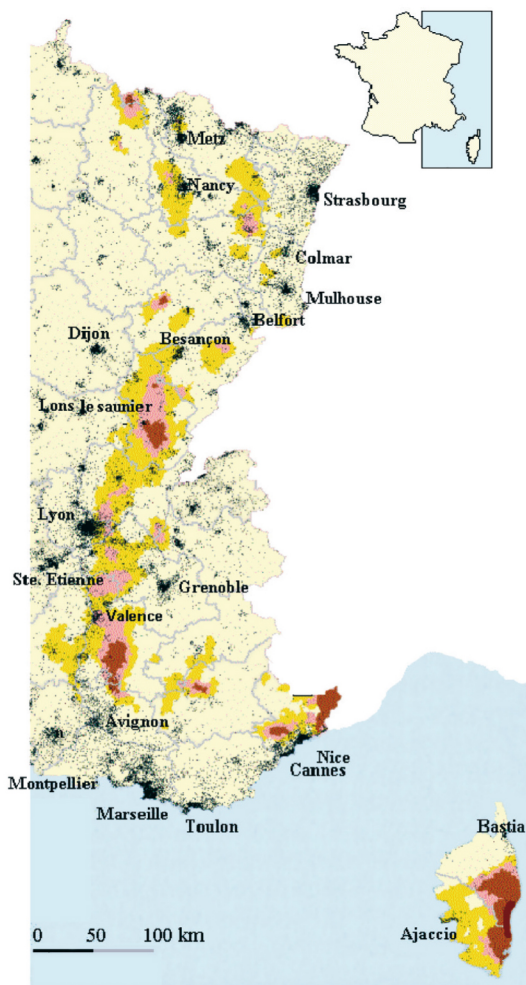


Mémoire d'habilitation à diriger des recherches

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

Laurent POURCELOT



EDITORIAL

L'habilitation à diriger les recherches (HDR) est un diplôme délivré par l'université. Pour un chercheur, elle constitue la consécration d'une dizaine d'années d'activité de recherche remarquable dans son domaine, de la reconnaissance du haut niveau scientifique du chercheur et de son aptitude à encadrer des doctorants. Ce diplôme est, à l'université, la condition nécessaire pour obtenir du Conseil national des universités (CNU) la « qualification » qui permet de postuler à la fonction de Professeur des universités. À l'IRSN, l'obtention d'une HDR confère aux chercheurs de l'Institut un statut comparable à celui de leurs *alter ego* universitaires : à la fois reconnaissance de la qualité du travail de recherche réalisé et équivalence par rapport à leurs collègues de l'enseignement supérieur avec lesquels ils co-encadrent les doctorants de l'Institut.

À l'échelle de l'Institut, le nombre d'HDR obtenues par ses chercheurs est un indicateur de la vitalité de la recherche menée dans ses laboratoires et de sa capacité à former de jeunes chercheurs, sur un spectre de disciplines très large allant des sciences de la santé à celles de l'ingénieur en passant par les sciences de l'environnement.

Dans l'esprit de mettre en lumière la recherche de l'Institut, de faire connaître la qualité de ses chercheurs et d'en valoriser les travaux, ce sont les mémoires d'habilitation que la collection « HDR » de l'IRSN se propose de publier. Ces ouvrages s'adressent au monde de la recherche, et notamment aux chercheurs universitaires et industriels, aux experts et aux étudiants.

L'Institut est ainsi particulièrement fier de présenter ce troisième numéro de la collection HDR qui présente les résultats et les perspectives de recherche contribuant à une meilleure connaissance du comportement des radioéléments artificiels dans la géosphère et la biosphère. Ces recherches permettent de maintenir et de développer les capacités d'expertise de l'IRSN, expert public des risques nucléaires et radiologiques, dans ce domaine important pour la radioprotection de l'environnement et de l'homme. Il est à noter qu'elles contribuent également à répondre aux préoccupations sociétales d'actualité fortes que sont les conséquences, en France, des contaminations résiduelles de l'accident de Tchernobyl et, par extension au niveau international, des conséquences au Japon de celui de Fukushima.

Michel Schwarz,
Directeur scientifique de l'Institut de radioprotection et de sûreté nucléaire
Juin 2011

Illustration en page de couverture : cartographie des retombées de ^{137}Cs consécutives à l'accident de Tchernobyl (mai 1986).



**CENTRE DE GÉOCHIMIE DE LA SURFACE
UMR 7517**

**Université Louis Pasteur - Strasbourg 1
Habilitation à diriger des recherches
(HDR)**

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

25 janvier 2008

Laurent Pourcelot,
Institut de radioprotection et de sûreté nucléaire

Composition du jury :

Pierre-Marie Badot	Professeur, Université de Franche-Comté	Rapporteur
François Chabaux	Professeur, Université L. Pasteur	Rapporteur
Pascal Froidevaux	Collaborateur Sci., Université de Lausanne	Invité
François Gauthier-Lafaye	DR CNRS, Université L. Pasteur	Garant d'habilitation
Peter Mitchell	Professeur, University College Dublin	Rapporteur

ISBN : 978-2-11-128725-9

Sauf autorisation écrite, tous droits de traduction, d'adaptation et de reproduction par tout procédé et pour tout type d'usage, sont interdits.

© 2011, IRSN. Tous droits réservés.

SOMMAIRE

Un chercheur dans la société	7
------------------------------	---

Chapitre 1

Les réacteurs naturels d'Oklo : analogues aux sites de stockage – Thèse d'université	11
1.1 Résumé de la thématique	11
1.2 Altération des argiles entourant les réacteurs	13
1.3 Altération des uraninites des cœurs des réacteurs	16
1.4 Listes des publications auxquelles a donné lieu la thèse	19

Chapitre 2

Variabilité spatiale des dépôts atmosphériques des radioéléments artificiels	23
2.1 Hétérogénéité des dépôts accidentels des polluants radioactifs atmosphériques : exemple des retombées de Tchernobyl	28
2.2 Projet de recherche en cours : variabilités des dépôts atmosphériques sur les massifs montagneux	38
2.3 Publications dans le cadre de la thématique des dépôts atmosphériques des polluants radioactifs	42

Chapitre 3

Transferts des radioéléments artificiels dans les sols	47
3.1 Transfert par migration des polluants radioactifs dans les sols	48
3.2 Transfert des radioéléments artificiels aux plantes : exemple des prairies permanentes	59
3.3 Publications dans le cadre de la thématique du transfert des radioéléments dans les sols	64

Chapitre 4

Caractérisation des sources de pollutions radioactives au sein du bassin versant de l'Ob-Irtych	67
4.1 Caractérisation des polluants radioactifs dans l'environnement de l'installation nucléaire de Tomsk-Seversk	70
4.2 Projet de recherche en cours : caractérisation des migrations de tritium provenant des essais nucléaires pratiqués à Semipalatinsk	73

4.3 Publications dans le cadre de la problématique de la caractérisation des sources de pollutions radioactives au sein du bassin versant de l'Ob-Irtych	75
Chapitre 5	
Conclusion des travaux de recherche	77
5.1 Synthèse des travaux de recherche	77
5.2 Perspectives de recherche	79
Chapitre 6	
Liste des publications	81
6.1 Publications dans des revues nationales et internationales à comité de lecture	81
6.2 Publications dans d'autres revues de grande diffusion	83
Chapitre 7	
Échanges avec les universités	85
7.1 Encadrement et co-encadrement d'étudiants	85
7.2 Participations à des jurys de thèse de doctorat d'universités	87
7.3 Activités d'enseignement	88
Bibliographie	89

UN CHERCHEUR DANS LA SOCIÉTÉ...

Depuis le début de mes recherches en thèse (octobre 1993), mes travaux sont focalisés sur le comportement des radioéléments artificiels dans la géosphère puis dans la biosphère. Les recherches sur ces thèmes doivent répondre directement ou indirectement à des préoccupations sociétales très fortes concernant les conséquences que présentent les radioéléments artificiels pour l'homme et l'environnement. En effet, les radioéléments artificiels produits par les activités civiles et militaires puis rejetés dans l'environnement, présentent des dangers potentiels provenant de la forte radiotoxicité des substances émises. L'atteinte à l'homme par irradiation externe, inhalation ou ingestion, est conditionnée par des processus susceptibles d'augmenter ou de diminuer l'activité d'un radioélément dans l'environnement, à partir du terme source (rejets d'une installation nucléaire, sédiments ou sols pollués, etc.).

La compréhension des comportements des radioéléments artificiels impose la prise en compte des interactions eau/roche, des conditions hydrologiques, des cycles biogéochimiques, de la biodisponibilité dans les sols, etc. susceptibles de mobiliser les radioéléments.

Ainsi, la thèse de doctorat que j'ai effectuée à l'université Louis Pasteur (Strasbourg) avait pour cadre les réacteurs naturels de fission d'Oklo (Gabon), analogues naturels de sites de stockage de déchets radioactifs. Ces recherches, menées dans le cadre d'un programme cofinancé par l'Union européenne et le Commissariat à l'énergie atomique (« Oklo, Natural Analogue »), s'inscrivaient dans le cadre de la loi de 1991 relative aux recherches sur les possibilités de stockage réversible ou irréversible dans les formations géologiques profondes.

Depuis mon embauche en 1999 au Laboratoire d'études radioécologiques du milieu continental et de la Méditerranée de l'IRSN (Institut de radioprotection et de sûreté nucléaire), mes principales activités de recherche concernent le comportement des radioéléments artificiels dans l'environnement terrestre. Les recherches que je mène contribuent à maintenir et à développer l'expertise de l'IRSN ainsi qu'à asseoir sa stature de spécialiste des risques du nucléaire, vis-à-vis de la communauté scientifique, des exploitants nucléaires, des pouvoirs publics, des collectivités locales et du public.

Ma tâche essentielle a consisté à développer des « zones ateliers » où j'ai effectué des prélèvements de matrices de l'environnement, ciblés dans l'espace et dans le temps, dans le but de proposer des modèles conceptuels du transfert des radioéléments artificiels aux interfaces atmosphère/sol/végétation/produits des chaînes alimentaires. Cette approche contribue non seulement aux programmes de recherche de l'IRSN, mais apporte également des réponses aux questions posées par les pouvoirs publics et les collectivités locales concernant, par exemple, les contaminations résiduelles de l'accident de Tchernobyl en France ou les fortes activités de certaines plages de Camargue.

Dans ce mémoire d'habilitation à diriger des recherches, je présente les résultats et les perspectives des principaux thèmes de recherche contribuant à une meilleure connaissance du comportement des radioéléments artificiels dans la géosphère et la biosphère.

Dans le premier chapitre, je présente un résumé des recherches effectuées dans le cadre de ma thèse sur les réacteurs d'Oklo et dans les suivants, les travaux de recherche entrepris à l'IRSN.

Ainsi, le deuxième chapitre concerne les dépôts atmosphériques de contaminants radioactifs. J'ai étudié les principaux paramètres environnementaux qui interviennent dans la modélisation empirique du passage des radioéléments artificiels de l'atmosphère au sol. Je m'appuie ici essentiellement sur des mesures en radioéléments artificiels (^{137}Cs , plutonium, américium) de sols qui témoignent de la variabilité des dépôts accidentels, consécutifs à la catastrophe de Tchernobyl (paragraphe 2.1) et des dépôts radioactifs chroniques, provenant des tirs atmosphériques d'armes nucléaires (paragraphe 2.2). Dans le troisième chapitre, j'aborde le problème des transferts des radioéléments artificiels dans les sols. L'intérêt de cette problématique réside dans le fait que ces transferts constituent d'importantes voies d'atteinte à l'homme. En effet, dans le long-terme (dans les mois et les années qui suivent les dépôts radioactifs sur les sols et la végétation), les transferts de polluants radioactifs dans les sols sont responsables à la fois de la contamination des végétaux (transfert par voie racinaire) et de la contamination des eaux souterraines et des eaux de surface (transfert après migration verticale). Mes recherches dans le cadre de la thématique des transferts des polluants radioactifs dans les sols sont centrées sur les migrations verticales et sur les transferts racinaires, ces deux processus étant accessibles par des prélèvements et des mesures dans l'environnement. Plus précisément, j'ai étudié les migrations des polluants radioactifs et de leurs analogues géochimiques dans différents types de sols (paragraphe 3.1) ainsi que la variabilité des activités du radiostrontium et du radiocésium dans les compartiments des zones de prairies permanentes (sol, herbe, lait et fromage) (paragraphe 3.2).

Enfin, dans le quatrième chapitre, je présente les premières données et les perspectives des projets internationaux auxquels je collabore, qui ont pour cadre les conséquences sur l'environnement des productions et des expérimentations d'armes nucléaires dans l'ex-URSS, à l'époque de la guerre Froide. Le thème de recherche est la caractérisation des sources de pollutions radioactives au sein du bassin versant de l'Ob-Irtych.

CHAPITRE 1

Les réacteurs naturels d'Oklo : analogues aux sites de stockage - Thèse d'université -

1.1 Résumé de la thématique

Après un DEA en chimie-physique de l'université de Franche-Comté, soutenu en 1993 sous la responsabilité d'A. Chambaudet (Laboratoire de microanalyse nucléaire, Besançon), j'ai préparé entre 1993 et 1996 un doctorat en géochimie, sous la direction de F. Gauthier-Lafaye (Centre de géochimie de la surface CNRS, EOST). Le travail de recherche a été mené dans le cadre des projets européens *Oklo*, *Natural Analogue*, cofinancés par la Communauté européenne et le Commissariat à l'énergie atomique, dont les principaux participants étaient : CEA,

CNRS, CIEMAT, SKB, CREGU, EMP. En 1997, j'ai soutenu une thèse de doctorat de l'université L. Pasteur (Strasbourg) intitulée « Les réacteurs de fission naturels du Gabon. Contribution à l'étude des conditions de stabilité d'un site naturel de stockage de déchets radioactifs (2 Ga) ».

L'intérêt de l'étude des réacteurs d'Oklo réside dans l'observation de transformations géochimiques des matrices (oxyde d'uranium, argiles, grès et matière organique) et de migrations d'actinides, de lanthanides et de produits de fission, à des échelles d'espace et de temps impossibles à reproduire par des expérimentations, fussent-elles menées en laboratoire souterrain. L'analogie suppose que les processus mis en évidence par l'observation soient transposables au contexte du stockage de déchets nucléaires dans la géosphère.

Les innovations apportées par mon travail de thèse résident dans la prise en compte simultanée des données minéralogiques, chimiques et isotopiques des matrices géologiques, à savoir le combustible nucléaire des cœurs des réacteurs (oxydes d'uranium) et les argiles qui les entourent. Le but du travail de thèse est de proposer un modèle d'évolution des déchets radioactifs stockés dans les réacteurs naturels, en fonction des conditions de pression et de température et des circulations des fluides. En particulier, c'est grâce aux signatures isotopiques $\delta^{18}\text{O}$, $\delta^{13}\text{C}$ et δD que j'ai pu « caler » les différents fluides des réacteurs et les migrations de radioéléments associées à chaque phase : diagenèses carbonatée et silicatée, minéralisation de l'uranium, fonctionnement des réacteurs et circulations tardives liées à un contexte tectonique extensif. Cette approche analytique a montré également l'importance des fluides d'altération supergènes, responsables de l'oxydation du combustible, de l'altération des argiles et des migrations des radioéléments.

En résumé, les différents ateliers étudiés, réacteur de Bangombé (10 m de la surface), réacteur n°9 (120 m de profondeur) et réacteur n°10 (450 m) montrent que la profondeur de stockage et la physico-chimie des différents fluides sont les paramètres prépondérants qui conditionnent la stabilité du combustible et les migrations d'actinides et de radioéléments dans les argiles (figure 1).

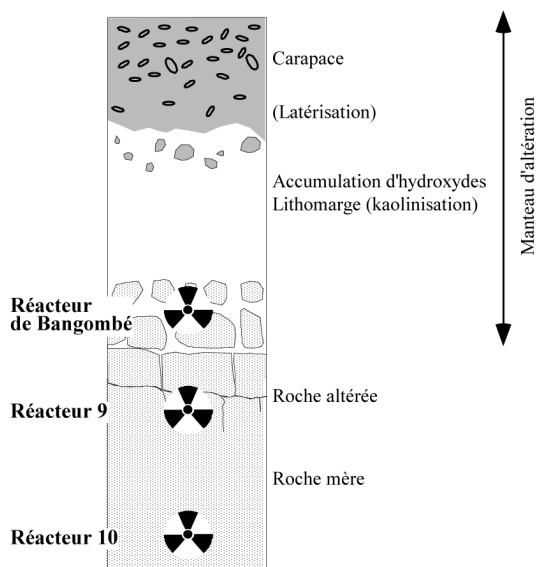


Figure 1. Position schématique des trois types de réacteurs par rapport à un profil d'altération supergène en climat tropical. Depuis les réacteurs profonds vers les réacteurs de surface, les indices d'altération supergène s'affirment. On note, en particulier, la disparition de la calcite à proximité de la surface, sous l'influence des percolations météoriques acides. L'uraninite est de plus en plus oxydée, la coffinite devient importante et les minéraux argileux caractéristiques de l'altération supergène (kaolinite et chlorite vermiculisée) apparaissent dans les réacteurs 9 et à Bangombé. Enfin, l'altération supergène a des effets « catastrophiques » sur le comportement des actinides et des produits de fission. En particulier, les actinides normalement bien contenus dans la matrice de l'uraninite sont libérés durant sa dissolution. Ce phénomène, déjà très prononcé dans le réacteur 9, où le déficit en uranium ne justifie plus la criticité, devient extrême à Bangombé.

1.2 Altération des argiles entourant les réacteurs

La gangue argileuse qui entoure les réacteurs est composée d'argiles hydrothermales (chlorites alumineuses et magnésiennes) qui ont cristallisé sous l'effet des circulations des fluides induites par les fortes températures des réactions de fission, il y a deux milliards d'années (Gauthier-Lafaye *et al.*, 1996). Les migrations de produits de fission et des actinides dans l'environnement des réacteurs ont fait l'objet de nombreuses études, mais les conditions physico-chimiques qui ont présidé au fonctionnement des réacteurs et aux migrations qui

en découlent sont peu connues. Par exemple, le gradient thermique provenant des réactions de fission a sans doute fortement influencé les transferts de fluide et de matière autour des réacteurs.

Par ailleurs, après l'arrêt des réacteurs, la préservation de la barrière argileuse est aussi un élément déterminant pour comprendre les migrations des produits de fission et des actinides. La question se pose en effet de savoir si les fluides de surface ont pu altérer des réacteurs les plus proches de la surface.

Afin de mieux comprendre les conditions thermiques de fonctionnement des réacteurs et leur préservation vis-à-vis des fluides de surface, j'ai réalisé une étude des compositions minéralogiques, chimiques et isotopiques de l'oxygène ($^{18}\text{O}/^{16}\text{O}$) des argiles de deux réacteurs d'Oklo (réacteurs 10 et 9), qui se distinguent par la profondeur (450 et 120 m, respectivement) et l'état de préservation du cœur et des argiles. Le réacteur 9 présente en effet de nombreux traits d'altération : faible épaisseur et faible concentration en uranium du cœur, notamment.

Les résultats montrent que les compositions isotopiques de l'oxygène des argiles du réacteur 10 ($\delta^{18}\text{O} = 0$ à $12,8$ ‰ SMOW) témoignent de fortes températures de cristallisation, des phases de fonctionnement et de refroidissement de ce réacteur. La température au cœur du réacteur a pu atteindre 450°C , pour un gradient thermique de l'ordre de $100^\circ\text{C}\cdot\text{m}^{-1}$ (figure 2).

A l'opposé, les rapports des isotopes de l'oxygène des chlorites vermiculisées du réacteur 9 ($\delta^{18}\text{O} = 13,8$ à $17,2$ ‰ SMOW) sont en équilibre isotopique avec les eaux de surface (-2 à -5 ‰ SMOW). L'altération de ce réacteur par les fluides oxydants en provenance de la surface explique l'altération des chlorites (vermiculisation) et les fortes migrations de l'uranium du cœur. De plus, des analyses isotopiques du samarium (isotopes ^{147}Sm et ^{149}Sm) révèlent des migrations importantes de ce produit d'activation dans l'encaissant du réacteur 9, consécutives à l'altération supergène de ce réacteur (figure 3).

Cette approche et les résultats qui en découlent ont fait l'objet d'une publication à *Chemical Geology* [A2].

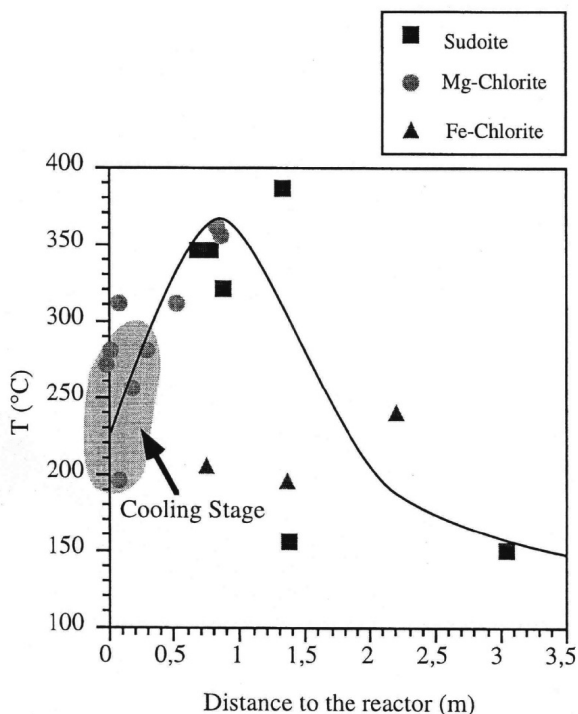


Figure 2. Température de cristallisation des chlorites du réacteur n°10, déduites des rapports des isotopes de l'oxygène ($^{18}\text{O}/^{16}\text{O}$), en fonction de la distance au réacteur. Les températures de cristallisation des chlorites Mg au contact du réacteur, comprises entre 200 et 250°C, témoignent de la cristallisation tardive de ces espèces argileuses, sans doute lors du refroidissement du réacteur. Il est probable que le dégagement de chaleur ainsi que le flux neutronique provenant de la fission de l'uranium n'ont pas permis la cristallisation des argiles au contact du réacteur. En revanche, les sudoïtes (chlorites Al) ont cristallisé à des températures plus élevées ($> 300^\circ\text{C}$), probablement lors du fonctionnement du réacteur. Ces températures nous permettent d'évaluer le gradient thermique dans l'environnement immédiat du réacteur n°10 (de l'ordre de $100^\circ\text{C}\cdot\text{m}^{-1}$) et d'extrapoler la température de fonctionnement de ce réacteur (de l'ordre de 450°C). C'est à ce stade de fonctionnement du réacteur et de cristallisation des sudoïtes qu'on associe les migrations de ^{239}Pu , mis en évidence par Bros et al. (1993) et les migrations de produits de fission, plus mobiles, sous forme de gaz rares (Xe, Kr), d'alcalins (Rb, Cs) et d'alcalino-terreux (Sr, Ba) (Hidaka et al., 1994; Gauthier-Lafaye et al., 1996). Les températures proposées ici sont en accord avec les températures déduites du géothermomètre, basées sur la composition chimique des chlorites et les températures déduites des rapports isotopiques de l'oxygène des quartz des fractures, issues également de mon travail de thèse [A2].

