de la faible mobilité de ces deux éléments dans les sols (et donc dans la couche érodable de surface). A défaut de valeurs spécifiques pour le Pu et même si quelques rares travaux montrent une moindre remise en suspension des

¹⁷ Grâce à l'Observatoire Permanent de la Radioactivité de l'Air (réseau des stations OPERA), l'IRSN réactualise chaque semaine sa connaissance des niveaux en ^{137}Cs et tous les trimestres celle des niveaux en transuraniens (Pu, Am) dans l'atmosphère en France. A partir de la connaissance de l'évolution de la concentration en ^{137}Cs dans l'atmosphère en France, il est possible de démontrer l'atteinte d'un état d'équilibre, en moyenne annuelle, entre les mécanismes de remise en suspension et de dépôt. Ces observations faites sur le ^{137}Cs s'appliquent également au cas des isotopes du plutonium. Le compartiment terrestre apparaît comme le réservoir permettant encore aujourd'hui l'alimentation du compartiment atmosphérique à des niveaux traces.

isotopes du Pu en comparaison avec celle du ^{137}Cs (40 % selon Rosner et al., 1997) on pourra utiliser celles mesurées ou estimées pour le ^{137}Cs à titre conservatif. Après l'accident de Tchernobyl, une valeur moyenne de $2 \cdot 10^{-8} \text{ m}^{-1}$ pour le ^{137}Cs a été calculée sur la base de mesures réalisées dans plusieurs villes européennes, d'avril à juin 1986 (Garland & Pomeroy, 1994). Cette valeur est environ 2 fois plus faible que la valeur moyenne pour l'année 1986 dans la ville de Tchernobyl ($3,4 \cdot 10^{-8} \text{ m}^{-1}$). Suite à l'accident de Fukushima, des valeurs d'environ $1,5 \cdot 10^{-8} \text{ m}^{-1}$ ont été obtenues entre fin avril et fin mai 2011 à 180 km au sud de la centrale (Kaneyasu et al, 2017). A partir de fin mai 2011, les valeurs ont chuté d'environ un ordre de grandeur (gamme allant de $1,5$ à $4,2 \cdot 10^{-9} \text{ m}^{-1}$). Ces moyennes peuvent masquer une variabilité ponctuelle d'au moins un ordre de grandeur.

De très nombreuses valeurs de K ont été obtenues sur la remise en suspension du ^{239}Pu au Nevada Test Site (Anspaugh et al., 1973, 1975, 2002) et de $^{239+240}\text{Pu}$ sur le site de stockage de déchets radioactifs (WIPP) de Carlsbad, au Etats-Unis (Arimoto, 2002, 2005). D'autres mesures ont été obtenues suite à l'accident impliquant la dissémination de Pu sur le site de Palomares, région d'Almería dans le sud de l'Espagne (Chamizo et al, 2010). Compte tenu du climat aride ou semi-aride de ces régions et de la faible couverture végétale associée, il est préférable de les écarter dans un premier temps au profit de valeurs obtenues en zone tempérée : au Royaume-Uni (Garland & Pomeroy, 1994 ; Chappell, 2003) et dans les régions fortement contaminées par l'accident de Tchernobyl (Garger et al., 1992, 1997, 1998, 1999, 2006, 2012), au Japon (Kaneyasu et al., 2017). L'humidité des sols est en effet un paramètre déterminant de la cohésion des matériaux constitutifs du sol et un sol humide résiste beaucoup mieux à l'érosion éolienne qu'un sol sec (Elmore, 2008; Bergametti et al., 2016). Les valeurs de remise en suspension en milieu aride sont globalement 10 fois supérieures à celles obtenues en climat tempéré.

Toutefois, afin de tenir compte d'un état de sécheresses durable en France, on pourra le cas échéant appliquer un facteur 10 supérieur aux valeurs préconisées dans le Tableau A2- 2. On note également que l'évolution exponentielle décroissante déduite des valeurs obtenues en milieux aride ou semi-aride s'applique bien au cas du Pu. Anspaugh et al. (1973) signale que des valeurs de coefficients supérieures à 10^{-4} m^{-1} sont attribuables à des perturbations d'origine anthropique. Des valeurs de 10^{-2} m^{-1} ont même été recensées par Sehmel (1980) pour rendre compte d'activités humaines sur la mise en suspension depuis les sols. Après l'accident de Tchernobyl, des expérimentations ont été réalisées en territoires contaminés, à l'occasion de labours de terres contaminées ou lors du roulage d'engins sur des pistes en terre (Garger et al., 1998). Ces activités se caractérisent par une augmentation significative ($\times 10$) de la concentration d'aérosols de tailles comprises entre 2 à $4 \mu\text{m}$ et jusqu'à plusieurs ordres de grandeur pour des aérosols de 12 à $30 \mu\text{m}$.

Les émissions de poussières organiques participent dans une moindre mesure et de façon saisonnière à l'entretien des niveaux en radionucléides artificiels dans l'atmosphère. Ces émissions organiques concernent notamment les pollens. Elles sont maximales au printemps et minimales durant la période automne/hiver. Le Pu étant peu transférable par transfert racinaire, son émission sous forme de pollen un an après un dépôt peut a priori être négligée. De plus, ces émissions sont 8 fois moins importantes que les émissions de poussières issues des sols dont les maximums vont de juin à septembre (période sèche où le faible niveau hygrométrique du sol est propice à la mise en suspension des particules de sols). En France, à la station atmosphérique ANDRA de Bure, l'IRSN constate que les valeurs trimestrielles les plus élevées en Pu dans l'air correspondent le plus souvent au troisième trimestre de l'année (juillet à septembre) qui englobe la saison sèche. C'est également le cas en Europe Centrale (Kierepko et al., 2016).

Concernant un dépôt initial de plutonium en mer, la remise en suspension sous forme d'embruns depuis ce compartiment permettrait d'expliquer l'activité dans l'air côtier (Toole et al., 1990 ; Kierepko et al., 2016).

Les modèles empiriques testés dans des cas simples (homogénéité des sols, absence de relief, etc.) peuvent donner des prédictions à un ordre de grandeur près par rapport aux observations. Toutefois, les modèles ne permettent pas de prendre en considération l'hétérogénéité spatiale ou les variations temporelles, pour un site plus complexe (Garger et al., 1999, Whicker et al., 2019) et représentatif du territoire français. Un meilleur accord peut être envisagé à condition d'étalonner correctement les modèles pour les conditions spécifiques d'un site, ce qui nécessiterait une caractérisation précise et la prise en considération des variations temporelles (saisonniers voire pluriannuelles, par exemple) de ces caractéristiques. Ces informations devraient idéalement être réactualisées afin de rendre compte notamment de l'évolution du couvert végétal (Dupont et al. 2014), de l'urbanisme local ou des changements dans l'utilisation des territoires. On notera enfin qu'en termes de modélisation des techniques statistiques permettant de réduire l'incertitude associée à la modélisation de la remise en suspension de radionucléides ont été proposées récemment par Marshall et al. (2018).

2.6. Transferts aux végétaux

Le transfert par voie foliaire a été très peu étudié. Quelques résultats montrent que le plutonium est faiblement incorporé et très peu mobile dans le végétal (Henner et Colle, 2003). Des mesures in situ, réalisées sur des sites contaminés, montrent que l'herbe est généralement plus contaminée que les végétaux cultivés et plus encore que les fruits et les grains (Adriano et al, 1986 ; Romney et al, 1981). Toutefois, les auteurs indiquent que c'est probablement un artéfact et que ces résultats mettent plutôt en évidence l'importance de la remise en suspension, qui est plus importante pour l'herbe, comparativement aux autres végétaux cultivés, de par la proximité de l'herbe avec le sol. Le transfert racinaire du plutonium a été plus étudié et il est globalement plus faible d'environ deux ordres de grandeur, comparativement à des radionucléides comme le césium. L'AIEA propose une gamme de facteurs de transfert pour plusieurs végétaux-types dans le TRS 472 (IAEA 2010). Le facteur de transfert sol-végétal est défini par l'incorporation de n'importe quel radionucléide à partir du sol vers une plante. Il s'exprime comme le rapport entre l'activité massique (en poids sec) du radionucléide dans la plante et l'activité massique de ce même radionucléide dans le sol sous-jacent (en poids sec). Le facteur de transfert sol-plante n'a pas d'unité puisqu'il est un rapport d'activités massiques.

Pour donner quelques ordres de grandeur, le TRS 472 donne :

- Graines de céréales de 1.10^{-3} à 1.10^{-7}
- Légumes-fruits et feuilles de 1.10^{-4} à 1.10^{-6}
- Légumes-racines et tubercules de 1.10^{-3} à 1.10^{-5}
- Herbe de pâture de 1.10^{-3} à 1.10^{-5}

2.7. Transferts aux animaux

De nombreuses études concernent le métabolisme du plutonium et sa toxicité chez les mammifères. Il en ressort que le plutonium n'est pas un élément essentiel au fonctionnement métabolique des êtres vivants (en rapport avec son caractère artificiel), n'est pas un analogue chimique d'un élément essentiel et n'a pas de fonction ou rôle biologique dans le monde du vivant. Ainsi, il est considéré comme un poison et, du fait de son insolubilité, est stocké par le foie, où il s'accumule chez les animaux et l'homme, ainsi que dans le squelette. La toxicité pulmonaire bien connue est liée au mode de contamination par inhalation. Les transferts aux productions animales (lait, viande, œufs), bien que moins étudiés que pour le césium, se caractérisent par des valeurs plus faibles d'environ deux ordres de grandeur comparativement au césium. L'AIEA propose une gamme de facteurs de transfert pour plusieurs productions animales dans le TRS 472 (IAEA, 2010). Le facteur de transfert aux produits animaux est défini par l'incorporation de n'importe quel radionucléide de la ration alimentaire

quotidienne de l'animal vers le produit animal. Il s'exprime comme le rapport entre l'activité massique ou volumique dans le produit animal (Bq.kg^{-1} ou Bq.L^{-1}) et l'activité quotidienne ingérée de ce même radionucléide par l'animal (Bq.j^{-1}). L'unité est ainsi des j.L^{-1} ou des j.kg^{-1} , en fonction du produit animal liquide (lait) ou solide (viande, œufs), respectivement.

Pour donner quelques ordres de grandeur, le TRS 472 donne :

- Lait de vache $1,0.10^{-5} \text{ j.L}^{-1}$
- Lait de brebis $1,0.10^{-4} \text{ j.L}^{-1}$
- Viande de bœuf $1,1.10^{-6} \text{ j.kg}^{-1}$
- Viande de mouton $5,3.10^{-5} \text{ j.kg}^{-1}$
- Œufs (contenu) $1,2.10^{-3} \text{ j.kg}^{-1}$

Un point important est la prise en compte de la voie de contamination par ingestion de sol pour l'homme (plutôt pour les jeunes enfants), mais aussi les animaux en pâture. En effet, le plutonium migrant peu en profondeur dans le sol et se transférant relativement peu aux végétaux, la contamination interne par ingestion de sol devient une voie de transfert significative. On peut considérer que pour un bovin en pâture, 5 % de la matière sèche de sa ration est du sol. Pour un mouton ou une chèvre, cette quantité s'élève à 10 % de la matière sèche de la ration.

2.8. Mobilité et biodisponibilité en milieu aquatique continental

La chimie en solution du plutonium est particulièrement difficile à caractériser, du fait de la multiplicité de ses états d'oxydation et compte tenu de la variabilité des conditions physico chimiques des eaux et des sédiments. Dans les eaux douces superficielles, les formes insolubles dominent (Guillaumont et Adloff, 1992). En phase dissoute, le plutonium tend à s'associer avec des colloïdes incluant notamment du carbone organique, du fer et de l'aluminium. Cette association peut représenter jusqu'à 60 % du transport dissous de plutonium (Eyrolle et Charmasson, 2004). Le plutonium peut s'associer à plus de 95 % à la phase solide (Coughtrey, 1984), en se liant à des oxyhydroxydes de fer et de manganèse. Cela a été observé dans le Rhône, en aval du site de Marcoule, où 85 % du plutonium est associé aux particules (Eyrolle et Charmasson, 2004).

Le plutonium présente en eau douce un coefficient de partage eau-sédiment (K_d)¹⁸ moyen de $2,4.10^5 \text{ L.kg}^{-1}$, avec une gamme allant de $1,1.10^4$ à $5,2.10^6 \text{ L.kg}^{-1}$, selon le TRS 472 de l'AIEA (IAEA, 2010)

De façon générale, le transfert aux compartiments biotiques n'est pas très documenté. Le mécanisme principal de contamination des végétaux aquatiques semble être l'adsorption et est essentiellement localisée en surface. Pour les poissons, les organes cibles principaux sont le squelette et le foie, alors que les muscles présentent en général les concentrations les plus faibles.

Le TRS 472 (IAEA, 2010) propose des valeurs du facteur de concentration¹⁹ pour les plantes aquatiques, les invertébrés et les poissons :

¹⁸ Le K_d est le rapport entre l'activité massique d'un radionucléide dans la phase particulaire et l'activité volumique de ce même radionucléide dans la phase dissoute. Il s'exprime en Bq.L^{-1} .

¹⁹ Le facteur de concentration est le rapport entre l'activité massique d'un radionucléide dans un organisme vivant et l'activité volumique de ce même radionucléide dans l'eau. Il s'exprime en L.kg^{-1} frais.

Tableau A2-3 : Facteur de concentration (en L.kg⁻¹frais)

| | Moyenne géométrique | Minimum | Maximum |
|---------------------|---------------------|----------------------|---------------------|
| Plantes aquatiques* | 2,6.10 ⁴ | 1,2.10 ² | 4,9.10 ⁷ |
| Invertébrés | 7,4.10 ³ | 3,6.10 ⁻¹ | 5,5.10 ⁶ |
| Poissons | 2,1.10 ⁴ | 7,7.10 ³ | 5,0.10 ⁴ |

* Il est vraisemblable que les valeurs les plus élevées du facteur de concentration des plantes aquatiques soient dues à des phénomènes d'adsorption, du fait de la difficulté à débarrasser complètement les végétaux aquatiques des traces de sédiments qui les recouvrent. Ces valeurs extrêmes sont probablement en petit nombre, puisque la moyenne est nettement plus faible.

2.9. Mobilité et biodisponibilité en milieu marin

Les concentrations en plutonium dans les sédiments dépendent de la surface spécifique, donc, en premier lieu, de l'abondance et de la nature de la fraction la plus fine, souvent riche en minéraux argileux, tout comme en milieu aquatique continental. Des coefficients de partage (Kd) de l'ordre de 10⁵ à 10⁶ L.kg⁻¹ ont été souvent rapportés dans l'eau libre (Mitchell, 1995).

Les facteurs de concentration du plutonium obtenus pour les algues varient entre 85 et 4 000, (Fraizier et Guary, 1976 ; Germain et al., 2000 ; Germain et Miramand, 1984 ; IAEA, 2004 ; Métivier et al., 1996 11; GRNC, 1999). Actuellement, les rejets les plus significatifs proviennent des usines de retraitement du combustible usé de la Hague et Sellafield. Les facteurs de concentration du plutonium obtenus in situ sont dans les gammes suivantes pour les organismes entiers : 40 à 2 500 pour les crustacés, 20 à 8 000 pour les mollusques, et inférieur à 1 à 600 pour les poissons (Fraizier et Guary, 1976 ; Germain et al., 2000 ; IAEA, 2004 ; Métivier et al., 1996 ; Ryan, 2002 ; Skwarzec, 2001). La distribution du plutonium n'est pas uniforme entre les différents organes et tissus d'un individu. Ainsi, chez les mollusques et crustacés, les coquilles, les exosquelettes, les glandes digestives, les branchies sont les organes qui accumulent le plus ces isotopes alors que la chair présente en général les concentrations les plus faibles.

Quelques valeurs du facteur de concentration (L.kg⁻¹ frais) pour plusieurs organismes marins sont présentées dans le tableau a2-4 et le tableau a2- 5.

Tableau A2-4 : Facteur de concentration (Bq.kg⁻¹ de végétal frais par Bq.L⁻¹ d'eau)

| Végétaux | Valeur recommandée ou gamme de valeurs dérivées de mesures <i>in situ</i> , |
|-------------------------|---|
| Algues ^{1,2,3} | 5.10 ² – 4.10 ³ |

Tableau A2- 5 : Facteur de concentration (Bq.kg⁻¹ d'animal frais par Bq.L⁻¹ d'eau)

| Animaux | Valeur recommandée ou gamme de valeurs dérivées de mesures <i>in situ</i> |
|--|---|
| Mollusques ^{1,6,8} | 4,0.10 ¹ – 8,3.10 ³ |
| Mollusques (sauf céphalopodes) ^{1,2,5} | 3.10 ³ |
| Mollusques ¹⁰ Chair | 2,0.10 ¹ – 7,0.10 ¹ |
| Mollusques, bivalves ⁹ | 3,2.10 ³ |
| Mollusque, <i>Mytilus edulis</i> (moule) ^{4,7} Chair | 1,3.10 ³ – 1,4.10 ³ |
| Mollusques gastéropodes ³ Chair | 5,5.10 ¹ – 3,3.10 ² |

| | |
|---------------------------------------|---|
| Mollusques céphalopodes ⁵ | 5,0.10 ¹ |
| Crustacés ^{1,3,5,6,8,9} | 4,0.10 ¹ – 2,7.10 ³ |
| Poissons ^{1,3,5,8,11} | 1,0.10 ⁰ – 1,0.10 ² |
| Poissons ⁹ | |
| Organisme entier | 1,0.10 ² – 6,5.10 ² |
| Organes et tissus | 5,0.10 ¹ – 2,0.10 ⁴ |
| Mammifères marins (foie) ⁵ | 3,0.10 ⁰ – 8,0.10 ⁰ |

¹GRNC, 1999 ; ²Germain et al., 2000 ; ³Fraizier et Guary, 1976 ; ⁴Germain et Miramand, 1984 ; ⁵IAEA, 2004 ; ⁶Ryan, 2002 ; ⁷McDonald et al., 1993 ; ⁸Métivier et al., 1996 ; ⁹Skwarzec et al., 2001 ; ¹⁰Guary et Fraizier, 1977a ; ¹¹Guary et Fraizier 1977b

2.10. Outils de modélisation IRSN

Les outils de modélisation de l'IRSN permettent d'estimer les transferts au sein de l'environnement, en disposant de tous les paramètres mis à jour dans le TRS 472 de l'AIEA (IAEA, 2010), ainsi que le TRS 422 (IAEA, 2004). La détermination de la valeur du facteur de remise en suspension n'est pas simple, comme exposé plus haut. Les calculs d'exposition par inhalation peuvent se révéler être, par conséquent, entachés d'une grande incertitude. Dans SYMBOISE, une valeur par défaut de ce facteur est proposée à 10^{-7} m^{-1} , valeur que l'utilisateur pourra modifier en fonction du délai après le dépôt, de considérations locales météorologiques, de caractéristiques des sols, des activités éventuelles sur ces terrains, dans une gamme de 10^{-4} à 10^{-9} m^{-1} .

2.11. Conclusion

Le plutonium est un élément présent en faible concentration dans l'environnement, peu soluble et migrant peu en profondeur dans le sol, comparativement à d'autres radionucléides tels que le césium et se complexant assez rapidement dans les sédiments. Le plutonium est, d'une manière générale, peu mobile dans la biosphère, se transférant peu aux végétaux et aux animaux. Après un accident, le plutonium remis en suspension peut se déposer à plus ou moins longue distance sur des sols, des surfaces urbaines, ou des végétaux. Sa remise en suspension, notamment dans des temps courts après un dépôt, constitue l'enjeu majoritaire de l'exposition des populations par inhalation. C'est pourquoi ce sujet a été plus particulièrement étudié au niveau international. Les études font état d'une large gamme de valeurs du facteur de remise en suspension, qui varie dans le temps après le dépôt, ou à cause d'événements particuliers (roulage, travaux agricoles, actions de remédiation, etc.).

Le recours à la mesure et à la caractérisation de l'environnement local pourra permettre de mieux contraindre la variabilité de la valeur du coefficient de remise en suspension.

2.12. Références

Adriano DC, McLeod KW, Giravolo TC (1986). Long term availability of Cm and Pu to crop plants. Health Physics, 50 : 647-651.

Anspaugh LR, Phelps PL, Kennedy NC, Booth HG. (1973). Wind-driven redistribution of surface-deposited radioactivity. IAEA-SM-172/71. 167-184.

Anspaugh LR, Shinn JH, Phelps PL, Kennedy NC. (1975). Resuspension and redistribution of plutonium in soils. Health Phys. 29, 571-582.

Anspaugh LR, Simon SL, Gordeev KI, Likhtarev IA, Maxwell RM, Shinkarev SM. (2002). Movement of radionuclides in terrestrial ecosystems by physical processes. Health Phys. 82, 5, 669-679.

- Arimoto R, Kirchner T, Webb J, Conley M, Stewart B, Schoep D, Walthall M. (2002). $^{239,240}\text{Pu}$ and inorganic substances in aerosols from the vicinity of a waste isolation pilot plant: the importance of resuspension. *Health Phys.* 83 (4):456–470.
- Arimoto R, Webb JL, Conley M. (2005). Radioactive contamination of atmospheric dust over southeastern New Mexico. *Atmos. Environ.*, 39, 4745–4754.
- Bourlat Y, Millis-Lacroix JC, Le Petit G, Bourguignon J. (1996). ^{90}Sr , ^{137}Cs and $^{239+240}\text{Pu}$ in world ocean water samples collected from 1992 to 1994 : In Guéguéniat P, Germain P, Métivier H. Radionuclides in the oceans. Input and inventories, les éditions de physique, les Ulis, 75-93.
- Boust D, Mitchell PI, Garcia K, Condren O, Leon Vitro L, Leclerc G. (1996). A comparative study of the speciation and behaviour of plutonium in the marine environment of two reprocessing plants. *Radiochim Acta*, 74 : 203-210.
- Boust D, Lesueur P, Berthe T. (2012). Reconstitution de l'historique des apports particuliers à la Seine par l'observation de leur intégration sédimentaire. Projet RHAPSODIS. 2008 – 2011. Rapport final IRSN/ Université de Caen, Université de Rouen, mai 2012. https://www.seine-aval.fr/wp-content/uploads/2017/02/RR-SA4-RHAPSODIS_mai_2012_red_pro.pdf
- Bergametti G, Forêt G. (2014). Dust deposition (Book Chapter). *Mineral Dust: A Key Player in the Earth System*, 179-200.
- Bergametti G, Rajot JL, Pierre C, Bouet C, Marticorena B. How long does precipitation inhibit wind erosion in the Sahel? *Geophys. Res. Lett.*, 43, 6643–6649.
- Buzdalkin K.N., Bortnovsky V.N. (2019). Inhalation of transuranic elements in case of emergencies in the exclusion zone of the Chernobyl NPP. *Medico-Biological and Socio-Psychological Issues of Safety in Emergency Situations*. 2019, Issue 3, 59-65. Nikiforov Russian Center of Emergency and Radiation Medicine, EMERCOM of Russia. [En Russe] Ингаляционное Поступление Трансурановых Элементов в Организм При Чрезвычайных Ситуациях в Зоне Отчуждения Чернобыльской АЭС.
- Chamizo E, García-León M, Enamorado SM, Jiménez-Ramos MC, Wacker L. (2010). Measurement of plutonium isotopes, ^{239}Pu and ^{240}Pu , in air-filter samples from Seville (2001-2002). *Atmos. Environ.*, 44, 1851-1858.
- Chappell A, Warren A. (2003) Spatial scales of ^{137}Cs -derived soil flux by wind in a 25 km² arable area of eastern England. *Catena*, 52, 209– 234.
- Doi T, Takagi M, Tanaka A, Kanno M, Dokiya Y, Tao Y, Masumoto K. (2019). The variation of atmospheric radioactive caesium concentration from Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident in Tsukuba and Iitate, and factors controlling its high concentration events. *Radioisotopes* 68, 83–104.
- Duffa C. (2001). Répartition du plutonium et de l'américium dans l'environnement terrestre de la basse vallée du Rhône. Thèse de Doctorat. Géosciences de l'environnement, Université Aix-Marseille III.
- Dupont S, Bergametti G, Simoëns S. (2014). Modeling aeolian erosion in presence of vegetation, *J. Geophys. Res. Earth Surf.*, 119, 168–187.
- Elmore AJ, Kaste JM, Okin GS, Fantle MS. (2008). Groundwater influences on atmospheric dust generation in deserts. *J. Arid Environ.*, 72, 1753– 1765.
- Garcia K. (1997). Distribution et comportement du plutonium dans les eaux de la Manche et de l'estuaire de la Seine. Thèse Chimie, Université Paris-Sud – Orsay, 307 pages.