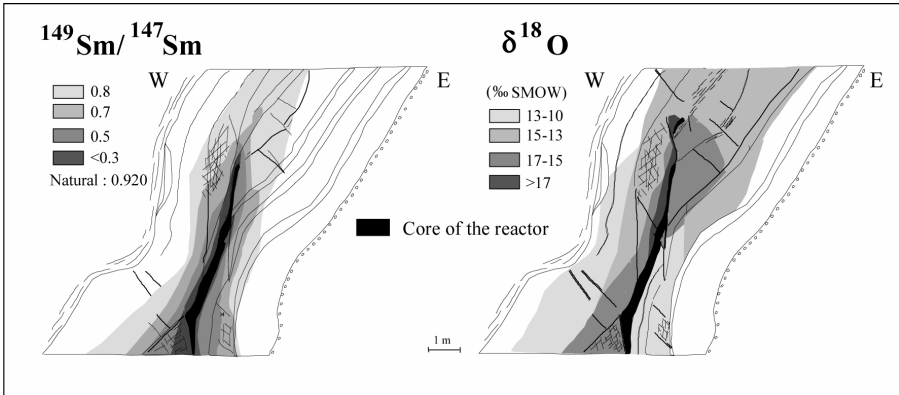


Figure 3. Compositions isotopiques de l'oxygène ($\delta^{18}\text{O}$ en ‰ SMOW) et rapports isotopiques $^{149}\text{Sm}/^{147}\text{Sm}$ des roches dans l'environnement du réacteur 9. ^{149}Sm est caractérisé par une forte section de capture neutronique ($\sigma = 82\,000$ barns) par rapport à ^{147}Sm ($\sigma = 154$ barns). De ce fait, dans le cœur des réacteurs, le rapport isotopique $^{149}\text{Sm}/^{147}\text{Sm}$ est proche de zéro. On observe dans l'environnement du réacteur, des valeurs plus faibles que le rapport naturel ($^{149}\text{Sm}/^{147}\text{Sm} = 0,920$) qui signent la présence de samarium provenant du réacteur. A droite, les rapports des isotopes de l'oxygène des chlorites vermiculisées du réacteur 9 ($\delta^{18}\text{O} = 13,8$ à $17,2$ ‰ SMOW) sont en équilibre isotopique avec les eaux de surface (-2 à -5 ‰ SMOW). Ce parallèle illustre la circulation des fluides de surface ($\delta^{18}\text{O}$) et la conséquence sur la migration d'un produit d'activation neutronique, le Sm provenant du réacteur [A2].

1.3 Altération des uraninites des cœurs des réacteurs

Les uraninites d'Oklo constituent des analogues du combustible irradié des centrales nucléaires, car les deux matrices possèdent un certain nombre de traits communs : même composition chimique (UO_{2+x}), réseau cristallographique identique et présence d'impuretés (produits de fission). Ainsi, comprendre la préservation des uraninites d'Oklo (2 Ga) doit contribuer à prévoir le devenir des combustibles irradiés en milieu géologique (Miller *et al.*, 1994). Rappelons que les autorités nucléaires américaines privilégient le stockage du combustible irradié des centrales nucléaires à 300 m de profondeur (site de Yucca-Mountain, Nevada), à partir de 2012. Cette solution pragmatique apportée à la gestion des déchets radioactifs de haute activité et à vie longue pose le problème des conséquences à long-terme du flux des eaux d'altération sur la dissolution de l'oxyde d'uranium et la migration des radioéléments en milieu géologique.

Le but des recherches que j'ai menées est d'évaluer les modifications cristallographiques et chimiques de l'uraninite consécutives à l'altération des réacteurs par les fluides d'altération supergène. Les rapports isotopiques de l'oxygène ($^{18}\text{O}/^{16}\text{O}$) des uraninites, mis en œuvre dans cette étude, doivent permettre de discuter les différents fluides en équilibre isotopique avec ces minéraux : fluide des réactions (haute température), fluide radiolysé par le rayonnement α de l'uranium, eaux de surface (appauvries en ^{18}O). Les analyses cristallographiques, chimiques et isotopiques ont porté sur des échantillons d'uraninite provenant de l'ensemble des réacteurs, en fonction de la profondeur (10 - 500 m) et de leur état de préservation.

Les résultats montrent que l'altération par les fluides de surface affecte le paramètre de maille et la composition chimique des uraninites. L'oxydation de l'uraninite (UO_2), par exemple, augmente le degré d'oxydation de l'uranium (UO_{2+x}), ce qui induit une contraction de la maille (figure 4). De même, dans les réacteurs les plus proches de la surface (réacteurs 2, 9 et Bangombé), on observe des concentrations en impuretés (Fe et Si, notamment) significativement plus élevées que dans les réacteurs plus profonds (réacteurs 10, 13 et Okélobondo). Cependant, les uraninites ($\delta^{18}\text{O}$ compris entre - 15 et - 22 ‰ SMOW), sont en équilibre avec des fluides très appauvris en ^{18}O (- 6 à - 20 ‰ SMOW), par rapport aux eaux de surface (- 2 à - 5 ‰ SMOW). Ces valeurs très basses pourraient résulter de la radiolyse de l'eau, soumise au rayonnement α provenant de la désintégration de l'uranium.

Cette approche et les résultats qui en découlent ont fait l'objet d'une publication au *Comptes Rendus à l'Académie des sciences – Sciences de la Terre et des Planètes* [A1].

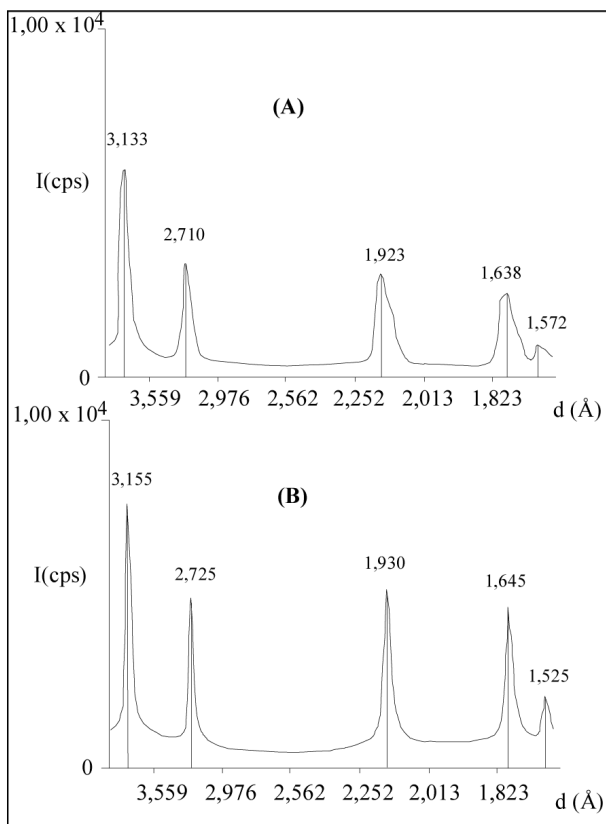


Figure 4. Diagrammes de diffraction X des échantillons d'uraninite provenant du réacteur de Bangombé (A) et du réacteur n°13 (B), localisés à 10 et 300 m de profondeur, respectivement. Les échantillons provenant des réacteurs localisés à proximité de la surface (réacteurs de Bangombé et de la carrière d'Oklo) ont des indices de cristallinité (largeur à mi-hauteur des pics) élevés (0,4 - 0,6), en comparaison des réacteurs de la mine d'Oklo (réacteurs 10, 13, 16 et Okélobondo : 0,33 - 0,38). Les paramètres de maille cubique a_0 des uraninites, calculés à partir des distances réticulaires des spectres X de chaque échantillon, diffèrent également en fonction de la profondeur. Ainsi, le paramètre de maille varie entre 5,4524 Å (réacteur 13) et 5,4217 Å (réacteur de Bangombé). Ces variations significatives des signatures minéralogiques des uraninites montrent que ces matrices sont affectées par l'altération oxydante des eaux de surface. En effet, l'oxydation de l'uraninite (UO_2) augmente le degré d'oxydation de l'uranium (UO_{2+x}), ce qui induit une contraction de la maille, telle qu'on l'observe dans les échantillons [A1].

1.4 Listes des publications auxquelles a donné lieu la thèse

1.4.1 Publications de rang A

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

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

1.4.2 Congrès, colloques et réunions scientifiques

C1. POURCELOT L., GAUTHIER-LAFAYE F., LARQUE Ph. (1995) - Stable isotope compositions of minerals around Oklo natural reactors, *Terra Abstract*, Abstract Supplement n°1 to Terra Nova, p. 188, European Union of Geosciences VIII, Strasbourg, France.

C2. POURCELOT L., GAUTHIER-LAFAYE F. (1996) - Oxygen isotopes and U, Pb, REEs data on clays and uraninites of the Oklo natural reactors: Temperatures, water radiolysis and weathering effects, VI annual V.M. Goldschmidt Conference, Heidelberg, Germany.

C3. POURCELOT L. et GAUTHIER-LAFAYE F. (1996) - Effets de la température, de l'altération et de la radiolyse de l'eau sur les réacteurs d'Oklo, Réunion Annuelle des Sciences de la Terre, Orléans, France.

C4. POURCELOT L. and GAUTHIER-LAFAYE F. (1997) - Uraninites of the Oklo reactors: O isotopes and mineralogical data, in I. McKinley & C. McCombie (Eds): *Scientific Basis for Nuclear Waste Management XXI, Material Research Symposium Proceedings*, 506, 1069-1070, Davos, Switzerland.

C5. POURCELOT L., GAUTHIER-LAFAYE F. (1997) - Weathering conditions and behaviour of Fission Products in Oklo Reactors, in I. McKinley & C. McCombie (Eds): *Scientific Basis for Nuclear Waste Management XXI, Material Research Symposium Proceedings*, 506, 1071-1072, Davos, Switzerland.

- C6. POURCELOT L., GAUTHIER-LAFAYE F. (1997) - Impact of surface weathering conditions at the Oklo natural reactors on the behaviour of fission products, in D. Louvat and C. Davies (Eds): *Oklo Working Group - Proceeding of the first joint EC-CEA workshop of the Oklo-natural analogue phase II, Nuclear Science and Technology*, EUR 18314 EN, 181-186, Sidges, Spain.
- C7. POURCELOT L., GAUTHIER-LAFAYE F. (1997) - Uraninites of the Oklo reactors: O isotopes and mineralogical data, *Terra Abstract*, Abstract Supplement n°1 to Terra Nova vol. 9, p. 299-300, European Union of Geosciences IX, Strasbourg, France.
- C8. POURCELOT L. and GAUTHIER-LAFAYE F. (1998) - Alteration of Oklo uraninites: crystallographic and oxygen isotopes evidences, in press, in D. Louvat et al. (Eds): *Oklo Working Group - Proceeding of the second joint EC-CEA workshop of the Oklo-natural analogue phase II, Nuclear Science and Technology*, Helsinki, Finland.
- C9. BRACKE G., POURCELOT L., GAUTHIER-LAFAYE F. (1998) - Role of fracture: REE patterns (RZ 9 and Bangombé) and the Nd and Sm isotope composition of some fractures samples and organic matter, in D. Louvat et al. (Eds): *Oklo Working Group - Proceeding of the second joint EC-CEA workshop of the Oklo-natural analogue phase II, Nuclear Science and Technology*, Helsinki, Finland.
- C10. POURCELOT L., GAUTHIER-LAFAYE F. (1998) - Surface weathering conditions of minerals of natural fission reactors, *Mineralogical Magazine*, 62, abstract vol. 1-3, 1208-1209, VIII annual V.M. Goldschmidt Conference, Toulouse, France.
- C11. POURCELOT L., GAUTHIER-LAFAYE F. (1999) - Oxygen isotopic constrains of natural fission reactions conditions, *Terra Abstract* 11, *Journal of Conf. Abstract* vol. 4, p. 521, European Union of Geosciences X, Strasbourg, France.
- C12. LE BRICON G., BRACKE G., POURCELOT L., SALAH S., GAUTHIER-LAFAYE F. (1999) - Oxidations associated with the natural nuclear fission reactors: effects of the water radiolysis, *Terra Abstract* 11, *Journal of Conf. Abstract* vol. 4, p. 525, European Union of Geosciences X, Strasbourg, France.

C13. GAUTHIER-LAFAYE F., BRACKE G., DEL NERO M., LE BRICON G., POURCELOT L., SALAH S., STILLE P. (1999) - Nuclear Reactors of Oklo and Bagombé (Gabon): new insight for natural analogue of nuclear waste, Terra Abstract 11, Journal of Conf. Abstract vol. 4, p. 525, European Union of Geosciences X, Strasbourg, France.

C14. MATHIEU R., CUNNEY M., CATHELINÉAU M., GAUTHIER-LAFAYE F., ZETTERSTRÖM L., MICHAUD V., POURCELOT L. (1999) - Fluid paleocirculations reconstruction and LREEs-P-U-Zr and Pb mobility in the Franceville basin and around Oklo natural nuclear reaction zones (Gabon). In: *Proceedings of the 3rd joint Oklo Working Group CEC-CEA meeting*, Cadarache, France, Eds D. LOUVAT, V. MICHAUD and H. VON MARAVIC.

CHAPITRE 2

Variabilité spatiale des dépôts atmosphériques des radioéléments artificiels

Si la littérature scientifique recense d'innombrables publications qui quantifient des dépôts consécutifs à l'explosion de Tchernobyl en Russie, Biélorussie, Ukraine et dans une moindre mesure dans les autres pays survolés par les panaches radioactifs, dans les pays scandinaves (Devell *et al.*, 1986 ; Paatero *et al.*, 2002) et en Europe de l'Ouest (Smith et Clark, 1986 ; Høltz *et al.*, 1987 ; Misaelides *et al.*, 1987 ; Clark & Smith, 1988 ; Whitehead *et al.*, 1988 ; Battiston *et al.*, 1988 ; Santchi *et al.*, 1988 ; Ballestra *et al.*, 1987 ; Rosner *et al.*, 1990 ; McAuley & Moran, 1991 ; Mitchell *et al.*, 1990 ; Isaksson *et al.*, 2000 ; Bossew *et al.*, 2001), les publications traitant des retombées de Tchernobyl en France sont rares, tardives et sujettes à polémiques (Thomas et Martin, 1986 ; Renaud *et al.*, 1999 ; European Commission, 1998 ; Galle *et al.*, 2003 ;

Renaud *et al.*, 2003).

Les conséquences des dépôts atmosphériques radioactifs en France (retombées de Tchernobyl et également dépôts provenant des tirs atmosphériques d'armes nucléaires) suscitent de nombreuses questions de la part de la Direction générale de la santé, de la Direction de la prévention des pollutions et des risques (Ministère de l'écologie et du Développement durable), du parc national du Mercantour, de la préfecture de Corse... Des actions de recherche et d'expertise ont été développées à l'IRSN, dans le but de répondre à ces questions. Mes recherches s'inscrivent dans cet objectif et visent à consolider les connaissances scientifiques de l'Institut sur les dépôts radioactifs en France.

L'IRSN dispose d'un réseau de mesures qui a permis d'évaluer la variabilité dans le temps et dans l'espace (six stations de prélèvement des aérosols) de l'activité dans l'air en ^{137}Cs (figure 5). En France, les mesures effectuées dans le compartiment atmosphérique montrent que les deux principales sources de contamination radioactive de l'air sont les essais atmosphériques des armes nucléaires (1950-1980) et l'explosion de la centrale nucléaire de Tchernobyl (26 avril 1986). Mais l'intensité et la répartition des dépôts provenant de ces deux sources de contaminations atmosphériques sont très différentes.

En effet, suite à un rejet accidentel dans l'atmosphère (du type de celui provenant de l'accident de Tchernobyl), on observe de fortes élévations de l'activité dans l'air en certains points du territoire, en fonction de la trajectoire du ou des panaches. L'intensité et la répartition des dépôts radioactifs « accidentels » sur les sols et la végétation varient fortement dans l'espace et dans le temps, en fonction de la contamination de l'air et des conditions météorologiques à l'échelle d'une région ou d'un département (temps sec, faibles pluies, fortes pluies ou neige en altitude) (Smith et Clark, 1986 ; Clark et Smith, 1988 ; McAuley et Moran, 1991 ; Mitchell *et al.*, 1990 ; Isaksson *et al.*, 2000). La carte de France des activités surfaciques moyennes départementales en ^{137}Cs sur les surfaces agricoles en mai 1986 a été établie par l'IPSN en 1999 par la modélisation, à partir de mesures d'activité d'échantillons de lait prélevés dans les jours qui ont suivi l'accident dans les grands centres de collecte laitier départementaux (figure 6) (Renaud *et al.*, 1999). Bien que cette représentation mette clairement en évidence des dépôts plus importants sur l'Est de la France, elle ne permet pas de

rendre compte de l'hétérogénéité des dépôts sur un demi-département ou sur quelques communes. Une forte variabilité des dépôts provenant de Tchernobyl est également observable à une échelle plus locale, comme dans le Mercantour, sur des surfaces de sol de quelques décimètres carrés à quelques mètres carrés (activités surfaciques en $^{137}\text{Cs} > 100\,000\text{ Bq.m}^{-2}$).

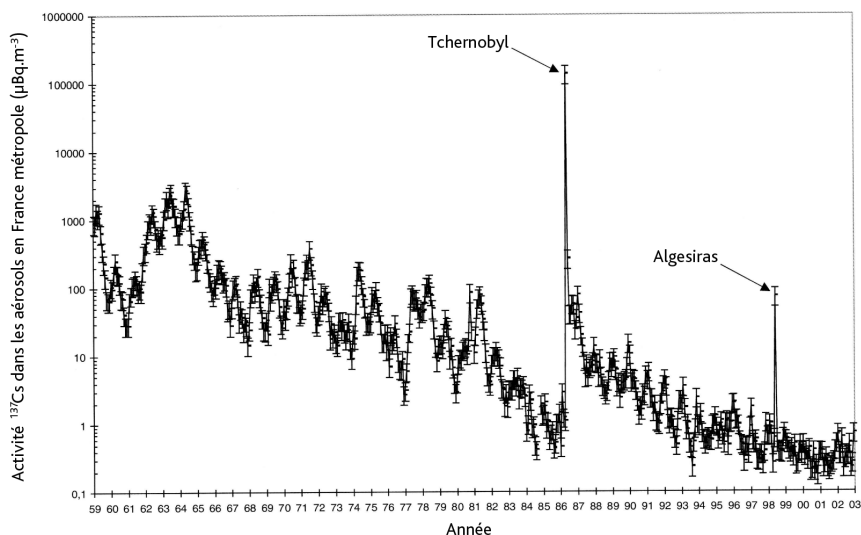


Figure 5. Activité volumique en ^{137}Cs dans les aérosols collectés en France métropolitaine par l'IRSN (janvier 1959-décembre 2002) (moyennes de six stations : Alençon, Bordeaux, Charleville-Mézières, Dijon, La Seyne-sur-Mer, Orsay) (Bouisset et al., 2004). Le territoire français métropolitain a subi deux épisodes majeurs de dépôts atmosphériques de ^{137}Cs : les retombées des tirs atmosphériques d'armes nucléaires et celles de l'accident de Tchernobyl. Ainsi, lors des retombées stratosphériques des tirs atmosphériques les plus puissants (américains et soviétiques, pour l'essentiel) pratiqués jusqu'en 1963 (date du moratoire des tests atmosphériques), les activités en ^{137}Cs dans l'air étaient importantes et relativement constantes (de 100 à plus de 1000 $\mu\text{Bq.m}^{-3}$ d'air). Lors des deux décennies suivantes, on note une progressive diminution des activités en ^{137}Cs dans l'air (de 100 à 1 $\mu\text{Bq.m}^{-3}$ d'air), en dépit des tirs atmosphériques pratiqués par la France et la Chine, jusqu'en 1980. En revanche, les fortes activités volumiques en ^{137}Cs mesurées dans l'air après l'accident de Tchernobyl (jusqu'à 1 Bq.m^{-3} d'air, dans l'Est de la France) n'ont perduré que quelques jours (1-3 mai 1986). Ainsi, les mesures réalisées en France métropolitaine au cours des dernières années témoignent de deux épisodes de dépôts, correspondant à deux modes de dépôts, qui se distinguent par les niveaux d'activité atteints dans l'air et leur persistance au cours du temps.

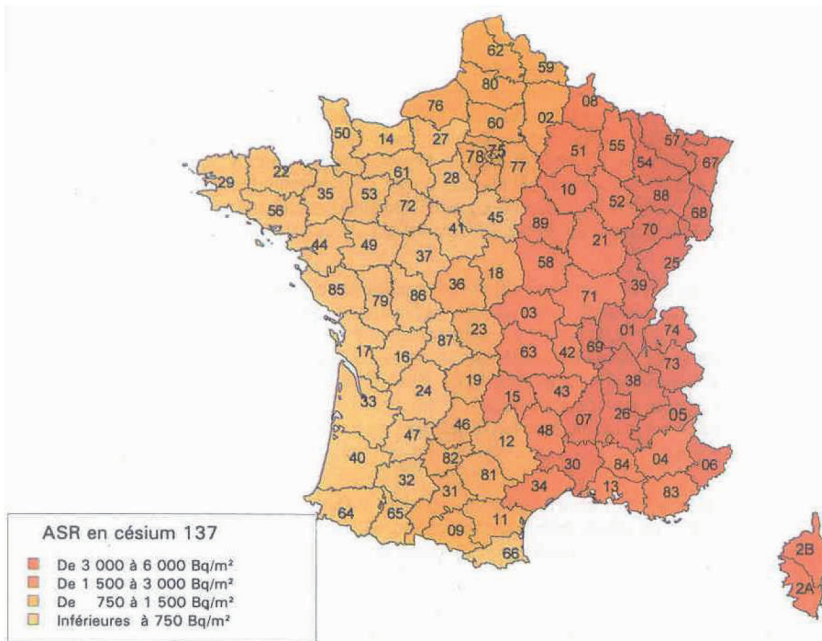


Figure 6. Cartographie des activités surfaciques moyennes départementales (numéros des départements indiqués sur la carte) en ^{137}Cs des surfaces agricoles en France en mai 1986, consécutives à l'accident de Tchernobyl (Renaud et al., 1999). Cette carte, établie par l'IPSN en 1997, est fondée sur des prélèvements de lait dans des centres de collecte départementaux réalisés en mai 1986 et des mesures effectuées par le Service central de protection contre les rayonnements ionisants (SCPRI) (SCPRI, 1986). Les activités surfaciques en ^{137}Cs sont déduites de ces mesures par la modélisation des transferts des polluants radioactifs à la chaîne alimentaire, suite à un dépôt post-accidentel (logiciel ASTRAL : Assistance Technique en Radioprotection post-Accidentelle). Les activités surfaciques cartographiées ici incluent un double effet intégrateur de la contamination des surfaces : d'abord, intégration de la contamination de l'herbe sur les surfaces broutées par les vaches, puis intégration d'une surface encore plus vaste par le regroupement du lait en coopérative.

Cette représentation, reflet de la contamination moyenne départementale du lait, principal contributeur à l'atteinte de la population, peut être considérée comme satisfaisante pour estimer l'impact dosimétrique des retombées de l'accident de Tchernobyl pour une grande majorité de la population. L'inconvénient majeur de cette représentation réside dans la représentativité de moyennes départementales pour des dépôts radioactifs très hétérogènes. En effet, l'utilisation de valeurs moyennes, même au niveau départemental, conduit à masquer certaines disparités locales induites par le milieu naturel : effets des surfaces boisées, de l'altitude et surtout de la pluviosité.

Les dépôts radioactifs consécutifs à un rejet chronique dans l'atmosphère (exemple des dépôts consécutifs aux tests atmosphériques des armes nucléaires) sont plus homogènes car l'activité dans l'air est plus homogène dans l'espace et dans le temps, en comparaison d'un rejet accidentel. Les dépôts consécutifs à une contamination chronique de l'atmosphère dépendent essentiellement des principales caractéristiques climatiques, telles que l'origine des masses d'air et l'intensité des précipitations moyennes annuelles. Ainsi, des relations empiriques, basées sur des prélèvements et des mesures de sols, montrent que les dépôts consécutifs aux tirs des armes nucléaires ont été proportionnels aux précipitations moyennes annuelles (Cigna *et al.*, 1987 ; Bunzl et Kracke, 1988 ; Mitchell *et al.*, 1990 ; Holgye et Filgas, 1995 ; Wright *et al.*, 1999). Les excès de ^{137}Cs des zones de forêt par rapport aux zones de prairie (de l'ordre de 30 %) sont imputés à l'interception des dépôts par temps sec par la végétation (Bunzl et Kracke, 1988).

Ainsi, la répartition spatiale des dépôts radioactifs dépend d'abord de la nature du rejet atmosphérique (rejet chronique ou accidentel), ainsi que d'un certain nombre de paramètres environnementaux, comme la trajectoire des masses d'air, l'intensité des pluies, la nature des précipitations (pluie, neige, brouillard) et la nature de la végétation.

Mes recherches se sont essentiellement focalisées sur les paramètres environnementaux qui interviennent dans la modélisation empirique des dépôts radioactifs sur le milieu terrestre, suite à une contamination accidentelle ou à une contamination chronique de l'atmosphère. Le premier paragraphe de ce chapitre est axé sur les paramètres qui conditionnent la répartition et l'intensité des dépôts atmosphériques accidentels (exemple des retombées de Tchernobyl) à deux échelles d'observations : dépôts à l'échelle du territoire français et dépôts très hétérogènes, sur des parcelles de prairie du Mercantour. Le second paragraphe traite des perspectives actuelles de recherche concernant les mécanismes environnementaux des dépôts chroniques des polluants atmosphériques. Dans cette thématique, j'utilise les inventaires en ^{210}Pb d'origine atmosphérique des sols de différents massifs montagneux en tant que traceur des apports atmosphériques chroniques de polluants, comme les radioéléments artificiels provenant des tirs atmosphériques d'armes nucléaires (^{137}Cs et plutonium).

2.1 Hétérogénéité des dépôts accidentels des polluants radioactifs atmosphériques : exemple des retombées de Tchernobyl

J'ai étudié l'hétérogénéité des dépôts accidentels de polluants radioactifs à deux échelles d'observation : à l'échelle du territoire national et à l'échelle des parcelles de prairie de zones d'altitude (exemple du Mercantour). Dans les deux cas, j'ai focalisé l'effort de recherche sur les paramètres « clés » de l'hétérogénéité des dépôts accidentels, à l'interface atmosphère/sol : intensité des précipitations sur la France, formation des congères en altitude.

Par la suite, nous avons cartographié les dépôts en intégrant le paramètre prépondérant du dépôt dans un système d'information géographique (collaboration avec J-M. Métivier, IRSN). Enfin, la dernière étape consiste à valider le dépôt estimé, en le confrontant à des mesures d'un inventaire de sols.

2.1.1 Hétérogénéité des dépôts de l'accident de Tchernobyl à l'échelle de la France

Jusqu'au début des années 2000, l'IRSN disposait d'une carte des dépôts moyens sur les surfaces agricoles de chaque département (Renaud *et al.*, 1999) (figure 6). Cette carte a servi à l'évaluation des doses liées à la consommation de lait et de légumes-feuilles, mais elle ne donne pas d'informations très précises sur la variabilité spatiale des dépôts. C'est la raison pour laquelle, mes collègues de l'IRSN et moi-même avons publié dans *the Science of the Total Environment* une carte des dépôts en ^{137}Cs , sur l'Est du territoire [A6]. Dans ce travail nous nous sommes inspirés des travaux de McAulay et Moran (1991), Uyttenhove *et al.* (1997) et de Isaksson *et al.* (2000) pour proposer une relation empirique entre le dépôt des contaminants radioactifs et les précipitations cumulées pendant le passage du panache issu de l'explosion.

Ce travail repose sur des mesures de l'activité en ^{137}Cs de sols argileux de la basse vallée du Rhône, qui fortement corrélées avec les précipitations qui se sont déroulées entre le 1^{er} et le 5 mai 1986, selon l'équation (1) (figure 7) :

$$\text{Dépôt de } ^{137}\text{Cs} (\text{Bq.m}^{-2}) = 560 \times [\text{hauteur de pluie en mm}^*] + 2009 \quad (1)$$

*cumul des précipitations qui ont eu lieu entre le 1^{er} et le 5 mai

Cette relation ne fait intervenir ni les mesures de l'activité de l'air, ni celles de l'eau de pluie effectuées en 1986, trop peu nombreuses et difficilement interprétables. La pente de l'équation (1) ($560 \text{ Bq.m}^{-2}.\text{mm}^{-1}$) est assez proche de celles obtenues dans d'autres pays d'Europe suite à l'accident de Tchernobyl, notamment au Royaume-Uni ($695 \text{ Bq.m}^{-2}.\text{mm}^{-1}$ d'après Clark et Smith, 1988), en Irlande ($467 \text{ Bq.m}^{-2}.\text{mm}^{-1}$ d'après McAulay et Moran, 1991) et dans le sud de la Suède ($740 \text{ Bq.m}^{-2}.\text{mm}^{-1}$ d'après Isaksson *et al.*, 2000).

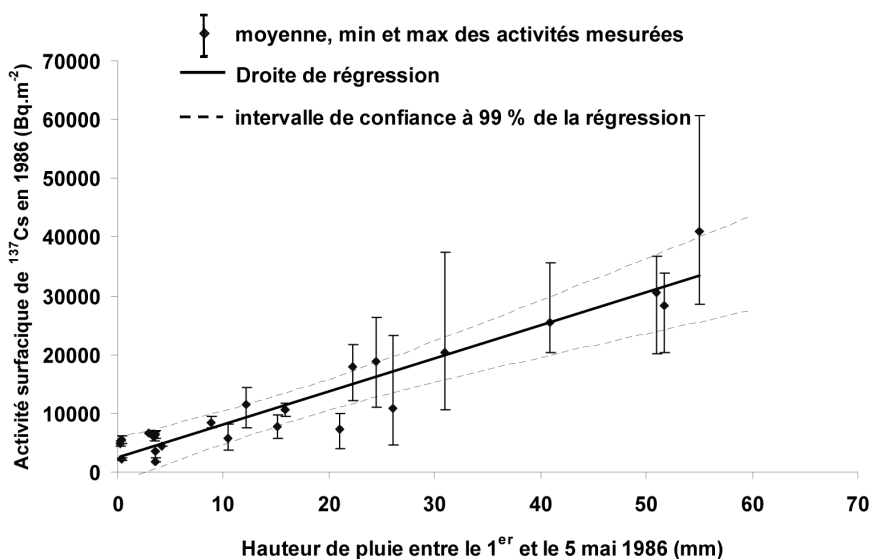


Figure 7. Droite de régression entre les activités surfaciques moyennes en ^{137}Cs des sols de la basse vallée du Rhône et les précipitations cumulées (1- 5 mai 1986), limites de l'intervalle de confiance de la droite de régression. Pendant cette période, les stations Météo-France de la basse vallée du Rhône, entre Vaison-la-Romaine et la Camargue ont enregistré une forte variabilité des précipitations (0 - 55 mm). Quinze ans après l'accident de Tchernobyl, les inventaires moyens en ^{137}Cs des sols argileux (prélèvements sur 30 cm de profondeur) sont corrélés avec les précipitations. Cette corrélation traduit que, sur une zone où l'activité volumique de l'air a été homogène, l'intensité d'un dépôt atmosphérique accidentel est proportionnelle aux précipitations au moment du rejet. Lorsque les précipitations excèdent 30 mm, on remarque que l'hétérogénéité des activités surfaciques en ^{137}Cs des sols, c'est-à-dire l'écart entre la valeur minimale et la valeur maximale mesurées sur chaque site de prélèvement, augmente. Une telle hétérogénéité est à la fois le reflet des variations initiales des dépôts à l'échelle locale et de l'évolution du dépôt entre mai 1986 et le moment du prélèvement pour analyse (érosion des sols, migration latérale ou verticale du dépôt, par exemple) [A6].

Cette pente, déterminée à partir de mesures d'activité des sols et de hauteurs de pluie, rend compte du dépôt consécutif au lessivage des masses d'air par les pluies. Elle peut également être exprimée en Bq.l^{-1} , en considérant la hauteur de pluie (en mm) comme équivalente à un volume de pluie par unité de surface (en l.m^{-2}). La pente représente ainsi l'activité volumique de l'eau de pluie résultant du lessivage des masses d'air.

Dans la basse vallée du Rhône, l'activité de l'air les 2 et 3 mai, jours précédant les épisodes pluvieux des 3 et 4 mai, était comprise entre 0,7 et 0,8 Bq.m^{-3} . Il est ainsi possible d'en déduire une valeur du coefficient de lessivage, c'est-à-dire le rapport entre l'activité de l'air et l'activité de la pluie, compris entre 700 et 800 $\text{Bq.l}^{-1}.\text{Bq}^{-1}.\text{m}^3$ (ou $\text{m}^3.\text{l}^{-1}$). Le coefficient de lessivage traduit le chargement des gouttes d'eau en aérosols radioactifs, d'une part par emprisonnement des aérosols lors de la formation des gouttes d'eau dans le nuage et d'autre part, par entraînement des aérosols lors de leur chute. A Paris, un rapport de 700 $\text{m}^3.\text{l}^{-1}$ est calculé à partir de mesures d'air et d'eau de pluie collectés début mai 1986 (Thomas et Martin, 1986). Par ailleurs, différentes études réalisées sur des polluants atmosphériques non organiques, radioactifs ou non et fixés sur des aérosols micrométriques, ont montré que lorsqu'une masse d'air est polluée de manière assez homogène sur une épaisseur suffisante (jusqu'aux nuages porteurs de pluie), le coefficient de lessivage est de l'ordre de $500 \pm 200 \text{ m}^3.\text{l}^{-1}$ et ceci quel que soit l'élément chimique constituant le polluant (Chester *et al.*, 1997 ; De Bortoli *et al.*, 1974 ; Peckar, 1996 ; Renaud et Louvat, 2004). Le coefficient de lessivage de l'air est un paramètre « clé » des modèles génériques de dépôts de polluants atmosphériques prenant en compte les précipitations. Ainsi, le constat fait dans la basse vallée du Rhône d'une relation linéaire entre la quantité de pluie et les dépôts de ^{137}Cs au sol est cohérent avec les conclusions tirées des différentes études portant sur ce phénomène, qui montrent que le rapport entre la charge en polluants non organiques de l'eau de pluie et celle de l'air est assez constant.

L'amélioration de la connaissance des mécanismes des dépôts radioactifs en relation avec des épisodes pluvieux nous a permis de proposer une cartographie des dépôts de ^{137}Cs consécutifs à l'accident de Tchernobyl (figure 8).

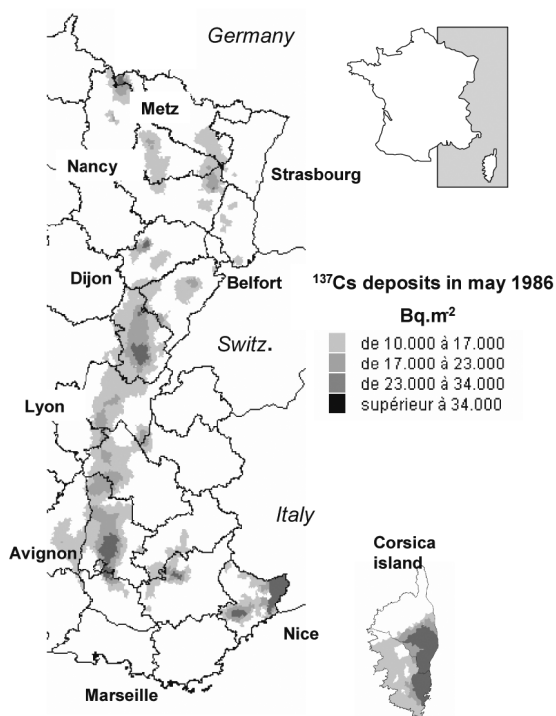


Figure 8. Cartographie des retombées de ^{137}Cs consécutives à l'accident de Tchernobyl (mai 1986) [A6]. Le 2 mai, juste avant les épisodes pluvieux, l'activité de l'air était très homogène sur tout l'Est de la France, comprise entre 0,5 et 1 Bq.m⁻³, si l'on excepte l'Alsace et l'extrême Sud-Est où les valeurs mesurées ont dépassé 1 Bq.m⁻³ (IPSN, 1987). Les 3 et 4 mai, cette homogénéité était conservée pour des valeurs allant de 0,1 à 0,5 Bq.m⁻³, le quart Sud-Est se maintenant à des valeurs supérieures (0,5 à 1 Bq.m⁻³). La relation (1) a pu ainsi être extrapolée à l'est d'une ligne Nîmes-Charleville-Mézières (longitude supérieure à 4° Est), compte tenu d'une relative homogénéité de l'activité des masses d'air sur cet ensemble. Les données brutes utilisées pour estimer les dépôts de ^{137}Cs sont les précipitations mesurées par les stations Météo-France entre le 1^{er} et le 5 mai 1986 (environ un millier de stations de mesures des précipitations, uniformément réparties sur cette portion du territoire). La cartographie des dépôts de ^{137}Cs repose sur l'interpolation des mesures de précipitation et l'application de l'équation (1). Les dépôts les plus importants (> 10 000 Bq.m⁻²) ont eu lieu dans l'arrière pays niçois, la vallée du Rhône, les massifs du Jura, des Vosges ainsi qu'en Corse.

Une confrontation a été effectuée entre les dépôts calculés au moyen de la relation (1) et les inventaires en ^{137}Cs des sols d'une vingtaine de sites de l'Est de la France témoignant des plus fortes précipitations (bassins versants du Var, du Tavignano et de la Moselle, échantillonnés en 1986) (tableau 1). Dans de nombreux cas, le rapport entre les dépôts calculés au moyen du modèle et les activités mesurées dans les sols est proche de 1 (La Roche de Glun, Sisteron, St-Jean-d'Ormont, etc.). Dans les autres cas, les écarts restent inférieurs à 50 %. Ils peuvent résulter soit d'une mauvaise estimation du dépôt par le modèle ou d'une insuffisante représentativité de la mesure de l'activité des sols.

Études (années)	Sites	Précipitations (mm)	Dépôts ^{137}Cs calculés ($\text{Bq}\cdot\text{m}^{-2}$)	Activités moy. ^{137}Cs des sols ($\text{Bq}\cdot\text{m}^{-2}$)	Activités mesurées/dépôts calculés
Var (1986)	Entraunes	6	5 350	6 950	1,3
	Puget	10	7 600	3 450	0,5
	Mallaussène	12	8 700	3 700	0,4
	Madonne Utel	21	13 750	11 900	0,9
	Valdebore	25	16 000	11 300	0,7
	St Auban	25	16 000	15 100	0,9
	Isola 2000	30	18 750	12 100	0,6
	Boreon	32	19 900	25 250	1,3
	Esteng	36	22 150	22 050	1,0
Moselle (1986)	St Jean d'Ormont	33	20 450	23 500	1,1
	Gérardmer	32	19 900	27 400	1,4
Tavignano (1986)	Corte	39	23 800	15 500	0,7
	Aléria	48	28 850	19 500	0,7
Autres (2001)	La Roche de Glun	37	22 700	19 800	1,1
	Sisteron	40	24 400	24 500	1,0

Tableau 1. Précipitations (1 - 5 Mai 1986), dépôts de ^{137}Cs en mai 1986 calculés à partir de la relation empirique (1) et activités surfaciques mesurées dans les sols.

Prise en compte de la variabilité spatiale de l'activité de l'air pour la modélisation des dépôts [B4].

La relation « pluie-dépôt » établie à partir des inventaires des sols de la basse vallée du Rhône a été appliquée à l'Est de la France, où l'activité dans l'air en ^{137}Cs a été relativement homogène début mai 1986. La relation « pluie-dépôt » est applicable sur l'ensemble du territoire français, à la condition de prendre en compte la variation de l'activité des masses d'air. Ainsi, dans une deuxième étape, nous avons cherché à décrire cette variation à l'échelle du pays [B4].

En mai 1986, les activités volumiques en ^{131}I et en ^{137}Cs dans l'air ont été mesurées par le Service central de protection contre les rayonnements ionisants (SCPRI, 1986) dans le cadre de son programme de surveillance de l'environnement, ainsi que par les services de protection radiologique de certains centres du Commissariat à l'énergie atomique (IPSN, 1987). Cependant, peu de données d'activités de l'air permettant d'analyser avec précision la variabilité spatiale de la contamination du compartiment atmosphérique sont disponibles (tableau 2). Il apparaît que les activités diminuent en fonction de la longitude, de plus de $0,8 \text{ Bq.m}^{-3}$ en ^{137}Cs à Nice à $0,05 \text{ Bq.m}^{-3}$ à Cherbourg.

Sites	Longitudes*	Activités (Bq.m^{-3})	
		^{137}Cs	^{131}I
Cherbourg	-1,38	0,05	0,08
Biarritz	-1,32	0,012	0,015
Tours	0,43	0,11	0,28
Vésinet	2,08	0,69	0,75
Bourges	2,22	0,12	0,14
Lille	3,06	0,39	0,49
Marcoule	4,42	0,75	1,80
Grenoble	5,44	0,32	0,60
Cadarache	5,45	0,83	4,16
Nice	7,12	0,80	1,50

*0= méridien de Greenwich

Tableau 2. Activités moyennes en ^{137}Cs , en ^{131}I dans l'air entre le 1^{er} et le 3 mai 1986 (d'après SCPRI, 1986 et IPSN, 1987)

Cette évolution est-ouest est cohérente avec la trajectoire globale des masses d'air. Ainsi, seuls les rejets émis le 27 avril sont parvenus sur l'Europe de l'Ouest et la France, suivant une trajectoire est, pour ceux du matin du 27 et sud-est pour ceux du 27 après-midi. La diminution des activités mesurées dans l'air est due, d'une part à cette trajectoire du panache qui a laissé à sa marge l'Ouest de la France, et d'autre part aux pluies importantes dans l'Est de la France qui ont achevé le lessivage du panache qui avait déjà commencé lors des épisodes pluvieux sur l'Autriche, la Suisse, l'Italie du Nord et l'Allemagne du Sud. La figure 9 montre que la diminution des activités volumiques dans l'air d'est en ouest est assez bien décrite par une relation exponentielle de la longitude, suivant des constantes très proches pour ^{137}Cs et ^{131}I de $0,41 \text{ (}^\circ\text{)} \text{ long}^{-1}$ et $0,48 \text{ (}^\circ\text{)} \text{ long}^{-1}$ respectivement.