- Garger EK, Gavrillov, VP. (1992). Secondary contamination of 30-km zone of the Chernobyl atomic electric plant and adjacent territory due to radionuclides carried by ascending wind. *Atomic Energy*, 72, 6, 510-514.
- Garger EK, Hoffman FO, Thiessen KM. (1997). Uncertainty of the long-term resuspension factor. *Atmos. Environ.* 31, 11, 1647- 1656.
- Garger EK, Paretzke HG, Tschiersch J. (1998). Measurement of resuspended aerosol in the Chernobyl area. Part III. Size distribution and dry deposition velocity of radioactive particles during anthropogenic enhanced resuspension. *Radiat. Environ. Biophys.* 37: 201–208.
- Garger EK, Hoffman FO, Thiessen KM, Talerko N, Watkins B. (1999). Test of existing mathematical models for atmospheric resuspension of radionuclides. *J. Environ. Radioact.*, 42 (2-3), 157-175.
- Garger EK, Kashpur VA, Li WB, Tschiersch J. (2006). Radioactive aerosols released from the Chernobyl Shelter into the immediate environment. *Radiat. Environ. Biophys.* 45: 105–114.
- Garger EK, Kuzmenko Yul, Sickinger S, Tschiersch J. (2012). Prediction of the ¹³⁷ Cs activity concentration in the atmospheric surface layer of the Chernobyl exclusion zone. *J. Environ. Radioact.*, 110, 53-58.
- Garland JA, Pomeroy IR. (1994). Resuspension of fallout material following the Chernobyl accident. *J. Aerosol Sci.* 25, 5, 793-806.
- Grauby A, Colle C, Morello M. (1986). Cycle des actinides dans l'environnement terrestre et dulçaquicole. *J. less- common met*, 122 : 499-514.
- Henner P, Colle C. (2003). Programme expérimental RADEMIC-CT4. Transfert par voie foliaire du plutonium 239 au haricot (*Phaseolus vulgaris*). IRSN, Rapport DEI-SECRE n°03-08, 33 pages.
- IAEA. (2009). Quantification of radionuclide transfer in terrestrial and freshwater environments for radiological assessments. International Atomic Energy Agency, Vienna, Technical Document N°1616.
- IAEA. (2010). Handbook of parameter values for the prediction of radionuclide transfer in terrestrial and freshwater environments. International Atomic Energy Agency, Vienna, Technical Report Series N°472.
- Igarashi, Y., Kita, K., Maki, T., Okochi, H., Sorimachi, A. (2019). Fungal spore involvement in the resuspension of radiocaesium in summer. *Sci. Rep.*, 9 (1), 1954.
- IRSN. (2004). Fiche radionucléide. Plutonium et environnement. Version 2. Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire – Fontenay-aux-Roses. 31 pages.
https://www.irsn.fr/FR/Larecherche/publications-documentation/fiches-radionucleides/Documents/environnement/Plutonium_Pu239_v2.pdf
- IRSN. (2018). Bilan de l'état radiologique de l'environnement français de 2015 à 2017. Rapport DG/2018-00006. Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire _ Fontenay-aux-Roses. 354 pages.
https://www.irsn.fr/FR/expertise/rapports_expertise/Documents/environnement/IRSN-ENV_Bilan-Radiologique-France-2015-2017.pdf
- Kashparov V.A., Zhurba M.A., Zibtsev S.V. Mironyuk V.V., Kireev S.I. (2015). Evaluation of the expected doses offire brigades at the Chornobyl exclusion zone in April 2015. *Nuclear Physics and Atomic Energy*, 16, 4, 399–407. [en Russe] Kashparov, V.A.; Zhurba, M.A.; Zibtsev, S.V.; Mironyuk, V.V.; Kireev, S.I. ОценкаОжидаемыхДоз ОблученияУчастниковПожаротушенияВЧернобыльскойЗонеОтчужденияВАпреле 2015 г. *Yaderna Fyizika ta Energetika* 2015, 16, 4, 399–407.

- Kaneyasu N, Ohashi H, Suzuki F, Okuda T, Ikemori F, Akata N, Kogure T. (2017). Weak size dependence of resuspended radiocesium adsorbed on soil particles collected after the Fukushima nuclear accident. *J. Environ. Radioact.*, 172, 122-129.
- Kierepko R, Mietelski JW, Borowiec W, Blazej S, Kapala J. (2009). Plutonium traces in atmospheric precipitation and in aerosols from Krakow and Bialystok. *Radiochim. Acta*, 97 (4-5), 253-255.
- Kierepko R, Mietelski JW, Ustrnul Z, Anczkiewicz R, Wershofen H, Holgye Z, Kapala J, Isajenko K. (2016). Plutonium isotopes in the atmosphere of Central Europe Isotopic composition and time evolution vs. Circulation factors. *Sci. Tot. Environ.*, 569–570, 937–947.
- Kinase T, Kita K, Igarashi Y, Demizu H, Onda Y. (2018). The seasonal variations of atmospheric ¹³⁴Cs, ¹³⁷Cs activity and possible host particles for their resuspension in the contaminated areas of Tsushima and Yamakiya, Fukushima, Japan. *Progress in Earth and Planetary Science*, 5 (1), 12.
- Komosa A. (1999). Migration of plutonium isotopes in forest soil profiles in Lublin region (Eastern Poland). *J. Radioanal. Nuc. Chem.*, 240 : 19-24.
- Linsley GS. (1978). Resuspension of transuranium elements – A review of existing data. NRPB-75, HSMO, London. Marshall S, Potter C, Medich D. (2018). Reassessment of resuspension factor following radionuclide dispersal: toward a general-purpose rate constant. *Health Phys.* 114 (5):500–506.
- Maxwell R.M., Anspaugh L.R. (2011). An improved model for prediction of resuspension. *Health Phys.* 101 (6):722–730. Nuclides 2000. (1999). An electronic chart of the nuclides. Institute for Transuranium Elements, Joint Research Center, European Commission.
- Romney EM, Wallace A, Schulz RK, Kinnear J, Wood RA. (1981). Plant uptake of ²³⁷Np, ²³⁹Pu, ²⁴¹Am and ²⁴⁴Cm from soils representing major food production areas of the United States. *Soil Sci.* 132(1), 40-59.
- Rosner G, Hötzl H, Winkler R. (1997). Long-term behaviour of plutonium in air and deposition and the role of resuspension in a semi-rural environment in Germany. *Sci. Total Environ.*, 196, 255 -261.
- Sehmel GA. (1980). Particle resuspension - a review. *Environ. Int.*, 4, 107-127.
- Toole J, MacKrell A, Cook GT, Baxter MS. (1990). An assessment of onland transfer of radioactivity near Dounreay, Scotland. *J. Environ. Radioact.* 12, 299-329.
- Walsh C (2002). Calculation of resuspension doses for emergency response. NRPB-W1. ISBN 0 85951 459 5.
- Wershofen H., Arnold D. (2005) Radionuclides in Ground-level air in Braunschweig. Report of the PTB trace Survey station from 1998 to 2003. ISSN 0341-6747; ISBN 3-86509-431-7.
- Whicker JJ, McNaughton M, Ruedig E, Fuehne DP. (2019). Validation Tests of Resuspension Models for a Finite and Infinite Site. *Health Phys.* 117 (4):408–415.

Annexe 3. Moyens et capacités de mesures des éléments α pour les matrices environnementales et les aliments

3.1. Sur le terrain

3.1.1. Techniques de mesures des émetteurs α sur le terrain

Sur le terrain, certains équipements permettent de mesurer directement le rayonnement α . Pour d'autres appareils de mesures déployables sur site, il est nécessaire de réaliser un prélèvement à l'aide d'un frottis par exemple (dénommé par la suite mesure indirecte). Les différentes techniques de mesures des émetteurs α pouvant être mises en œuvre sur le terrain sont les suivantes :

- mesure globale (sans distinction du radionucléide) par des contaminamètres ou des échelles de comptage, par exemple ;
- mesure par spectrométrie γ ;
- mesure par spectrométrie α ;
- mesure par scintillation liquide.

Les performances de ces techniques mises en œuvre sur le terrain sont plus faibles qu'en laboratoire et par conséquent les valeurs des seuils de décision seront plus élevées. Il en est généralement de même pour les incertitudes associées à un résultat significatif. Le schéma présenté en figure a3- 1 synthétise les techniques d'analyses des émetteurs α , les matrices pouvant être mesurées et les ordres de grandeur des temps d'analyse associés à chaque technique.

3.1.1.1. Mesure globale des émetteurs α (non discriminante)

Des mesures sans identification ni discrimination des radionucléides émetteurs α peuvent rapidement être réalisées sur le terrain, telles que des mesures à l'aide de contaminamètres ou autres appareils de type comptage global. Ces appareils de mesure ont l'avantage de pouvoir mesurer directement la contamination totale (labile et fixée) présente sur une surface (route, capot de voiture...) afin d'évaluer si elle est contaminée ou non, et ce en quelques secondes. Toutefois, elles ne peuvent être faites que sur des supports secs.

Des mesures indirectes peuvent également être réalisées à l'aide de ce type d'appareil, sur des prélèvements par frottis (contamination labile).

Ces mesures nécessitent de disposer de surfaces planes et sèches dans la zone contaminée.

3.1.1.2. Mesure des émetteurs α par spectrométrie γ

Quelle que soit l'installation susceptible de rejeter des émetteurs α en cas d'accident, une mesure par spectrométrie γ (directe ou indirecte) sur le terrain présente un intérêt pour la recherche de l'américium-241, élément fils du plutonium-241, ou pour évaluer les niveaux de l'isotope 235 de l'uranium. Elle permet également de vérifier l'absence d'une contamination par un autre radionucléide émetteur γ .

3.1.1.3. Mesure des émetteurs α par spectrométrie α

La quantification des émetteurs α à l'aide de spectromètre α nécessite une étape de préparation des échantillons en amont de la mesure. En effet, la mesure directe d'un frottis ou d'un filtre d'aérosols par spectrométrie α ne permet pas de disposer systématiquement d'un spectre exploitable (en raison généralement d'une atténuation de l'émission α trop importante par le média). La mise en œuvre des

moyens de radiochimie classique utilisés en laboratoire consistant en une minéralisation du média et une séparation sur résine des radionucléides, est peu envisageable sur le terrain. Toutefois, une mesure par spectrométrie α dans un véhicule est possible avec au préalable une étape de préparation des échantillons très simplifiée (calcination, reprise des cendres par des réactifs chimiques puis mise à sec par évaporation sur coupelle)²⁰. Elle permet une vérification de l'isotopie du plutonium, essentiellement $^{239+240}\text{Pu}$ et ^{238}Pu . Ce protocole de minéralisation des échantillons avant mesure étant très simple, cette méthode ne peut être utilisée que pour des échantillons de type frottis dont le média est constitué de cellulose (absence de fibre de verre dans le média).

3.1.1.4. Mesure des émetteurs α par scintillation liquide

Les radionucléides émetteurs α peuvent être détectés par scintillation liquide. Cette technique de mesure ne nécessite pas d'étape de préparation préalable à la mesure si ce n'est l'introduction de l'échantillon dans un flacon et l'ajout du liquide scintillant. Un radionucléide émetteur α apparaîtra dans le spectre avec une énergie de l'ordre de 10 % de son énergie, se retrouvant ainsi dans les gammes d'énergie de radionucléides émetteurs β [A3-1]. Il est donc difficile de discriminer les émetteurs α des émetteurs β par cette technique, sans dispositif complémentaire.

Certains compteurs à scintillation liquide sont dotés de système électronique de discrimination α/β permettant alors une distinction de l'élément plutonium de l'élément uranium. Toutefois même en présence de ce système de discrimination, les performances de ces appareils ne permettent pas de séparer les isotopes du plutonium ou de l'uranium.

²⁰ Ce protocole simple permet non seulement de passer les échantillons de la forme solide à la forme liquide, mais également d'éliminer le radon qui pourrait interférer lors de la mesure par spectrométrie α sur le terrain.

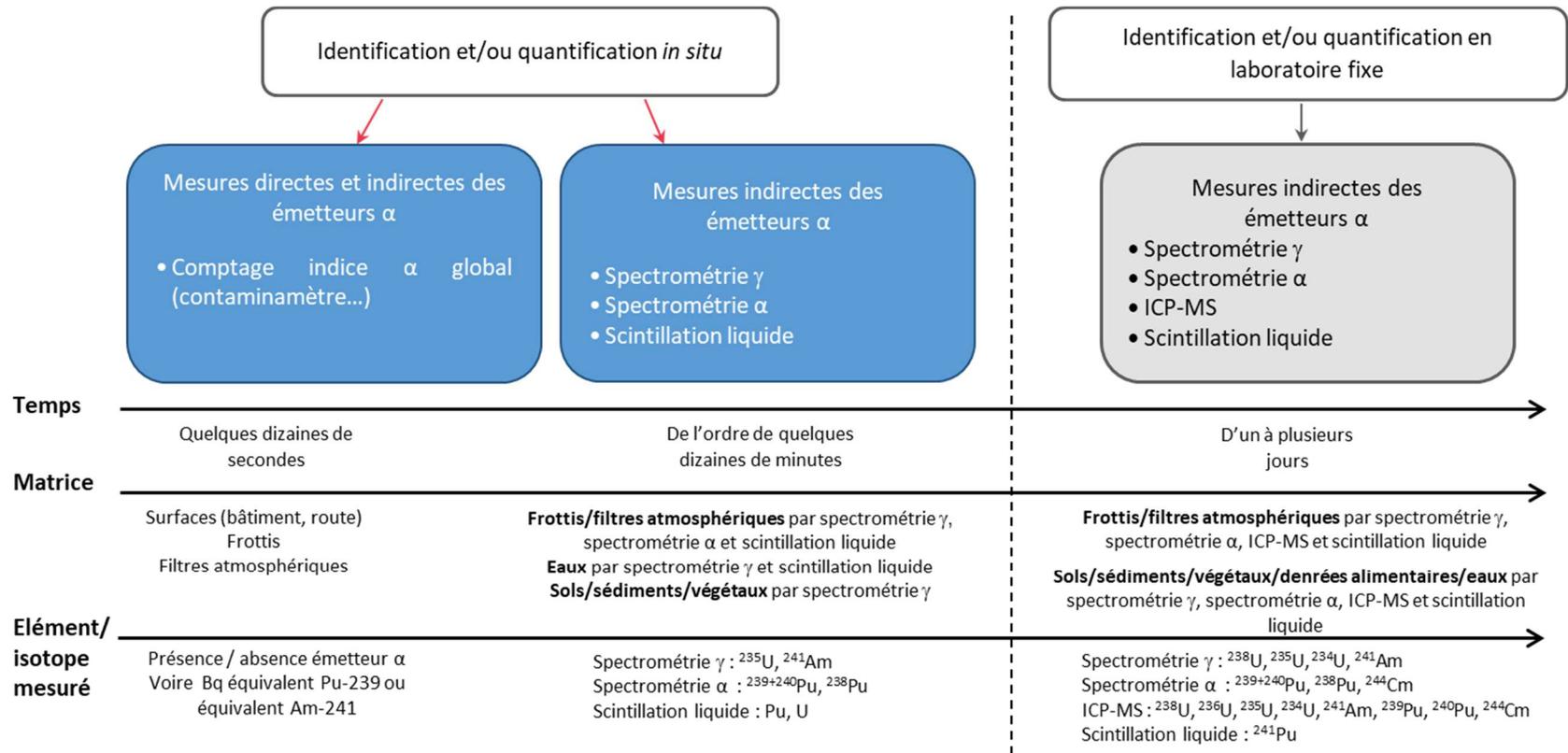


Figure A3- 1 : Schéma des analyses des émetteurs α réalisables sur le terrain et en laboratoire (il est entendu par mesures directes, une mesure faite sans prélèvement de matière)

3.1.2. Seuil de décision des mesures des émetteurs α sur le terrain

| Mesure directe | | Seuil de décision (Limite de détection) (Bq/m ²) | Capacité / jour |
|---|--------|--|--------------------------------------|
| Spectrométrie γ in situ fixe (30 minutes de comptage) | Am-241 | Installations avec rejet uniquement Pu, Am | 3 000 (6 300) |
| | | Installations avec rejet Pu, Am et autres radionucléides émetteurs γ | 10 000 – 25 000 (21 000 – 52 500) |
| | U-235 | Installations avec rejet uniquement Pu, Am | 200 (410) |
| | | Installations avec rejet Pu, Am et autres radionucléides émetteurs γ | 500 – 1 500 (1 100 – 3 200) |

| Mesure directe | | Seuil de décision (Limite de détection) (Bq/m ²) | Capacité / jour |
|---|---|--|--------------------|
| Comptage de l'indice α global (10 secondes de comptage) | Indice α global - Contaminamètre | 100 – 200 (200 – 400) | 35 – 70 |

| Mesure indirecte sur prélèvement de frottis ⁽²⁾ | | Seuil de décision ⁽¹⁾ (Limite de détection) (Bq/m ²) | Capacité / jour |
|---|--|---|--------------------|
| Comptage de l'indice α global (30 secondes de comptage) | Indice α global – Contaminamètre | 1 000 – 4 335 (2 000 – 9 000) | 35 – 60 |
| | Indice α global - Autre compteur α/β de terrain | 70 – 935 (140 – 1 900) | 40 – 80 |
| Scintillation liquide (sans discrimination des isotopes) (30 minutes de comptage) | Soit Pu soit U | 100 (200) | 80 |
| | Pu + U | 335 (670) | |
| Spectrométrie α après une étape de calcination et une mise en solution (discrimination des isotopes) (30 minutes de comptage) | Pu ou U | 35 (70) | 10 – 20 |

(1) Seuil de décision calculé avec un facteur d'arrachement⁽²⁾ de 10 % et une surface frottée de 300 cm².

(2) Il est à noter que pour les prélèvements par frottis, la totalité des particules radioactives présentes sur un support n'est pas transférée sur le média. L'efficacité du prélèvement par cette méthode, dénommé facteur d'arrachement, prend une valeur de 10 %, valeur consensuelle sur le plan international. Ce facteur dépend de différents paramètres, tels que le radionucléide, sa forme chimique, la nature du substrat sur lequel il est déposé, le type de frottis utilisé, la pression exercée lors du prélèvement... Par exemple, pour le plutonium sous sa forme chimique PuO₂ le facteur d'arrachement varie de 20 % sur un linoleum non ciré à 58 % pour un linoleum ciré, et il est de 14 % sur du PVC. Sous sa forme Pu(NO₃)₄ il est de 6 % sur du linoleum ciré [A3-2].

| Mesure indirecte sur prélèvement de frottis ⁽²⁾ | Seuil de décision ⁽¹⁾ (Limite de détection) (Bq/m ²) | | Capacité / jour | |
|--|---|---------------|--------------------|----|
| Spectrométrie γ (Véhicule laboratoire) (10 minutes de comptage) | Am-241 | Détecteur NaI | 670 (1 340) | 70 |
| | | Détecteur Ge | 5 000 (10 000) | |
| | U-235 | Détecteur NaI | 2 000 (4 200) | |
| | | Détecteur Ge | 1 000 (2 100) | |
| | Cs-137 | Détecteur NaI | 500 (1 000) | |
| | | Détecteur Ge | 1 000 (2 000) | |

(1) Seuil de décision calculé avec un facteur d'arrachement⁽²⁾ de 10 % et une surface frottée de 300 cm².

(2) Il est à noter que pour les prélèvements par frottis, la totalité des particules radioactives présentes sur un support n'est pas transférée sur le média. L'efficacité du prélèvement par cette méthode, dénommé facteur d'arrachement, prend une valeur de 10%, valeur consensuelle sur le plan international. Ce facteur dépend de différents paramètres, tels que le radionucléide, sa forme chimique, la nature du substrat sur lequel il est déposé, le type de frottis utilisé, la pression exercée lors du prélèvement... Par exemple, pour le plutonium sous sa forme chimique PuO₂ le facteur d'arrachement varie de 20 % sur un linoleum non ciré à 58 % pour un linoleum ciré, et il est de 14 % sur du PVC. Sous sa forme Pu(NO₃)₄ il est de 6 % sur du linoleum ciré [A3-2].

| Mesure indirecte sur prélèvement d'eaux | Seuil de décision (Limite de détection) (Bq/L) | | Capacité / jour | | |
|---|--|----------------|--------------------|--------------|----|
| Scintillation liquide (sans discrimination des isotopes) (30 minutes de comptage) | Eau | Soit Pu soit U | 60 (120) | 80 | |
| | | Pu + U | 200 (400) | | |
| Spectrométrie γ ⁽³⁾ (Véhicule terrain laboratoire) (10 minutes de comptage) | Eau | Am-241 | Détecteur NaI | 10 (20) | 70 |
| | | | Détecteur Ge | 230 (480) | |
| | | U-235 | Détecteur NaI | 60 (130) | |
| | | | Détecteur Ge | 30 (65) | |
| | | Cs-137 | Détecteur NaI | 8 (16) | |
| | | | Détecteur Ge | 10 (20) | |

(3) Volume d'eau mesurée : 0,5 L

| Mesure indirecte sur prélèvement de sols/sédiments/ végétaux | Seuil de décision ⁽⁴⁾ (Limite de détection) (Bq/m ²) ou (Bq/L) | | Capacité / jour | |
|---|---|--------|-----------------|------------------|
| Spectrométrie γ (Véhicule terrain laboratoire) (10 minutes de comptage) | Sol | Am-241 | Détecteur NaI | 400 (840) |
| | | | Détecteur Ge | 3 600 (7 500) |
| | | U-235 | Détecteur NaI | 1 200 (2500) |
| | | | Détecteur Ge | 600 (1250) |
| | Herbe | Cs-137 | Détecteur NaI | 200 (400) |
| | | | Détecteur Ge | 290 (580) |
| | | Am-241 | Détecteur NaI | 5 (10) |
| | | | Détecteur Ge | 85 (180) |
| | | U-235 | Détecteur NaI | 25 (50) |
| | | | Détecteur Ge | 15 (30) |
| | | Cs-137 | Détecteur NaI | 4,5 (9) |
| | | | Détecteur Ge | 8,5 (17) |
| | | | 70 | |

(4) Surface de sol mesurée : 0,025 m² ; Surface d'herbe mesurée : 1 m²

3.2. En laboratoire

Remarque : L'ensemble des données techniques d'intérêt pour les laboratoires de mesure en charge à l'IRSN de l'analyse des isotopes de l'uranium, du plutonium et de l'américium sont synthétisées dans les fiches métrologiques données en annexe 4.

Elles seraient à établir par chaque laboratoire concerné, de préférence de manière anticipée, afin d'être en mesure d'indiquer aux prescripteurs de ces analyses, rapidement et sous une forme synthétique, ses capacités et son niveau de performance métrologique pour un type d'analyse donné.

3.2.1. Isotopes de l'uranium

En laboratoire, la quantification d'U dans un échantillon de l'environnement peut être réalisée soit par méthodes pondérales soit par méthodes isotopiques. Selon les cas, l'analyse d'échantillons liquides ou solides peut être effectuées directement ou après traitement de l'échantillon (minéralisation, purification, filtration).

- Méthodes pondérales
 - l'ICP-AES permet de quantifier des concentrations minimales de 10 à 100 µg/L dans l'eau. Des eaux parfaitement limpides peuvent ne pas nécessiter de traitement préalable.
- Méthode isotopiques
 - Spectrométrie γ
 - Si la spectrométrie γ est moins performante (10 à 100 Bq/L ou kg) que la spectrométrie α ou l'ICP-MS, elle est utilisée fréquemment comme mesure préliminaire pour éviter de mettre en œuvre inutilement des méthodes plus lourdes et pour optimiser la concentration du traceur isotopique nécessaire à ces deux méthodes.
 - Spectrométrie α
 - Cette technique permet également de quantifier chacun des isotopes d'U avec des limites de détection généralement plus basses que celles obtenues en spectrométrie γ . Elle requiert cependant, obligatoirement en préalable à la mesure, une préparation chimique de l'échantillon. Les LD classiquement atteintes sont de l'ordre de 0,01 Bq (0,38 µg)/L ou kg.
 - Spectrométrie de masse
 - L'avantage de l'ICP-MS par rapport à la spectrométrie α est la rapidité de la mesure et la possibilité de faire une mesure directe (sans purification chimique) pour des matrices liquides peu chargées en sels.
 - Les limites de quantification calculées avec les protocoles de routine et en utilisant un ICP-MS quadripolaire sont de l'ordre de 1 mBq (0,038 µg)/kg_{cendre} pour les matrices solides et de 0,01 mBq (0,38 ng)/L, pour les eaux ou liquides ayant subi un traitement radiochimique.
 - Sur les eaux ou liquides mesurés directement après dilution - sans radiochimie - la spectrométrie de masse permet une limite de détection de l'ordre de 1 mBq (0,038 µg)/L.

L'ICP-MS permet également de déceler la présence de ²³⁶U, indicateur de l'origine naturelle ou non d'un échantillon contenant de l'uranium.

A titre indicatif, les performances et les capacités des laboratoires d'analyse de l'IRSN sont présentées dans le tableau suivant. Les capacités s'entendent pour un déploiement des moyens humains et techniques du laboratoire exclusivement dédié au type d'analyse évoqué.

Il est rappelé que pour les mesures d'activité (donc hors ICP-MS) une réduction du temps de comptage d'un facteur 4 n'augmente la limite de détection que d'un facteur 2.

| Techniques d'analyses "compatibles crise" (^{234}U , ^{235}U , ^{238}U voire ^{236}U) | | | | | | |
|---|-------------------------|------------------------|---------------------------------------|---|---------|---------------|
| Echantillon | Technique de séparation | Technique de mesure | Quantité Minimale (de produits frais) | L.D. (pour U_{not}) (temps de comptage) | Délai | Capacité IRSN |
| Eaux | s.o. | ICP-MS | 50 mL | U_{tot} : 0,1 $\mu\text{g/L}$ U_{tot} : 2,6 mBq/L | 1 heure | 40/jour |
| Solides/liquides | s.o. | Spectrométrie α | 500 mL | 10 à 100 Bq/L ou kg_{frais} 0,38 à 3,8 mg/L ou kg_{frais} (180 min) | 1 jour | 75/jour |
| Frottis/Filtres | radiochimie | ICP-MS | s.o. | 1 mBq/éch. 0,038 $\mu\text{g/éch.}$ | 2 jours | 10 à 20/jour |
| Solides | radiochimie | ICP-MS | 10 g | 1 Bq/ $\text{kg}_{\text{cendres}}$ 38 $\mu\text{g/kg}$ | 2 jours | 10 à 20/jour |

3.2.2. Isotopes du plutonium et de l'américium

- 238 , 239 , ^{240}Pu sont mesurés dans les échantillons de l'environnement par spectrométrie α , obligatoirement précédée d'une séparation radiochimique. LD de l'ordre de 0,1 mBq/ $\text{kg}_{\text{cendre}}$. La spectrométrie α ne permet pas la discrimination de ^{239}Pu et ^{240}Pu . Cette discrimination est obtenue par spectrométrie de masse.
- Pour des échantillons ayant une charge en Pu suffisante par rapport au bruit de fond des radionucléides naturels, une mesure en scintillation liquide est possible avec une LD de l'ordre de 10 mBq/éch pour ^{238}Pu et $^{239,240}\text{Pu}$ et d'environ 50 mBq/éch pour ^{241}Pu .
- Selon la provenance (donc l'isotopie) et l'âge du rejet en Pu, la mesure par spectrométrie γ de ^{241}Am (descendant de ^{241}Pu) peut fournir une information rapide sur l'ordre de grandeur des activités en Pu.

L'IRSN a développé une méthode et une instrumentation permettant, par couplage C. I. + ICP-MS ou CP (pour ^{90}Sr et ^{89}Sr), la mesure rapide et simultanée de 234 , 235 , 236 , ^{238}U , 230 , ^{232}Th , 239 , ^{240}Pu , ^{237}Np , ^{241}Am , ^{244}Cm (et 89 , ^{90}Sr). Cette technique ne permet pas la quantification de ^{238}Pu . Il peut être déduit, connaissant les autres isotopes, après une mesure de Pu_{total} ou faire l'objet d'analyses complémentaires par spectrométrie α .

- La définition de l'origine du plutonium repose souvent sur la détermination des rapports isotopiques :
 - $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$:
 - de l'ordre de 0,04 pour les retombées des essais militaires ;
 - de 0,2 à >1 pour les rejets industriels.
 - $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$:
 - de l'ordre de 0,18 pour les retombées des essais militaires ;
 - de l'ordre de 0,42 pour Tchernobyl.
 - $^{241}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$:

- de l'ordre de 30 pour les usines de retraitement ;
- de l'ordre de 16 pour des retombées de tests militaires.
- Les solutions aqueuses doivent être acidifiées pour éviter la précipitation.
- Des analyses Pu_{total} rapides sont possibles avec le système de type PERALS (extraction liquide-liquide spécifique avec scintillant puis mesure directe par SL). LD < 1 Bq/kg, délai 1 journée.

Compte tenu de la faible énergie (de l'ordre de 45 keV) et de la faible intensité d'émission du rayonnement γ (de l'ordre de 0,04 % pour les raies les plus intenses) la spectrométrie γ ne permet pas de quantifier de faibles niveaux de Pu. En mesure directe des limites de détection de l'ordre de la dizaine de kBq/L ou par kg peuvent uniquement être envisagées. (Calculé sur la base des LD pour ¹²⁹I : 10 Bq/L ou kg (30 keV – 37 %) sachant que pour Pu dans la même zone d'énergie (45 keV) l'intensité d'émission (0,04 %) est 1000 fois moins intense donc les LD sont à multiplier par 1000)

A titre indicatif, les performances et les capacités des laboratoires d'analyse de l'IRSN sont présentées dans le tableau suivant. Les capacités s'entendent pour un déploiement des moyens du laboratoire exclusivement dédié au type d'analyse évoqué.

| Techniques d'analyses "compatibles crise" | | | | | | |
|---|--|---------------------|-----------------------------------|--|--|---|
| Echantillon | Technique de séparation | Technique de mesure | Quantité Minimale (produit frais) | L.D. | Délai | Capacité |
| Liquides | Mesure rapide simultanée par couplage C. I. + ICP-MS ^{234, 235, 236, 238} U, ^{230, 232} Th, ^{239, 240} Pu, ²³⁷ Np, ²⁴¹ Am, ²⁴⁴ Cm (et ^{89/90} Sr). | | 500 mL | ²³⁹ Pu : 0,1 mBq/L ²⁴⁰ Pu : 0,1 mBq/L ²⁴¹ Pu : 1 Bq/L ²⁴¹ Am : 0,02 Bq/L (²³⁸ Pu : qqes mBq/L) | 1 jour (+ 1 semaine pour ²³⁸Pu) | 5 à 10/jour (²³⁸ Pu par spectro α) |
| Solides | | | | La fraction ²³⁸ Pu ne peut être caractérisée que par spectrométrie α complémentaire ou éventuellement par calcul à partir de la connaissance de l'activité Pu _{total} . | | |
| Frottis | | | s.o. | A valider | | |
| Tous types | Mesures γ | | 500 ml ou g | 10 000 Bq/L ou kg _{frais} | 1 jour | |

3.3. Les laboratoires hors IRSN

Au-delà des laboratoires de l'IRSN, la directive interministérielle du 29/11/2005 relative à la réalisation et au traitement des mesures de radioactivité dans l'environnement, en cas d'évènement entraînant une situation d'urgence radiologique, identifie différents acteurs :

- laboratoires du RNM agréés par l'Autorité de Sûreté Nucléaire (ASN) ;
- laboratoires agréés par la Direction Générale de l'Alimentation (DGAL) : Laboratoires Départementaux d'Analyses et Laboratoires Vétérinaires Départementaux ;
- laboratoires agréés par la Direction Générale de la Santé (DGS) pour les mesures de radioactivité dans les eaux potables ;
- laboratoires dépendant de la Direction Générale de la Concurrence, de la Consommation et de la Répression des Fraudes du ministère chargé de l'économie (DGCCRF).

Il peut également être fait appel à des laboratoires d'organismes étrangers, notamment dans le cadre des conventions d'assistance.

Au sein de ces réseaux, de nombreux laboratoires disposent d'une structure permettant la réalisation en routine de mesures de radioactivité sur des échantillons prélevés dans l'environnement ou des denrées alimentaires :

- laboratoires des exploitants (CEA, EDF, ORANO ...) ;
- laboratoires associatifs (CRIIRAD, ACRO ...) ;
- laboratoires universitaires : RAMSES (Université de Strasbourg), SMART-SUBATECH (Ecole des Mines de Nantes), ...
- laboratoires privés (ALGADE, EICHROM, EUROFINs ...).

3.3.1. Le Réseau National de Mesures de la Radioactivité de l'Environnement (RNM)

La grande majorité de ces laboratoires est fédérée au sein du Réseau National de Mesures de la Radioactivité de l'Environnement (RNM).

Ils sont agréés par l'Autorité de Sûreté Nucléaire (ASN) pour les analyses qu'ils pratiquent parmi celles répertoriées dans la grille d'agrément présentée dans le tableau suivant.

Pertinence de la doctrine Post Accidentelle pour des accidents autres que ceux pouvant survenir sur un CNPE
 Cas de rejets d'émetteurs alpha, à partir de l'exemple du plutonium
 Rapport IRSN n°2021-00248

| Code | Catégorie de mesures radioactives | Type 1 : Eaux, Eaux de surface, Eaux souterraines, Eaux de rejet,... | Type 2 : Matrices sols – Terres, sédiments, boues,... | Type 3 : Matrices biologiques – Végétaux, lait, faune, flore,... | Type 4 : Aérosols sur filtre | Type 5 : Gaz air | Type 6 Milieu ambiant (sol/air) | Type 7 : denrées alimentaires pour contrôle sanitaire |
|------|---|---|--|---|---------------------------------|--------------------------|---------------------------------------|--|
| _01 | Radionucléides émetteurs γ >100 keV | 1_01 | 2_01 | 3_01 | 4_01 | 5_01 | - | 7_01 |
| _02 | Radionucléides émetteurs γ <100 keV | 1_02 | 2_02 | 3_02 | 4_02 | 5_02 | - | 7_02 |
| _03 | Alpha global | 1_03 | - | - | 4_03 | - | - | - |
| _04 | Bêta global | 1_04 | - | - | 4_04 | - | - | - |
| _05 | ^3H | 1_05 | 2_05 | 3_05 | - | 5_05 | - | - |
| _06 | ^{14}C | 1_06 | 2_06 | 3_06 | - | 5_05 | - | - |
| _07 | $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ | 1_07 | 2_07 | 3_07 | 4_07 | - | - | - |
| _08 | Autres émetteurs bêta purs | 1_08 | 2_08 | 3_08 | - | - | - | - |
| _09 | Isotopes de U | 1_09 | 2_09 | 3_09 | 4_09 | - | - | - |
| _10 | Isotopes de Th | 1_10 | 2_10 | 3_10 | 4_10 | - | - | - |
| _11 | ^{226}Ra + descendants | 1_11 | 2_11 | 3_11 | - | ^{222}Rn : 5_11 | - | - |
| _12 | ^{228}Ra + descendants | 1_12 | 2_12 | 3_12 | - | ^{220}Rn : 5_12 | - | - |
| _13 | Isotopes Pu, Am, ... | 1_13 | 2_13 | 3_13 | 4_13 | - | - | - |
| _14 | Gaz halogénés | - | - | - | - | 5_14 | - | - |
| _15 | Gaz rares | - | - | - | - | 5_15 | - | - |
| _16 | Dosimétrie gamma | - | - | - | - | - | 6_16 | - |
| _17 | Uranium pondéral | 1_17 | 2_17 | 3_17 | 4_17 | - | - | - |

Grille d'agrément des laboratoires du RNM par l'ASN.

Les mesures d'activité réalisées sur des échantillons de l'environnement par les laboratoires agréés par l'ASN concernent principalement :

- les radionucléides émetteurs γ (>100 keV) dans les eaux, les sols, les échantillons biologiques, les aérosols ;
- les mesures α globales dans les eaux et les aérosols ;
- les mesures β globales dans les eaux et les aérosols ;
- la mesure de tritium dans les eaux et dans l'air.

3.3.2. Les laboratoires DGAL

La Direction Générale de l'Alimentation (DGAL) du ministère de l'agriculture fédère 8 laboratoires départementaux d'analyses relevant des conseils généraux des départements : Bouches-du-Rhône (13), Corrèze (19), Haute-Garonne (31), Loire-Atlantique (44), Manche (50), Puy-de-Dôme (63), Tarn-et-Garonne (82) et Haut-Rhin (68).

Consécutivement à l'accident de Tchernobyl, ces laboratoires ont la mission de surveiller la contamination des denrées et de s'assurer de l'absence de contamination de tout produit alimentaire en provenance des zones voisines d'installations nucléaires.

Ils sont agréés chaque année par la DGAL sur la base de leur participation à des Essais Inter Laboratoires (EIL) organisés par l'IRSN et accrédités par le COFRAC pour la mesure du ^{137}Cs et du ^{134}Cs dans les denrées alimentaires (viande de bovin et de porc, lait de bovin, de caprin et d'ovin, fromage de caprin et d'ovin, gibier sauvage, miel). Certains laboratoires ont également la capacité de mesurer l' ^{131}I .

Ils n'ont pas d'expérience pratique leur permettant la prise en charge d'échantillons présentant des niveaux d'activité élevés ni la mesure d'émetteurs α .

Nota : IRSN/SAME est le « Laboratoire National de Référence Radionucléides » dans le domaine de la santé publique vétérinaire et de la protection des végétaux (LNR RN) désigné par la Direction générale de l'alimentation (DGAL) du Ministère de l'Agriculture.

3.3.3. Les laboratoires DGCCRF

Quatre des laboratoires du Service Commun des Laboratoires du ministère des finances (SCL) dépendant de la Direction Générale de la Concurrence de la Consommation et de la Répression des Fraudes (DGCCRF) disposent de moyens de mesure de la radioactivité. Ils sont situés à Lille, Marseille, Bordeaux, Strasbourg.

Ils ont pour mission la surveillance de la contamination radioactive des denrées alimentaires d'origine végétale mises sur le marché français.

Ils réalisent des analyses par spectrométrie γ : ^{134}Cs , ^{137}Cs , ^{131}I (^{241}Am , ^{60}Co si nécessaire). Ils sont agréés de fait par la DGCCRF et accrédités COFRAC. Ils participent également aux EIL organisés par l'IRSN pour les laboratoires du Réseau DGAL.

Les laboratoires du SCL, comme ceux agréés par la DGAL, n'ont pas d'expérience pratique permettant une prise en charge d'échantillons significativement contaminés ou d'émetteurs α (hors ^{241}Am également mesurable par spectrométrie gamma).

3.3.4. Les laboratoires DGS

Onze laboratoires sont agréés par la Direction Générale de la Santé pour la mesure de radioactivité dans le cadre du contrôle sanitaire des eaux destinées à la consommation humaine :

- sept laboratoires privés : SGS France Laboratoires de Rouen (76), Eurofins Eichrom Radioactivité (35), CARSO LSEHL (69), ALGADE LAE(69), Pe@rl (87), ALGADE LED (87), Laboratoire Phytocontrol (30) ;
- trois laboratoires institutionnels : LABEO Manche (50), Laboratoires des Pyrénées et des Landes (65), Public Labos (82) ;
- un laboratoire universitaire ou assimilé : Subatech/SMART (44).

Tous ces laboratoires sont agréés pour 5 ans par la DGS pour réaliser les analyses α global, β global et tritium (mesures de premier niveau) dans les eaux.

Certains sont également agréés pour tout ou partie des analyses suivantes :

- ^{134}Cs , ^{137}Cs , ^{60}Co , ^{131}I (spectrométrie γ à haute résolution) ;
- ^{241}Am , ^{238}Pu , ^{239}Pu , ^{240}Pu , ^{234}U , ^{235}U et ^{238}U (spectrométrie α ou ICP-MS) ;
- ^{90}Sr (séparation radiochimique sur résine + mesure β par scintillation liquide).

Ils sont accrédités COFRAC et la majorité de ces laboratoires est également agréée par l'ASN, dans le cadre du RNM.

Nota : IRSN/SAME est le laboratoire de référence de la Direction générale de la santé (DGS) pour les analyses de radioactivité dans les eaux destinées à la consommation humaine.

3.3.5. Synthèse sur les laboratoires hors IRSN

En plus des moyens de l'IRSN, ce sont donc de l'ordre de 70 laboratoires qui disposent de moyens d'analyse divers de la radioactivité dans des échantillons de l'environnement.

Si ces laboratoires offrent une capacité de mesure importante sur les filtres aérosols et sur les eaux, leur potentiel est plus réduit pour l'analyse de matrices solides (biologiques, sols).

En particulier, la capacité de mesure d'émetteurs α ou β purs (hors comptages globaux) reste réduite et implique généralement des délais d'analyse qui sont longs donc inadaptés aux situations de crise.

En règle générale, ces laboratoires sont peu ou pas préparés à la gestion d'échantillons très significativement contaminés.

3.4. Laboratoires potentiellement mobilisables

Ce chapitre présente les laboratoires qui seraient effectivement potentiellement mobilisables hors IRSN, pour les principales typologies d'accident envisageables et à l'origine de rejets :

- d'uranium ;
- de plutonium et d'américium

Ces accidents conduiraient en particulier à des besoins importants de caractérisation des radionucléides rejetés dans des eaux et dans des échantillons biologiques. Hors IRSN, DGAL et DGCCRF, les laboratoires capables de réaliser ces mesures sont essentiellement identifiés par le biais de leur agrément au RNM, délivré par l'ASN, pour les analyses considérées (bilan au 1^{er} janvier 2020).

Les éléments présentés ne fournissent pas d'informations sur les capacités des laboratoires en termes de nombre d'échantillons analysables quotidiennement et de délai de rendu des résultats. Ces éléments resteraient à préciser le moment venu en fonction des caractéristiques réelles de la situation de crise rencontrée.

Les tableaux suivants présentent le potentiel des laboratoires (hors IRSN) mobilisables au 1^{er} janvier 2020 pour les mesures de l'uranium du plutonium et de l'américium et de l'activité α globale dans des échantillons de l'environnement.

L'IRSN maintient à jour annuellement la liste nominative de tous les laboratoires du territoire national agréés par l'autorité de sûreté nucléaire pour ces types de mesure et les met à disposition de ses équipes de crise.

3.4.1. Potentiel des Laboratoires mobilisables pour la mesure de l'uranium

| Type d'analyse | Type d'échantillon | Nombre de laboratoires (Hors IRSN) | Type de laboratoire |
|----------------|--------------------|------------------------------------|---------------------|
| U isot. | Sols | 12 | Universitaire (1) |
| | | | Privés (3) |
| | | | Exploitants (8) |
| U isot. | Eaux | 15 | Universitaire (1) |
| | | | Privé (5) |
| | | | Exploitant (9) |
| U isot. | Biologiques | 12 | Universitaire (2) |
| | | | Privé (3) |
| | | | Exploitant (7) |
| U isot. | Aérosols | 12 | Universitaire (1) |
| | | | Privé (3) |
| | | | Exploitant (8) |

3.4.2. Potentiel des laboratoires mobilisables pour la mesure du plutonium et de l'américium par détection du rayonnement α

| Type d'analyse | Type d'échantillon | Nombre de laboratoires (Hors IRSN) | Type de laboratoire |
|----------------|--------------------|------------------------------------|---------------------|
| Pu-Am | Eau | 14 | Universitaire (1) |
| | | | Privé (4) |
| | | | Exploitant (9) |
| | Biologiques | 10 | Universitaire (1) |

| | | | |
|--|----------|----|-------------------|
| | | | Privé (2) |
| | | | Exploitant (7) |
| | Aérosols | 11 | Universitaire (1) |
| | | | Privé (3) |
| | | | Exploitant (7) |
| | Sols | 12 | Universitaire (1) |
| | | | Privé (3) |
| | | | Exploitant (8) |

3.4.3. Potentiel des laboratoires mobilisables pour la mesure de l'américium par détection du rayonnement gamma

| Type d'analyse | Type d'échantillon | Nombre de laboratoires (Hors IRSN) | Type de laboratoire |
|---|----------------------|------------------------------------|---------------------|
| Emetteurs gamma < 100 keV (²⁴¹ Am) | Sols | 28 | Associatif (2) |
| | | | Institutionnel (1) |
| | | | Universitaire (5) |
| | | | Privé (4) |
| | | | Exploitant (16) |
| | | | Associatif (2) |
| | Eaux | 32 | Institutionnel (2) |
| | | | Universitaire (4) |
| | | | Privé (5) |
| | | | Exploitant (19) |
| | | | Associatif (2) |
| | Denrées Alimentaires | 6 | Institutionnel (6) |
| | | | Associatif (2) |
| | Biologiques | 30 | Institutionnel (1) |
| | | | Universitaire (3) |
| | | | Privé (4) |
| Exploitant (20) | | | |
| Associatif (2) | | | |
| Aérosols | 32 | Institutionnel (2) | |
| | | Universitaire (4) | |
| | | Privé (5) | |
| | | Exploitant (19) | |

3.4.4. Potentiel des laboratoires mobilisables pour la mesure de l'activité « α globale » d'un échantillon

| Type d'analyse | Type d'échantillon | Nombre de laboratoires (Hors IRSN) | Type de laboratoire |
|----------------|--------------------|------------------------------------|---------------------|
| Alpha global | Eaux | 25 | Institutionnel (2) |
| | | | Universitaire (2) |
| | | | Privé (6) |
| | Aérosols | 20 | Exploitant (15) |
| | | | Universitaire (1) |
| | | | Privé (2) |
| | | | Exploitant (17) |

3.5. Lexique

| | |
|---|---|
| Mesure directe/Mesure non destructive/Analyse non destructive | Ensemble de techniques de mesures ou d'analyse permettant de mesurer des propriétés spécifiques en évitant la destruction physique du milieu ou de l'élément [A3-3]. |
| Mesure in situ | Mesure non destructive dans laquelle l'appareil de détection est amené jusqu'au matériau à caractériser [A3-3]. |
| Mesure indirecte/Mesure destructive/Analyse destructive | Analyse des matières radioactives ou chimiques reposant sur l'utilisation de méthodes impliquant la destruction de l'échantillon par des procédés mécaniques ou chimiques (par exemple analyse chimique et radiochimique, ICP-MS, spectrométrie alpha...) [A3-3]. |
| Seuil de décision | Valeur de l'estimateur du mesurande telle que, quand le résultat d'une mesure réelle utilisant une procédure de mesure donnée d'un mesurande quantifiant le phénomène physique lui est supérieur, on décide que le phénomène physique est présent [A3-4]. |
| Limite de détection | Plus petite valeur vraie du mesurande qui garantit pour une probabilité spécifiée qu'il soit détectable par la méthode de mesure [A3-4]. |
| Mesurande | Grandeur que l'on veut mesurer [A3-4]. |

3.6. Références bibliographiques

- [A3-1] CODIRPA GT3, 2011. Guide de bonnes pratiques des laboratoires de mesure de radioactivité en situation post-accidentelle. Rapport IRSN DEI/STEME n° 2011-02, p69.
- [A3-2] EPA, 2011. A performance-based approach to the use of swipe samples in response to a radiological or nuclear incident. Report EPA 600/R-11/122, p58.
- [A3-3] NF ISO 18557, 2018. Principes de caractérisation des sols, bâtiments et infrastructures contaminés par des radionucléides, à des fins de réhabilitation.

- [A3-4] NF ISO 11929-1, 2020. Détermination des limites caractéristiques (seuil de décision, limite de détection et extrémités de l'intervalle de confiance) pour mesurages de rayonnements ionisants – Principes fondamentaux et applications – Partie 1 : applications élémentaires.
- [A3-5] Rapport IRSN/SAME N°2018-00004 : Mesure de la radioactivité d'échantillons de l'environnement et de denrées alimentaires en situation de crise - Localisation et capacités analytiques des laboratoires fixes français.
- [A3-6] Analyse rapide des actinides par couplage chromatographie liquide/ICP-MS et de ⁹⁰Sr par compteur proportionnel à gaz, dans les échantillons de l'environnement, en situation post-accidentelle. (Azza Habibi 2015)
- [A3-7] Séparation automatisée et couplage avec la mesure pour la quantification rapide des actinides et de ⁹⁰Sr Azza HABIBI(a) , Catherine COSSONNET(b) , Béatrice BOULET(b) , Fabrice LEPRIEUR(a) (a)IRSN/PRP-ENV/STEME/LTE, Le Vésinet (France) (b)IRSN/PRP-ENV/STEME/LMRE, Orsay
- [A3-8] Risque radiologique en situation post-accidentelle - Guide de bonnes pratiques des laboratoires de mesure de radioactivité
- [A3-9] Auteur(s) : Jean-Louis PICOLO, Stéphanie DEMONGEOT, Vincent GIRARD, Caroline QUINIO, Stéphane SCA-POLAN, Jean-Luc TILLIE. Date de publication : 10 juil. 2012 SL6162 v1
- [A3-10] Guide de bonnes pratiques des laboratoires de mesure de radioactivité en situation post-accidentelle - Rapport IRSN DEI/STEME n°2011-02.

Annexe 4. Fiches "Métrologie Crise" de l'IRSN

Fiches Métrologie Crise - Laboratoires d'analyses de l'IRSN

Préambule

L'IRSN dispose de fiches « métrologie crise » qui s'adressent en premier lieu **aux responsables des laboratoires fixes de l'IRSN**, en charge de la gestion et de la réalisation des analyses d'échantillons de l'environnement, en situation de crise radiologique.

Ces fiches sont à établir **par chaque laboratoire** de manière anticipée, afin d'être en mesure d'indiquer aux prescripteurs de ces analyses, **rapidement** et sous une forme **synthétique**, ses capacités et son niveau de performance métrologique pour un type d'analyse donné.