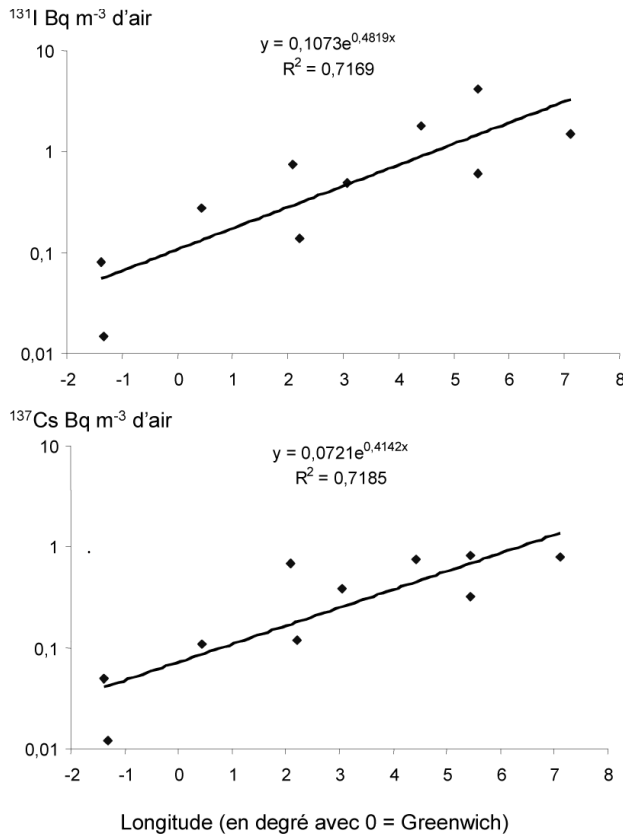


Figure 9. Variations des activités volumiques en ¹³¹I et en ¹³⁷Cs mesurées dans l'air entre le 1^{er} et le 3 mai 1986, en fonction de la longitude [B4].

L'appauvrissement des masses d'air en ¹³⁷Cs et en ¹³¹I s'est donc traduit par une diminution d'est en ouest des dépôts pluvieux. Pour décrire globalement cette diminution sur l'ensemble du territoire, nous avons retenu une fonction exponentielle décroissante de constante égale à 0,43 (°) long⁻¹, moyenne des quatre constantes obtenues pour ¹³⁷Cs et ¹³¹I dans l'air et l'eau de pluie. Les dépôts de ¹³⁷Cs de mai 1986 à l'ouest de 4° de longitude est ont ainsi été calculés, en fonction des hauteurs de pluie enregistrées par Météo-France et de la longitude (long i), par l'équation (2) :

$$\text{Dépôt de } ^{137}\text{Cs (Bq.m}^{-2}\text{)}_{(\text{Long } i)} = [560 \times [\text{hauteur de pluie en mm}^*] + 1000] \times e^{(0,43 \times (\text{Long } i - 4))} \quad (2)$$

* cumul des précipitations qui ont eu lieu entre le 1^{er} et le 5 mai

2.1.2 Hétérogénéité des dépôts de l'accident de Tchernobyl à l'échelle d'une zone atelier en altitude : exemple du Mercantour

En Europe occidentale, les Alpes figurent parmi les zones les plus touchées après l'accident de Tchernobyl (Cigna *et al.*, 1987 ; Bunzl et Kracke, 1988 ; Lettner *et al.*, 1999 ; Denk et Felsmann, 1990 ; Belli *et al.*, 1989). Dans le Mercantour, en particulier, on observe de fortes hétérogénéités des radioéléments déposés après l'accident. Sur des surfaces très réduites de quelques dm² à quelques m², l'activité en ¹³⁷Cs des sols peut dépasser 100 000 Bq.m⁻² (Barci-Funel *et al.*, 1992). Les recherches que j'ai menées sur ces fortes hétérogénéités des dépôts accidentels répondent à trois objectifs :

- réaliser un bilan de la répartition spatiale et de l'origine des radioéléments artificiels mis en jeu sur une zone atelier représentative (surface de 2500 m² environ), comportant de fortes activités en ¹³⁷Cs. Les données montrent que les surfaces qui témoignent des plus fortes activités en ¹³⁷Cs ne représentent que 6 % environ de la surface de prairie étudiée, mais contiennent jusqu'à 44 % du stock total de ce polluant radioactif. Les rapports d'activité des isotopes du césium (¹³⁴Cs/¹³⁷Cs) attestent sans ambiguïté que la répartition spatiale du césium dépend de son origine : le césium issu de l'accident de Tchernobyl est localisé dans les zones présentant les plus forts enrichissements, alors que la répartition du césium (ou de l'américium) provenant des dépôts globaux (tirs atmosphériques nucléaires) est plus homogène (figure 10) ;
- comprendre les processus de concentration à l'interface sol/atmosphère. La distribution des traceurs naturels des dépôts atmosphériques (comme ²¹⁰Pb et ⁷Be) dans les différents compartiments de la zone atelier Mercantour (neige, herbe, litière et sol) (figure 11) ainsi que l'hétérogénéité des accumulations de neige ont permis de conclure que la concentration du dépôt atmosphérique dans les zones de montagne, dans les jours qui ont suivi l'accident de Tchernobyl, provient de la formation de congères dans les dépressions de la prairie. Le processus de concentration des dépôts atmosphériques accidentels en zone de montagne, mis en évidence par ces traceurs naturels, est confirmé par les corrélations avec les contaminations des sols en certains métaux lourds d'origine atmosphérique (Cr, Ni, Pb et As) ;

- modéliser les inventaires de ^{137}Cs à l'échelle d'un bassin versant montagnard de quelques dizaines de km^2 , pour dresser un bilan des surfaces mises en cause. Ce bilan, effectué dans le cadre d'une collaboration avec J-M. Métivier (IRSN), repose sur l'utilisation d'un système d'information géographique qui intègre l'activité des sols, en fonction de l'occupation des sols (zone de forêt, zone de prairie, surface minérale) et de la topographie (pour localiser les zones de formation des congères, où se concentrent les dépôts de Tchernobyl). Le bilan réalisé à l'échelle du bassin versant montre que les points de concentration deviennent négligeables, puisqu'ils représentent moins de 1% de l'inventaire total.

Ces objectifs, les approches suivies et les résultats qui en découlent ont fait l'objet d'une publication à *Journal of Environmental Radioactivity* [A5].

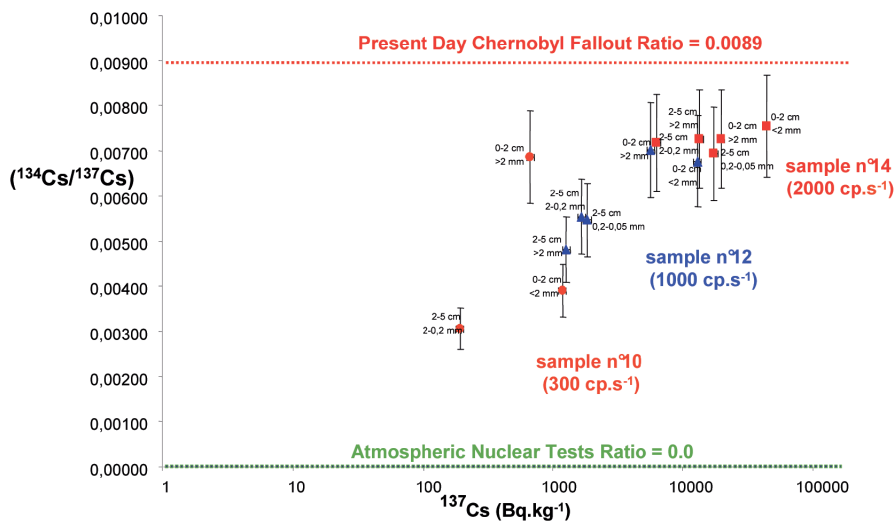
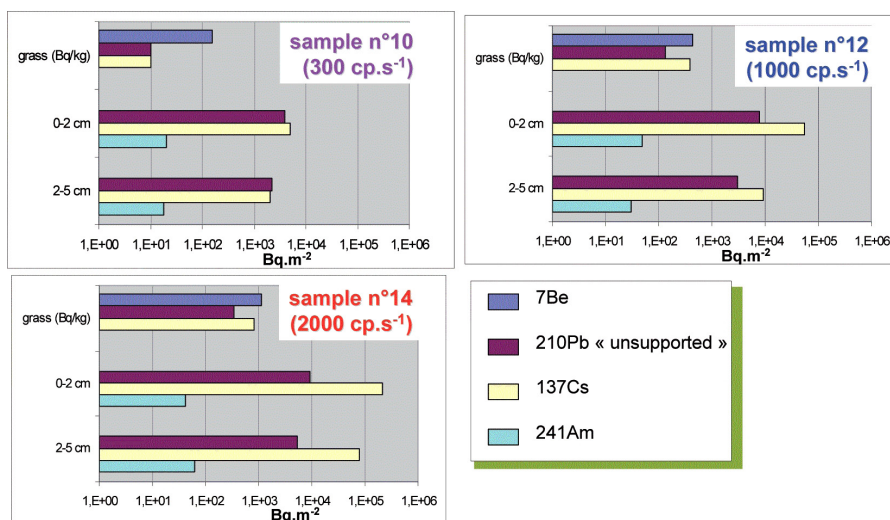


Figure 10. Variations des rapports d'activité $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ en fonction des activités en ^{137}Cs dans la litière (0 - 2 cm), le sol (2 - 5 cm) et de fractions granulométriques de trois sites (n°10, 12 et 14), distants d'une dizaine de mètres environ et présentant une augmentation de la radioactivité ambiante (300, 1000 et 2000 coups.s⁻¹), sur la zone atelier Mercantour. Des variations de l'activité en ^{137}Cs et du rapport d'activité $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ existent à toutes les échelles d'observations des sols (échelle millimétrique à micrométrique des agrégats, échelle centimétrique des horizons), mais les plus fortes variations de ces grandeurs sont observables à l'échelle métrique, entre les trois sites de prélèvement.

À cette échelle, l'amplitude des variations de l'activité en ^{137}Cs atteint deux ordres de grandeur, illustrant la forte hétérogénéité de la contamination des sols dans le Mercantour. Le rapport d'activité des isotopes radioactifs du césium établi sans ambiguïté la prépondérance des retombées de Tchernobyl, dans les sites les plus contaminés (n°12 et 14 : 80 - 85 % du césium provient de cette source), par rapport au site de référence (300 coups.s⁻¹) qui comporte du ^{137}Cs des deux sources en quantité comparable [A5].



Ces hypothèses sont confirmées par les données des différents compartiments dans lesquels l'hétérogénéité spatiale des polluants radioactifs est corrélée avec celle des traceurs atmosphériques naturels (^{210}Pb atmosphérique et ^7Be). Ainsi, dans les sols, on observe également un accroissement des inventaires en ^{210}Pb d'origine atmosphérique, en fonction de la distance (de 6 000 à 12 000 $\text{Bq}\cdot\text{m}^{-2}$). Les activités en ^7Be mesurées dans l'herbe et les litières augmentent également, passant de 156 à 1 121 $\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ et de 50 à 300 $\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ respectivement. Enfin, une variabilité spatiale comparable de l'activité en ^7Be est observée dans les accumulations neigeuses échantillonnées sur ces trois sites (50 à 150 $\text{Bq}\cdot\text{m}^{-2}$) (données non reportées sur la figure).

Ainsi, la variabilité des activités des radioéléments atmosphériques anthropiques et naturels dans les différents compartiments d'une zone de prairie naturelle suggère des processus de concentration des dépôts atmosphériques à l'interface sol/atmosphère, liés aux chutes de neige, à la formation des congères (en fonction de la topographie locale) et au ruissellement lors de la fonte.

2.2 Projet de recherche en cours : variabilités des dépôts atmosphériques sur les massifs montagneux.

Le but des recherches menées sur les dépôts atmosphériques globaux est d'évaluer les paramètres environnementaux à l'origine de la variabilité de ces dépôts sur le territoire français. À cette fin, mes recherches s'appuient sur des prélèvements de sols et des mesures de radioéléments artificiels (^{137}Cs , ^{241}Am , plutonium et ^{90}Sr provenant des retombées globales atmosphériques) et naturels (^{210}Pb en excès) réalisées dans différents massifs (Alpes, Auvergne, Montagne-Noire, Jura, Vosges et Corse) (figure 12). En effet, individuellement, ces massifs présentent de fortes variabilités (altitude et précipitations, par exemple) et de fortes variabilités existent également entre les différents massifs (variabilités climatiques, notamment). Il s'agit d'expérimenter les principaux paramètres environnementaux des zones de montagne (altitude, précipitations moyennes annuelles, couvert végétal) à l'origine des variations des dépôts des retombées globales.

Les quelques données dont on dispose montrent, par exemple, que l'altitude est un paramètre prépondérant des dépôts chroniques des polluants atmosphériques, puisqu'une augmentation significative des inventaires en plutonium des sols en fonction de l'altitude est observable dans la montagne noire et la chaîne des Puys (figure 13).



Figure 12. Localisation des sites de prélèvements des sols dans différents massifs, en fonction des précipitations moyennes annuelles et de l'altitude (en rouge) et des stations OPERA qui mesurent l'activité dans l'eau de pluie et dans l'air [A13]. Ce dispositif de prélèvements permet, en certains points, de comparer les données des « pluviomètres naturels » (les sols) et des pluviomètres artificiels.

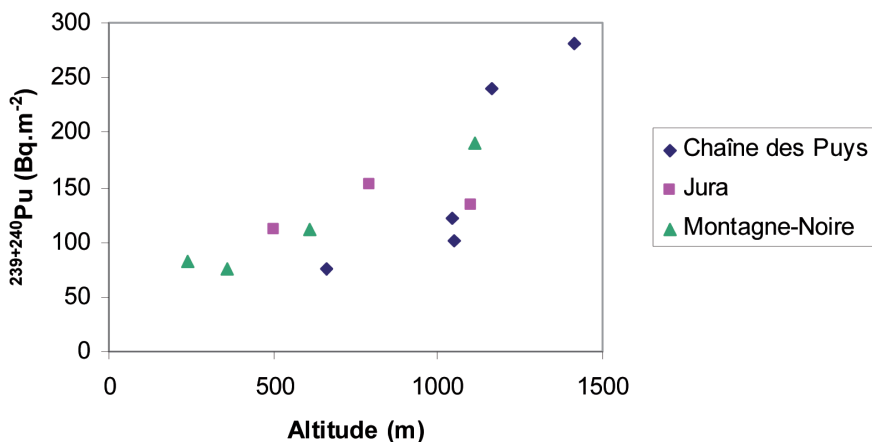


Figure 13. Variabilité des inventaires en plutonium provenant des retombées globales dans les sols de la chaîne des Puy, du Jura et de la montagne Noire,

en fonction de l'altitude. À l'échelle d'observation proposée ici (plusieurs massifs montagneux), les inventaires des sols constituent l'empreinte des dépôts des retombées globales. Les précipitations moyennes annuelles sur un pays ou une région constitue une « variable dure » qui expliquent la variabilité des inventaires en radioéléments artificiels provenant des tirs atmosphériques, car un lien direct entre les précipitations et les dépôts a été expérimenté (Cigna et al., 1987 ; Bunzl et al., 1988 ; Mitchell et al., 1990). Les données présentées ici suggèrent un lien entre l'altitude et les dépôts atmosphériques globaux. L'altitude constitue une « variable molle » qui explique la variabilité des dépôts (la relation entre altitude/précipitations étant implicite), qui doit permettre de modéliser les dépôts sur une région montagneuse.

Dans le cadre de la problématique des dépôts atmosphériques, je m'intéresse également aux inventaires en ^{210}Pb atmosphérique dans les sols de montagne. Les inventaires de ce radioélément naturel doivent servir de traceur de l'accumulation des polluants atmosphériques sur les massifs. Précisons que les inventaires des sols découlent de l'accumulation du ^{210}Pb (période : 22,2 ans) sur le long-terme (> 50 ans). Ce traceur doit permettre de cibler les massifs ou les zones les plus exposées à l'accumulation sur le long-terme des dépôts de polluants d'origine atmosphérique.

Sur les massifs étudiés, les premiers résultats font apparaître des augmentations des inventaires en ^{210}Pb des sols, en fonction des précipitations moyennes annuelles (figure 14). Dans le domaine des fortes précipitations, on observe une accentuation des accumulations atmosphériques, probablement due à une superposition de dépôts occultes (neige, brouillard) au dépôt humide. Enfin, les accumulations plus importantes dans les sols sous couvert forestier s'expliquent par la prépondérance des dépôts par temps secs sur les zones de forêt, en comparaison des zones de prairie.

Les recherches sur la thématique des dépôts atmosphériques, menées en collaboration avec G. Le Roux (post-doctorant à l'IRSN), font l'objet d'une publication à *Atmospheric Environment* [A13].

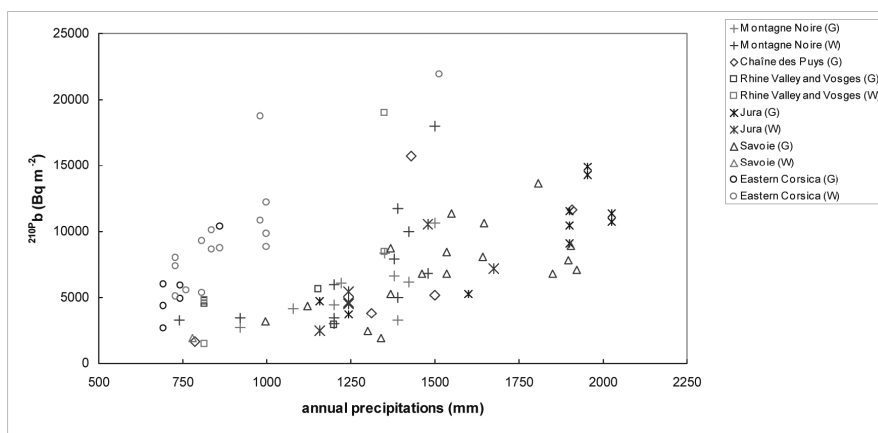


Figure 14. Variabilité des inventaires en ^{210}Pb des sols des massifs étudiés, en fonction des précipitations moyennes annuelles et du couvert végétal (G : grassland/ W : woodland). Les précipitations moyennes annuelles proviennent d'une modélisation spatiale effectuée par Météo-France sur le territoire métropolitain (modèle AURELHY). Sur l'ensemble des massifs étudiés, les données témoignent de l'augmentation du dépôt, lorsque les précipitations augmentent. À l'exception notable de la Corse, les pentes déduites de ce diagramme ($240 - 410 \text{ Bq.m}^{-3}$) sont en accord avec les activités moyennes mesurées dans les échantillons d'eau de pluie des stations IRSN OPERA de Clermont-Ferrand (150 Bq.m^{-3}), Dijon (200 Bq.m^{-3}), Bordeaux (120 Bq.m^{-3}) et de la Seyne-sur-Mer (400 Bq.m^{-3}). Ceci montre qu'en première approximation le dépôt atmosphérique provient du lessivage des aérosols de la colonne d'air. Une accentuation des dépôts par rapport aux précipitations est visible en montagne Noire et sur la chaîne des Puys, pour $p > 1250 \text{ mm.an}^{-1}$ ainsi que dans le Jura pour $p > 1800 \text{ mm.an}^{-1}$. Ceci peut provenir d'une surestimation des précipitations moyennes annuelles pour les zones d'altitude, provenant du modèle AURELHY. La prépondérance des dépôts occultes (brouillards) sur ces zones peut également expliquer l'excès de ^{210}Pb . La plus forte pente déduite des données de Corse suggère des activités plus importantes dans les pluies qui surviennent sur cette zone. Cette hypothèse doit être confirmée par des mesures dans l'air et dans l'eau de la pluie. Enfin, la prépondérance des dépôts par temps secs sur les zones de forêt en comparaison avec des zones de prairie explique les inventaires plus importants des sols sous couvert forestier [A13].

2.3 Publications dans le cadre de la thématique des dépôts atmosphériques des polluants radioactifs

2.3.1 Publications de rang A

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

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

A13. LE ROUX G., POURCELOT L., MASSON O., DUFFA C., VRAY F., RENAUD P., Use of inventories of natural and artificial radionuclides in soils to estimate total aerosols deposition and origin in French mountains, *Atmospheric Environment*, 42, p. 1517-1524.

2.3.2 Publications de rang B

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

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

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

2.3.3 Congrès, colloques et réunions scientifiques

C21. POURCELOT L., BOUISSET P., CALMET D. and LOUVAT D. (2000) - Spatio temporels variability of cesium fallout in one high altitude catchment basin, Goldschmidt 2000, Oxford UK, Journal of Conference Abstracts vol 5, p. 815.

C24. POURCELOT L., BOUISSET P. and LOUVAT D. (2001) - Concentration processes of radionuclides fallout in high altitude area, ECORAD 2001, Aix en Provence, France

C25. RENAUD Ph., MÉTIVIER J-M., POURCELOT L. and MORELLO M. (2001) - Atmospheric Processes leading to the variability of ^{137}Cs Chernobyl fallout in France, Fifteen Years after the Chernobyl Accident. Lessons Learned, Kyiv, Ukraine.

C26. POURCELOT L., LOUVAT D., GAUTHIER-LAFAYE F., DEL NERO M. and STILLE P. (2001) - Radionuclides as tracers of atmospheric fallout enrichment processes in mountain soils, European Union of Geosciences XI, Strasbourg, France.

C29. MÉTIVIER J-M. and POURCELOT L. (2002) - Modelling spatial variability of ^{137}Cs deposits in a mountain area, Envirossoft 2002, Bergen, Norgem.

C31. POURCELOT L., FROIDEVAL A., DEL NERO M., MURITH Chr., GAUTHIER-LAFAYE F. and STILLE P. (2002) - Processes of concentration and migration of airborne fission products and transuranian elements in mountain soils, Proceeding from the international conference on radioactivity in the environment, Monaco.

C41. CHAMPION D., RENAUD PH., METIVIER J-M., POURCELOT L., GARCIA-SANCHEZ L., ISNARD, LINDEN G., LEMAITRE N. (2005) - Interprétation phénoménologique et analytique de la relation pluie-dépôt utilisée pour la reconstitution des dépôts de ^{137}Cs en France consécutifs à l'accident de Tchernobyl, Congrès SFRP2005, Nantes.

C43. LE ROUX G., POURCELOT L., MASSON O., DUFFA C., VRAY F., RENAUD P. (2006) - Use of inventories of natural and artificial radionuclides in soils to estimate total aerosols deposition and origin in French mountains, Réunion des Sciences de la Terre/Earth Science joint Meeting, Dijon, 4-8 Décembre 2006.

C44. POURCELOT L., LE ROUX G., RENAUD PH., VRAY F., MASSON O. (2007) - Tracing global fallout using ^{210}Pb and artificial radionuclides inventories in mountainous area, Goldschmidt Conference 2007, Cologne, RFA, 19-24 août 2007.

C46. LE ROUX G., POURCELOT L., MASSON O., DUFFA C., VRAY F., RENAUD PH., (2007)- Use of inventories of natural and artificial radionuclides to estimate total aerosols deposition and origin in French mountains , European Aerosols Conference 2007, Salsbourg, 9-14 septembre 2007,

2.3.4 Rapports IRSN sur les retombées de Tchernobyl en France

R2. POURCELOT L., LEPRIEUR F., MARQUET J. (2001) - Rapport scientifique annuel 2000. Contamination des bassins versants d'altitude suite à l'accident de Tchernobyl : Exemple du Massif du Mercantour – Institut de protection et de sûreté nucléaire, *Rapport IPSN/DPRE/SERNAT 2001-12*, 79 p.

R3. RENAUD Ph., DESCAMPS B., POURCELOT L., LOUVAT D. (2001) - Synthèse des connaissances acquises par l'IPSN en Corse à la suite de l'accident de Tchernobyl – Institut de protection et de sûreté nucléaire, *Rapport IPSN/DPRE/SERNAT 2001-18*, 14 p.

R4. POURCELOT L., METIVIER J-M (2001) - Modélisation Spatiale des dépôts des sols du Mercantour - Institut de protection et de sûreté nucléaire, *Rapport IPSN/DPRE/SERNAT 2001-25*, 21 p.

R5. LOUVAT D., POURCELOT L., RENAUD Ph. (2001) - Représentativité des cartes de répartition des radionucléides issus des retombées de l'accident de Tchernobyl (^{131}I et ^{137}Cs) dans l'Est de la France et utilisation pour la radioprotection des populations - Institut de protection et de sûreté nucléaire, *Rapport IPSN/DPRE/SERNAT 2001-26*, 15 p.

R6. POURCELOT L., RENAUD Ph., MORELLO M., MARQUET J. (2001) - Etat de la contamination en ^{137}Cs des sols de la commune de Sisteron (Alpes de Haute Provence) - Institut de protection et de sûreté nucléaire, *Rapport IPSN/DPRE/SERNAT 2001-28*, 8 p.

R7. RENAUD Ph., ROBEAU D., VIDAL M., POURCELOT L. (2002) - Contamination de la chaîne alimentaire Corse à la suite de l'accident de Tchernobyl et doses à la thyroïde associées, *Rapport IRSN 2002-22*, 20 p.

R8. POURCELOT L., RENAUD Ph. (2002) - Etude des retombées de l'accident de Tchernobyl en Corse – Estimation des dépôts de 1986 et état actuel de la contamination des sols, *Rapport IRSN 2002- 21*, 34 p.

R9. POURCELOT L., MURITH Chr., FROIDEVAUX P., MORELLO M., AGARANDE M., AUBERT D., STILLE P., GAUTHIER-LAFAYE F. (2003)- Géochimie des Transuraniens des Sols du Mercantour et des Vosges, *Rapport IRSN/DEI/SESURE 2003-07*, 34 p.

R11. RENAUD Ph., LEPRIEUR F., METIVIER J-M., POURCELOT L., DUFFA C., LEMAITRE N., LINDEN G., CHAMPION D. (2004) - Eléments de réponse sur les représentations cartographiques des retombées de l'accident de Tchernobyl en France, *Rapport IRSN/DEI 2004-02*, 41 p.

R12. RENAUD Ph. et al. (2004) - Rapport Final CAROL IRSN/DEI/SESURE 2004-22, 42 p.

R15. RENAUD Ph., GARCIA-SANCHEZ L., METIVIER J-M., POURCELOT L., CHAMPION D. (2005) - Interprétation phénoménologique et analytique de la relation pluie-dépôt utilisée pour la reconstitution des dépôts de ^{137}Cs en France consécutifs à l'accident de Tchernobyl, *Rapport IRSN/DEI 2005-03*, 105 p.

CHAPITRE 3

Transferts des radioéléments artificiels dans les sols

Dans les mois et les années qui suivent les dépôts radioactifs sur les sols et la végétation, les contaminants subissent dans le sol des processus physicochimiques et biologiques qui déterminent des voies de transferts à long-terme dans la biosphère. Certains processus (sorption/désorption, fixation, réaction chimique, effet des microorganismes, etc.) modifient les propriétés chimiques des radioéléments. D'autres processus agissent directement ou indirectement sur les migrations verticales des contaminants dans les sols et le transfert aux plantes (diffusion, lessivage, transfert racinaire, bioturbation, etc.). Enfin, des processus comme le ruissellement, l'érosion ou la resuspension, etc. favorisent le transport latéral des polluants.

Mes recherches s'inscrivent dans la thématique des voies de transferts des polluants radioactifs dans les sols et, plus particulièrement, sur les migrations verticales dans les sols et les transferts aux plantes avec, comme exemple, des transferts dans les zones de prairie permanentes. En effet, comprendre et prévoir la migration verticale des polluants radioactifs dans les sols revêtent une grande importance : si les vitesses de migration sont faibles, les radioéléments immobilisés dans l'horizon racinaire sont accessibles aux plantes pendant une longue période et sont à l'origine d'une contamination persistante de la chaîne alimentaire (Bossew et Kirchner, 2004). Mais, dans le cas inverse, les migrations rapides dans les sols induisent des contaminations des eaux souterraines (Waber *et al.*, 1987 ; Munschenk, 1996 ; Oktay *et al.*, 2000). Par ailleurs, le transfert des polluants radioactifs à l'interface sol/plante et l'ingestion de denrées alimentaires contaminées augmentent l'exposition des populations.

Mon travail ne prétend pas décrire les processus qui s'opèrent dans les sols et qui, dans leur majorité, ne sont accessibles que par l'expérimentation. Les prélèvements que je réalise dans le milieu naturel et les mesures des radioéléments rendent compte des voies de transferts dans les différents compartiments étudiés, qu'il s'agisse du sol lui-même (transfert par migration verticale) ou de l'interface sol/plante.

Mon objectif est de dégager des paramètres environnementaux qui interviennent dans la modélisation empirique des voies de transferts des polluants radioactifs dans les sols (type de sol, taux d'argiles, nature de la végétation, etc.). Il s'agit, à terme, de hiérarchiser les paramètres du milieu qui interviennent dans les transferts et qui sont susceptibles d'aggraver les conséquences pour l'homme de la contamination du milieu terrestre. L'approche que j'ai suivie est l'étude de la répartition des éléments radioactifs dans les différents compartiments des sols (horizons, eaux interstitielles, lessivats, racines) et dans les différents compartiments des zones de prairie : sols, herbes, jusque dans le lait des vaches et le fromage de ces zones.

3.1 Transfert par migration des polluants radioactifs dans les sols

La première approche de la mobilité des radioéléments dans les sols est relativement classique. Elle repose sur l'étude de la répartition

verticale des radioéléments dans des sols de nature différente. La seconde approche est plus novatrice. Elle est basée sur l'utilisation d'analogues géochimiques des radioéléments artificiels. Une part importante des prélèvements et des analyses a été réalisée dans le cadre de l'Observatoire hydrogéochimique de l'environnement d'Aubure (EOST, université L. Pasteur, Strasbourg), en collaboration avec P. Stille, F. Gauthier-Lafaye (Centre de géochimie de la surface, UMR 7517 CNRS ULP) et D. Aubert (Centre de formation et de recherche sur l'environnement marin, Perpignan).

3.1.1 Mobilité verticale des radioéléments dans des profils de sol : étude des répartitions verticales

On évalue ici les vitesses de migration des radioéléments en faisant l'hypothèse que la répartition des radioéléments dans les sols en fonction de la profondeur est le reflet d'un phénomène diffusif. Ce processus est simulé par une série de compartiments connectés entre eux par des flux descendants du polluant radioactif considéré. L'équation différentielle (3) décrit les variations de l'activité du radioélément étudié A_n ($\text{Bq}\cdot\text{m}^{-2}$) dans l'horizon n , pendant un intervalle de temps Δt :

$$\frac{\Delta A_n}{\Delta t} = K_{n-1,n} \cdot A_{n-1} - K_{n,n+1} \cdot A_n - \lambda \cdot A_n \quad (3)$$

dans laquelle $K_{n-1,n}$ (an^{-1}) est la constante de transfert du compartiment $n-1$ au compartiment n (Bunzl *et al.*, 1995). Les constantes de transfert de chaque compartiment sont déduites par ajustement de la courbe modélisée, en vue de reproduire la courbe expérimentale de diffusion verticale.

En complément, une autre approche de la mobilité des radioéléments a été proposée. Elle consiste à évaluer la variabilité des rapports d'activités des radioéléments au sein d'une colonne de sol. En effet, les migrations des polluants induisent des variations des rapports d'activité en fonction du lessivage des éléments les plus mobiles par rapport à d'autres, supposés moins mobiles. Ainsi, on a étudié la variabilité des rapports $^{90}\text{Sr}/^{239+240}\text{Pu}$ et $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$.

Ces deux approches de la mobilité des radioéléments artificiels ont

motivé les recherches menées par N. Solovitch-Vella, lors de son post-doctorat à l'IRSN (2004-2005). La répartition verticale des radioéléments artificiels a été étudiée dans un sol de l'OHGE d'Aubure, ainsi que dans une carotte de tourbe échantillonnée dans le massif du Mercantour et analysée en collaboration avec P. Froidevaux (Institut de radiophysique appliquée, université de Lausanne).

Les résultats montrent que les rapports $^{90}\text{Sr}/^{239+240}\text{Pu}$ les plus faibles sont observés dans le profil des Vosges ($^{90}\text{Sr}/^{239+240}\text{Pu}$ varie entre 1 et 5) (figure 15).

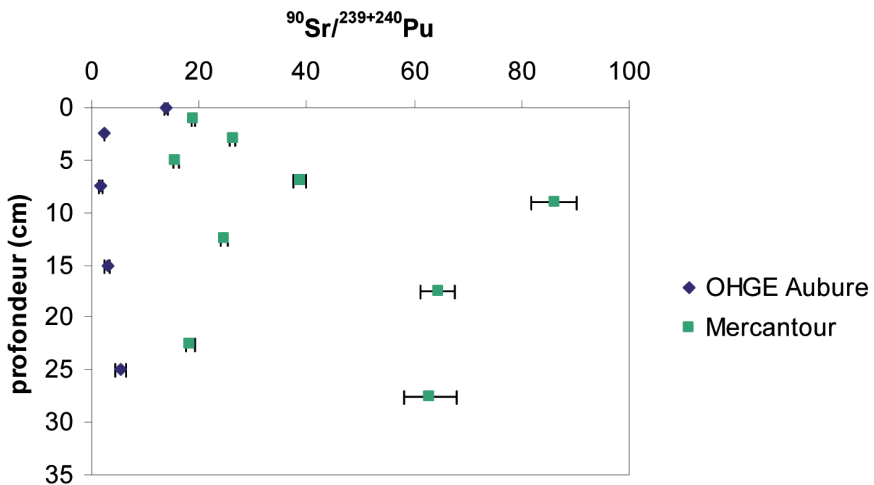


Figure 15. Variabilité du rapport $^{90}\text{Sr}/^{239+240}\text{Pu}$, en fonction de la profondeur dans deux profils de sol : sol du massif des Vosges (Observatoire hydrogéochimique de l'environnement, Aubure) et tourbière du Mercantour. Les rapports les plus faibles sont observés dans le profil des Vosges ($^{90}\text{Sr}/^{239+240}\text{Pu}$ varie entre 1 et 5). Ils s'expliquent par la forte mobilité verticale du radiostrontium dans ce type de sol, sableux et très acide (pH : 3,7 - 4,9). Cette hypothèse est confirmée par les vitesses de migration de cet élément (2 - 4 $\text{cm}\cdot\text{an}^{-1}$), qui sont supérieures d'un ordre de grandeur à celles du plutonium (0,2 - 0,6 $\text{cm}\cdot\text{an}^{-1}$). Cependant, d'importants transferts de radiostrontium à la végétation ne sont pas exclus, expliquant les fortes activités mesurées dans les litières (jusqu'à 110 $\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$) [A11].

Ils s'expliquent par la forte mobilité verticale du radiostrontium dans ce type de sol, sableux et très acide (pH : 3,7 - 4,9). Cette hypothèse est

confirmée par les vitesses de migration de cet élément ($2 - 4 \text{ cm.an}^{-1}$), qui sont supérieures d'un ordre de grandeur à celles du plutonium ($0,2 - 0,6 \text{ cm.an}^{-1}$). Cependant, d'importants transferts de radiostrontium à la végétation ne sont pas exclus, comme le montrent les fortes activités mesurées dans les litières (jusqu'à 110 Bq.kg^{-1}).

Les rapports $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ les plus faibles ($< 0,1$) sont observés à la base du profil échantillonné dans la tourbière du Mercantour en comparaison du sommet du profil, où les valeurs sont plus proches du rapport théorique ($0,4$) (figure 16).

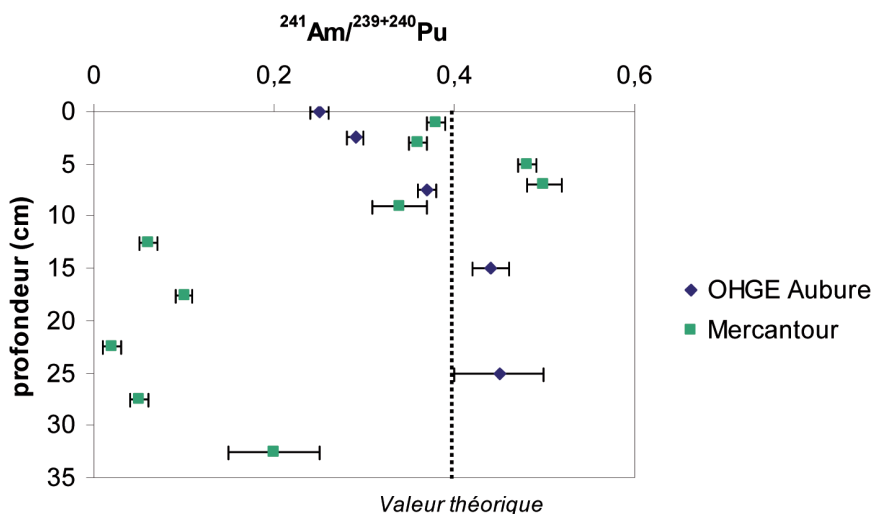


Figure 16. Variabilité verticale du rapport d'activité $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ des sols du massif des Vosges (Observatoire hydrogéo chimique de l'environnement d'Aubure) et d'une tourbière du Mercantour, en comparaison du rapport $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ théorique dans les sols (de l'ordre de $0,4$). Les rapports les plus faibles sont observés à la base du profil échantillonné dans la tourbière du Mercantour ($< 0,1$) en comparaison du sommet du profil, où les valeurs sont plus proches du rapport théorique. Ces faibles valeurs s'expliquent par la forte mobilité verticale de l'américium dans ce sol saturé, très riche en matière organique, mais dont les eaux témoignent d'un pH alcalin ($\text{pH} \sim 8$). Les données du profil de sol des Vosges laissent supposer une plus grande mobilité de l'américium. En effet, au sommet du profil, on observe à la fois des rapports $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ plus faibles que la valeur théorique et des vitesses de migration de l'américium (1 à $3,5 \text{ cm.an}^{-1}$) supérieures à celles du plutonium d'un ordre de grandeur ($0,1$ à $0,3 \text{ cm.an}^{-1}$) [A11].

Ces faibles valeurs s'expliquent par la forte mobilité verticale de l'américium dans ce sol saturé, très riche en matière organique, mais dont les eaux témoignent d'un pH alcalin (pH~8). Les données du profil de sol des Vosges laissent supposer une plus grande mobilité de l'américium. En effet, au sommet du profil, on observe à la fois des rapports $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ plus faibles que la valeur théorique et des vitesses de migration de l'américium (1 à $3,5 \text{ cm.an}^{-1}$) supérieures à celles du plutonium d'un ordre de grandeur ($0,1$ à $0,3 \text{ cm.an}^{-1}$).

Les résultats principaux ont fait l'objet d'une publication à *Applied Geochemistry* [A11].

3.1.2 Mobilité verticale des radioéléments dans des profils de sol : étude des analogues géochimiques

Dans les environnements de surface, le devenir des radioéléments est difficile à évaluer, dans la mesure où ces polluants ne sont présents que depuis quelques décennies. Dans les sols, l'utilisation des analogues biogéochimiques des radioéléments artificiels doit permettre d'évaluer la répartition et les transferts à long-terme de ces polluants dans les différents compartiments des sols (les horizons d'un profil, les fractions granulométriques, les fractions lessivables et les eaux interstitielles), auxquels la métrologie nucléaire n'accède pas facilement, au regard des faibles activités déposées par les dépôts globaux ou les dépôts accidentels.

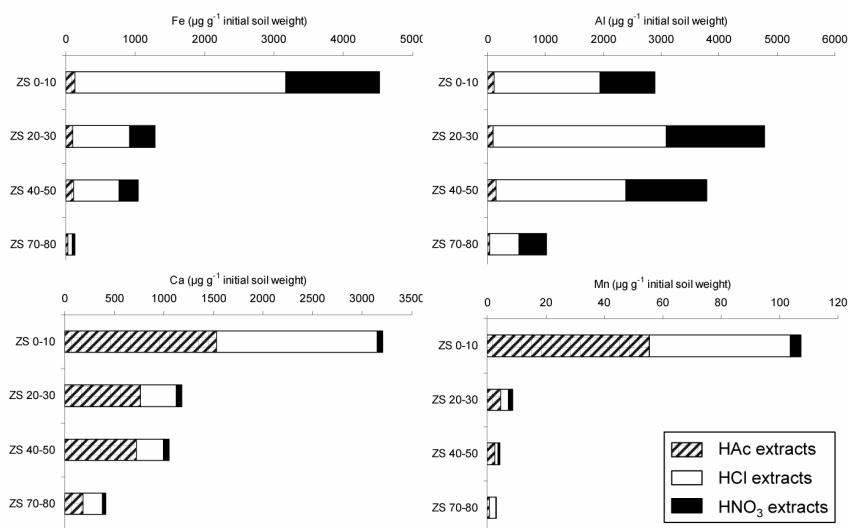
Le comportement du strontium et du césium stables (^{86}Sr et ^{133}Cs , respectivement) a été peu étudié aux interfaces sol/eau des sols ou sol/plantes, comme analogue du radiostrontium et du radiocésium. Les publications sur le thème des analogues géochimiques des polluants radioactifs sont focalisées sur les transferts de césium stable à la végétation, dans le but de proposer des valeurs de facteurs de transfert (rapport de la concentration d'un élément trace entre un végétal et le sol où il se développe) utilisables dans les modèles de transfert en radioécologie (Rühm *et al.*, 1999 ; Yoshida *et al.*, 2004 ; Karadeniz et Yaprak, 2007). La principale incertitude de cette approche réside dans le fait qu'une forte proportion des éléments traces mesurables dans les sols appartient au compartiment minéral du sol : les éléments traces des minéraux primaires formant le « fond géochimique » des sols (Baize

et Sterckeman, 2001). En conséquence, seule la mesure des éléments traces à l'interface sol/solution des sols, mettant par exemple en œuvre les lessivages séquentiels, permet de tracer les migrations des éléments traces dans les sols.

L'objectif de l'étude, dont je synthétise les principaux résultats, est de comparer d'une part la répartition verticale du polluant radioactif (^{90}Sr), déposé récemment dans l'environnement de surface (principalement à la fin des années 50 - début des années 60, époque des retombées des tirs atmosphériques) et d'autre part la répartition verticale de son analogue géochimique dans des profils de sol : le strontium stable d'origine atmosphérique, dont la concentration est déduite du rapport isotopique $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ des lessivats de sol. Il s'agit de comprendre si le polluant radioactif a déjà atteint une répartition comparable à celle de son analogue ou si, au contraire, des migrations de radiostrontium sont encore à envisager.

Des lessivages acides des sols sont mis en œuvre au laboratoire pour quantifier la concentration en strontium dans chacune des matrices minérales des sols (figure 17). De plus, la contribution de chaque réservoir (Sr du pôle lithogénique et Sr du pôle atmosphérique) en fonction de la profondeur, est estimée à partir du rapport isotopique du strontium des lessivats de sol ($^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$) (Steinmann et Stille, 1997 ; Capo et Chadwick, 1999 ; Capo *et al.*, 1998 ; Whipkey *et al.*, 2000).

a)



b)

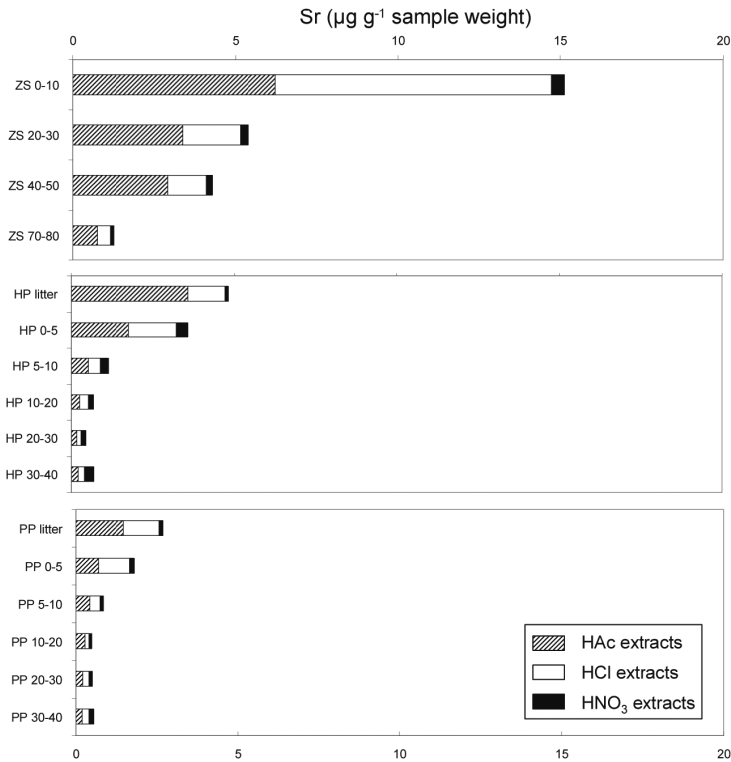


Figure 17. Concentrations des principaux cations majeurs (a) et du strontium (b) lessivés en fonction des acides employés lors des lessivages séquentiels de profils de sol des Vosges (ZS, PP et HP), analyses ICP et ICP-MS effectuées au Centre de géochimie de la surface CNRS, université L. Pasteur, Strasbourg. L'objectif des lessivages est d'identifier les matrices minérales des sols qui contribuent à la rétention des polluants stables ou radioactifs. Par exemple, le lessivage à l'acide chlorhydrique attaque la fraction carbonatée des sols, comme en témoignent les fortes concentrations en calcium des lessivats. Le bilan des analyses montre que la plus forte proportion de Sr est lessivée par ce traitement initial, démontrant que le Sr est associé à la fraction carbonatée du sol. Les lessivages à l'acide chlorhydrique, puis à l'acide nitrique, ont pour but de lessiver les oxydes et les hydroxydes de fer et d'aluminium des sols [A9].