La présente annexe présente le contenu type des fiches, et les fiches pour l'uranium, le plutonium et l'américium.

Contenu des fiches « métrologie crise »

Elles ont pour objectif de rassembler les informations utiles à :

- la définition de la **stratégie de mesure** à appliquer en situation de crise pour les combinaisons matrice/radionucléide les plus probables ;
- la prise en compte dans cette stratégie, le cas échéant, des **niveaux maximaux admissibles (NMA)** dans les denrées alimentaires (Règlement EURATOM 2016/52) ou des **références de qualité radiologique** réglementaires pour les eaux de consommation humaine (Arrêté du 9 décembre 2015) ;
- la connaissance des **niveaux d'activité rencontrés usuellement dans l'environnement** (des fiches d'information plus détaillées, à la source d'une partie des informations présentes dans ces fiches (environnement, radioprotection et santé), relatives à chaque radionucléide, sont accessibles sur le site internet de l'IRSN (<http://www.irsn.fr/FR/Larecherche/publications-documentation>)) ;
- la prise en considération **des conditions de radioprotection** particulières à mettre en place dans les laboratoires (le code couleur "radionucléide" : bleu, vert, jaune, orange, rouge, utilisé indique respectivement une radiotoxicité très faible, faible, modérée, forte ou très forte, conformément au "Guide pratique – Radioprotection et Radionucléides " - D. Delacroix et al.) ;
- l'information du prescripteur d'analyses sur :
 - les **capacités du laboratoire** en nombre d'analyses réalisables (par jour ou par semaine) et le **délai de rendu d'un résultat** à réception d'un échantillon (le code couleur : vert, orange, rouge, relatif aux "Délai" indique respectivement un délai minimal d'analyse de l'ordre de la journée, de quelques jours ou d'une semaine ou plus. Ces délais et les capacités quotidiennes s'entendent pour un déploiement exclusif des moyens (techniques et humains) du laboratoire pour le type d'analyse évoqué),
 - le **niveau de performance métrologique** envisageable²¹ (incertitude et limite de détection),

²¹ En fonction des objectifs de performance métrologique, imposés par la typologie de la crise, les temps de mesure proposés donc le nombre d'échantillons mesurables quotidiennement indiqués dans les fiches pourront être amenés à évoluer à la baisse ou à la hausse.

- les **quantités minimales d'échantillon** nécessaires pour une analyse (ces quantités sont définies comme les quantités minimales permettant à l'analyste de réaliser sans difficulté la prise d'essai nécessaire à l'application de son protocole analytique. Elles sont, par définition très inférieures aux quantités demandées, essentiellement pour des raisons pratiques, aux équipes de prélèvement et ne doivent pas remettre en cause ces recommandations de prélèvement).

Elles contiennent également des informations diverses relatives :

- aux données nucléaires (issues des tables du Laboratoire National Henri Becquerel (http://www.nucleide.org/DDEP_WG/DDEPdata.htm) ;
- aux seuils d'exemption de déclaration ou d'autorisation (en activité totale et en activité massique) prévus par le code de la santé publique pour l'utilisation de sources radioactives.

Les spécificités des différentes méthodes de mesure applicables sont indiquées.

Les éléments présentés sur ces fiches ne sont qu'indicatifs. Ils ne constituent en aucun cas un engagement du laboratoire et sont susceptibles d'ajustements en fonction des circonstances particulières de l'incident ou de l'accident radiologique concerné et de l'évolution de la situation.

Remarque

Certains protocoles analytiques (essentiellement ceux mis en œuvre pour la caractérisation de radionucléides émetteurs α ou β purs) imposent une phase de traitement préalable de l'échantillon frais (séchage, calcination...) pour pouvoir l'analyser.

Les activités massiques, obtenues à l'issue de l'analyse sont alors exprimées par le laboratoire de mesure en Bq/kg_{sec} ou Bq/kg_{centre}.

Une conversion en Bq/kg_{frais}, unité dans laquelle le résultat est généralement attendu par les gestionnaires de crise peut-être nécessaire. Par exemple :

$$Bq/kg_{frais} = \frac{Bq/kg_{sec}}{Poids\ Frais / Poids\ Sec}$$

Cette conversion implique la connaissance du rapport existant entre le poids frais, le poids sec et/ou le poids de cendres de l'échantillon.

Ces rapports sont très variables d'un échantillon à l'autre. Pour permettre de situer leur ordre de grandeur le tableau suivant donne des exemples de rapports moyens issus des bases de données de l'IRSN.

| Nature de l'échantillon | Poids Frais / Poids Sec | Poids Sec / Poids Cendres | Poids Frais / Poids |
|---------------------------|-------------------------|---------------------------|---------------------|
| <i>Végétaux divers</i> | | | |
| Herbe | 4 | 4 | 16 |
| Persil | 4 | 9 | 36 |
| Mousse terrestre | 1,5 | 15 | 22,5 |
| <i>Légumes - feuilles</i> | | | |
| Salade | 14 | 5 | 70 |
| <i>Légumes - fruits</i> | | | |

| | | | |
|-------------------------------------|-----|------|-------|
| Tomate | 15 | 5 | 75 |
| Haricot | 11 | 7 | 77 |
| <i>Légumes - racines</i> | | | |
| Carotte | 13 | 6 | 78 |
| Pomme de terre | 5 | 4 | 20 |
| Radis | 15 | 5 | 75 |
| <i>Graines</i> | | | |
| Blé | 1,2 | 75 | 90 |
| Maïs | 1,5 | 70 | 105 |
| <i>Fruits</i> | | | |
| Pomme | 7 | - | - |
| Citron (épluché) | 11 | 6 | 66 |
| Raisin | 8 | 7 | 56 |
| <i>Produits laitiers</i> | | | |
| Lait | 9 | 15 | 135 |
| Fromage (chèvre) | 2 | 20 | 40 |
| <i>Produits alimentaires divers</i> | | | |
| Vin rouge | 30 | 1300 | 39000 |
| Miel | 1,5 | - | - |
| <i>Mollusques</i> | | | |
| Moule | 6 | 3 | 18 |
| Bulot | 4 | 12 | 48 |
| Patelle | 4 | - | - |

Uranium

- ^{232}U ($T_{1/2}$: 69,9 ans – $A_s = 8,2 \cdot 10^{11}$ Bq/g - émetteur α) : 5320 keV (68,8 %), 4775 keV (71%).
- ^{233}U ($T_{1/2}$: $1,6 \cdot 10^5$ ans – $A_s = 3,6 \cdot 10^8$ Bq/g - émetteur α) : 4824 keV (83 %), 4775 keV (71%).
- ^{234}U ($T_{1/2}$: $2,45 \cdot 10^5$ ans – $A_s = 2,3 \cdot 10^8$ Bq/g - émetteur α) : 4722 keV (28 %), 4775 keV (71%).
- ^{235}U ($T_{1/2}$: $7,04 \cdot 10^8$ ans – $A_s = 1,6 \cdot 10^5$ Bq/g - émetteur α/γ) : 4366 keV (19%), 4398 keV (57%) - γ 186 keV (57 %).
- ^{236}U ($T_{1/2}$: $23,43 \cdot 10^6$ ans – $A_s = 8,4 \cdot 10^9$ Bq/g - émetteur α) : 4445 keV (26%), 4494 keV (74%).
- ^{238}U ($T_{1/2}$: $4,47 \cdot 10^9$ ans – $A_s = 2,5 \cdot 10^4$ Bq/g - émetteur α) : 4151 keV (22%), 4198 keV (77%).

- Groupe de risque : 1 (très forte radiotoxicité).
- Activité maximale manipulable (pour chaque isotope) : 10^4 Bq sous hotte ventilée - 10^3 Bq sur paillasse.
- Seuils d'exemption d'autorisation ASN : 10^4 Bq - 10 Bq/g pour tous les isotopes sauf ^{232}U : 10^3 Bq - 1 Bq/g.

Teneurs rencontrées usuellement dans l'environnement (France métropolitaine)

- Seuls ^{234}U , ^{235}U , ^{238}U sont présents naturellement dans l'environnement. D'autres isotopes radioactifs de l'uranium (^{232}U , ^{233}U , ^{236}U) existent mais ils sont produits artificiellement.
- Concentrations U_{nat} rencontrées usuellement :
 - Sols et sédiments de quelques Bq (de l'ordre de $100 \mu\text{g}$)/ kg_{sec} à quelques centaines de Bq (de l'ordre de 10 mg)/ kg_{sec} . Autour des installations de l'amont du cycle du combustible nucléaire de l'ordre de 100 Bq ($3,8 \text{ mg}$)/ kg_{sec} .
 - Air de l'ordre de $1 \mu\text{Bq}$ ($0,038 \text{ ng}$)/ m^3 hors de l'influence d'installations nucléaires. Dans l'environnement d'une usine de traitement de l'uranium (moins de 2 km), de 1 à $900 \mu\text{Bq}$ ($0,038$ à 34 ng)/ m^3 .
 - Eaux de rivière entre $0,01$ et $0,1$ Bq ($0,38$ et $3,8 \mu\text{g}$)/L.
 - Milieu marin, la teneur moyenne de cet élément est de 86 mBq ($3,3 \mu\text{g}$)/L.
 - Lait : 1 mBq ($0,038 \mu\text{g}$)/kg.
 - Viande : 2 mBq ($0,076 \mu\text{g}$)/kg.
 - Céréales : 20 mBq ($0,76 \mu\text{g}$)/kg.
 - Légumes feuilles : 20 mBq ($0,76 \mu\text{g}$)/kg.
 - Légumes racines et fruits : 3 mBq ($0,114 \mu\text{g}$)/kg.

Limites et références de qualité des eaux (brutes et destinées à la consommation humaine)

- Dans le cadre de la réglementation française relative à la qualité radiologique des eaux de consommation humaine (arrêté du 1^{er} septembre 2003). La limite de détection maximale autorisée est de $0,005$ Bq/L pour ^{234}U et ^{238}U . La concentration dérivée de référence (activité qui serait à l'origine d'une dose de $0,1$ mSv par an pour un adulte consommant 730 litres dans le cas de la présence exclusive du radionucléide considéré) est de $2,8$ Bq/L pour ^{234}U et $3,0$ Bq/L pour ^{238}U .
- Comme indiqué dans les publications de l'OMS relative à la qualité des eaux de boisson, l'uranium est un métal surtout chimiquement toxique. Selon le guide OMS pour la qualité des eaux potables "Guidelines for Drinking Water Quality" (2011) la concentration journalière admissible dans l'eau de boisson est égale à $30 \mu\text{g}/\text{L}$.

| Techniques d'analyses "compatibles crise" (^{234}U , ^{235}U , ^{238}U voire ^{236}U) | | | | | | |
|---|-------------------------|------------------------|---------------------------------------|--|---------|---|
| Echantillon | Technique de séparation | Technique de mesure | Quantité Minimale (de produits frais) | L.D. ²² (pour U_{nat}) (temps de comptage) | Délai | Capacité ²³ |
| Eaux | s.o. | ICP-MS | 50 mL | U_{tot} : 0,1 µg/L U_{tot} : 2,6 mBq/L | 1 heure | 20/jour (Le Vésinet) 20/jour (Orsay) |
| Solides/liquides | s.o. | Spectrométrie γ | 500 mL | 10 à 100 Bq/L ou kg _{frais} 0,38 à 3,8 mg/L ou kg _{frais} (180 min) | 1 jour | 50/jour (Le Vésinet) 25/jour (Orsay) |
| Frottis/Filtres | Radiochimie | ICP-MS | s.o. | 1 mBq/éch. 0,038 µg/éch. | 2 jours | 5 à 10/jour (Le Vésinet) 5 à 10/jour (Orsay) |
| Solides | Radiochimie | ICP-MS | 10 à 20 g | 1 Bq/kg _{cendre} 38 µg/kg | 2 jours | 5 à 10/jour (Le Vésinet) 5 à 10/jour (Orsay) |
| Spécificité des méthodes de mesure | | | | | | |
| <ul style="list-style-type: none"> • La quantification d'U dans un échantillon de l'environnement peut être réalisée soit par méthodes pondérales soit par méthodes isotopiques. Selon les cas, l'analyse d'échantillons liquides ou solides peut être réalisée directement ou après traitement de l'échantillon (minéralisation, purification, filtration). • Méthodes pondérales <ul style="list-style-type: none"> ○ L'ICP-AES permet de quantifier des concentrations minimales de 10 à 100 µg/L dans l'eau. Des eaux parfaitement limpides peuvent ne pas nécessiter de traitement préalable. • Méthode isotopiques <ul style="list-style-type: none"> ○ Spectrométrie γ <ul style="list-style-type: none"> ▪ Si la spectrométrie γ est moins performante (10 à 100 Bq/L ou kg) que la spectrométrie α ou l'ICP-MS, elle est utilisée fréquemment comme mesure préliminaire pour éviter de mettre en œuvre inutilement des méthodes plus lourdes et pour optimiser la concentration du traceur nécessaire à ces deux méthodes. ○ Spectrométrie α <ul style="list-style-type: none"> ▪ Cette technique permet également de quantifier chacun des isotopes d'U avec des limites de détection généralement plus basses que celles obtenues en spectrométrie γ. Elle requiert cependant, obligatoirement en préalable à la mesure, une préparation chimique de l'échantillon. Les LD classiquement atteintes sont de l'ordre de 0,01 Bq (0,38 µg)/L ou kg. ○ Spectrométrie de masse <ul style="list-style-type: none"> ▪ L'avantage de l'ICP-MS par rapport à la spectrométrie α est la rapidité de la mesure et la possibilité de faire une mesure directe (sans purification chimique) pour des matrices liquides peu chargées en sels. ▪ Les limites de quantification calculées avec les protocoles de routine et en utilisant un ICP-MS quadripolaire sont de l'ordre de 1 mBq (0,038 µg)/kg_{cendre} pour les matrices solides et de 0,01 mBq (0,38 ng)/L, pour les eaux ou liquides ayant subi un traitement radiochimique. ▪ Sur les eaux ou liquides mesurés directement après dilution - sans radiochimie - la spectrométrie de masse permet une limite de détection de l'ordre de 1 mBq (0,038 µg)/L. ▪ L'ICP-MS permet également de déceler la présence de ^{236}U, indicateur de l'origine naturelle ou non d'un échantillon contenant U. | | | | | | |
| Autres informations | | | | | | |
| <ul style="list-style-type: none"> • Abondance naturelle : <ul style="list-style-type: none"> ○ Masse (^{234}U : 0,0057 % ; ^{235}U : 0,719 % ; ^{238}U : 99,275 %). ○ Activité (^{234}U : 49,99 % ; ^{235}U : 2,23 % ; ^{238}U : 47,78 %). | | | | | | |

²²Il est rappelé que pour les mesures d'activité (donc hors ICP-MS) une réduction du temps de comptage d'un facteur 4 n'augmente la limite de détection que d'un facteur 2.

²³ Les capacités s'entendent pour un déploiement des moyens du laboratoire exclusivement dédié au type d'analyse évoqué.

- Pour U_{nat} : 1 Bq = 38 μ g - 1 μ g = 26 mBq.

Plutonium et Américium

- ^{238}Pu ($T_{1/2}$: 87,74 ans – A_s = 6,4.10¹¹ Bq/g - émetteur α) : 5456 keV (29 %), 5499 keV (71 %).
- ^{239}Pu ($T_{1/2}$: 24100 ans – A_s = 2,3.10⁹ Bq/g - émetteur α) : 5106 keV (12 %), 5144 keV (17 %), 5157 keV (71 %).
- ^{240}Pu ($T_{1/2}$: 6561 ans – A_s = 8,4.10⁹ Bq/g - émetteur α) : 5124 keV (27 %) et 5168 keV (73 %).
- ^{241}Pu ($T_{1/2}$: 14,33 ans – A_s = 3,8.10¹² Bq/g - émetteur β) : 20,8 keV (100 %).
- ^{241}Am ($T_{1/2}$: 432,6 ans – A_s = 1,3.10¹¹ Bq/g - émetteur α/γ) : 5388 keV (2 %), 5443 keV (13 %), 5486 keV (84 %) et γ : 59,54 keV (36 %).

- Groupe de risque : 1 (très forte radiotoxicité) sauf ^{241}Pu : 2 (forte radiotoxicité).
- Activité maximale manipulable: 10⁴ Bq sauf ^{241}Pu : 10⁵ Bq - sous hotte ventilée - 10³ Bq sauf ^{241}Pu : 10⁴ Bq sur paillasse.
- Seuils d'exemption d'autorisation ASN :
 - 10³ Bq (^{240}Pu) - 10⁴ Bq (^{238}Pu ; ^{239}Pu ; ^{241}Am) - 10⁵ Bq (^{241}Pu).
 - 1 Bq/g (^{238}Pu ; ^{239}Pu ; ^{240}Pu ^{241}Am) - 100 Bq/g (^{241}Pu).

Teneurs rencontrées usuellement dans l'environnement

- Présence principalement imputable aux essais atmosphériques et aux rejets d'effluents d'usines de retraitement.
 - 5 à 2000 mBq/kg_{sec} dans les sols.
 - 0,005 à 50 mBq/kg_{sec} dans les végétaux terrestres.
 - 0,01 à 0,5 Bq/m³ dans la Seine (0,03 à 0,3 Bq/m³ dans le Bas-Rhône entre 1961 et 1998).
 - 5 à 30 mBq/m³ en Manche ; 6 à 9 mBq/m³ en Atlantique.

Niveaux Maximaux Admissibles²⁴ (Euratom 2016/52)

Somme des isotopes de Pu et d'éléments transplutoniens à émission α , notamment ^{239}Pu et ^{241}Am

| Aliments pour nourrissons | Produits laitiers | Autre denrées alimentaires | Liquides alimentaires |
|---------------------------|---------------------------|----------------------------|---------------------------|
| 1 Bq/kg _{frais} | 20 Bq/kg _{frais} | 80 Bq/kg _{frais} | 20 Bq/kg _{frais} |

Techniques d'analyses "compatibles crise"

| Echantillon | Technique de séparation | Technique de mesure | Quantité Minimale | L.D. ²⁵ (temps de comptage) | Délai | Capacité ²⁶ |
|-------------|-------------------------|---------------------|-------------------|---|-------|------------------------|
| | | | | | | |

²⁴ Le niveau applicable aux produits concentrés ou séchés est calculé sur la base du produit reconstitué prêt à la consommation.

²⁵ Il est rappelé que pour les mesures d'activité (donc hors ICP-MS) une réduction du temps de comptage d'un facteur 4 n'augmente la limite de détection que d'un facteur 2.

²⁶ Les capacités s'entendent pour un déploiement des moyens du laboratoire exclusivement au type d'analyse évoqué.

| | | | | | |
|------------|---|-------------|--|--|--|
| | | | (produit frais) | | |
| Liquides | Mesure rapide simultanée par couplage C. I. + ICP-MS ^{234, 235, 236, 238} U, ^{230, 232} Th, ^{239, 240} Pu, ²³⁷ Np, ²⁴¹ Am, ²⁴⁴ Cm (et ^{89/90} Sr). | 500 mL | ²³⁹ Pu : 0,1 mBq/L ²⁴⁰ Pu : 0,1 mBq/L ²⁴¹ Pu : 1 Bq/L ²⁴¹ Am : 0,02 Bq/L (²³⁸ Pu : qqes mBq/L) | 1 jour (+ 1 semaine pour ²³⁸ Pu) | 5 à 10/jour Orsay (mesures rapides) Le Vésinet (²³⁸ Pu par spectro α) |
| Solides | | 10 g | ²³⁹ Pu : 0,4 Bq/kg _{cendre} ²⁴⁰ Pu : 1,5 Bq/kg _{cendre} ²⁴¹ Pu : 700 Bq/kg _{cendre} ²⁴¹ Am : 7 Bq/kg _{cendre} (²³⁸ Pu : qqes Bq/kg _{cendre}) | | |
| Frottis | | S.O. | A valider | | |
| Tous types | Mesures γ | 500 ml ou g | 10 000 Bq/L ou kg _{frais} | 1 jour | |

Spécificités des méthodes de mesure

- ^{238, 239, 240}Pu sont mesurés dans les échantillons de l'environnement par spectrométrie α, obligatoirement précédée d'une séparation radiochimique. LD de l'ordre de 0,1 mBq/kg_{cendre}. La spectrométrie α ne permet pas la discrimination de ²³⁹Pu et ²⁴⁰Pu. Cette discrimination est obtenue par spectrométrie de masse.
- Pour des échantillons ayant une charge en Pu suffisante par rapport au bruit de fond des radionucléides naturels, une mesure en scintillation liquide est possible avec une LD de l'ordre de 10 mBq/éch pour ²³⁸Pu et ^{239, 240}Pu et d'environ 50 mBq/éch pour ²⁴¹Pu.
- Selon la provenance (donc l'isotopie) et l'âge du rejet en Pu, la mesure par spectrométrie γ de ²⁴¹Am (descendant de ²⁴¹Pu) peut fournir une information rapide sur l'ordre de grandeur des activités en Pu.
- Le SAME a développé une méthode et une instrumentation permettant, par couplage C. I. + ICP-MS ou CP (pour ⁹⁰Sr et ⁸⁹Sr), la mesure rapide et simultanée de ^{234, 235, 236, 238}U, ^{230, 232}Th, ^{239, 240}Pu, ²³⁷Np, ²⁴¹Am, ²⁴⁴Cm (et ^{89,90}Sr). Cette technique ne permet pas la quantification de ²³⁸Pu. Il peut être déduit, connaissant les autres isotopes, après une mesure de Pu_{total} ou faire l'objet d'analyses complémentaires par spectrométrie α.

Autres informations

- La définition de l'origine du plutonium repose souvent sur la détermination des rapports isotopiques :
 - ²³⁸Pu/^{239,240}Pu :
 - de l'ordre de 0,04 pour les retombées des essais militaires ;
 - de 0,2 à >1 pour les rejets industriels.
 - ²⁴⁰Pu/²³⁹Pu :
 - de l'ordre de 0,18 pour les retombées des essais militaires ;
 - de l'ordre de 0,42 pour Tchernobyl.
 - ²⁴¹Pu/^{239,240}Pu :
 - de l'ordre de 30 pour les usines de retraitement ;
 - de l'ordre de 16 pour des retombées de tests militaires.
- Les solutions aqueuses doivent être acidifiées pour éviter la précipitation.
- Des analyses Pu_{total} rapides sont possibles avec le système de type PERALS (extraction liquide-liquide spécifique avec scintillant puis mesure directe par SL). LD < 1 Bq/kg, délai 1 journée.
- Compte tenu de la faible énergie (de l'ordre de 45 keV) et de la faible intensité d'émission du rayonnement γ (de l'ordre de 0,04 % pour les raies les plus intenses) la spectrométrie γ ne permet pas de quantifier de faibles niveaux de Pu. En mesure directe des limites de détection de l'ordre de la dizaine de kBq/L ou par kg peuvent uniquement être envisagées. (Calculé sur la base des LD pour ¹²⁹I : 10 Bq/L ou kg (30 keV – 37 %) sachant que pour Pu dans la même zone d'énergie (45 keV) l'intensité d'émission (0,04 %) est 1000 fois moins intense donc les LD sont à multiplier par 1000).

Annexe 5. Effets sanitaires des émetteurs α sur l'homme et conséquences à long terme (effets stochastiques) - Moyens de mesures de la population et traitements

5.1. Comportement dans l'organisme du plutonium et de l'américium et toxicité chez l'homme

5.1.1. Devenir du plutonium et de l'américium après incorporation par inhalation ou par ingestion

Le plutonium et l'américium peuvent pénétrer dans l'organisme par inhalation, par ingestion ou via une plaie contaminée. A partir des modèles biocinétiques proposés par la Commission Internationale de Radioprotection pour ces deux radioéléments [ICRP, 2019], on peut retenir les points essentiels suivant :

- après inhalation, le poumon est le premier organe irradié et l'importance de son exposition dépend de la forme physico-chimique sous laquelle le composé est inhalé. Les formes peu solubles du plutonium (comme les oxydes) restent longtemps au niveau pulmonaire entraînant des doses importantes à ce niveau alors que les formes plus solubles (comme les nitrates, les chlorures et les bicarbonates) passent plus rapidement la barrière pulmonaire pour entrer dans le sang, avec des doses aux poumons moins importantes. Les composés d'américium sont considérés comme plus solubles que ceux du plutonium sauf lorsqu'ils sont associés à du plutonium sous forme d'oxyde ;
- après ingestion, l'absorption du plutonium et de l'américium dans le tube digestif est très faible et dépend également de sa forme physico-chimique. Cette absorption est plus importante chez l'enfant que chez l'adulte. Cependant, quel que soit l'âge du sujet et la forme du composé, pour une même activité incorporée, la dose efficace reçue sera au moins cinquante fois plus faible après ingestion qu'après inhalation ;
- une fois passés dans le sang, la biocinétique du plutonium et de l'américium ne dépend plus de la solubilité initiale du composé incorporé. Une fraction de l'activité présente dans le sang est excrétée mais la majeure partie se dépose au niveau hépatique et osseux. Pour le plutonium, 60 % de la fixation a lieu dans le foie et 30% dans le squelette [ICRP, 2019]. Pour l'américium la fixation dans le foie est légèrement plus faible (50%) et celle dans le squelette est identique (30 %). Dans ces deux organes, les périodes de rétentions du plutonium et de l'américium sont très longues, de l'ordre de 50 ans au niveau osseux et de 20 ans au niveau hépatique ;
- l'excrétion se fait principalement via les selles et dans une moindre mesure via les urines. La portion excrétée via les urines est plus importante pour l'américium, plus soluble, que pour le plutonium.