Les données témoignent que les rapports isotopiques du strontium des lessivats et les activités en ^{90}Sr au sein des profils sont anti corrélés, tendant à démontrer que les variations du rapport $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ proviennent d'un enrichissement en Sr d'origine atmosphérique en surface du profil (figure 18).

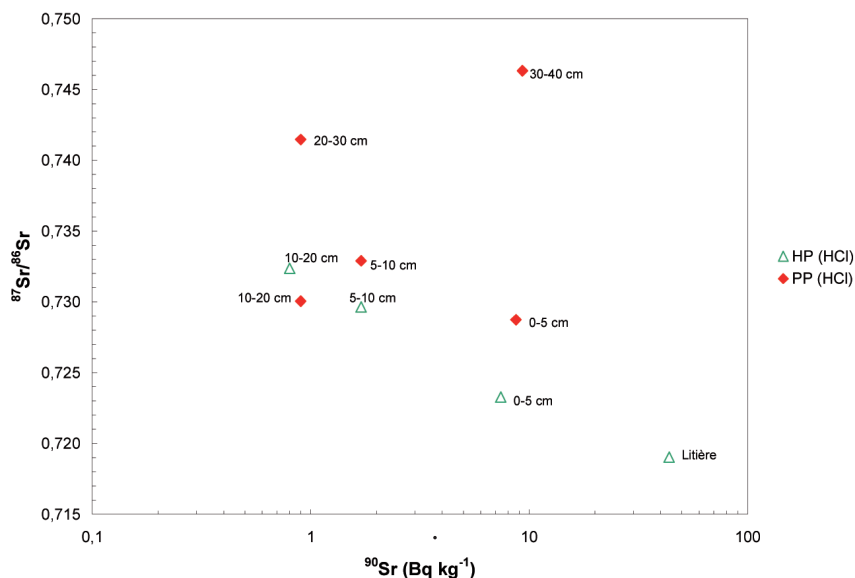


Figure 18. Variabilité des rapports isotopiques du strontium ($^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$) des lessivats, en fonction des activités en ^{90}Sr et de la profondeur de deux sols de l'Observatoire hydrogéochimique de l'environnement d'Aubure : HP et PP sont des profils de sols échantillonnés respectivement dans une hêtraie et dans une pessaië. Dans le profil HP, on observe, en fonction de la profondeur, une diminution de l'activité en radiostrontium (100 à 1 Bq.kg $^{-1}$) qui s'accompagne d'une augmentation de rapport isotopique du strontium (0,719 à 0,733). Pour les données provenant du profil PP, la même tendance est observable en fonction de la profondeur, mais les gammes de variations sont un peu décalées. Ainsi, ces tendances, en lien avec la profondeur, tendent à démontrer que les variations du rapport isotopique du Sr proviennent d'un enrichissement en surface en Sr d'origine atmosphérique [A9].

Les calculs de mélange indiquent que 50 à 80 % du Sr des sols de surface provient de dépôts atmosphériques (figure 19) tout comme le ^{90}Sr . La répartition verticale du strontium stable provenant du réservoir atmosphérique est très proche de celle du radiostrontium, bien que les dépôts de ce dernier soient très récents. De plus, la similitude des rapports isotopiques $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ des racines et des lessivats de sol indiquent que les racines intègrent le strontium provenant du compartiment constitué par les fractions lessivables à l'acide acétique des sols. Ces deux observations impliquent que les migrations de radiostrontium sont très rapides et que ce polluant a sans doute atteint

un état d'équilibre proche de celui du traceur stable entre les différents flux de strontium aux interfaces sol/plantes et sol/lessivats des sols.

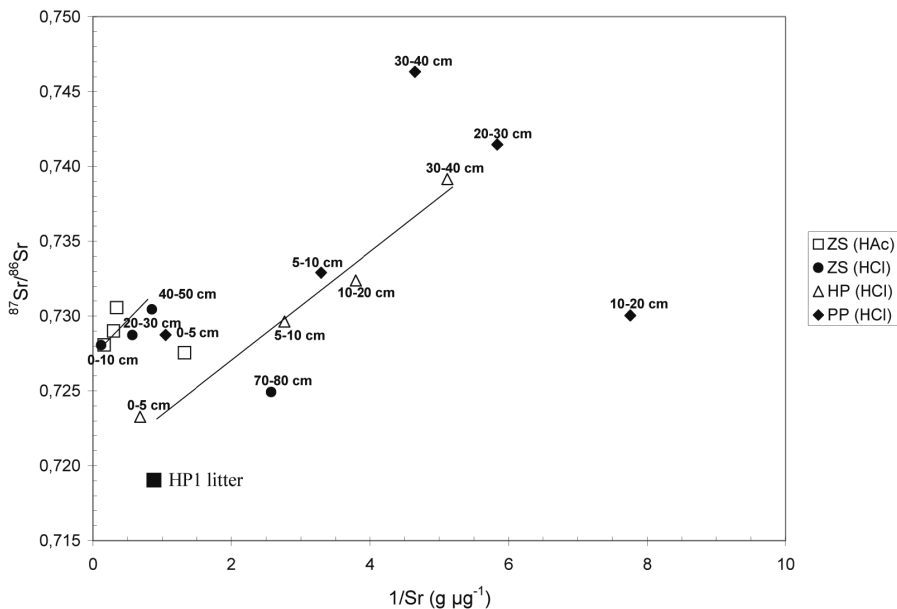


Figure 19. Variabilité des rapports isotopiques du strontium $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ des lessivats, en fonction des concentrations en Sr et de la profondeur des sols de l'Observatoire hydrogéochimique de l'environnement d'Aubure. Nous sommes ici en présence de droites de mélange comportant deux pôles majeurs, particulièrement bien visibles pour les données des profils HP et ZS (profil de sol colluvial, saturé, localisé à proximité de l'exutoire du bassin versant). Les échantillons du sommet de ces deux profils présentent les plus fortes concentrations en strontium (HP1 : $1,5 \mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$ ZS1 : $8,5 \mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$), alors que les échantillons de la base des profils présentent les plus faibles concentrations ($< 1 \mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$). Les deux pôles du mélange sont donc :

- un pôle A, caractérisé par une faible valeur du rapport $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ et de fortes concentrations en Sr,
- un pôle B, caractérisé par une forte valeur du rapport $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ et de faibles concentrations en Sr.

Les rapports isotopiques des lessivats des sols sont très proches des signatures des arbres, qui prélèvent d'importantes quantités de Sr atmosphérique ($^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr} = 0,71$, selon Stille et al., 2006). Le deuxième pôle (B) témoigne d'un enrichissement en Sr radiogénique provenant d'un autre réservoir, tel que les minéraux de la roche mère, comme les plagioclases, dont le rapport isotopique est compris entre 0,742 et 0,750 (Aubert et al., 2001). En faisant l'hypothèse d'un mélange comportant un pôle atmosphérique (pôle A : 0,71) et un pôle minéral (pôle B : 0,75), on estime que 50 à 80 % du Sr des sols de surface provient de dépôts atmosphériques [A9].

Les données produites dans le cadre de l'étude du strontium stable et du radiostrontium ont été publiées dans *Applied Geochemistry* [A9].

3.1.3 Perspectives de recherche dans le cadre de la thématique de la migration des polluants radioactifs dans les sols

Je retiens deux perspectives majeures de recherche sur le thème de la migration des polluants radioactifs, dans la continuité des approches décrites précédemment.

(a) L'approche de la répartition des polluants radioactifs doit s'appliquer à d'autres compartiments du milieu terrestre que le sol (eaux de surface, eaux souterraines, etc.) et à d'autres contextes pédogéologiques, comme par exemple les sols sur substrat karstique. Ce type de substrat confère aux sols et aux solutions des sols des propriétés physico-chimiques complètement différentes de celles rencontrées sur substrat cristallin (cas des Vosges) : pH et chimie des solutions des sols, nature et concentration des espèces argileuses, capacité d'échange cationique du sol, etc. La spéciation du ^{90}Sr à l'interface sol/solution du sol et, par voie de conséquence, la répartition verticale des radioéléments dans les sols sur substrat karstique doit être très différente, en comparaison des sols acides. Un projet de recherche est en cours de réalisation, en collaboration avec Ph. Steinmann et P. Froidevaux (Institut de radiophysique appliquée, université de Lausanne) dont l'objectif est de caractériser les migrations (^{137}Cs , ^{90}Sr , Pu et Am) dans des profils des sols carbonatés du massif du Jura par l'échantillonnage de profils de sol et des eaux du sol (bassin versant de la Venoge, Suisse). Il s'agit aussi d'étendre les connaissances des niveaux d'activité des polluants radioactifs à d'autres compartiments tels que les concrétions calcaires souterraines, les eaux et les mousses aquatiques des résurgences. Bien que des expérimentations mettent en évidence la coprécipitation des radioéléments avec la calcite (Curti, 1999), à ce jour aucune donnée ne permet d'évaluer dans quelle mesure les concrétions calcaires peuvent constituer des puits de radioéléments artificiels. À terme, un modèle empirique de répartition des radioéléments sera publié qui identifiera le rôle joué par chaque compartiment vis-à-vis des polluants radioactifs (source, filtre ou puits).

(b) L'approche des analogues biogéochimiques dans les sols peut s'appliquer à d'autres compartiments du milieu terrestre (eaux des sols, plantes, eaux de rivière, etc.) que les sols, à d'autres polluants non radioactifs (métaux lourds) et à d'autres contextes pédologiques. Les perspectives de recherche suscitées par cette approche sont résumées dans le tableau 3.

POLLUANTS	ANALOGUES BIOGEOCHIMIQUES			
	Sol	Eaux des sols	Plantes terrestres	Eaux de rivière
^{90}Sr	Sr_{atmo} [A9]	Sr_{atmo}	Sr_{atmo} [A9]	Sr_{atmo}
Pb anthropique	$^{210}\text{Pb}_{\text{unsup}}$		$^{210}\text{Pb}_{\text{unsup}}$	$^{210}\text{Pb}_{\text{unsup}}$

Tableau 3. Bilan des données publiées et des perspectives de recherche suscitées par l'approche des analogues géochimiques des polluants proposés (radiostrontium et plomb anthropique) dans différents compartiments de l'environnement terrestre, dans le cadre de la thématique de recherche traitant des migrations des polluants dans les sols (OHGE Aubure).

En premier lieu, on propose de confronter les rapports isotopiques du strontium $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ des sols (paragraphe 3.1.2) aux rapports isotopiques des eaux de surface (eaux des sols, eaux de source, eaux de ruisseau), dans le but de mieux comprendre la labilité des stocks de strontium stable d'origine atmosphérique et de son analogue, le radiostrontium, dans les sols d'un petit bassin versant. Ainsi, les eaux de surface, caractérisées par des enrichissements en ^{90}Sr et des rapports isotopiques $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ faibles, proviendraient du lessivage de la litière et de la partie supérieure du profil de sol. À l'inverse, les eaux provenant de la partie inférieure du profil de sol présenteraient des activités plutôt faibles en radiostrontium et des enrichissements en strontium radiogénique. La finalité de cette approche, qui couple des mesures de radiostrontium et de son analogue géochimique dans les eaux, est de localiser les compartiments du profil de sol qui relarguent du radiostrontium à l'interface sol/eaux de surface.

On propose également de valoriser les concentrations du plomb radioactif d'origine atmosphérique (^{210}Pb en excès) et d'autres isotopes du plomb (^{206}Pb , ^{207}Pb et ^{208}Pb) de trois profils de sol de l'OHGE

d'Aubure. Le but de l'étude est de comparer les migrations des sources naturelle et anthropique de plomb atmosphérique dans les sols, ainsi que les transferts aux plantes. Ainsi à partir de la source naturelle de plomb (^{210}Pb en excès), on doit évaluer les vitesses de migration du plomb dans ces sols, par un modèle de diffusion. Les vitesses déterminées par cette approche doivent ensuite servir à modéliser la répartition verticale du plomb provenant de la source anthropique, pour finalement confronter les profils modélisés aux profils issus des mesures.

3.2 Transfert des radioéléments artificiels aux plantes : exemple des prairies permanentes

Lors d'un dépôt accidentel de radioéléments, la consommation de lait et de produits laitiers constitue une voie d'exposition importante des populations (Renaud *et al.*, 1999). C'est pourquoi, les mesures des activités des principaux radioéléments dans le lait sont maintenues dans le cadre des plans de surveillance dans les années qui suivent la contamination, selon les recommandations émises par l'Union européenne (*Commission of the European Communities*, 2000). Les chroniques de l'activité en ^{90}Sr dans le lait et les dents de lait d'enfants (mesures réalisées dans le cadre de la surveillance de l'environnement et des populations suisses) permettent de suivre, au cours du temps, le transfert des produits de fission vers les organismes humains, induit par la consommation de lait contaminé par les dépôts qui se sont produits dans les années 60 (figure 20).

Dans l'environnement, l'activité des produits de fission dans le lait (^{137}Cs , ^{90}Sr) est un indicateur de la contamination des surfaces de prairie, où broutent les troupeaux (Mück, 1995). La question se pose de savoir, par exemple, comment les polluants radioactifs se propagent à partir du sol dans les autres compartiments de la prairie (herbe et lait). En retour, ces deux indicateurs de la contamination des prairies témoignent-ils de variabilités comparables à celles des dépôts et quelle soient les échelles d'observation ? Ces questions m'ont amenées à m'intéresser à la variabilité de la contamination des différents compartiments des prairies (sol, herbe, lait) à l'échelle locale (prairie du Mercantour, présentant de très fortes hétérogénéités de contamination des sols) et une échelle beaucoup plus large, en synthétisant les données européennes disponibles dans la littérature (paragraphe 3.2.1).

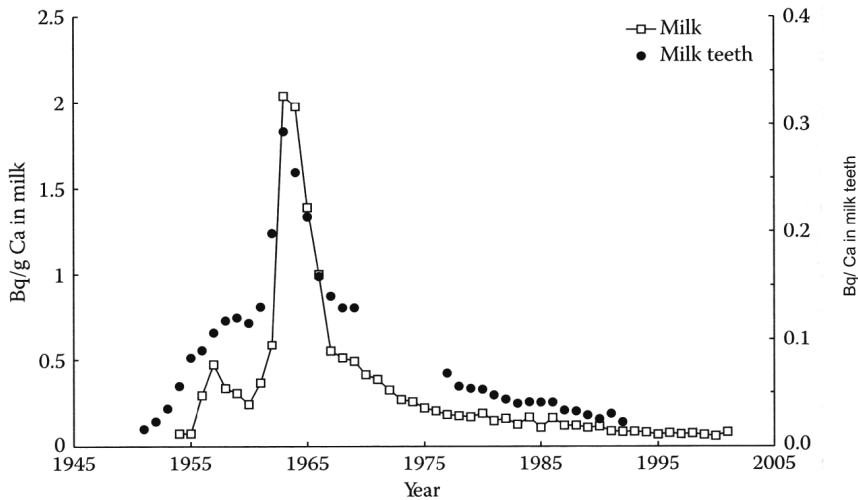


Figure 20. Activité moyenne en ^{90}Sr du lait et des dents de lait en Suisse, entre 1950 et 2000. Les activités des dents de lait sont rapportées à la date de naissance (Froidevaux et al., 2006). Le pic principal correspond aux tests atmosphériques pratiqués avant le moratoire USA-URSS (1963). Une lente décroissance des activités en ^{90}Sr est observée depuis (période de décroissance : 9,8 ans).

Mes recherches sur les transferts dans les zones de prairie permanentes ont également pour but de hiérarchiser d'une part, les paramètres naturels (type de sol, de végétation, par exemple) et d'autre part, les facteurs anthropiques (pratiques agricoles et procédés de fabrication des fromages), intervenant dans les transferts aux interfaces sol/herbe, herbe/lait et lait/fromage (paragraphe 3.2.2).

3.2.1 Variabilité de la contamination des zones de prairie en fonction des échelles d'observation

La variabilité de la contamination des zones de prairie a été étudiée à deux échelles d'observation, en collaboration avec P. Froidevaux, de l'Institut de radiophysique appliquée (université de Lausanne). Premièrement, à l'échelle de deux exploitations situées dans le Mercantour, où les fortes hétérogénéités de la contamination observées dans les sols des prairies doivent également induire une variabilité des activités des produits de fission (^{137}Cs et ^{90}Sr) dans les autres compartiments (herbe, lait et fromage) qu'il s'agit de quantifier [A7, B3]. Les données acquises montrent

que les activités en ^{90}Sr et ^{137}Cs sont moins variables dans les productions laitières, par rapports aux compartiments « amonts » (sols et herbe), du fait du pâturage extensif par les troupeaux, qui intègre la contamination de vastes surfaces (plusieurs hectares) et qui lisse la variabilité de ces surfaces, fût-elle importante (figure 21).

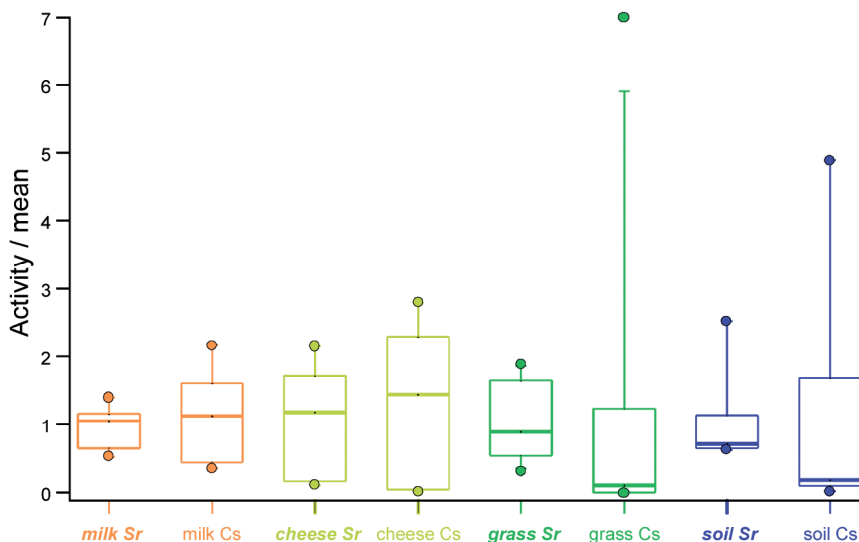


Figure 21. Variabilités des activités en ^{90}Sr et en ^{137}Cs du lait, du fromage, de l'herbe et du sol de prairie de la zone atelier du Mercantour normalisées par rapport aux activités moyennes (1999-2004). Les moustaches supérieures et inférieures représentent les percentiles 90 et 10. Le sommet et la base des boîtes correspondent aux percentiles 75 et 25. La ligne épaisse représente la médiane. Les plus fortes hétérogénéités concernent le ^{137}Cs (provenant des retombées de l'accident de Tchernobyl) dans le compartiment « sol », mais également le compartiment « herbe », pour lequel le percentile 90 est égal à six fois la moyenne. Dans ces deux compartiments, le ^{90}Sr , provenant des retombées globales présente une plus faible variabilité. Ainsi, le percentile 90 du compartiment « herbe » est égal à 2,5 fois la moyenne. À l'extrémité de la chaîne de transfert, la contamination des produits laitiers présente les plus faibles variabilités. Le pâturage extensif des troupeaux, tel qu'il est pratiqué dans le Mercantour, intègre la forte variabilité des zones de prairie et, par voie de conséquence, le lait de ces zones constitue un indicateur « robuste », car relativement constant, de la contamination des prairies d'altitude [A7].

Deuxièmement, à l'échelle des pays d'Europe de l'Ouest, la variabilité de l'activité en ^{90}Sr des productions laitières est fonction de l'altitude de pâturage des troupeaux (figure 22).