5.1.2. Toxicité du plutonium et de l'américium

Les principaux radioisotopes du plutonium sont les plutoniums 238, 239, 240 et 241. Les trois premiers émettent des rayons X faiblement énergétiques (14-22 keV, 4,6-11%) et des rayonnements α de 5 MeV environ dont le parcours est arrêté par la couche cornée de la peau. Sous forme de source externe à l'organisme, ils sont donc peu irradiants. Par contre, après incorporation dans l'organisme (par

inhalation, ingestion ou via une plaie contaminée), ils présentent une radiotoxicité importante car la forte densité d'ionisation des particules α provoque sur l'ADN de multiples lésions, très proches les unes des autres et donc difficilement réparables. Le plutonium 241 est un émetteur bêta, moins radiotoxique après incorporation mais dont le descendant, l'américium 241, est également un émetteur α . Celui-ci est un peu plus irradiant en exposition externe que les plutoniums 238 et 239 car il émet un rayonnement gamma (60 keV, 36%), plus énergétique que les X émis par ces derniers.

Comme après toute exposition aux rayonnements ionisants, deux types d'effets peuvent apparaître après contamination interne par les isotopes du plutonium et de l'américium : des effets déterministes, précoces ou tardifs, qui ne surviennent qu'au-delà d'un certain seuil et dont la gravité augmente avec la dose reçue et des effets à long terme, stochastiques, susceptibles d'apparaître quelle que soit la dose reçue mais dont la fréquence augmente avec celle-ci.

5.1.2.1. Effets déterministes

Ces effets ont été observés après des contaminations expérimentales par du plutonium ou de l'américium chez l'animal. A partir ces études animales la DL50 à 1000 jours (dose létale entraînant le décès de 50 % des sujets 1000 jours après la contamination) a été estimée chez l'homme à 0,85 MBq d'oxyde de plutonium 239 inhalé [Métivier 1997]. Les animaux exposés ont développé des pneumonies interstitielles précoces suivies par des fibroses pulmonaires tardives ainsi que des atteintes hématologiques, hépatiques et osseuses [ATSDR].

En phase post-accidentel d'accident nucléaire, pour les populations environnantes, la survenue de signes cliniques par toxicité radiologique correspondrait, d'après les données animales, à l'incorporation d'activités plus importantes que celles retenues dans les scénarios avec rejet de plutonium dans l'atmosphère [IRSN 2008].

5.1.2.2. Effets stochastiques à long terme

Le principal effet stochastique à long terme après exposition aux rayonnements ionisants est le risque cancérigène. Les études animales expérimentales ont montré dès les années 50 que l'inhalation de plutonium-239 ou d'américium-241 était capable d'induire l'apparition de tumeurs malignes dans les poumons, dans le squelette et dans le foie [Taylor].

Chez l'homme, cet effet cancérigène a été confirmé par l'étude des cohortes de travailleurs des sites nucléaires de Mayak en Russie et de Sellafield au Royaume-Uni [Gillies 2017]. L'analyse de ces cohortes a permis de quantifier la relation dose-effet entre exposition au plutonium et cancer du poumon. L'excès de risque de mortalité vie entière par cancer du poumon par unité de dose absorbée dans le poumon, attribuable aux inhalations aiguës et chroniques de nitrate ou d'oxyde de plutonium, varie entre 1,4 et 1,7 pour 10 000 individus par mGy. L'étude de la cohorte des travailleurs de Mayak a également montré un lien entre exposition au plutonium et risque de développer un cancer du foie ou des os. Par contre le lien n'a pas été établi entre cette exposition et le risque de développer une leucémie. Ces études portant sur des populations adultes, elles ne permettent pas de caractériser une radiosensibilité plus importante chez l'enfant même si celle-ci a été bien démontrée après d'autres formes d'exposition (irradiation externe, contamination par l'iode 131 ...).

Un autre effet stochastique à long terme est le risque de développer une maladie cardiovasculaire. Certains résultats de la cohorte des travailleurs de Mayak suggèrent une association entre l'exposition au plutonium et l'apparition de maladies cérébro-vasculaires et de cardiopathies ischémiques [Azizova 2011] [Azizova 2012]. Néanmoins, ces résultats restent à confirmer.

5.2. Moyens de mesures de la contamination interne des personnes par le plutonium et l'américium et traitements disponibles

5.2.1. Mesures de la contamination interne

5.2.1.1. Les différents types d'examen

Il existe deux types d'examens permettant de détecter et de quantifier la contamination interne d'une personne par les composés du plutonium et de l'américium : la mesure des activités excrétées, dans les urines ou dans les selles, par radiotoxicologie et la mesure directe de l'activité des radionucléides contenus dans l'organisme, par anthroporadiométrie.

a. Mesure dans les excréta

Il s'agit de la mesure de référence en cas de contamination interne par les isotopes du plutonium ou de l'américium. La mesure dans les excréta (urines et selles) permet de détecter tous les radioisotopes quels que soient leurs types de rayonnement (alpha, bêta ou gamma). En particulier les isotopes émetteurs alpha sont détectables à des niveaux d'activité très bas. Les mesures radiotoxicologiques sont donc les analyses les plus sensibles pour détecter les contaminations internes, même faibles, par le plutonium. L'obtention des résultats nécessite cependant un délai minimum de deux semaines comprenant le temps nécessaire pour le recueil, la préparation et la mesure des échantillons. Les mesures peuvent être prescrites aussi bien après une contamination par inhalation que par ingestion.

Les laboratoires de biologie médicale utilisent les techniques radiométriques pour mesurer le plutonium et l'américium dans les excréta. Ces techniques comprennent la spectrométrie α pour la mesure des plutoniums 238, 239, 240 et de l'américium 241 et la scintillation liquide, adaptée pour quantifier l'émission β du plutonium 241.

b. Mesures anthroporadiométriques

Les mesures anthroporadiométriques ne détectent que les émissions gamma ou X et les limites de détection (LD) dépendent de l'énergie des rayonnements émis et de leur intensité. Les isotopes du plutonium émettant des rayonnements X, ils sont détectables par ce type de mesure. Cependant, l'intensité et l'énergie de ces rayonnements étant faibles, les limites de détection sont élevées, de l'ordre de plusieurs milliers de becquerels. Ainsi, la mesure anthroporadiométrique des isotopes du plutonium ne permet de détecter que des contaminations internes importantes.

En pratique, les composés industriels de plutonium contiennent le plus souvent un mélange d'isotopes du plutonium (plutonium-238, plutonium-239, plutonium-240, plutonium-241) et d'américium-241 descendant du plutonium 241. L'américium 241 émet un rayonnement gamma à 59,5 keV assez intense (36%) qui lui permet d'être détectable par anthroporadiométrie à un niveau beaucoup plus bas que les isotopes du plutonium. Ainsi, la limite de détection du plutonium 239 dans les poumons est de l'ordre de 3000 Bq alors qu'elle n'est que de l'ordre de 10 Bq pour l'américium 241. Pour ce type de composés, l'américium 241 peut donc être utilisé comme un radioisotope « marqueur » d'une contamination par le plutonium : connaissant la proportion isotopique dans le rejet, les activités incorporées des différents isotopes du plutonium peuvent être estimées à partir de l'activité incorporée en américium 241. Les activités incorporées minimales détectables en plutonium calculées de cette façon restent cependant plus élevées qu'après mesures directes dans les excréta par radiotoxicologie.

5.2.1.2. Interprétation des mesures : l'estimation de la dose

Que ce soit par anthroporadiométrie ou par radiotoxicologie des excréta, les mesures individuelles de la contamination interne ne donnent pas directement des doses mais des activités présentes dans l'organisme ou excrétées dans les urines ou les selles à un instant t (correspondant à la date et à l'heure de la mesure par anthroporadiométrie ou à celles de la fin du recueil des excréta). A partir de l'activité mesurée, mais également des caractéristiques de la contamination (date ou période de contamination, voie d'exposition, forme physico-chimique du plutonium) et de l'âge de l'individu contaminé, les activités incorporées et les doses peuvent être calculées à l'aide des modèles biocinétiques et dosimétriques de la CIPR [ICRP 2019]. Lorsqu'une contamination par le plutonium est mise en évidence par la détection d'américium 241 en anthroporadiométrie, l'activité mesurée permet de calculer la dose due à ce radionucléide mais également, si la composition isotopique du mélange contaminant est disponible, d'estimer les activités de plutonium incorporées et les doses qui en découlent.

5.2.2. Capacités des moyens de mesures individuels de l'IRSN pour le contrôle de la population environnante en cas d'accident nucléaire.

L'IRSN possède des moyens de mesure fixes et mobiles pour la détection des contaminations internes individuelles par le plutonium et l'américium.

5.2.2.1. Mesures anthroporadiométriques

Les mesures anthroporadiométriques peuvent être réalisées par les installations fixes ou par les installations mobiles de l'IRSN. En ce qui concerne ces dernières, seuls les deux laboratoires mobiles d'anthroporadiométrie (LMA, équipés de détecteurs germanium) permettent de détecter et de quantifier les contaminations internes par le plutonium ou l'américium. Les détecteurs NaI(Tl) équipant les sièges des 4 véhicules légers et des 4 véhicules lourds de type shelters ne sont pas adaptés pour la détection de ce type de contamination. Les mesures se font au niveau des poumons et les limites de détection (LD) sont similaires dans les installations fixes et dans les laboratoires mobiles. Elles dépendent du radioélément mesuré et du temps de comptage. Les LD pour la mesure du plutonium 239 et de l'américium 241 sont indiquées dans le tableau A5- 1. Les LD sont estimées en considérant un homme standard de 70 kg mesuré avec deux détecteurs germanium (GeHP) placés au niveau des poumons.

Tableau A5- 1 : Limites de détection pratiques (LDp en Bq) pour l'américium 241 et le plutonium 239 (d'après LEDI INS 31c ind1)

| Temps de comptage | 5 min | 10 min | 20 min |
|-------------------|-------|--------|--------|
| LDp Am-241 | 20 | 15 | 10 |
| LDp Pu-239 | 6000 | 4000 | 3000 |

Les capacités de mesure des laboratoires mobiles de l'IRSN dépendent du temps de comptage, elles sont au maximum de 80 personnes sur 10 heures pour un temps de comptage de 5 minutes lorsque les deux LMA sont mobilisés (Tableau A5- 2).

Tableau A5- 2 : Capacités de mesure des LMA de l'IRSN (d'après LEDI INS 31c ind1)

| Temps de comptage | 5 min | 10 min | 20 min |
|---------------------------|-------|--------|--------|
| Nb de personnes/10h/LMA | 40 | 30 | 20 |
| Nb de personnes/10h/2 LMA | 80 | 60 | 40 |

5.2.2.2. Mesures dans les excréta

Le Laboratoire d'Analyse Médicales et d'anthroporadiométrie de l'IRSN dispose des moyens nécessaires pour mesurer in vitro les isotopes du plutonium et de l'américium. Le tableau III indique les limites de détection moyennes obtenues [IRSN 2019]. Les plutoniums 236, 238, 239 et 242 ainsi que l'américium 241 sont mesurés par spectrométrie alpha après extraction chimique. Le plutonium 241, émetteur β , est mesuré par scintillation liquide.

Tableau A5- 3 : Limites de détections moyennes (en Bq) de l'IRSN pour les mesures du plutonium et de l'américium dans les excréta (d'après IRSN 2019)

| Radioisotopes | Plutonium 236, 238, 239 et 242, Américium 241 | Plutonium 241 |
|---------------------|--|-----------------------|
| Technique de mesure | Spectrométrie alpha | Scintillation liquide |
| LD urines | 236Pu : 0.52 mBq/l 238Pu : 0.48 mBq/l 239Pu : 0.57 mBq/l 242Pu : 1.34 mBq/l 241Am : 0.55 mBq/l | 47 Bq/l |
| LD selles | 0,3 mBq/g de cendres | Non réalisé |

Dans des conditions optimales (installations exclusivement utilisées pour ces mesures, personnel dédié), les 1^{ers} résultats seraient disponibles 10 jours après la réception des échantillons pour les plutoniums 236, 238, 239 et 242, 8 jours pour l'américium 241. A compter de ce délai, 24 résultats pourraient être rendus tous les trois jours.

5.2.3. Traitements des contaminations par le plutonium et l'américium

En cas de contamination cutanée, la décontamination sera réalisée par lavage de la peau avec de l'eau et du savon ou avec un produit spécifique.

En cas de contamination interne par le plutonium et/ou par l'américium, l'administration d'un traitement décorporant, le Ca-DTPA (acide diéthylène triamine penta acétique, sel monocalcique trisodique), accélère l'excrétion du radionucléide présent dans le sang. Les activités qui se fixent dans les organes de rétention diminuent et les doses reçues par ces organes sont inférieures à celles qui auraient été reçues en l'absence de traitement. Le Ca-DTPA dispose en France d'une AMM (autorisation de mise sur le marché) pour le traitement des plaies et des contaminations internes par le plutonium et l'américium (ainsi que par le curium, le fer et le cobalt) [medicament.gouv.fr]. La posologie doit être adaptée à l'âge du sujet contaminé. L'administration se fait par voie intra-veineuse (IV) complétée en cas de plaie par un traitement local consistant à verser directement sur la lésion plusieurs ampoules de Ca-DTPA et, en cas de contamination par inhalation, par un apport sous forme nébulisée. L'administration doit se faire le plus tôt possible après la contamination, son efficacité étant maximale lorsque le traitement est administré dans les 24 h après la contamination. Cependant, s'agissant d'un traitement décorporant, une administration plus tardive garde une certaine efficacité et reste justifiée en fonction du niveau de contamination.

En pratique, l'administration de Ca-DTPA par voie IV se fait sur prescription et sous surveillance médicale. La décision de traiter dépend du risque de survenue d'effet sur la santé. Elle est adaptée à chaque situation, en particulier au profil des sujets contaminés (âge...). Une fois mis en route, le schéma et la durée du traitement sont fonction des résultats des analyses radiotoxicologiques de surveillance.

5.3. Références

[ATSDR] Agency For Toxic Substances and Disease Registry, Toxicological Profile for Plutonium, United States Department of Health and Human Services, Atlanta, GA (2010), www.atsdr.cdc.gov/toxprofiles/tp143.pdf

[Azizova 2011] Azizova, T.V., Muirhead, C.R., Moseeva, M.B., et al., 2011. Cerebrovascular diseases in nuclear workers first employed at the Mayak PA in 1948-1972. *Radiat. Environ. Biophys.* 50(4), 539-52.

[Azizova 2012] Azizova, T.V., Muirhead, C.R., Moseeva, M.B., et al., 2012. Ischemic Heart Disease in Nuclear 3381 Workers First Employed at the Mayak PA in 1948-1972. *Health Phys.* 103(1), 3-14.

[Gillies 2017] Gillies, M., Kuznetsova, I., Sokolnikov, M., et al., Lung Cancer Risk from Plutonium: A Pooled Analysis of the Mayak and Sellafield Worker Cohorts. *Radiation Research*, 188(6), 725-740, 2017

[ICRP 2019] ICRP, 2019. Occupational intakes of radionuclides: Part 4. ICRP Publication 141. *Ann. ICRP* 48(2/3)

[IRSN] Mesure anthroporadiométrique des produits d'activation et de fission (PA, PF), des iodes dans la thyroïde et des actinides à l'aide des laboratoires Mobiles d'Anthroporadiométrie de l'IRSN (LMA1 et 2). LEDI INS 31c ind1

[IRSN 2008] CODIR-PA : conséquences à court et moyen termes d'un rejet de plutonium dans l'atmosphère. Note technique DEI/SESUC n° 08-067 (2008)

[IRSN 2019] Mesure des émetteurs alpha dans les urines, les selles et prélèvements nasaux. SMERI/CRI/FRM/3908 indice 1

[medicament.gouv.fr] Ca-DTPA 250 mg/mL, solution injectable

<http://base-donnees-publique.medicaments.gouv.fr/extrait.php?specid=69580203>

[Métivier 1997] Metivier H. Plutonium. In : *Toxiques nucléaires*. Galle P. (Ed). Masson, Paris, 225-245, 1997

[Taylor] David M. Taylor The biodistribution and toxicity of plutonium, americium and neptunium *The Science of the Total Environment*, 83 (1989) 217-225

Annexe 6. Voies d'exposition de la population en phase post accidentelle après un rejet de plutonium

6.1. Demande

Ce travail fait suite à la demande de l'ASN [A6-1] relative à la doctrine post-accidentelle pour des accidents autres que ceux pouvant intervenir sur un centre nucléaire de production d'électricité (CNPE) et instruite par le SESUC. Le SEREN a été sollicité par le SESUC, lors d'une réunion de lancement le 02/07/2020, sur les voies d'exposition et leurs contributions. Pour l'estimation de l'impact d'un rejet alpha sur la population, il conviendra d'identifier les voies d'exposition prépondérantes, les méthodes d'estimation, les paramètres de calculs sensibles. Il sera fait selon la matière disponible et les pratiques actuelles. Suivant les difficultés éventuellement soulevées, ce point pourra donner lieu à des études ultérieures.

6.2. Simulation d'un scénario accidentel

La simulation avec les outils de l'IRSN d'un scénario accidentel impliquant un rejet de plutonium (Pu) dans l'environnement permet de prévoir l'ordre de grandeur de la contribution relative des différentes voies d'exposition de la population. Le scénario considéré ici est le rejet atmosphérique de 4 grammes de Pu pendant 10 minutes [A6-2]. La composition isotopique de la radioactivité ainsi rejetée comprend les isotopes émetteurs alpha du Pu, l'isotope émetteur bêta Pu-241 et son descendant émetteur alpha/gamma, l'américium 241 (Am-241). Cette composition correspond à du Pu issu du retraitement d'un combustible nucléaire irradié puis stocké pendant 10 ans. Le rejet est supposé s'effectuer au niveau du sol, dans des conditions atmosphériques stables, par temps sec et par vent faible. Son transport et sa diffusion ne dépendent que du vent et de la stabilité atmosphérique ; les aérosols se déposent progressivement au sol dans l'axe du vent pendant le passage du panache²⁷.

La phase post-accidentelle débute une fois les rejets dispersés et l'accident maîtrisé. L'irradiation externe par le dépôt au sol, l'ingestion de produits agricoles contaminés, l'ingestion involontaire de contamination et l'inhalation de particules remises en suspension sont alors les principales voies d'exposition radiologique de la population. Sous réserve du réalisme des modèles utilisés, La figure 1 montre la contribution relative de ces différentes voies d'exposition à la dose efficace engagée reçue pendant deux années, hors phase de dispersion du panache, en l'absence de mesure de protection, par des personnes représentatives vivant à 1 km du point de rejet.

En phase post-accidentelle après un rejet de Pu dans l'environnement suivant ce scénario, l'ingestion d'aliments contaminés par les retombées sur les feuilles des végétaux en culture est la principale voie d'exposition lors de la première année suivant le rejet, quel que soit l'âge de la population considérée. L'ingestion involontaire, par les contacts main-bouche et les légumes mal lavés, de radionucléides déposés au sol est la seconde voie d'exposition avec une contribution d'autant plus significative chez les enfants ; elle représente environ 40 % de la dose reçue au cours de la première année, et presque 100 % de la dose reçue au cours de la deuxième année pour les nourrissons (enfants de 0 à 1 an).

²⁷ Bien que ce soit hors périmètre de cette saisine, on rappelle que cette phase de dispersion du panache est généralement à associée à des doses très supérieures à celles reçues annuellement lors de la phase post-accidentelle, la voie d'exposition principale étant l'inhalation. Dans le scénario considéré ici, il faut plus de 40 ans de vie à un adulte sur le territoire contaminé pour être exposé à la même hauteur que pendant la phase de dispersion du panache. Pour l'enfant de moins de 1 an, en revanche, l'impact dosimétrique en phase d'urgence et pendant la première année de la phase post-accidentelle sont du même ordre de grandeur.

L'inhalation de particules radioactives remises en suspension par le vent ou par l'activité humaine conduit toutefois chez les adultes à des niveaux d'exposition quasiment équivalents à ceux de l'ingestion involontaire. Au cours de la deuxième année, l'ingestion d'aliments contaminés ne représente plus qu'une faible part de l'exposition qui est dominée par l'ingestion involontaire et par l'inhalation de particules remises en suspension. Dans tous les cas, l'irradiation externe par les radionucléides déposés, dont l'Am-241, reste une voie d'exposition négligeable par rapport à la contamination interne.

La suite de ce document explique plus en détail les différentes voies d'exposition, les méthodes appliquées pour en estimer l'impact radiologique sur les populations, leurs paramètres les plus sensibles et ceux qui mériteraient d'être mieux caractérisés.

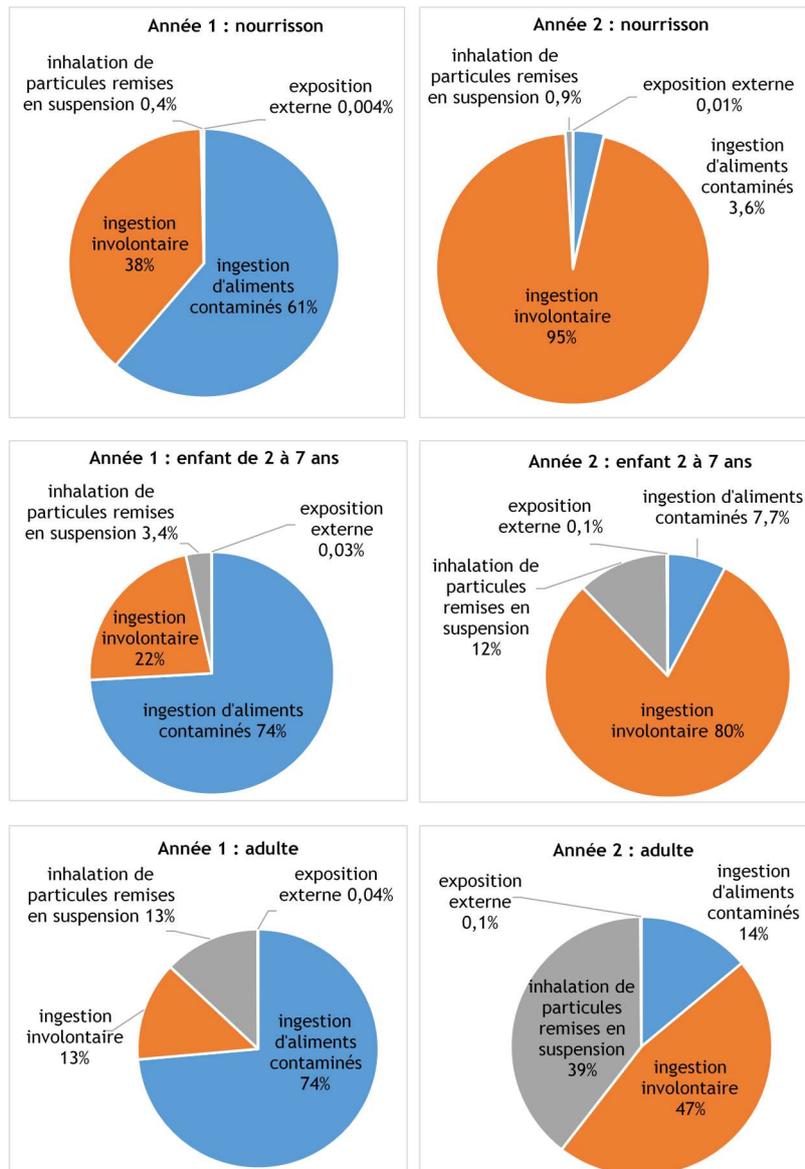


Figure A6- 1 : Prévision des contributions relatives des différentes voies d'exposition radiologique à la dose efficace reçue par des personnes représentatives, pendant les deux premières années de la phase post-accidentelle, hors panache, suivant un rejet de plutonium dans l'environnement [A6-2]

6.3. Ingestion d'aliments contaminés

6.3.1. Introduction

La dose efficace par ingestion d'aliments contaminés se calcule en prenant en compte la contamination contenue dans les aliments. La quantité d'aliments ingérée par les populations est pondérée par la fraction de l'aliment produit localement. Deux grandes catégories d'aliments sont distinguées : les aliments d'origine végétale (légumes feuilles, légumes racines, légumes fruits...) et les aliments d'origine animale (lait, viandes ...).