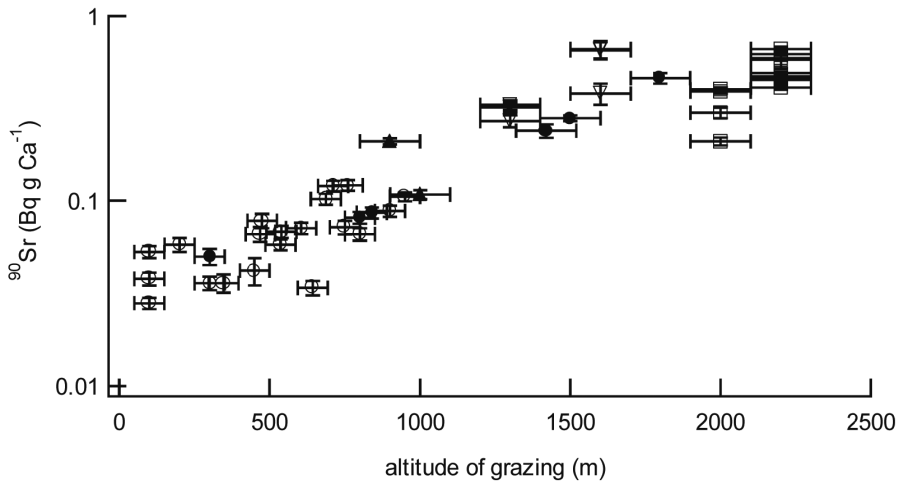


Figure 22. Activités en ^{90}Sr mesurées dans le lait en Europe de l'Ouest, en fonction de l'altitude de pâturage, données acquises par Pourcelot et al. 2007 (carrés noirs), Froidevaux et al., 2004 (cercles blancs), Gastberger et al., 2000 (triangles blancs), Geering et al., 1997 (cercles noirs) et bases de données IRSN (triangles noirs). A cette échelle, le lien entre l'altitude et le dépôt des polluants radioactifs des retombées globales a également été observé (paragraphe 2.2) [A13]. La forte corrélation entre l'altitude et l'activité du lait présentée sur cette figure suggère que la variabilité de la contamination actuelle du lait en ^{90}Sr reflète pour l'essentiel la variabilité des dépôts atmosphériques initiaux. La corrélation entre l'activité du lait (A) et l'altitude (h) est de la forme :

$A = A_0 + e^{kh}$ (4) dans laquelle $A_0 = 0,064 \text{ Bq.g}^{-1} \text{ Ca}$ et $k = 0,95 \cdot 10^{-3} \text{ m}^{-1} \cdot \text{Bq.g}^{-1} \text{ Ca}$. La valeur de A_0 est en accord avec l'activité du lait prélevé à proximité, au niveau de la mer ($h = 0$) : $0,045$ et $0,064 \text{ Bq.g}^{-1} \text{ Ca}$ à Blayais ($h = + 5 \text{ m}$) et à Penlis ($h = + 15\text{m}$) [A7].

Ainsi, notre approche montre que le lait constitue un indicateur pertinent des contaminations des zones de prairie, puisqu'il intègre à la fois la forte variabilité locale des activités en ^{137}Cs des parcelles broutées par les animaux (fortes hétérogénéités des retombées de Tchernobyl) et la variabilité de la contamination en ^{90}Sr des retombées globales, en fonction de l'altitude des prairies. Les interprétations des données de cette étude ont fait l'objet d'une publication à *Chemosphere* [A7].

3.2.2 Projet de recherche en cours : variabilité des transferts des contaminants dans les zones de prairie

L'activité des différents compartiments des zones de prairie varie, en fonction du dépôt initial, comme le démontrent les données du paragraphe précédent, mais également selon les taux de transfert qui s'opèrent aux interfaces sol/herbe, herbe/lait et lait/fromage. En effet, les données issues de prélèvements et de mesures des sols et d'herbe des prairies de trois zones d'étude (massif du Jura, Auvergne et Charente) illustrent la variabilité des transferts du radiocésium à l'interface sol/herbe (figure 23). Ainsi, bien que les sols d'Auvergne témoignent de contaminations relativement modestes, en comparaison des sols du massif du Jura, l'activité de l'herbe prélevée en Auvergne est, en moyenne, comparable à celle du Jura.

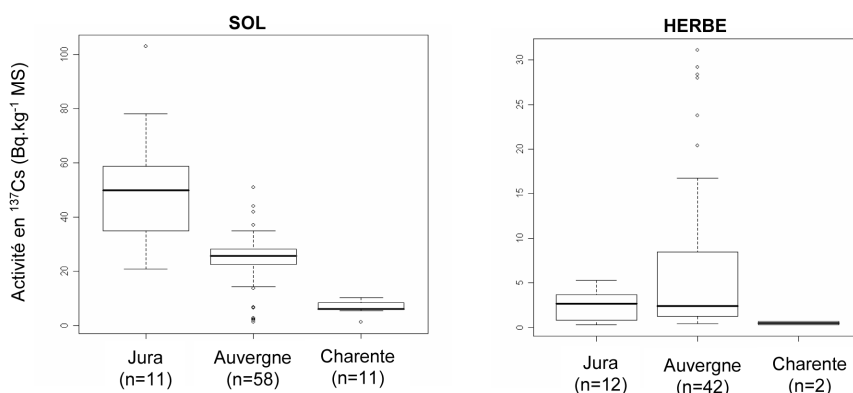


Figure 23. Comparaison de la variabilité des activités en ^{137}Cs des sols et de l'herbe de prairies permanentes du Jura, d'Auvergne et de Charente (entre parenthèses : nombre de données disponibles). La ligne épaisse représente la moyenne. Les moustaches supérieures et inférieures représentent les percentiles 90 et 10. Le sommet et la base des boîtes correspondent aux percentiles 75 et 25.

Le transfert du ^{137}Cs entre le sol et l'herbe est sans doute accentué en Auvergne de part la nature des sols (andosols majoritaires) ou des espèces végétales, ce qui explique, en bout de chaîne de transfert, les activités en ^{137}Cs du lait (en moyenne 0,3 Bq.l $^{-1}$) paradoxalement plus élevées que sur les plateaux du Jura (en moyenne 0,09 Bq.l $^{-1}$). Ces données illustrent la spécificité des transferts des produits de fission, en fonction du type de sol, de la nature de la

végétation et peut-être des pratiques agricoles et des productions fromagères, si l'on s'intéresse également aux produits laitiers. Une évaluation précise des conséquences de la contamination des sols doit donc s'appuyer sur la connaissance de la variabilité des transferts aux interfaces sol/plantes, plantes/lait et lait/fromages.

Ces réflexions ont suscité le sujet de la thèse de Benoît Besson « Sensibilité des zones de prairie permanentes », menée à l'IRSN sous ma responsabilité depuis octobre 2006, en co-tutelle avec l'université de Franche-Comté (Directeur de thèse : P-M. Badot et E. Lucat, Laboratoire de biologie environnementale). L'objectif de ce travail de recherche est de hiérarchiser les différentes zones de prairie, en fonction de leur sensibilité vis-à-vis des polluants radioactifs (^{90}Sr et ^{137}Cs). Le premier travail consiste à identifier les paramètres intrinsèques du milieu qui accentuent les conséquences pour l'homme du dépôt des polluants radioactifs sur des zones de prairie permanentes, en comparant le transfert entre le sol et l'herbe dans deux massifs (Jura et Auvergne), en fonction des caractéristiques qui leur sont propres (facteurs pédologiques, minéralogiques, etc.). Le second objectif est d'identifier les paramètres anthropiques (pratiques agricoles et fromagères), en comparant le taux de transfert des radioéléments, associé à la filière traditionnelle de pâturage extensif (Jura et Auvergne) avec celui de la filière industrielle de production intensive (Charente). Au terme de ce travail de thèse, il s'agit de hiérarchiser les zones de prairie permanentes les plus sensibles et les pratiques les plus pénalisantes, en cas de dépôt accidentel de radioéléments artificiels dans des zones de prairie permanentes.

3.3 Publications dans le cadre de la thématique du transfert des radioéléments dans les sols

3.3.1 Publications de rang A

A7. POURCELOT L., STEINMANN Ph., FROIDEVAUX P. (2007) - Lower variability of uplands dairy products compared to soils and vegetation: Implication for environmental Survey. *Chemosphere*, 67, p. 1571- 1578.

A9. POURCELOT L., STILLE P., AUBERT D., SOLOVITCH-VELLA N., GAUTHIER-LAFAYE F. (2008). Comparative study of the behaviour of radiostrontium and atmospheric common strontium in soils (Vosges mountains, France). *Applied Geochemistry*, 23, p. 2880-2887.

A11. SOLOVITCH-VELLA N., POURCELOT L., CHEN V.T., FROIDEVAUX P., GAUTHIER-LAFAYE F., STILLE P., AUBERT D. (2007). Comparative migration behaviour of ^{90}Sr , $^{239+240}\text{Pu}$ and ^{241}Am in mineral and organic soils of France. *Applied Geochemistry*, 22 p. 2526-2535.

3.3.2 Publication de rang B

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

3.3.3 Congrès, colloques et réunions scientifiques

C27. AUBERT D., STILLE P., GAUTHIER LAFAYE F., POURCELOT L., PROBST A., DEL NERO M. (2001) - Characterization and migration of atmospheric REE in soil profiles European Union of Geosciences XI, Strasbourg, France.

C28. FROIDEVAL A., DEL NERO M., GAUTHIER-LAFAYE F., POURCELOT L., STILLE P. (2001) - Characterization of Cs sorption mechanisms onto an organic soil, 8th International Conference on Chemistry and Migration Behaviour of Actinides and Fission Products in the Geosphere, MIGRATION'01, Bregenz, Austria.

C32. POURCELOT L., FROIDEVAUX P., MORELLO M., AGARANDE M., GAUTHIER-LAFAYE F., P. STILLE, D. AUBERT (2003) - Constraining actinides migration in soils using activity ratios, *Geochimica et Cosmochimica Acta*, vol 67, abstract of the 13th Goldschmidt 2003, Kurashiki, Japan.

C33. STILLE P., GAUTHIER-LAFAYE F., POURCELOT L., AUBERT D., PROBST A. (2004) - Tracing of atmospheric Pb, Sr and rare earth elements in a soil-water-plant system of a forested silicate catchment, *Geochimica et Cosmochimica Acta*, vol 68, issue 11 suppl. 1, abstract of the 14th Goldschmidt 2004, Copenhagen, Danemark.

C36. FROIDEVAUX P., POURCELOT L. (2004) - Impact of the variability of soil contamination on dairy products: Implication on sampling strategy for environmental survey, ECORAD2004, september 2004, Aix en Provence, France.

C37. POURCELOT L., STILLE P., GAUTHIER-LAFAYE F., AUBERT D. (2004) - Lead deposition and migration in soils, Réunion Annuelle des Sciences de la Terre, Strasbourg, France.

C38. SOLOVITCH-VELLA N., POURCELOT L., FROIDEVAUX P., GAUTHIER-LAFAYE F., STILLE P., AUBERT D. (2005) - Comparative migration behaviour of ^{137}Cs , ^{90}Sr , ^{241}Am and $^{239+240}\text{Pu}$ in soils: examples of forest soil of Vosges and wetland of Mercantour areas (France), 15th Goldschmidt Conference, may 2005, Moscow USA, *Geochimica et Cosmochimica Acta*, Volume 69, Issue 10, Supplement 1, A479.

C39. POURCELOT L., STILLE P., SOLOVITCH-VELLA N., GAUTHIER-LAFAYE F., AUBERT D. (2005) - Comparative study of the repartition of $^{239+240}\text{Pu}$, ^{241}Am , ^{90}Sr , anthropogenic lead and their natural analogues in soils, The 6th International Symposium on Applied Isotope Geochemistry, Prague, September 9-16, 2005.

C45. STEINMANN P., POURCELOT L., FROIDEVAUX P. (2007) - The mobility of actinides and Sr-90 from bomb test fallout in a karstic area, Jura Mountains (Switzerland), Goldschmidt Conference 2007, Cologne, RFA, 19-24 aout 2007.

CHAPITRE 4

Caractérisation des sources de pollutions radioactives au sein du bassin versant de l'Ob-Irtych

D'importantes contaminations radioactives émaillent certaines portions du territoire de l'ex-URSS, témoignages de la course aux armements de l'époque de la guerre Froide. Ainsi, les anciens complexes militaires de fabrication des armes nucléaires (Mayak et Tomsk-Seversk, en Russie) et les sites d'expérimentation nucléaires (polygone de tests de Semipalatinsk, Kazakhstan et archipel de la Nouvelle Zemble, Russie) figurent parmi les sites les plus pollués de la planète (figure 24). Ces contaminations aigües de l'environnement posent de graves problèmes de radioprotection des populations. C'est la raison pour laquelle d'importants efforts d'expertise et de

recherche sont coordonnés par l'Agence internationale de l'énergie atomique et financés par la Commission européenne (programmes TACIS), l'OTAN (programmes « Science for Peace ») et l'ISTC (International Science & Technology Center).

Les pollutions radioactives aigües dans l'ex-URSS suscitent trois questions scientifiques majeures. Les deux premières concernent le bilan de la contamination de l'environnement et l'évaluation de l'exposition des populations aux polluants radioactifs : il s'agit, par des prélèvements et des mesures, d'évaluer la contamination des surfaces (type de contaminant, surfaces concernées et niveaux d'activité) et aussi d'évaluer l'atteinte aux populations, par un bilan des transferts aux produits de la chaîne alimentaire. Ce type d'évaluation est effectué à Semipalatinsk, dans le cadre du projet SEMIRAD2, auquel je participe (programme OTAN « Science for Peace »). Le troisième niveau de questionnement concerne le devenir de la radioactivité provenant des différents sites pollués au sein du bassin versant de l'Ob-Irtych (figure 24). Chaque site constitue une source de polluants radioactifs.

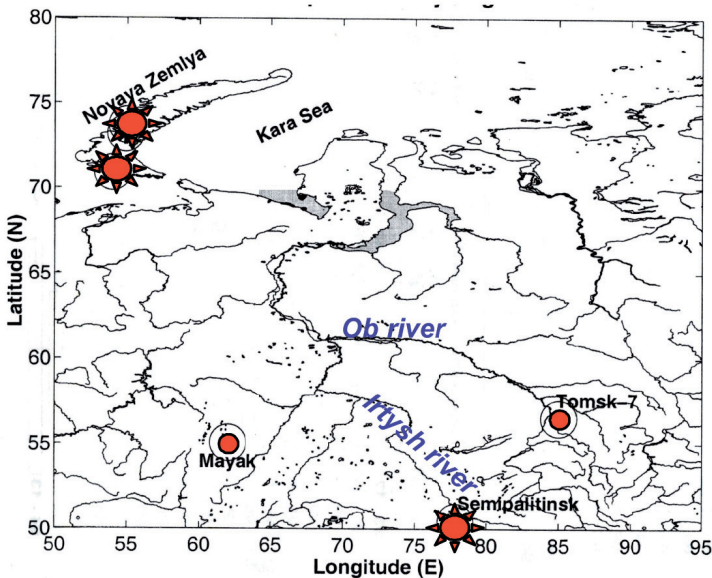


Figure 24. Localisation des sites de production d'armes nucléaires ● (Tomsk et Mayak) et des zones de tests ★ (Semipalatinsk) au sein du bassin versant de l'Ob-Irtych (d'après Cochran et al., 2000).

Ainsi, les complexes nucléaires de Mayak et de Tomsk ont été le théâtre des rejets accidentels importants et rejettent encore, à l'heure actuelle, une partie des effluents radioactifs dans les rivières et l'Ob. De plus, les migrations dans les sols et les sous-sols de Semipalatinsk, fortement contaminés par les tests nucléaires atmosphériques et souterrains, contribuent à la contamination de l'Irtych, un des affluents majeur de l'Ob. Le drainage des contaminants radioactifs provenant de ces sources dans les rivières et le fleuve doit diriger et concentrer les contaminants vers l'exutoire du bassin versant.

À l'heure actuelle, les marquages significatifs en radioéléments artificiels des sédiments de l'estuaire de l'Ob témoignent de ce processus, mais la contribution des différentes sources (site nucléaire de Tomsk-Seversk, de Mayak, contribution des sites de tests nucléaires de Semipalatinsk) est difficile à évaluer (Baskran *et al.*, 1996 ; Cochran *et al.*, 2000).

La thématique dans laquelle s'inscrivent mes recherches est l'étude de deux des sources de pollutions radioactives au sein du bassin versant de l'Ob-Irtych : l'installation nucléaire de Tomsk (Russie) et le site de tests nucléaires de Semipalatinsk (République du Kazakhstan). Les objectifs de mes travaux sont :

- la caractérisation des polluants radioactifs et plus particulièrement du plutonium provenant de l'installation nucléaire de Tomsk. En effet, bien que le plutonium provenant de ce site contribue probablement à la contamination des eaux et des sédiments de l'Ob, cette source n'a jamais été clairement identifiée par des rapports des isotopes du plutonium ;
- la caractérisation des migrations du tritium dans les eaux souterraines et les eaux de surface à Semipalatinsk. En effet, les tests nucléaires effectués dans le sous-sol ont généré des quantités importantes de tritium, qui du fait de sa forte mobilité, contamine les réserves d'eau potable de cette région du Kazakhstan. Ainsi, une étude est actuellement en cours qui vise à mieux comprendre les migrations du tritium aux interfaces géosphère/hydrosphère et hydrosphère/atmosphère.

4.1 Caractérisation des polluants radioactifs dans l'environnement de l'installation nucléaire de Tomsk-Seversk

Ainsi, en collaboration avec F. Gauthier-Lafaye (EOST Université de Strasbourg), L. Rhikvanov (université de Tomsk, Russie) et J. Eikenberg (Paul Scherrer Institut, Villingen, Suisse), j'ai participé à une étude des activités et des rapports d'activités des radioéléments des sols prélevés dans l'environnement du centre nucléaire de Tomsk. Le but de cette étude est d'établir la nature du plutonium rejeté (civil ou militaire) et d'évaluer, à partir des rapports isotopiques du plutonium ($^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ et $^{241}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$) des sédiments à l'aval, la part du plutonium provenant de l'installation de Tomsk.

En effet, les rapports isotopiques des transuraniens (isotopes du plutonium, principalement) permettent d'identifier la source de la contamination radioactive : retombées globales stratosphériques, retombées troposphériques des tests nucléaires, rejets accidentels et chroniques des installations nucléaires à vocations militaires ou civiles. En effet, chacune de ces sources est caractérisée par un rapport isotopique du plutonium qui lui est propre, en fonction du type de réacteurs, du type de combustibles, du flux de neutrons (pour les réacteurs nucléaires civils) ou encore en fonction du type, du degré d'enrichissement en ^{239}Pu et de la puissance des bombes (pour le plutonium militaire) (tableau 4).

	$^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ Nbre d'atomes
Qualité militaire	0,07
Retombées troposphériques des tests nucléaires	0,04
Retombées globales des tests nucléaires	0,17 - 0,19
Combustible civil	0,2 - 0,8

Tableau 4. Rapports isotopiques $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ (nombre d'atomes) des principales sources de plutonium militaire et civil.

Ainsi, même si les retombées globales constituent la source majeure du plutonium mesuré dans les sédiments du fleuve ($^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu} = 0,18$), quelques rapports isotopiques des sédiments attestent de marquages spécifiques des affluents de l'Ob (tableau 5) (Cochran *et al.*, 2000 ; Kenna et Sayles, 2002). Enfin, de faibles valeurs du rapport isotopique $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ sont également mesurables dans les sédiments de l'estuaire, ce qui suggère le transport du plutonium depuis les sites contaminés

jusqu'à l'estuaire de l'Ob (Kenna et Sayles, 2002).

Pour ces auteurs, les plus faibles valeurs du rapport des isotopes du plutonium impliquent une source de rejet de plutonium de type militaire, localisée à l'amont du point de prélèvement.

	$^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ Nbre d'atomes
Ob Delta	0,11 - 0,18
Ob Amont (aval Tomsk)	0,09 - 0,14
Tobol (aval Mayak)	0,02 - 0,18
Irtych (aval Semipalatinsk)	0,04 - 0,21

Tableau 5. Rapports isotopiques $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ (nombre d'atomes) des sédiments de l'Ob et de ces principaux affluents, à l'aval des sites contaminés (d'après Cochran et al., 2000 ; Kenna et Sayles, 2002).

Les rapports isotopiques du plutonium des eaux montrent que la fraction colloïdale de l'estuaire de l'Ob et dans une moindre mesure, de la mer de Kara sont enrichies en plutonium de qualité militaire, alors que le plutonium des fractions particulaire et dissoutes témoigne d'une signature proche des retombées globales (figure 25) (Lind et al., 2006). Ainsi, le transport dans les eaux du plutonium rejeté par les installations militaires s'opère à large échelle, jusque dans l'estuaire de l'Ob et en mer de Kara.

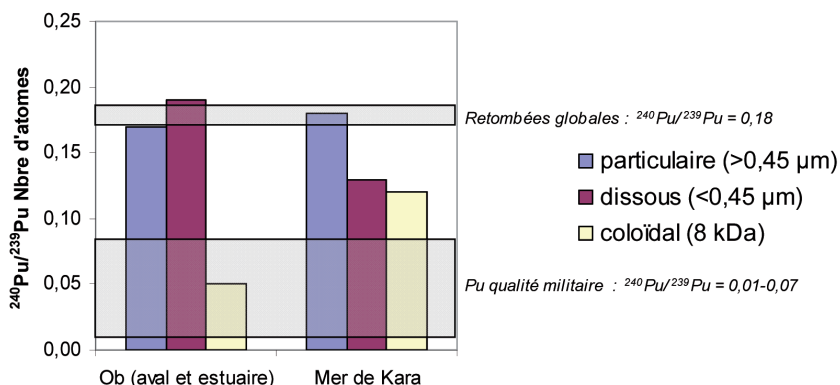


Figure 25. Moyennes des rapports isotopiques $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ (nombre d'atomes) de fractions particulaire, dissoute et colloïdale des échantillons d'eau de l'Ob (fraction particulaire $n = 9$, fraction dissoute $n = 6$ et fraction colloïdale $n = 5$) et de la mer de Kara (fraction particulaire $n = 4$, fraction dissoute $n = 5$ et fraction colloïdale $n = 3$) (d'après Lind et al., 2006).

Depuis le milieu des années 50, le site nucléaire de Tomsk-Seversk était une usine de production de plutonium militaire et de « stockage » des déchets liquides radioactifs. Ainsi, entre 1963 et 1992, on estime que 32 millions de m³ de déchets liquides radioactifs ont été injectés dans le sous-sol, à environ 300 mètres de profondeur (Bradley *et al.*, 1996). Depuis la chute de l'Union Soviétique, les activités du site de Tomsk-Seversk sont essentiellement des activités nucléaires civiles. En plus des rejets chroniques dans la rivière Tom et dans l'atmosphère, l'environnement du site a subi au moins 23 rejets accidentels. En 1993, par exemple, une explosion d'un bac de traitement du combustible irradié à l'acide nitrique s'est produite (IAEA, 1998). L'activité α (principalement Pu : 79 % et U : 20 %) de la solution était d'environ $7,4 \times 10^{11}$ Bq et l'activité β était d'environ $1,85 \times 10^{13}$ Bq (Tcherkezian *et al.*, 1995). Une partie de cette solution a été vaporisée dans l'atmosphère par l'explosion. Après cet accident, Tcherkezian *et al.* (1995) mesurent une contamination des sols en plutonium comprise entre 10 et 13 Bq.kg⁻¹ pour une activité surfacique atteignant 1100 Bq.m⁻². À titre de comparaison, rappelons que les activités surfaciques des sols en plutonium provenant des retombées des tests nucléaires avoisinent 50-150 Bq.m⁻² en France (figure 12) (Duffa et Renaud, 2005). À Tomsk, le rejet accidentel comportait également des émetteurs γ , parmi lesquels : ⁹⁵Zr, ⁹⁵Nb, ¹⁰⁶Ru, ¹²⁵Sb et ¹³⁷Cs (Tcherkezian *et al.*, 1995 ; IAEA, 1998).