6.3.2. Voies de contamination des végétaux

La contamination des aliments d'origine végétale est modélisée:

- **par le dépôt des radionucléides** contenus dans l'air, lors du passage du panache, sur les parties aériennes du végétal telles que les feuilles. Dans les outils de l'IRSN, cette voie est modélisée de façon similaire pour le plutonium et pour les autres éléments chimiques comme, par exemple, le césium. L'ingestion des légumes feuilles, même après leur lavage, est donc, pour le terme source envisagé ici comme pour les rejets accidentels d'un CNPE, une voie significative d'exposition.
- **par la translocation**, c'est-à-dire qu'une fraction de l'activité déposée sur les parties aériennes du végétal migre dans ses parties comestibles. Dans les outils de l'IRSN, en accord avec l'état des connaissances (voir section « Transferts du plutonium dans l'environnement et la chaîne alimentaire »), l'hypothèse est généralement faite que le plutonium est moins mobile que d'autres éléments chimiques, comme par exemple le césium, et donc que cette translocation est moindre pour le plutonium. L'ingestion de denrées qui ne sont pas des feuilles mais des racines ou des tubercules, par exemple les pommes de terre, est donc, pour le terme source envisagé ici plus encore que pour un rejet accidentel de CNPE, une voie négligeable d'exposition.
- **par le transfert via l'horizon racinaire** du végétal d'une fraction de l'activité contenue dans le sol suite à la migration d'une partie du dépôt. Dans les outils de l'IRSN, en accord avec l'état des connaissances (voir section « Transferts du plutonium dans l'environnement et la chaîne alimentaire »), l'hypothèse est généralement faite que ce transfert est bien moindre pour le plutonium que pour d'autres éléments chimiques dont, par exemple, le césium. La dose ingestion dans la deuxième année est donc, pour le terme source envisagé ici plus encore que pour les termes sources plus usuels du CODIRPA, inférieure à la dose ingestion dans la première année, comme illustré figure a6- 1.

6.3.3. Voies de contamination des animaux

La modélisation du transfert de la contamination aux aliments d'origine animale prend uniquement en compte l'ingestion d'aliments contaminés, tels que l'herbe de pâture quand les animaux sont en extérieur, et les fourrages sinon. Les outils de crise de l'IRSN négligent la voie inhalation de l'animal et surtout de l'ingestion de terre. Ces deux voies de transfert devraient être étudiées de façon plus approfondie, particulièrement pour le plutonium dont le transfert racinaire au fourrage est très limité (voir §6.3.3 et Annexe 2 « Transferts du plutonium dans l'environnement et la chaîne alimentaire »).

6.3.4. Adhésion de sol aux végétaux

Une fraction de l'activité du sol peut, de plus, adhérer aux légumes et contribuer ainsi à une ingestion involontaire qui s'ajoute à la consommation alimentaire. Cette contribution à l'exposition n'est

actuellement pas modélisée dans les outils de calcul de l'IRSN. La contamination des végétaux par les poussières, fixées sur les parties aériennes et/ou incorporées dans la plante, qui résulte de la remise en suspension et de l'éclaboussement des végétaux par des particules de sol projetées lors de l'impact au sol des gouttes de pluie ou de l'eau d'irrigation (« splash »), est pourtant loin d'être négligeable pour le Pu [A6-3]. Une comparaison de l'importance relative du dépôt direct, du transfert racinaire et de l'adhésion de sol pour la contamination des végétaux par le Pu et l'Am a été conduite en vue d'une application sur le site américain de Savannah River [A6-4]. Elle a conclu qu'en présence de dépôt direct (i.e. transfert foliaire) l'adhésion de sol sur les végétaux est négligeable. En revanche, c'est ce dernier phénomène qui domine lorsqu'il y a seulement un transfert racinaire, du fait de la faiblesse des facteurs de transfert sol-plante du Pu et de l'Am. L'ingestion directe de sol avec l'herbe consommée est de plus considérée comme une voie dominante du transfert par ingestion des actinides aux animaux en pâturage.

En pratique, la contamination du végétal imputable au dépôt foliaire secondaire, au splash et à l'adhésion de sol, peut être estimée globalement par la charge de particules adhérentes aux végétaux. Elle est mathématiquement comparable à un facteur de transfert racinaire, bien que les processus mis en jeu soient différents. Le facteur de transfert racinaire est donc parfois majoré dans les évaluations d'impact pour tenir compte implicitement de l'adhésion de sol. Ainsi, l'Agence internationale à l'énergie atomique (AEIA) [A6-5] préconise, dans un modèle majorant, d'augmenter le transfert racinaire du Pu de 0,1 % pour les végétaux destinés à la consommation humaine et de 10 % pour l'herbe et les aliments pour animaux. Ces valeurs par défaut sont néanmoins à mettre en perspective d'une large variabilité relative aux types de sols et de végétaux. L'AEIA [A6-6] propose ainsi des valeurs de masse de sol adhérent aux végétaux allant de moins de 4 g à 250 g de sol sec par kg de végétal sec. Enfin, l'hypothèse usuelle que toute la contamination ainsi déposée est fixée ou incorporée et donc susceptible de participer à la dose par ingestion reste majorante.

6.3.5. Contribution à l'exposition

Les évaluations de dose par ingestion réalisées à partir du scénario ci-dessus montrent que la voie ingestion de denrées contaminées apparaît comme la principale contributrice à l'exposition totale lors de la première année de la phase post-accidentelle (60 % de la dose pour les enfants de 0 à 1 an). L'ingestion de végétaux contaminés, en particulier des cultures maraichères, contribue à 90 % de cette dose. Du fait de la prédominance dans l'exposition de la contamination des aliments par le dépôt sur les cultures maraichères, et du fait que celles-ci sont supposées être cultivées à longueur d'année (sans saisonnalité) dans les hypothèses des outils de calcul, la date de l'accident n'a pas d'effet significatif sur les résultats, contrairement à ce qu'on observe pour les rejets accidentels de CNPE qui contaminent plus fortement d'autres aliments, de façon dépendante de la saison.

Au vue de la prépondérance de la contamination des végétaux par transfert foliaire, la question se pose de l'évaluer dans le calcul en considérant que l'activité dans l'air correspond non seulement à la dispersion du panache mais aussi à la remise en suspension du dépôt. Passée la première récolte, l'importance de la voie ingestion de denrées décroît sensiblement ; mais l'estimation qui en est réalisée ne tient compte ni du dépôt de l'activité remise en suspension sur les végétaux qui poussent en territoire contaminé ni de l'ingestion de sol adhérent à ces végétaux par la population humaine et par les animaux. Il serait donc utile d'étudier plus précisément ces voies de transfert pour apprécier l'importance de leur contribution à l'exposition pendant les années au décours de la phase post-accidentelle.

La mise en œuvre de restrictions de consommation alimentaire pourrait permettre d'écarter rapidement la voie d'exposition par consommation de denrées.

6.4. Ingestion involontaire

6.4.1. Introduction

L'ingestion involontaire de radioactivité recouvre l'ingestion accidentelle de poussières contaminées en suspension dans l'air ambiant et l'ingestion de radionucléides transférés par contact du sol ou d'une autre surface à la main ou à un objet porté(e) ensuite à la bouche. La dose reçue en conséquence est proportionnelle à la quantité de sol et de poussières ingérés, à leur activité massique et au coefficient de dose par activité ingérée.

La quantité totale de sol et de poussières ingérée varie principalement en fonction de l'âge de la population concernée et de son activité. Les personnes les plus à risque sont les enfants. En effet, ils sont plus souvent en contact avec le sol et portent également plus souvent les doigts à la bouche. A l'extrême, des personnes souffrant d'un trouble du comportement alimentaire (pica) ingèrent volontairement des substances non alimentaires, comme la terre, en grande quantité. À ce jour, cette voie d'exposition n'est pas intégrée par défaut dans les outils de calcul de l'IRSN évaluant les doses post-accidentelles pour les autres voies d'exposition quantifiées ici ; mais une modélisation ad hoc est effectuée [A6-2].

6.4.2. Activité massique du sol

Dans le calcul simplifié proposé par la référence [A6-2], l'activité massique du Pu dans le sol est supposée proportionnelle au dépôt surfacique lors du rejet divisé par la densité du sol et par la profondeur d'homogénéisation. Seule la décroissance radioactive est considérée, si bien que les autres phénomènes physiques expliquant la décroissance (migration dans le sol, érosion, etc.) sont négligés, en accord avec la connaissance sur la faible mobilité du plutonium dans le sol (voir section « Transferts du plutonium dans l'environnement et la chaîne alimentaire »). Toujours en accord avec cette faible mobilité, une profondeur d'homogénéisation très faible est proposée (0,5 mm), ce qui n'est donc pas applicable à un sol remanié, tel qu'un sol labouré en particulier. Une erreur d'appréciation faite sur la profondeur d'homogénéisation pourrait entraîner un biais proportionnel sur l'estimation de l'activité massique dans le sol et par conséquent sur la dose reçue par ingestion involontaire.

6.4.3. Contact main-bouche

Le calcul de l'ingestion involontaire de sol par contact main-bouche peut se faire à partir de l'estimation d'une quantité de sol, ou d'une fraction de l'activité du sol, déposée sur la main par contact, égale au produit de l'aire de la main par un facteur d'adhérence du sol à la peau. Le facteur d'adhérence sol-peau dépend notamment de l'humidité et de la taille des particules de sol ainsi que des activités pratiquées à l'extérieur ou à l'intérieur, avec des valeurs moyennes de l'ordre de 0,05 à 50 mg.cm⁻². La valeur la plus élevée correspond à des jeux d'enfant dans la boue ; mais au-dessus de 1 mg.cm⁻² de sol sur les mains, celles-ci sont visiblement sales et donc généralement lavées. L'aire de la main peut être estimée simplement à l'aide d'une base de données adaptée [A6-7]. Peu de données sont disponibles dans la littérature pour évaluer la fraction d'un contaminant pouvant être transférée lors du contact main-bouche. Une valeur de 10% est habituellement utilisée [A6-8] mais une valeur légèrement plus élevée pourrait être plus appropriée aux enfants de moins de 2 ans. La fréquence des contacts main-bouche est plus élevée chez l'enfant (de l'ordre de 2 à 20 fois par heure) que chez l'adulte (de l'ordre de 1 à 4 fois par heure). Elle dépend de l'environnement intérieur ou extérieur, des conditions de travail (ex. port de gants), de l'état d'esprit (ex. anxiété) et des habitudes de vie (ex. tabagisme).

6.4.4. Quantité ingérée de sol et poussière

Pour évaluer l'ingestion involontaire, une alternative à la modélisation des contacts main-bouche décrite en 6.4.3 est l'estimation d'une quantité ingérée quotidiennement par des populations suivies lors d'études scientifiques. La quantification et la compréhension des comportements d'ingestion de sol et de poussières demande des moyens importants et pose des difficultés d'interprétation des données. Les études scientifiques ont utilisé trois méthodes : un élément traceur mesuré à la fois dans des prélèvements urinaires ou fécaux et dans le sol ou dans la poussière (gamme de valeurs obtenues entre 26 et 480 mg/jour) ; un biomarqueur sanguin ou urinaire interprété à l'aide d'un modèle biocinétique (une valeur de 110 mg/jour) ; ou une combinaison du recueil d'informations sur les activités humaines avec des hypothèses sur le transfert de sol ou de poussière de la peau ou des objets à la bouche (gamme de valeurs 10-1000 mg/jour). Les trois méthodes fournissent des valeurs centrales du même ordre de grandeur mais souffrent de limitations et d'incertitudes liées notamment à l'influence de l'évolution des pratiques d'hygiène, de l'emplacement géographique, du climat et de la saison (notamment via le temps passé à l'intérieur ou à l'extérieur), de l'adhérence du sol, des facteurs démographiques (âge, sexe, catégorie socio-professionnelle). Certaines variables démographiques et zones géographiques ne sont pas bien représentées dans les études disponibles. Les variabilités saisonnière et interindividuelle ne sont pas pleinement caractérisées en raison de la courte durée des études (quelques jours). L'ingestion de poussières est souvent assimilée à celle de sol [A6-9].

L'ingestion involontaire de sol et poussière par une population vivant en territoire contaminé peut être prise en compte de façon simple en faisant l'hypothèse d'une quantité forfaitaire de référence ingérée quotidiennement. Les valeurs du tableau a6- 1 ont ainsi été utilisées par différents organismes de référence à partir d'une analyse des données de la littérature. Ces valeurs peuvent être modulées pour évaluer l'exposition horaire d'un travailleur intervenant ponctuellement dans la zone, même si la modélisation des contacts main bouche (section 6.4.3) pourrait alors être plus appropriée. Dans la simulation présentée ci-dessus (section 6.2), des quantités de sol et poussière ingérées de 150 mg/jour en-dessous de 12 ans d'âge et de 50 mg/jour au-delà ont été considérées.

Tableau A6- 1 : Valeurs forfaitaires pour la quantité ingérée quotidiennement de sol et poussières utilisées par différents organismes (mg/jour)

| Classe d'âge | 6 mois -1 an | 1-2 ans | 3-7 ans | 8-12 ans | 13-17 ans | adulte | valeur haute ^g |
|-----------------------------|--|--|---|---|--|--|------------------------------|
| Quantité ingérée | 70 ^c , 125 ^a , 150 ^e | 90 ^c , 100 ^{b,d,f} , 150 ^e | 23 ^f , 50 ^d , 60 ^c , 100 ^b , 150 ^e | 30 ^d , 50 ^b , 60 ^c | 20 ^d , 30 ^c , 40 ^b , | 10 ^d , 30 ^c , 40 ^b , 50 ^e | 200 ^c |

a. Institut de radioprotection et de sûreté nucléaire (IRSN) [A6-2]

b. Ministère de l'environnement, Autorité de sûreté nucléaire et IRSN [A6-2] [A6-10]

c. United States Environmental Protection Agency [A6-11]

d. Public Health England [A6-12]

e. Institut national de l'environnement industriel et des risques [A6-13]

f. Santé publique France [A6-14]

g. estimation correspondant à un enfant de 6 mois à 12 ans particulièrement exposé par rapport au reste de la population (hors pica et géophagie)

6.4.5. Conclusion

Les données disponibles sur cette voie d'exposition sont imparfaites et ne sont pas encore complètement recensées ni analysées au niveau national, ce qui conduit à une incertitude significative sur les doses pouvant être reçues par cette voie par les populations ou par les travailleurs intervenant en région contaminée. Une étude plus approfondie de la littérature, voire de nouvelles études, seraient souhaitables dans ce domaine. En plus des comportements individuels qui restent à mieux caractériser dans la population française, un paramètre incertain est l'activité massique à prendre en

compte dans les fractions de sol et de poussière ingérées. En effet, dans le temps court après un dépôt surfacique, les données disponibles sur la hauteur à considérer pour l'homogénéisation de celui-ci dans la couche superficielle de sol ou dans les couches de poussières recouvrant les espaces urbains sont relativement limitées. L'évolution de l'activité massique du Pu dans le sol pourrait faire l'objet d'une étude plus approfondie. La contamination des poussières par rapport à celle du sol reste aussi à étudier plus précisément. Le modèle d'exposition le plus pertinent à appliquer à des travailleurs intervenant en zone contaminée, par exemple pour la décontaminer, est à discuter en regard de celui appliqué à la population générale.

6.5. Remise en suspension

6.5.1. Introduction

La remise en suspension est présentée en détails dans la section « Transferts du plutonium dans l'environnement et la chaîne alimentaire ». Sous le terme général de « remise en suspension » on englobe les divers phénomènes qui, à partir d'une surface contaminée, augmentent l'activité volumique de l'air. C'est notamment le cas de la mise en suspension de poussières arrachées de la surface du sol par le vent ou les activités humaines. Il en résulte une augmentation de l'exposition de la population par inhalation et de l'activité massique des végétaux par transfert foliaire secondaire (section 6.3.5). Ces phénomènes sont importants pour le Pu du fait de sa fixation dans les premiers centimètres du sol, de l'importance relative de ses coefficients de dose par inhalation (section 6.6) et de la faiblesse de ses coefficients de transfert racinaire. Ils sont donc discutés ici plus longuement que les autres voies d'exposition. L'activité inhalée par une personne exposée à des particules mises en suspension est le produit de son débit respiratoire par l'activité volumique de l'air ambiant et le temps passé dans cet air. Pour estimer l'activité volumique de l'air, les outils de crise de l'IRSN utilisent un coefficient de remise en suspension, noté K, pour la calculer directement à partir de l'activité initiale déposée au sol.

6.5.2. Coefficient de remise en suspension

K (en m^{-1}) est le rapport entre l'activité volumique de l'air due aux poussières en suspension ($Bq \cdot m^{-3}$) et la densité de dépôt sur la surface considérée ($Bq \cdot m^{-2}$). Dans les outils de crise de l'IRSN, ce paramètre empirique est supposé indépendant du temps et du radionucléide. Une valeur $K = 10^{-7} m^{-1}$ a ainsi été retenue dans la simulation présentée ci-dessus (section 6.2). D'autres modèles considèrent que le coefficient K diminue avec le temps. Ses valeurs mesurées varient de 10^{-10} à $10^{-4} m^{-1}$ sous l'effet du vent, et peuvent atteindre $10^{-1} m^{-1}$ dans des conditions de mise en suspension par l'activité humaine [A6-3]. Le Tableau A6- 2, repris de la section « Transferts du plutonium dans l'environnement et la chaîne alimentaire (Annexe 2 §2.5)», indique la gamme des valeurs issue d'une revue des études applicables à l'environnement français ainsi que des préconisations pour des valeurs prudentes.

Tableau A6- 2 : Fourchettes de valeurs du coefficient de remise en suspension K (m^{-1}) et préconisation pour une approche conservatrice correspondant à un flux maximal vers l'atmosphère.

| Délai après dépôt initial | K (m^{-1}) | Valeurs conservatives |
|---------------------------|----------------------------|-----------------------|
| 1 jour | 10^{-4} à 10^{-7} | 10^{-5} |
| 1 mois | 10^{-6} à 10^{-7} | 10^{-6} |
| 6 mois | 10^{-7} à 10^{-8} | 10^{-7} |
| 1 an | 5.10^{-8} à 5.10^{-9} | 10^{-8} |
| 2 ans | 5.10^{-9} à 5.10^{-10} | 5.10^{-9} |
| 5 ans | 5.10^{-9} à 5.10^{-10} | 10^{-9} |

6.5.3. Granulométrie des aérosols

Les tailles des particules mises en suspension peuvent être différentes de celles des particules initialement déposées, suivant les caractéristiques des sols et les conditions de mise en suspension. Elles sont en général distribuées suivant une distribution de type log-normale, étalée avec un large écart-type géométrique (σ) autour d'un diamètre aérodynamique médian en activité (de Pu, DAMA) ou en masse (de sol et poussières). La mesure de granulométrie en masse est plus souvent disponible, mais la distribution de l'activité est la plus pertinente pour évaluer l'exposition. Comme indiqué en section 6.6, le coefficient de dose pour l'inhalation de radionucléides dépend du DAMA et tend à augmenter lorsque la taille des particules diminue. Le Tableau A6- 3 montre des exemples de diamètres médians en masse mesurés dans différentes circonstances. Ces valeurs diminuent en général rapidement après la perturbation du sol en raison de la sédimentation rapide des plus grosses particules. La distribution des tailles de particules portant le Pu tend à être plus réduite, avec des valeurs de DAMA mesurées de l'ordre de 2 à 6 μm ($\sigma = 2$ à 3,6) [A6-15].

Tableau A6- 3 : Diamètres aérodynamiques médians en masse mesurés dans différents environnements [A6-16]

| Conditions du sol | Valeurs mesurées (μm) |
|--|------------------------------|
| sol non perturbé | 2-6 |
| sol remanié mécaniquement ou par vent fort | 15 |
| durant des activités agricoles | 12-20 |
| trafic automobile dense sur route non goudronnée | 8-90 |
| expériences sur site d'essais nucléaires | 5-11+ |

Le guide [A6-10] note que la granulométrie des aérosols présents dans l'atmosphère est généralement une information indisponible et préconise de retenir, de manière pénalisante, que toutes les particules mises en suspension sont inhalables, ce qui est cohérent avec l'hypothèse d'un DAMA d'environ 1 μm . Des particules de plus grande taille conduisent à des doses par inhalation plus faibles et se redéposent au sol plus vite et plus localement que des particules de DAMA 1 μm .

6.5.4. Empoussièrément

Une approche alternative plus simple que celle utilisée dans les outils de crise de l'IRSN consiste à considérer une charge de particules dans l'air, ou degré d'empoussièrément, correspondant à la concentration massique de poussières S en suspension dans l'atmosphère ($kg.m^{-3}$) induite par une

activité générant une quantité significative d'aérosols. Le degré d'empoussièrement est couramment utilisé, de façon opérationnelle, pour évaluer l'exposition reçue sur des sites pollués par des radionucléides. L'activité volumique de l'air ($Bq.m^{-3}$) est alors $C_{air} = C_{sol} \times S$ avec C_{sol} l'activité massique de la couche de sol qui participe à la remise en suspension ($Bq.kg^{-1}$ de sol).

L'estimation de S est d'autant plus fiable que l'on s'intéresse à des surfaces très étendues et à un dépôt homogène, ce qui peut s'avérer très différent de la réalité en présence de relief. À l'échelle locale, la remise en suspension reste un phénomène très fluctuant et difficile à quantifier. Des niveaux d'empoussièrement de l'ordre de $100 \mu g.m^{-3}$ d'air contaminé par des actinides ont par exemple été estimés par Healy [A6-17] à partir de mesures de contamination surfacique en Pu ou uranium faites sur des sites nord-américains. À Palomares (Espagne), des valeurs d'empoussièrement de $93 \pm 39 \mu g.m^{-3}$ en zone cultivée et $100 \pm 32 \mu g.m^{-3}$ en zone urbaine [A6-18] ont été observées pour des poussières contaminées au Pu. Dans une autre étude également réalisée à Palomares [A6-15], des fluctuations journalières d'un facteur 4 ont été observées entre le jour ($130 \mu g.m^{-3}$) et la nuit ($30 \mu g.m^{-3}$).

Le guide [A6-10] propose des gammes de valeurs par défaut (Tableau A6- 4) basées sur la littérature scientifique. Néanmoins, les valeurs réelles pouvant fluctuer grandement d'une situation à l'autre pour une même activité, il est recommandé de procéder à la mesure directe de l'empoussièrement lorsque cela est possible ou de se tourner vers des mesures réalisées à proximité ou dans des types d'environnement similaires.

Tableau A6- 4 : Valeurs par défauts de degré d'empoussièrement proposées par le guide [A6-10]

| Degré d'empoussièrement | très faible | faible | moyen | Élevé |
|---------------------------------|----------------|-------------------------|------------|---------------------------------------|
| Gamme de valeur ($mg.m^{-3}$) | [0,001 – 0,01[| [0,01 – 0,1[| [0,1 – 10[| [10-100] |
| Activités types associées | sommeil | activités à l'extérieur | maraîchage | travaux de chantier, réfection de mur |

L'activité massique des particules mises en suspension n'est pas nécessairement identique à celle du sol. Le facteur d'enrichissement, qui est le rapport entre l'activité massique dans l'air et au sol, a été mesuré pour le Pu avec des valeurs allant typiquement de 0,2 à 4 suivant l'environnement considéré. Une étude américaine [A6-16] recensé ces mesures et conclut que plus de la moitié des facteurs étaient inférieurs ou égaux à 1, l'autre moitié montrant un enrichissement de la concentration du Pu dans les particules en suspension par rapport à la concentration du Pu de leur sol d'origine. Ces mesures dépassant l'unité concernaient en général un sol récemment perturbé par le nettoyage du site, un orage ou le trafic routier, un lieu de transfert de sol contaminé, ou une situation à fort empoussièrement. En l'absence de mesure, le *National Council on Radiation Protection and Measurements* américain recommande de retenir des facteurs d'enrichissement de 0,7 pour un sol non perturbé, 4 pour un sol récemment perturbé et 0,01 pour le site d'une explosion nucléaire [A6-19].

6.5.5. Conclusion

En situation post-accidentelle, l'évaluation de la remise en suspension dans l'atmosphère des particules radioactives initialement déposées est le plus souvent basée sur un facteur de remise en suspension. Sa valeur varie avec les circonstances locales. Des modèles décrivent empiriquement la décroissance du facteur de remise en suspension en fonction du délai écoulé depuis le dépôt et permettent une prédiction de la contamination atmosphérique à un ordre de grandeur près au mieux, et en supposant un dépôt homogène dans l'espace. La quantification de la remise en suspension du Pu en conditions post-accidentelles pourrait faire l'objet de nouvelles analyses pour convenir des modèles et des valeurs les plus pertinents à retenir. Ceux-ci sont actuellement empreints d'une forte

incertitude. En particulier, la valeur $K = 10^{-7} \text{ m}^{-1}$ retenue par défaut dans les outils de crise de l'IRSN pourrait être sous-estimée de plusieurs ordres de grandeur pendant les 6 premiers mois suivant le rejet ou en situation de remise en suspension par l'activité humaine. Puisque la dose reçue par inhalation de particules lui est directement proportionnelle, la prévision de cette dose n'est pas toujours protectrice. La mise en œuvre répétée de mesures d'activité en terrain contaminé pourrait néanmoins permettre d'ajuster la valeur de K à la situation et d'améliorer le réalisme de l'évaluation dosimétrique.

6.6. Coefficients de dose interne

L'activité (en Bq) d'un radionucléide incorporé par ingestion ou par inhalation est convertie en dose efficace engagée (en Sv) en la multipliant par un coefficient de dose. Les coefficients de dose applicables à la contamination interne sont développés par la Commission internationale de protection radiologique (CIPR) [A6-20] en tenant compte de la distribution des radionucléides dans le corps, de leur cinétique d'épuration, des rayonnements qu'ils émettent et de l'anatomie humaine. Ils sont inscrits dans la réglementation française [A6-21]. Des coefficients différents s'appliquent à chaque radionucléide, aux activités incorporées respectivement par inhalation et par ingestion, aux adultes et aux enfants de différentes classes d'âge. Les particules inhalées ont tendance à se déposer d'autant plus profondément dans les voies respiratoires qu'elles sont de petite taille. Le coefficient de dose par activité inhalée dépend donc du DAMA de l'aérosol. Une fois les particules déposées dans les voies respiratoires, leur cinétique de dissolution et d'absorption vers le sang dépend de leur forme chimique, associée à un type d'absorption pulmonaire : lente (dite de type S) pour l'oxyde de Pu, modérée (dite de type M) pour les autres formes chimiques du Pu (dont le nitrate) et pour l'américium. Pour le Pu, la forme oxyde est généralement prépondérante dans l'environnement. Des coefficients de dose différents s'appliquent à ces différents types d'absorption. Le tableau A6- 5 montre, à titre d'exemple, plusieurs valeurs de coefficients de dose pour l'exposition interne au Pu-238.

Tableau A6- 5 : Coefficients de dose efficace engagée par activité incorporée de Pu-238 ingéré ou inhalé par un adulte et par un enfant de 1 an, suivant le DAMA et le type d'absorption.

| Classe d'âge | Enfant de 1 an | | | Adulte | | |
|--|---------------------|---------------------|---------------------|---------------------|---------------------|---------------------|
| | 0,1 | 1 | 5 | 0,1 | 1 | 5 |
| DAMA (μm) | | | | | | |
| Inhalation type M (Sv/Bq) | $2,2 \cdot 10^{-4}$ | $7,4 \cdot 10^{-5}$ | $4,0 \cdot 10^{-5}$ | $1,1 \cdot 10^{-4}$ | $4,6 \cdot 10^{-5}$ | $3,4 \cdot 10^{-5}$ |
| Inhalation type S (Sv/Bq) | $1,4 \cdot 10^{-4}$ | $4,0 \cdot 10^{-5}$ | $2,3 \cdot 10^{-5}$ | $4,0 \cdot 10^{-5}$ | $1,6 \cdot 10^{-5}$ | $1,0 \cdot 10^{-5}$ |
| Ingestion (Sv/Bq) | | $4,0 \cdot 10^{-7}$ | | | $2,3 \cdot 10^{-7}$ | |

Il apparaît sur le Tableau A6- 5 que le coefficient de dose par activité ingérée est environ 100 fois plus faible que le coefficient de dose par activité inhalée, ce qui s'explique par la faible absorption intestinale du Pu (environ 0,05 % de l'activité ingérée). Tout en restant dans le même ordre de grandeur, les coefficients de dose par activité inhalée sont plus faibles pour les adultes que pour les enfants, pour l'oxyde de Pu que pour des formes chimiques plus solubles et pour les particules les plus grosses.

Pour l'exposition de la population par inhalation d'aérosol, la réglementation ne retient que les coefficients de dose correspondant à un DAMA de 1 μm . Cette valeur par défaut est une médiane de résultats de caractérisation d'aérosols radioactifs dans l'environnement [A6-22]. La CIPR a récemment révisé les coefficients de dose du Pu et de l'Am applicables au travailleur [A6-23], avec un doublement environ des valeurs pour l'inhalation de formes chimiques insolubles du Pu et une diminution d'un facteur 2 à 3 des valeurs pour l'inhalation de formes solubles et pour l'ingestion. Des évolutions comparables sont à attendre suite à la révision en cours des coefficients de dose applicables au public.

6.7. Irradiation externe

La plupart des isotopes du Pu (238, 239 et 240 notamment) émettent quasi-exclusivement du rayonnement α de faible portée dans l'air, incapable de traverser la peau. Ils ne conduisent donc à aucune irradiation externe significative et ne présentent un risque qu'en cas de contamination interne, particulièrement par inhalation. Le Pu-241 est un émetteur bêta pur pour lequel le risque d'exposition est aussi lié essentiellement à la contamination interne. Il se transforme, avec une période de 14 ans, en Am-241. A moins d'une purification chimique récente, le Pu est couramment associé à une activité significative d'Am-241 et celui-ci émet du rayonnement gamma avec une énergie et un rendement suffisants pour contribuer à une exposition externe.

L'exposition externe par l'Am-241 déposé au sol s'évalue en multipliant la densité surfacique d'activité déposée par le temps passé en zone contaminée et par un coefficient de dose externe. Des coefficients de dose externe sont développés par l'agence américaine de protection de l'environnement [A6-24] [A6-25] en simulant l'interaction des photons et électrons avec le corps humain suivant les caractéristiques des rayonnements (type, énergie, rendement d'émission) et la géométrie d'exposition. Si l'activité déposée au sol migre en profondeur, une partie du rayonnement qu'elle émet est absorbée par le sol sans contribuer à l'exposition de la population. Il s'ensuit que le coefficient de dose externe dépend de la profondeur d'homogénéisation de l'activité dans le sol. En raison des variations anatomiques lors de la croissance, il dépend aussi faiblement de l'âge de la personne exposée. Le tableau a6- 6 montre, à titre d'exemple, des coefficients de dose externe applicables à l'Am-241.

Tableau A6- 6 : Coefficients de dose efficace engagée par temps passé sur un sol contaminé par une concentration d'activité d'Am-241 [A5-25]

| Profondeur du dépôt | enfant de 1 an | Adulte | unité |
|---------------------|----------------------|----------------------|---|
| en surface | $1,4 \cdot 10^{-17}$ | $9,9 \cdot 10^{-18}$ | $\text{Sv} \cdot \text{Bq}^{-1} \cdot \text{s}^{-1} \cdot \text{m}^2$ |
| dans 1 cm de sol | $1,4 \cdot 10^{-19}$ | $9,9 \cdot 10^{-20}$ | $\text{Sv} \cdot \text{Bq}^{-1} \cdot \text{s}^{-1} \cdot \text{m}^3$ |
| dans 5 cm de sol | $2,9 \cdot 10^{-19}$ | $2,0 \cdot 10^{-19}$ | $\text{Sv} \cdot \text{Bq}^{-1} \cdot \text{s}^{-1} \cdot \text{m}^3$ |
| dans 15 cm de sol | $3,2 \cdot 10^{-19}$ | $2,2 \cdot 10^{-19}$ | $\text{Sv} \cdot \text{Bq}^{-1} \cdot \text{s}^{-1} \cdot \text{m}^3$ |

Pour une même activité surfacique d'Am-241 déposée, le débit de dose externe est identique pour un dépôt purement surfacique ou si ce même dépôt est homogénéisé sur 1 cm de profondeur de sol (deux hypothèses couramment retenues pour les actinides, voir section « Transferts du plutonium dans l'environnement et la chaîne alimentaire (Annexe 2) »). En homogénéisant la même activité sur 5 cm de profondeur de sol, la dose délivrée diminue de 60 % et elle diminue de presque un ordre de grandeur si l'activité déposée est homogénéisée sur 15 cm de profondeur. En plus de l'épaisseur du sol, les structures d'éventuels bâtiments peuvent faire écran au rayonnement et diminuer en conséquence la dose reçue par les personnes présentes à l'intérieur des bâtiments par rapport à celle

qui serait reçue à l'extérieur. Cette atténuation par le bâti est couramment modélisée en appliquant un facteur de protection qui diminue par 10 l'estimation de la dose reçue en intérieur suite à l'irradiation externe. La valeur précise de ce facteur de protection devrait faire l'objet d'études spécifiques selon les caractéristiques des bâtiments.

6.8. Conclusion

En phase post-accidentelle après un rejet de Pu dans l'environnement, et suivant les modèles retenus dans les outils de crise de l'IRSN, l'ingestion d'aliments contaminés est la principale voie d'exposition lors de la première année suivant le rejet. L'ingestion involontaire de sol et de poussière, ainsi que l'inhalation de particules contaminées mises en suspension constituent ensuite la majeure partie de l'exposition. L'irradiation externe par l'Am-241 reste une voie d'exposition négligeable en comparaison. Fixer le périmètre d'éloignement en fonction de la seule irradiation externe n'apparaît donc pas pertinent dans cette situation.

Les modèles permettant d'évaluer la dose résultant de l'ingestion d'aliments contaminés paraissent satisfaisants, hormis pour ce qui est des transferts aux végétaux par adhésion de sol et par dépôt foliaire d'activité remise en suspension, dont les contributions restent à apprécier. L'irradiation externe pourrait être surestimée, mais compte-tenu de sa faible contribution à l'exposition globale, une modélisation plus précise ne paraît pas prioritaire. Les coefficients de dose par exposition externe et interne sont basés sur des modèles robustes et leurs valeurs devraient évoluer sans changer d'ordre de grandeur suivant une révision en cours par la CIPR.

La variabilité et l'analyse incomplète des données disponibles sur la voie d'exposition par ingestion involontaire conduisent à une incertitude significative sur les doses pouvant en résulter. Une mise à jour des modèles utilisés tant pour les populations que pour les travailleurs serait donc souhaitable. La voie d'exposition par remise en suspension de particules radioactives est également associée à une large variabilité, suivant les circonstances locales, qui conduit à une incertitude dans la façon de la modéliser. La dose qui en résulte pourrait ainsi être sous-estimée de plusieurs ordres de grandeur, particulièrement dans les premiers mois suivant le rejet. Une analyse plus approfondie des études publiées, voire la réalisation de nouvelles études, pourrait permettre d'améliorer les modèles actuellement utilisés pour quantifier l'exposition radiologique par cette voie et l'efficacité des mesures de protection. En complément, la mise en œuvre de mesures d'activité des actinides dans la zone affectée par le rejet serait, le cas échéant, essentielle pour pallier les incertitudes inhérentes aux prévisions des modèles.

6.9. Références

- [A6-1] Lettre ASN CODEP-DEU-2020-013184 du 19 mai 2020 ayant pour objet la saisine SAISI-DEU-2020-0040.
- [A6-2] IRSN, 2008. CODIR-PA : conséquences à court et moyen termes d'un rejet de Pu dans l'atmosphère. Note technique DEI/SESUC n°08-067.IRSN, 2003.
- [A6-3] S. Roussel-Debet. Note technique concernant la remise en suspension. Rapport IRSN/DPE-SERLAB-03-20.

- [A6-4] Blanchard, 1999. Ingestion pathway transfer factors for Pu and americium. DOE Contract N°DE-AC09-96SRI 8500, WSRC TR-99-0005, Savannah River Site, Aiken, South Carolina, 23 p.
- [A6-5] AEIA, 2001. SAFETY REPORTS SERIES No. 19. Generic models for use in assessing the impact of discharges of radioactive substances to the environment. — Vienna : International Atomic Energy Agency, 2001.
- [A6-6] AEIA, 1994. Handbook of parameter values for the prediction of radionuclide transfer in the terrestrial and freshwater environment. IAEA Technical Report series N°364, 74 p. International Atomic Energy Agency, Vienna.
- [A6-7] Cessac, 2002. B. Cessac, K. Beaugelin-Seiller, J.M. Metivier, A. Morin, C. Mourlon & G. Vincent, 2002. CIBLEX, Banque de données de paramètres descriptifs de la population française au voisinage d'un site pollué, Rapport IRSN/DPRE/02-03/DPHD02-02.
- [A6-8] Cherrie, 2006. J.W. Cherrie, S. Semple, Y. Christopher, A. Saleem, G.W. Hughson et A. Phillips, 2006. How important is inadvertent ingestion of hazardous substances at work. *Ann. Occup. Hyg.* 50(7), 693–704.
- [A6-9] Moya, 2014. Moya, J., Phillips, L. 2004. A review of soil and dust ingestion studies for children. *Journal of Exposure Science and Environmental Epidemiology* 24(6), 545-554.
- [A6-10] MEDDTL, 2011. Ministère de l'écologie, du développement durable, des transports et du logement, IRSN, ASN. Guide méthodologique. Gestion des sites potentiellement pollués par des substances radioactives. Décembre 2011.
- [A6-11] EPA, 2017. US Environmental Protection Agency. Update for Chapter 5 of the Exposure Factors Handbook. Soil and Dust Ingestion. EPA/600/R-17/384F. September 2017.
- [A6-12] Smith, 2003. K.R. Smith and A.L. Jones, 2003. Generalised habit data for radiological assessments, Rapport NRPB-W41.
- [A6-13] Bonnard, 2001. R. Bonnard, C. Hulot et S. Leveque, 2001. Méthode de calcul des valeurs de Constats d'Impact dans les sols. Rapport INERIS DRC-01-25587/DESP-R01.
- [A6-14] Glorennec, 2002. P. Glorennec, M. Ledrans, F. Dor, 2002. Dépistage du saturnisme autour des sources industrielles de plomb. Analyse de la pertinence de la mise en œuvre d'un dépistage : du diagnostic environnemental à l'estimation des expositions. INVS Tome 1 et Erratum.
- [A6-15] Shinn, 2002. Complementary Pu Resuspension Study at Palomares, Spain. 177225 UCRL-ID-150980. Livermore, California: Lawrence Livermore National Laboratory. ACC: MOL.20060809.0055.
- [A6-16] Bechtel SAIC, 2006. Bechtel SAIC Company LLC. Soil-Related Input Parameters for the Biosphere Model, ANL-NBS-MD-000009 REV 03, September 2006. Rapport commandité par l'US Department of Energy – Office of Civilian Radioactive Waste Management.
- [A6-17] Healy, 1980. Review of resuspension models. Transuranic elements in the environment. WC Hanson (ed.), DOE/TIC - 22800.
- [A6-18] Iranzo, 1994. Iranzo, E., Espinosa, A., Martinez, J. 1994. Resuspension in the Palomares area of Spain: A summary of experimental studies. *Journal of Aerosol Science* 25(5), 833-841.
- [A6-19] NCRP, 1999. Recommended Screening Limits for Contaminated Surface Soil and Review of Factors Relevant to Site-Specific Studies. NCRP Report No. 129. Bethesda, Maryland: National Council on Radiation Protection and Measurements. TIC: 250396.

- [A6-20] ICRP, 1995. Age-dependent Doses to the Members of the Public from Intake of Radionuclides - Part 5 Compilation of Ingestion and Inhalation Coefficients. ICRP Publication 72. Ann. ICRP 26 (1).
- [A6-21] Arrêté, 2003. Arrêté du 1er septembre 2003 définissant les modalités de calcul des doses efficaces et des doses équivalentes résultant de l'exposition des personnes aux rayonnements ionisants. JORF n°262 du 13 novembre 2003, page 58003.
- [A6-22] Dorrian, 1996. Dorrian, M.-D., Bailey, M.R. 1996. Particle size distributions of radioactive aerosols measured in the workplace and the environment. Journal of Aerosol Science, 27 (SUPPL.1), pp. S439-S440.
- [A6-23] ICRP, 2019. Occupational intakes of radionuclides: Part 4. ICRP Publication 141. Ann. ICRP 48(2/3).
- [A6-24] EPA, 1993. *External Exposure to Radionuclides in Air, Water, and Soil*, Federal Guidance Report No. 12 (No. EPA-402-R-93-081). U.S. Environmental Protection Agency, Washington, DC.
- [A6-25] EPA, 2019. *External Exposure to Radionuclides in Air, Water, and Soil*, Federal Guidance Report No. 15 (No. EPA 402-R-19-002).). U.S. Environmental Protection Agency, Washington, DC.

Annexe 7. Les accidents de Palomares et de Thulé

En pleine Guerre Froide, dans les années 60, des bombardiers B52 américains se relayaient 24 heures sur 24 pour assurer une surveillance aux frontières de l'Union Soviétique dans le cadre de l'opération Chrome Dome [A7.3]. Trois routes étaient empruntées par les bombardiers qui partaient des bases aériennes américaines. La première route survolait le Groenland, la deuxième l'Alaska et la dernière partait jusqu'en méditerranée. Les avions étaient ravitaillés en vol. Ces vols longs ont conduit à plusieurs accidents avec des pertes d'armes mais pour la plupart sans conséquence radiologique. Cependant deux sont notables pour avoir contaminé l'environnement proche, l'accident de Palomares (Espagne, 1966) et Thulé (Groenland, 1968).

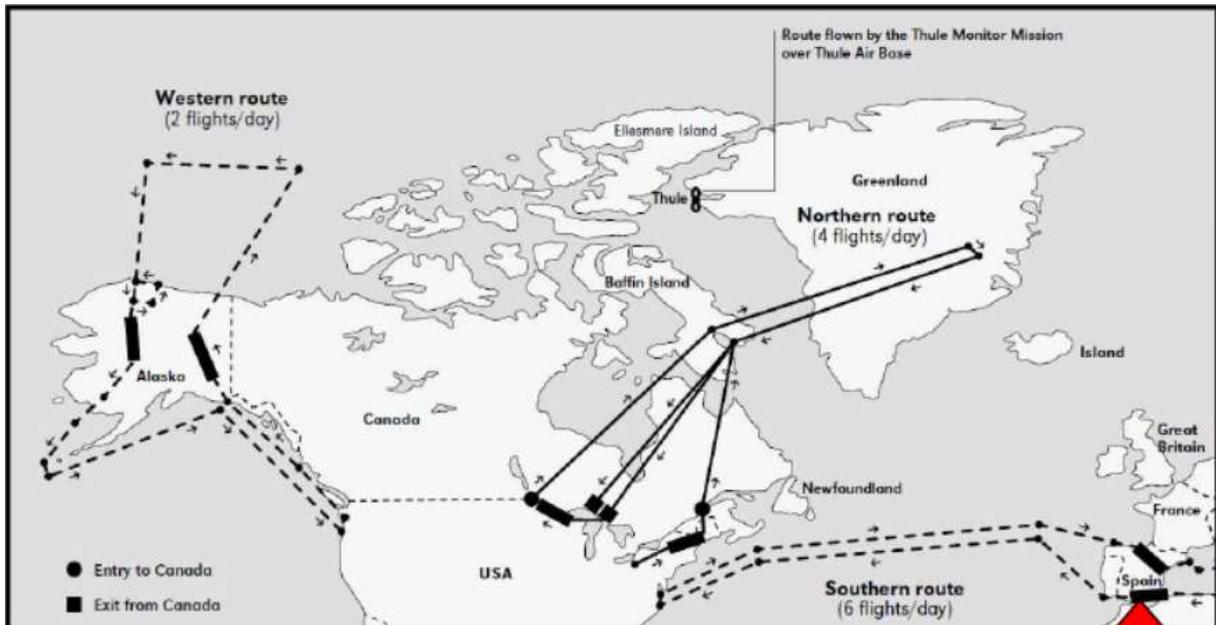


Figure A7- 1 : Opération « Chrome Dome » – Routes Aériennes [A7.4]

7.1. Accident de Palomares

Le 17 janvier 1966 au matin, au cours d'un ravitaillement de carburant en vol au large de Palomares dans la province d'Almeria, en Espagne, un KC-135 américain percute le B-52 qu'il ravitaille. Le KC-135 est complètement détruit lorsque ses réservoirs s'embrasent. Le B-52 se brise en plusieurs morceaux. Il transportait quatre bombes H de type Mark 28. Trois sont retrouvées à terre près du village de Palomares en Andalousie. Deux, dont les parachutes ne se déploient pas, sont détruites à l'impact au sol : leurs explosifs conventionnels explosent. La troisième bombe dont le parachute s'est déployé touche le sol et reste presque intacte près de Palomares. La quatrième est retrouvée intacte dans la mer Méditerranée après une campagne de recherche presque trois mois plus tard. La figure a7- 2 présente la position de la ville de Palomares, le positionnement des bombes et les zones impactées sont présentés sur la Figure A7- 3.

L'accident s'est produit alors que Franco est au pouvoir. Les américains dépêchés sur place le jour de l'accident soutiennent qu'il n'y a pas d'arme nucléaire, la presse espagnole engagée dès le début de l'événement et sous la coupe de l'Etat parle d'un événement inhabituel [A7.11]. L'arrivée de journalistes étrangers quelques jours plus tard conduit les américains à confirmer que les armes accidentées contenaient de la matière radioactive. La presse espagnole et les gouvernements américain et espagnol ont cherché à minimiser l'impact de l'accident. Des campagnes de

communication avaient pour objectif de montrer que tout allait bien autour de Palomares. Ainsi en mars 1966, l'ambassadeur des Etats Unis en Espagne et plusieurs ministres espagnols prenaient un bain de mer devant un grand nombre de journalistes [A7.12].

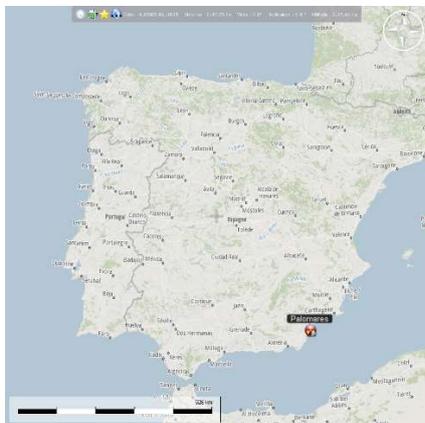


Figure A7- 2 : Carte de l'Espagne

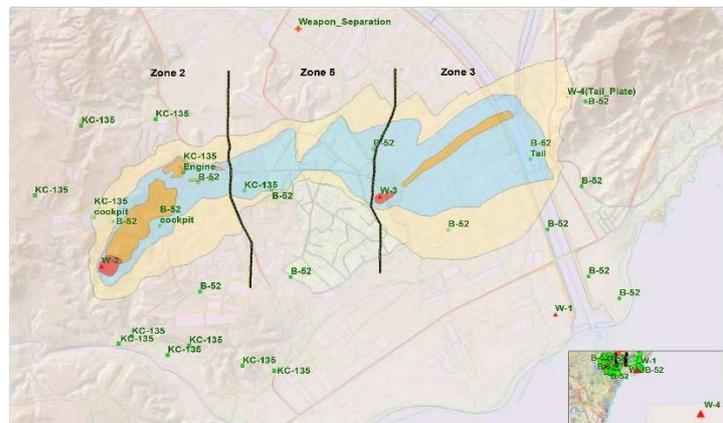


Figure A7- 3 : Zone d'impact (W : weapons) [A7.5]

7.1.1. Zone d'impact

Des membres de l'US Air Force positionné à la base aérienne espagnole Torrejón au centre du pays rejoignent rapidement le site accidenté. Accompagnés par la Guardia Civil et des membres de la population locale, les trois premières bombes sont localisées en moins de 24 heures [A7.5], [A7.7].

La première bombe W-1 (figure A7- 2) est tombée à proximité du lit asséché de la rivière Almanzora. Son parachute s'étant déployé, l'arme n'a pas été endommagée. Aucune radioactivité n'a été détectée autour de l'arme.

La seconde bombe W-2 (figure A7- 2) est tombée à l'ouest du village ; la détonation conventionnelle a créé un cratère d'environ 6 m de diamètre et de 2 m de profondeur. Les rejets associés se sont dispersés dans une petite vallée non cultivée au moment de l'impact.

La troisième bombe W-3 (figure A7- 2) est tombée à l'est de la ville de Palomares à proximité de quelques lieux d'habitation. L'impact a produit un cratère de 6 m de diamètre et 1 m de profondeur.

La quatrième bombe W-4 a été retrouvée intacte en mer environ 3 mois plus tard après une campagne de recherche.

La chute de ces bombes n'a conduit à aucune perte humaine pour la population espagnole.

L'explosion conventionnelle de 2 des 4 bombes a conduit à disperser du plutonium sur une surface d'environ 2,3 km². Les activités de ²³⁹+²⁴⁰Pu dispersées lors de l'accident ont été estimées entre 3,5.10¹² et 32.10¹² Bq soit une masse de Plutonium évaluée entre 1,5 et 13,5 kg [A7.5].

7.1.2. Caractérisation de la contamination en 1966

Quelques jours après l'accident, des actions de caractérisation du niveau de contamination de la zone accidentée ont été engagées par les Américains [A7.5] [A7.6]. Cette caractérisation, réalisée à l'aide de détecteurs α portables de type PAC-1S, a duré jusque mi-février [A7.3]. La zone dite « contaminée » est appelée la « zero line », elle correspond à la zone au-delà de laquelle les niveaux mesurés sont au bruit de fond de l'appareil utilisé. Elle est présentée sur la Figure A7- 4.

Une troisième zone, la « zone 6 », située légèrement plus à l'est, n'est pas représentée sur la carte.

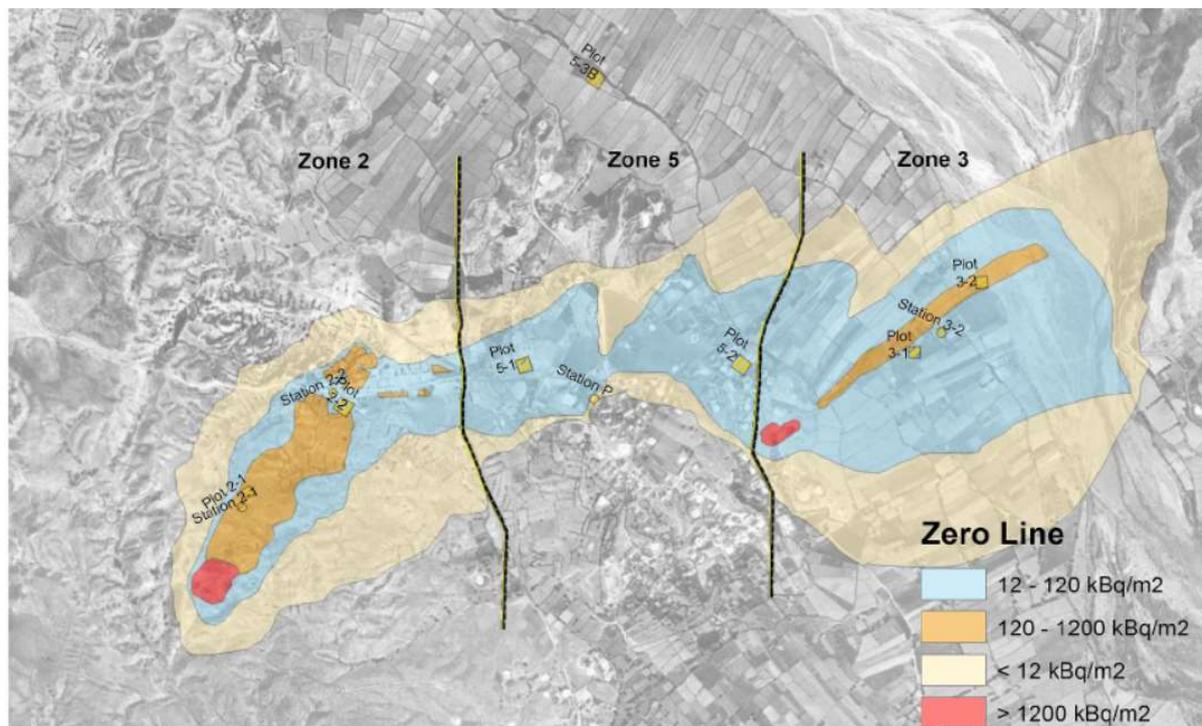


Figure A7- 4 : Niveaux de contamination en 1966 [A7.5]

Les critères utilisés ont été proposés par les américains en accord avec JEN, l'autorité espagnole compétente de l'époque. Ces critères, initialement définis en cpm (coups par minute), ont été établis pour mettre en œuvre les actions de réduction de la contamination. Le critère de 100 000 cpm a été proposé par les américains pour le retrait des terres comme une valeur permettant de « protéger de manière satisfaisante la population » [A7.9] [A7.3]. Les négociations entre espagnols et américains aboutirent à l'utilisation du critère de 60 000 cpm pour le retrait de terre. Des facteurs de conversion des cpm vers les concentrations d'activité ont été établis²⁸ ultérieurement, donnant ainsi les niveaux exprimés en kBq/m² visibles sur la Figure A7- 4.

7.1.3. Décontamination des terrains et gestion des déchets

La décontamination des terrains (sols et végétaux) impactés a commencé quelques jours après l'événement, avec la nécessité de retirer les débris des avions et des armes. Les propositions de gestion ont été discutées avec le JEN et les accords définitifs ont été fixés au bout de quelques semaines [A7.3].

La décontamination a été prise en charge par les américains mais effectuée en collaboration avec les espagnols. Jusqu'à 700 personnes dont une trentaine d'espagnol ont été présentes sur le camp de vie spécialement installé pour loger les intervenants.

Dans les zones les plus contaminées au niveau des points d'impact n°2 et n°3, les 10 premiers centimètres de sol ont été retirés. Là où la contamination initiale était supérieure à 1 200 kBq/m² (>60 000 cpm, ~500 µg/m²) environ 827 m³ de sol ont été retirés.

Lorsque les niveaux de contamination étaient compris entre 1 200 kBq/m² et 120 kBq/m² (~7000 cpm), le sol devait être labouré sur une profondeur de 25 à 30 cm. Pour des niveaux de contamination compris entre 120 kBq/m² et 12 kBq/m², le sol était labouré (gain par dilution également) mais sur des épaisseurs non prescrites.

²⁸ Equivalence employée à Palomares pour le contaminamètre (PAC-1S) 100 000 cpm = 770µG/m² [A7.3].

Juste après l'accident, dans les zones où les niveaux de contamination étaient inférieurs à 12 kBq/m², le sol a été aspergé d'eau ou de « light diesel oil » [A7.5].

Les végétaux contaminés dont les niveaux d'activité au sol étaient supérieurs à 7 kBq/m² ont été retirés et temporairement stockés dans la zone 2. Une partie des sols retirés a été disposée dans deux tranchées sur cette même zone. Ces tranchées étaient toujours présentes et furent retrouvées dans les années 2000 lors de la campagne de mesures intensives [A7.7]. Toutefois, la majorité des sols et des végétaux retirés a été transportée aux USA pour y être stockée [A7.3].

La végétation présente dans des zones où le dépôt était inférieur à 7 kBq/m² a été retirée et incinérée dans le lit de la rivière Almanzora près de son embouchure, profitant des brises nocturnes de terre à mer afin d'éviter une contamination de la zone urbaine [A7.5] [A7.8].

Lors de travaux de décontamination, pour limiter la remise en suspension et fixer la contamination, de l'eau était pulvérisée sur les routes et espaces de travaux [A7.3].

Un nettoyage haute pression, associé à l'utilisation de détergents a été réalisé pour laver les buissons, les arbres fruitiers et les surfaces extérieures des habitations. Pour fixer la contamination et éviter la remise en suspension dans l'air, plusieurs couches de peinture ont été appliquées sur les façades des maisons [A7.8].

En avril 1966, soit environ 3 mois après l'accident, les travaux de décontamination étaient jugés terminés.

7.1.4. Surveillance environnementale

Un suivi régulier de l'environnement a été mis en œuvre dès 1966. Des prélèvements de sol, d'eau, de productions agricoles, de plantes sauvages ainsi que d'animaux « sauvages » tels les escargots ont été réalisés. Des collecteurs atmosphériques ont été utilisés dans le but de caractériser les taux de remise en suspension.

Dans la fin des années 90, la montée du tourisme, la transformation agricole et l'irrigation de masse conduisent l'état espagnol à s'interroger sur une réévaluation de la contamination résiduelle. Les premières analyses montrent une contamination résiduelle plus importante que celle estimée initialement [A7.7]. De nouveaux critères de gestion ont alors été établis par l'autorité espagnole CSN (cf. Annexe 7, §7.1.5)

En 2004, à la lumière de ces résultats préliminaires, une campagne de mesure intensive est engagée. Les objectifs étaient d'évaluer la contamination résiduelle dans les zones touchées et d'établir d'éventuelles stratégies de récupération de l'environnement. Des mesures intensives d'Américium 241 ont été réalisées ; la cartographie obtenue est présentée sur la figure a7- 5. Pour connaître la contamination des sols en profondeurs une caractérisation 3D a été réalisée.

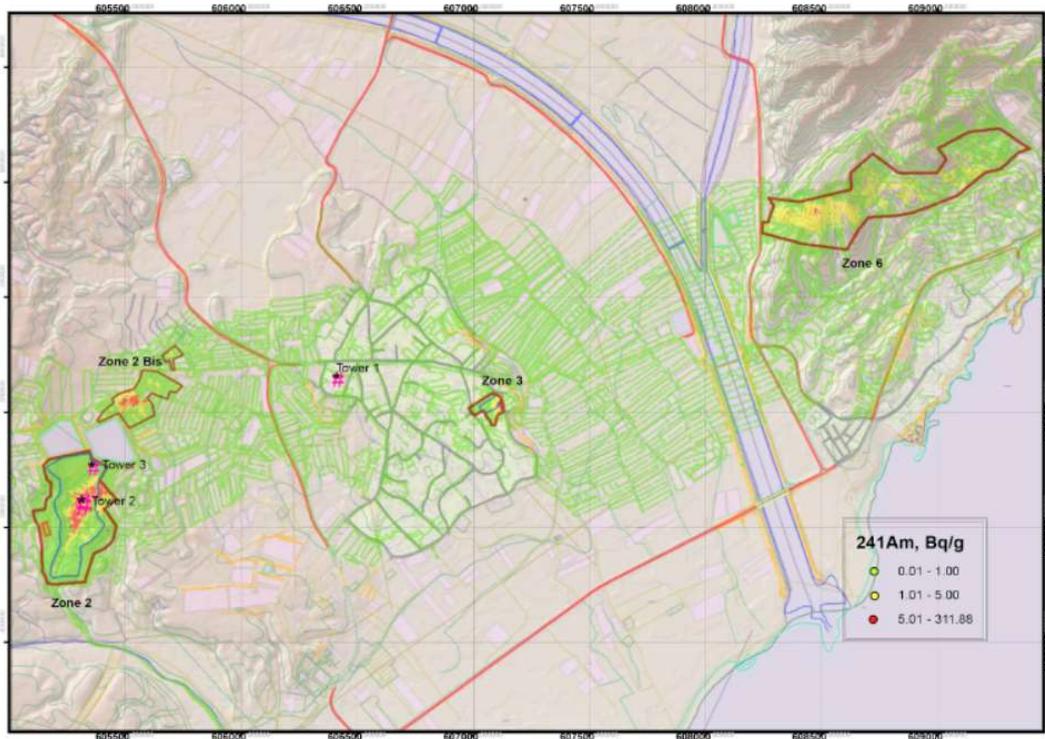


Figure A7- 5 : Cartographie de l'Américium 241 [A7.5]. Territoires expropriés (trait bleu) et territoires soumis à des restrictions (trait rouge) (§7.1.5)

7.1.5. Action de protection de la population

La bibliographie disponible ne précise pas si des actions de protection ont été recommandées aux populations de la ville de Palomares.

La population a été contrôlée à l'aide de contaminamètres mais les résultats étaient apparemment négatifs [A7.14]. Une des préoccupations, aussi bien de l'autorité espagnole que des Américains en charge de la décontamination, était la remise en suspension. Une photo parue dans Paris Match en 1966 [A7.13] (Figure A7- 6) montrait des recommandations à appliquer pour limiter la remise en suspension.

Après l'événement, un programme de surveillance de la population présente au moment de l'accident a été initié. Il consistait en des contrôles de l'état de santé ainsi que des estimations de la dose interne via des prélèvements urinaires. Cela concernait environ 150 personnes par an [A7.7].

L'estimation de la dose annuelle reçue sur la période 1995-2010 s'élevait à 0,006 mSv/an [A7.6]. Cette dose est inférieure à la dose limite annuelle pour le public de 1 mSv/an.



Figure A7- 6 : Contrôle de la population [A7.13]

Entre 1966 et les années 2000 aucun territoire ne faisait plus l'objet de restriction de circulation ou de séjour pour les populations. En 2003, sur la base des nouvelles estimations de contamination, de nouveaux critères de gestion du territoire ont été mis en place [A7.5] [A7.6]

- Restriction totale de l'utilisation des territoires dont la contamination donnerait lieu à une dose annuelle totale de 5 mSv, ce qui correspondrait à une concentration de 25 Bq/g de sol pour le $^{239+240}\text{Pu}$ et de 5 Bq/g pour ^{241}Am .
- Restriction partielle de l'utilisation des territoires dont la contamination donneraient lieu à une dose annuelle totale de 1 mSv, ce qui correspondrait à une concentration de 5 Bq/g de sol pour le $^{239+240}\text{Pu}$ et de 1 Bq/g pour ^{241}Am , avant la mise en place de contrôles complémentaires.

Suite à la définition de ces nouveaux critères, des territoires ont été expropriés. Ils sont représentés délimités par un trait bleu sur la figure a7- 5 ; les territoires soumis à des restrictions partielles sont délimités par un trait rouge. Au-delà de ces interdictions ou restrictions, des actions sont mises en place pour la réappropriation des territoires.

7.1.6. Restriction de mise sur le marché

A ce stade seules des informations parcellaires sur le sujet ont pu être relevées dans les ressources disponibles, et l'établissement de liens entre ces informations n'est pas évident.

Selon le compte rendu de la gestion de l'accident de 1975 [A7.3], des mesures de restriction ont été mises en place. Néanmoins il est fait état d'incertitudes sur la période de mise en œuvre. Une interdiction de non commercialisation aurait été prononcée par le JEN, pour l'ensemble du territoire de Palomares, dès le lendemain de l'accident. Une fois la « zero line » identifiée, début février, les interdictions auraient été levées pour les exploitations extérieures à la zone dite contaminée. Toutefois la communication relative à la levée des interdictions ne semble pas avoir été diffusée correctement. A partir du 21 février, il semblerait que les premières récoltes et les premières ventes aient été faites. Cependant, les ventes se seraient terminées fin février, les récoltes de tomates et haricots étant trop mures pour être vendues.

7.2. Accident de Thulé

Le 21 janvier 1968 dans le cadre de l'opération *Chrome Dome*, un bombardier B52 de l'armée américaine prend feu au cours d'un vol au-dessus du Groenland. Voulant atterrir d'urgence au niveau de la base militaire de Thulé, l'avion s'écrase sur la mer de glace.

L'impact déclencha les explosions conventionnelles des 4 bombes transportées dans le bombardier, entraînant la dispersion d'une partie du plutonium et du tritium qu'elles contenaient. Dans la zone impactée par l'incendie, la fonte des glaces entraîna une contamination de l'environnement marin [A7.2], mais en regelant, les débris furent pris au piège de la glace.

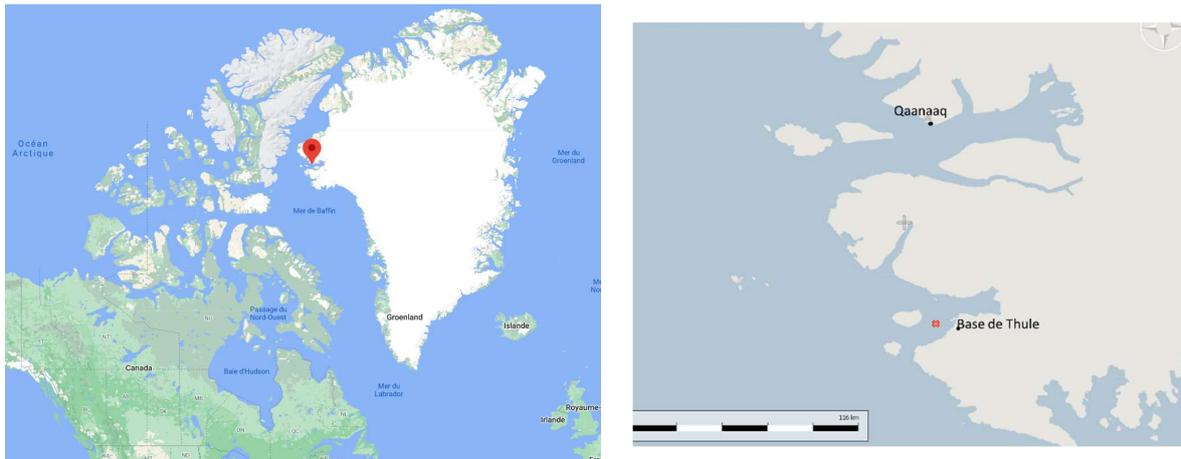


Figure A7- 7 : Lieu du crash (✳)

Pour le retrait des débris de l'avion, des armes et pour limiter la contamination environnementale une vaste opération de décontamination a été mise en place (*Project Crested Ice*).

Malgré les difficultés rencontrées (froid, nuit en continu, disponibilité du matériel et difficulté de réalisation de la mesure), une première cartographie de la zone contaminée a été établie rapidement après l'accident. Elle est nommée la « zero ligne » (Figure A7- 10). Le niveau de plutonium observé est représenté sur la Figure A7- 8. Le maximum de contamination était observé au niveau de la zone d'incendie, où la surface fondue avait regelée. La zone noircie représentait environ 150 m sur 600 m (500 x 2100 pieds [A7.15]).

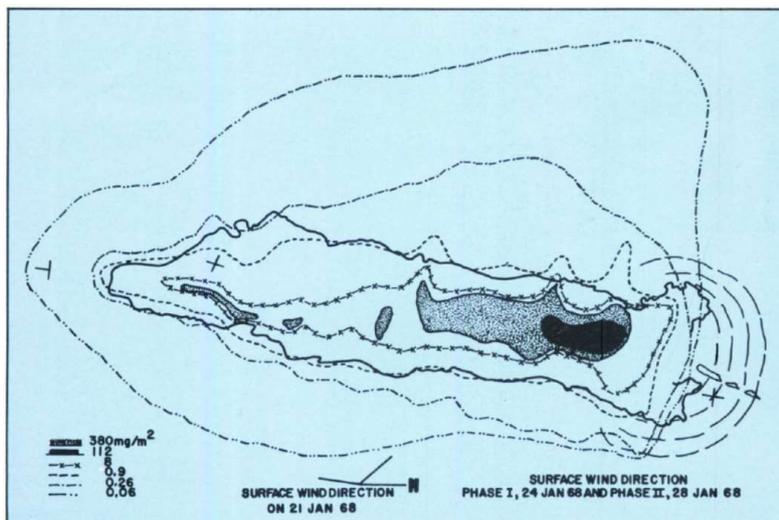


Figure A7- 8 : Niveau de contamination du plutonium observé [A7.15]

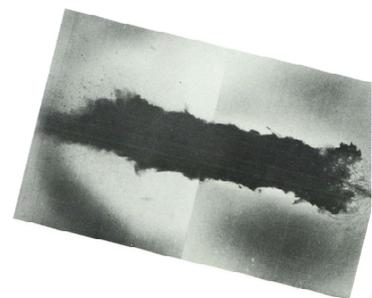


Figure A7- 9 : photo aérienne du site accidenté [A7.15]



Figure A7- 10 : délimitation de la « zero ligne » [A7.15]

7.2.1. Actions de protection des populations

Une semaine après le crash, le chef de la municipalité de Qaanaaq (100 km au nord de la base de Thule), et le gouverneur du Groenland, prononcèrent une interdiction de pénétrer, voire de passer, dans la zone définie par les lieux géographiques suivants : les îles Manson, le Mont Dundas, Alanguarsuk et Inersussat. En même temps, une recommandation de ne pas collecter d'objets d'origine inconnue fut également émise.

Une semaine plus tard, les autorités décidèrent d'interdire la chasse aux renards et aux corbeaux. Ces restrictions ont été progressivement assouplies puis finalement été annulées à mesure que l'opération de nettoyage progressait.

À proximité de la zone de l'accident vivait des familles Inuits dont le mode de vie se centrait essentiellement sur la chasse aux phoques, aux morses, aux baleines blanches, aux renards et aux ours polaires.

Pour vérifier l'exposition des populations pendant la phase de panache, des prélèvements urinaires ont été réalisés parmi les populations vivant dans les territoires à proximité. Aucune présence de plutonium n'a été détectée.

7.2.2. Action de réduction de la contamination

À la demande des Danois, la glace contaminée par le fuel et les éléments radioactifs ont été retirés et stockés avant d'être expédiés aux États Unis. Les actions de décontamination se sont terminées au mois de mars 1968 et les derniers containers de déchets ont quitté le Groenland au mois de septembre 1968. Au total, plus de 2 100 m³ de liquide contaminé, ainsi que trente réservoirs de matières diverses, dont une partie contaminée, ont été collectés.

7.2.3. Suivi environnemental

Quelques jours après l'accident, les autorités danoises ont mis en place des actions de caractérisation de la contamination en vue d'identifier l'impact possible pour les populations inuits. Plusieurs prélèvements de neige et de glace ont été réalisés dans des endroits représentatifs en dehors du point d'impact, en respectant notamment les zones sous le vent. Des prélèvements d'eau de mer, de sédiments et de plancton (pour l'impact de la chaîne alimentaire marine) puis d'animaux sauvages tels les morses, les phoques et les renards, consommés par les foyers groenlandais ont été réalisés et analysés. Les concentrations les plus élevées ont été relevées dans les sédiments de fond, les

mollusques et les crustacés, toutefois à des niveaux restant faibles et jugés sans nocivité pour les populations.

Des campagnes de mesures ont régulièrement été réalisées depuis. Elles consistent à vérifier les niveaux de contamination dans les sédiments, l'eau de mer, les algues, les animaux benthiques et les sols. La campagne de 2003-2005 [A7.16] a montré que les plus forts niveaux de concentrations en plutonium étaient mesurés dans les sédiments marins, sous l'endroit où l'avion s'était écrasé. Pour le Risø la contamination dans le milieu marin ne présente pas de risque pour la population car le plutonium reste fixé dans les sédiments. Sur le domaine terrestre, les niveaux de contamination du sol pourraient constituer un faible risque du fait de la remise en suspension. Dans les sols de surface, la gamme de valeur de $^{239,240}\text{Pu}$ observée est de 10 à 80 Bq/kg.

7.3. Références

- [A7.1] L.J. King & W.T. McCarley, 1961. *Plutonium release incident of November 20, 1959*. Oak Ridge National Laboratory
- [A7.2] H. Métivier, 2010. *Plutonium – Mythes et Réalités*. EDP Sciences.
- [A7.3] Defense Nuclear Agency, 1976. *Palomares Summary Report*.
- [A7.4] C. Sancho, 2013. *Remediation after the palomares accident: scientific and social aspects*. International Experts' Meeting on Decommissioning and Remediation after a Nuclear Accident IAEA 28 January – 1 February 2013. Vienna, Austria
- [A7.5] C. Sancho & R. García-Tenorio, 2003. *Radiological evaluation of the transuranic remaining contamination in Palomares (Spain): A historical review*. Journal of Environmental Radioactivity Volume 203, July 2019, Pages 55-70
- [A7.6] Nuclear Safety Council, 2013. *1966/2013 Palomares. En el camino de la normalización radiológica*. CSN, Madrid, Spain.
- [A7.7] Nuclear Safety Council. *Palomares : desde el accidente al plan de restauracion*.
- [A7.8] E.R. Rodriguez, 1969. *Palomares Two Years After*. Junta de Energia Nuclear
- [A7.9] United State department of state, 1985. *Nuclear Accidents at Palomares, spain en 1966 and Thule Greenland in 1968*. Unclassified document
- [A7.10] <https://www.ecologistasenaccion.org/evento/accidente-de-palomares-2/2020-01-17/>
- [A7.11] David Stiles, 2006. *A Fusion Bomb over Andalucía: U.S. Information Policy and the 1966 Palomares Incident*. Journal of Cold War Studies Vol. 8, No. 1, Winter 2006, pp. 49–67
- [A7.12] <https://www.youtube.com/watch?v=S0eznojoXI>
- [A7.13] Paris Match, 1966. *Le village qui vit avec sa Bombe "H"*. Paris Match n°882 5mars1966.pdf
- [A7.14] Dave Philips, 2016. *Las consecuencias ocultas de un accidente nuclear en España causado por Estados Unidos*. The New York Times. <https://www.nytimes.com/es/2016/06/21/espanol/las-consecuencias-ocultas-de-un-accidente-nuclear-en-espana-causado-por-estados-unidos.html>
- [A7.15] USAF Nuclear Safety, 1970. Project Crested Ice. AFRP 122-1 1970 n°1 Vol.65(part2) special edition
- [A7.16] Sven P. Nielsen and Per Roos, 2006. *Thule-2003 - Investigation of Radioactive Contamination*. Rapport Risø-R-1549(EN).

IRSN

INSTITUT DE RADIOPROTECTION
ET DE SÛRETÉ NUCLÉAIRE

31 av. de la division Leclerc
92260 Fontenay-aux-Roses
RCS Nanterre B 440 546 018

COURRIER

B.P 17 - 92260 Fontenay-aux-Roses

TÉLÉPHONE

+33 (0)1 58 35 88 88

SITE INTERNET

www.irsn.fr

MEMBRE DE
ETSON