Les analyses que nous avons effectuées montrent que les sols de l'environnement du site de Tomsk sont fortement contaminés en plutonium (²³⁹⁺²⁴⁰Pu atteint 5 900 Bq.m⁻²) et en autres radioéléments artificiels (²⁴¹Am, ¹³⁷Cs, ⁶⁰Co, ¹³⁴Cs, ¹⁵²Eu et ¹⁵⁴Eu). Les rapports des isotopes du plutonium des sols (²⁴⁰Pu/²³⁹Pu = 0,05) attestent de l'origine militaire du plutonium rejeté par cette installation nucléaire. Les rapports isotopiques du plutonium ²⁴⁰Pu/²³⁹Pu et ²⁴¹Pu/²³⁹Pu témoignent d'un mélange binaire à l'origine de la contamination des sols et des sédiments de l'Ob-Irtych : le plutonium issu des retombées globales atmosphériques et le plutonium militaire (figure 26). De cette hypothèse, nous avons déduit que la proportion du plutonium militaire dans les sédiments de l'Ob (rapports isotopiques publiés par Cochran *et al.*, 2000) atteint 45 à 60 %.

Les interprétations des activités et des rapports d'activités des isotopes du plutonium font l'objet d'une publication à *Journal of Environmental Radioactivity* [A12].

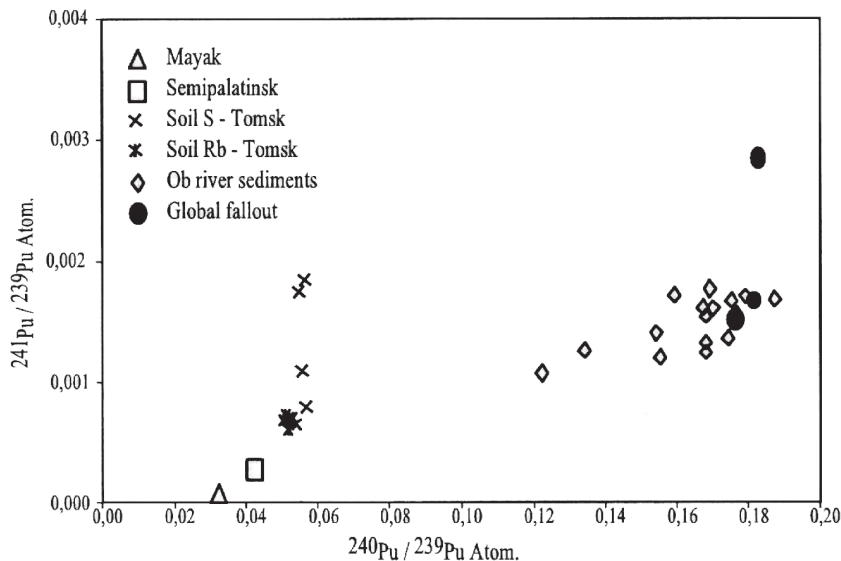


Figure 26. Rapports isotopiques du plutonium (Nbre d'atomes) des sédiments de l'Ob-Irtych (Cochran et al., 2000), des retombées globales (Ketterer et al., 2004, Kelley et al., 1999) et des sols fortement contaminés situés dans le bassin versant : Tomsk (mesures ICP-MS réalisées à l'IRSN à mon initiative), Mayak et Semipalatinsk (Beasley et al., 1998). Jusqu'à présent, l'influence des rejets de l'installation de Tomsk-Seversk était spéculée. Les rapports isotopiques, montrent que Tomsk constitue une source importante de plutonium dans le fleuve. En effet, la courbe de mélange, dont le plutonium « militaire » (enrichi en ^{239}Pu) et le plutonium des retombées globales ($^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu} = 0,18$) constituent les deux pôles, nous permet d'estimer que la proportion de plutonium provenant de Tomsk atteint 45 % du ^{239}Pu et 60 % du ^{241}Pu des sédiments de l'Ob [A12].

4.2 Projet de recherche en cours : caractérisation des migrations de tritium provenant des essais nucléaires pratiqués à Semipalatinsk

Les études que je mène à Semipalatinsk (Kazakhstan), en collaboration avec P. Mitchell et L. Leon- Vintron (Univ. College of Dublin, Irlande) et M. Byrkitbaev (Al Faraby Univ., Almaty, Kazakhstan), sont centrées sur les migrations du tritium dans les eaux souterraines et les eaux de surface.

Environ 340 tests souterrains ont été pratiqués dans les tunnels des montagnes de Degelen et dans des puits du site de Balapan, à 70 km environ du village de Sarzhal (figure 27). Les migrations de tritium ont été évaluées au préalable par Mitchell *et al.* (2005), à partir de prélèvements et de mesures :

- des eaux des « termes sources » des zones de tests souterrains de Degelen et de Balapan (eaux des sources et de puits), ainsi que les eaux des lacs « Lacs atomiques » de Tel'kem 1 et 2 et de Balapan résultant d'explosions nucléaires en subsurface (10 mètres de profondeur, environ) ;
- des eaux des puits du village de Sarzhal et des rivières (Chaghan et Irtych), à l'aval des « termes sources » (figure 27).

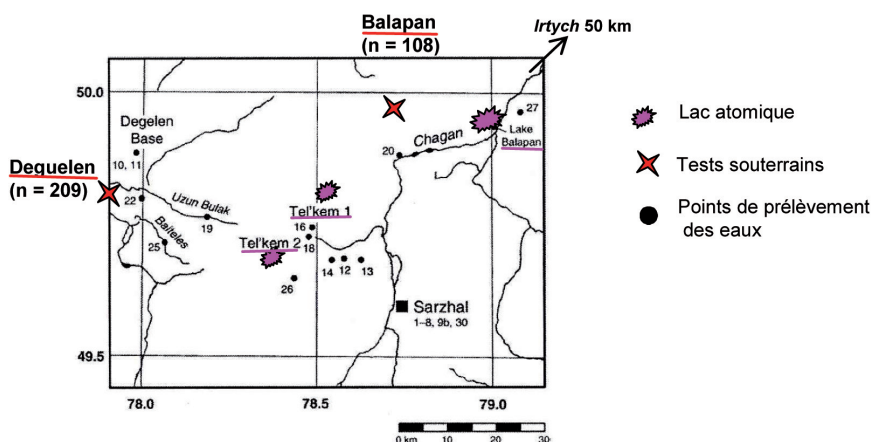


Figure 27. Principaux sites de prélèvements des eaux des puits et des eaux de surface à Semipalatinsk, à proximité des zones de tests souterrains de Deguelen, Balapan et des « lacs atomiques » dans le cadre de l'étude des migrations de tritium (d'après Mitchell *et al.*, 2005).

Les puits du village de Sarzhal ne témoignent pas d'excès de tritium (2,8 - 5,1 Bq.l⁻¹). Cependant, on observe la présence de tritium dans l'eau des puits à proximité des lacs de Tel'kem (19,3 - 52 Bq.l⁻¹), dans les sources provenant de Deguelen (133 - 255 kBq.l⁻¹) et dans les puits de Balapan (jusqu'à 21,2 Bq.l⁻¹). Dans la rivière Chaghan, à l'exutoire des eaux de surface, l'activité en tritium atteint 36 Bq.l⁻¹ (Mitchell *et al.*, 2005). L'activité en tritium dans cette rivière, qui est un affluent de

l'Irtych, et les fortes activités mesurées dans les sources de Deguelen montrent que des processus de migration de radioéléments solubles s'opèrent en provenance des zones de tirs souterrains.

Pour améliorer l'interprétation des migrations du tritium aux interfaces géosphère/hydrosphère et hydrosphère/atmosphère, j'ai proposé d'utiliser les signatures chimiques et isotopiques des eaux (deutérium et ^{18}O) dans le but de caractériser l'origine des masses d'eau considérées (eau météorique, eau souterraine) et les processus hydrologiques en jeu (recharge, évaporation ou mélange). J'ai donc pris l'initiative de coupler au tritium des mesures des rapports des isotopes stables de l'oxygène ($^{18}\text{O}/^{16}\text{O}$) et de l'hydrogène (D/H) (mesures réalisées au CRPG, Nancy). Il s'agit de comprendre, par exemple, si, à l'interface eaux de surface/atmosphère, l'évaporation des eaux des lacs salés dans la steppe du Kazakhstan est susceptible d'enrichir les eaux résiduelles en isotopes lourds : tritium et deutérium ? Les résultats préliminaires montrent que les eaux des lacs salés sont caractérisées par des enrichissements en tritium (5 à 15 Bq.l⁻¹) et en deutérium (δD : - 55 à - 5 ‰ SMOW) par rapport aux eaux de surface (figure 28). Ainsi, des taux d'évaporation compris entre 50 et 80 % (évalués avec le deutérium, sur la base des équations de distillation de Raleigh) sont susceptibles d'enrichir notablement en tritium les eaux résiduelles des lacs, jusqu'à 15 Bq.l⁻¹.

4.3 Publication dans le cadre de la problématique de la caractérisation des sources de pollutions radioactives au sein du bassin versant de l'Ob-Irtych

4.3.1 Publication de rang A

A12. GAUTHIER-LAFAYE F., POURCELOT L., EIKENBERG J. STILLE P., RENAUD Ph., RHIKVANOV L-P. (2008). Radioisotope contaminations from releases of the Tomsk-Seversk nuclear facility. *Journal of Environmental Radioactivity*, 99, p. 680-693.

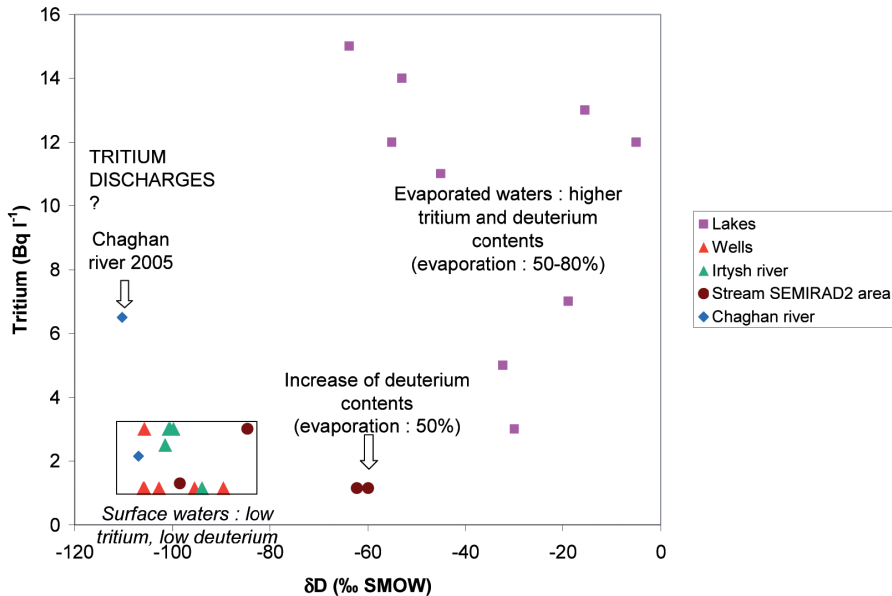


Figure 28. Résultats préliminaires des analyses tritium/deutérium des eaux prélevées à Semipalatinsk, dans le cadre du projet OTAN SEMIRAD2, en collaboration avec P. Mitchell, L. Leon-Vintron (Univ. College of Dublin) et M. Byrkitbaev (Al Faraby Univ., Almaty, Kazakhstan). Les mesures des activités en tritium et des rapports isotopiques de l'hydrogène ont été réalisées à l'Univ. College of Dublin et au CRPG (Nancy), respectivement. La plupart des eaux de surface et des eaux des puits présentent des rapports isotopiques de l'hydrogène (δD : - 90 à - 110 ‰ SMOW) proches des eaux météoriques en Asie centrale (- 75 à - 105 ‰ SMOW, selon IAEA, 2004) et des activités en tritium très faibles ($< 1 \text{ Bq.l}^{-1}$). Les eaux des lacs sont caractérisées par des enrichissements en deutérium (δD : - 55 à - 5 ‰ SMOW) et en tritium (5 à 15 Bq.l^{-1}). Ainsi, des taux d'évaporation de l'eau des lacs compris entre 50 et 80 % (évalués avec le deutérium, sur la base des équations de distillation de Raleigh) sont susceptibles d'enrichir notablement les eaux résiduelles en tritium, jusqu'à 15 Bq.l^{-1} . L'excès de tritium observé dans les eaux de la rivière Chaghan en 2005 pourrait provenir des zones de tests souterrains situées à l'amont (Deguelen, Balapan). Mais, trop peu de données isotopiques sont actuellement disponibles pour évaluer la dilution du tritium provenant de la rivière Chaghan dans les eaux de l'Irtych.

CHAPITRE 5

Conclusion des travaux de recherche

5.1 Synthèse des travaux de recherche

Les recherches que j'ai menées sur la variabilité des dépôts atmosphériques accidentels et chroniques s'appuient sur les inventaires des sols français en radioéléments artificiels qui proviennent de deux sources : les retombées de l'accident de Tchernobyl et les retombées globales, consécutives aux tirs atmosphériques d'armes nucléaires. Mes recherches sur la variabilité des dépôts reposent sur l'hypothèse que les inventaires des sols constituent « l'empreinte » des dépôts atmosphériques, c'est-à-dire que les sols sont des collecteurs naturels des dépôts, accumulant les polluants de différentes sources, au fil du temps. La répartition verticale dans les sols, des radioéléments utilisés (essentiellement

^{137}Cs , plutonium et ^{210}Pb) qui montre que ces sols sont peu remaniés par l'érosion ou par l'homme, valide cette hypothèse.

Ainsi, au cours de mes recherches, la variabilité spatiale des inventaires des sols en radioéléments artificiels m'a permis d'évaluer l'hétérogénéité des dépôts atmosphériques et de discuter les paramètres environnementaux prépondérants à l'origine de la variabilité des dépôts (trajectoire des masses d'air, importance des précipitations, nature de la végétation).

Les échelles d'observation sont celles de la France entière (cartographie des dépôts de ^{137}Cs provenant de Tchernobyl), de différents massifs montagneux (Jura, chaîne des Puys, Montagne-Noire, Corse, etc.), jusqu'à certaines parcelles de prairie du Mercantour, où de fortes hétérogénéités sont observables.

J'ai montré que la variabilité des inventaires des sols dépend à la fois de la nature (pluie, neige, « précipitations occultes ») et de l'intensité des précipitations qui accompagnent le dépôt des polluants. Par exemple, les recherches menées sur les dépôts de l'accident de Tchernobyl en France ont montré que les dépôts de ^{137}Cs sont fonction de l'activité de l'air et qu'ils sont proportionnels à l'intensité des précipitations dans les jours qui suivent l'accident [A6]. Sur les massifs étudiés, les dépôts de ^{137}Cs et de plutonium (provenant des tirs atmosphériques) sont fonctions des précipitations moyennes annuelles [A13]. Cependant, on observe, pour les précipitations supérieures à 1000 mm.an^{-1} , une accentuation des dépôts probablement liée aux dépôts occultes sur les sommets (importance des brouillards). Enfin, dans les zones d'altitude, comme le Mercantour, les dépôts neigeux et la formation des congères expliquent la concentration en « points chauds » des dépôts de radioéléments artificiels (^{137}Cs), mais aussi d'autres polluants atmosphériques, tels que les métaux lourds (Cr, Ni, Pb et As) [A5]. Les études des dépôts atmosphériques sur les milieux montagnards s'appuient sur l'utilisation de traceurs naturels des dépôts, tels que ^{210}Pb [A5, A13]. Ainsi, j'ai montré que les inventaires des sols en ^{210}Pb d'origine atmosphérique sont fonctions des précipitations moyennes annuelles sur les massifs étudiés [A13]. Cette observation corrobore les conclusions réalisées pour le ^{137}Cs et le plutonium et montre que, sur le long terme (période $^{210}\text{Pb} = 22,2$ ans), les zones d'altitude, bien

que parfois très éloignées des sources d'émission de polluants, sont néanmoins sensibles aux dépôts globaux de polluants atmosphériques. La contamination des prairies d'altitude d'Europe de l'Ouest par les dépôts atmosphériques augmente effectivement en fonction de l'altitude, comme l'indiquent les activités en ^{90}Sr du lait qui varient en fonction de l'altitude [A7]. Ainsi, la prépondérance des dépôts atmosphériques sur les sommets explique pourquoi le lait produit dans le Mercantour figure parmi les plus contaminés du territoire (^{90}Sr atteint $0,65 \text{ Bq.l}^{-1}$).

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

5.2 Perspectives de recherche

Par la suite, j'envisage de comparer des données acquises dans les Vosges (OHGE d'Aubure) avec les données (actuellement en cours d'acquisition) des sols sur substrat carbonaté (bassin versant de la Venoge, Suisse), dans le but d'évaluer les migrations et le temps de résidence du radiostrontium et des transuraniens dans deux bassins versants qui diffèrent par leur type de substrat. Pour cela, on tiendra compte des flux des radioéléments artificiels à l'exutoire des zones d'étude et on évaluera également les transferts à la végétation. On s'appuiera de la même façon sur le comportement des traceurs radioactifs ou stables, qui présentent des comportements biogéochimiques analogues aux polluants radioactifs, tels que le strontium stable d'origine atmosphérique et les actinides. En effet, les données préalables ont montré une répartition analogue du ^{90}Sr et du strontium d'origine atmosphérique ($^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr} = 0,710$) dans les

profils de sol d'Aubure [A9] et il faut maintenant expérimenter ces signatures dans les eaux des sols et du ruisseau. Dans la même optique, les déséquilibres des descendants de ^{238}U (U, Th, Ra) à l'interface sol/biosphère/hydrosphère doivent contribuer à mieux comprendre le rôle joué par la végétation, dans le contrôle des signatures géochimiques des sols et des eaux.

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

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

CHAPITRE 6

Liste des publications

6.1 Publications dans des revues nationales et internationales à comité de lecture

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

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

- A3. AUBERT D., STILLE P., GAUTHIER LAFAYE F., POURCELOT L., PROBST A. et DEL NERO M. (2002) - Characterization and migration of atmospheric REE in soil profiles and surface waters. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 66, p. 3339-3350.
- A4. SURMA F., GERAUD Y., POURCELOT L., GAUTHIER-LAFAYE F., CLAVAUD JB, ZAMORA M., Marc LESPINASSE M. et CATHELINEAU M. (2003). Microstructures d'un grès affecté par une faille normale : Anisotropie de connectivité et de perméabilité. *Bulletin Société Géologique de France*, 174, 3, p. 295-303.
- A5. POURCELOT L., LOUVAT D., GAUTHIER-LAFAYE F. et STILLE P. (2003) - Formation of radioactivity enriched soils in mountain areas. *Journal of Environmental Radioactivity*, 68, p. 215-233.
- A6. RENAUD Ph., POURCELOT L., MÉTIVIER J-M et MORELLO M. (2003) - ¹³⁷Cs deposits and behaviour over eastern France after the Chernobyl accident, *The Science of the Total Environment*, 309, p. 257-264.
- A7. POURCELOT L., STEINMANN Ph., FROIDEVAUX P. (2007) - Lower variability of uplands dairy products compared to soils and vegetation: Implication for environmental Survey, *Chemosphere*, 66, p. 1571-1579.
- A8. STILLE P., STEINMANN M., PIERRET M.-C., GAUTHIER-LAFAYE F., VIVILLE D., MATERA V., AOUAD G., AUBERT D., POURCELOT L., PROBST A. et CHABAUX F. (2006) - The impact of vegetation on REE fractionation in natural surface waters, *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 70, p. 3217-3230.
- A9. POURCELOT L., STILLE P., AUBERT D., SOLOVITCH-VELLA N., GAUTHIER-LAFAYE F. (2008). Comparative study of the behaviour of radiostrontium and atmospheric common strontium in soils (Vosges mountains, France). *Applied Geochemistry*, 23, p. 2880-2887.
- A10. VASSAS C., POURCELOT L., VELLA C., CARPÉNA J., PUPIN J-P, BOUISSET P., GUILLOT L. (2006). Mechanisms of enrichment of natural radioactivity along the beaches of the Camargue, France. *Journal of Environmental Radioactivity*, 91, p. 146-159.

A11. SOLOVITCH-VELLA N., POURCELOT L., CHEN V.T., FROIDEVAUX P., GAUTHIER-LAFAYE F., STILLE P., AUBERT D. (2007). Comparative migration behaviour of ^{90}Sr , $^{239+240}\text{Pu}$ and ^{241}Am in mineral and organic soils of France, *Applied Geochemistry*, 22, p. 2526-2535.

A12. EIKENBERG J., POURCELOT L., GAUTHIER-LAFAYE F., STILLE P., RENAUD Ph., RHIKVANOV L-P. (2008). Radioisotope contaminations from releases of the Tomsk-Seversk nuclear facility. *Journal of Environmental Radioactivity*, 99, p. 680-693.

A13. LE ROUX G., POURCELOT L., MASSON O., DUFFA C., VRAY F., RENAUD Ph. (2008). Aerosols deposition and origin in French mountains estimated with soils inventories of ^{210}Pb and artificial radionuclides. *Atmospheric Environment*, 42, p. 1517-1524.

6.2 Publications dans d'autres revues de grande diffusion

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

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

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

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

CHAPITRE 7

Échanges avec les universités

7.1 Encadrement et co-encadrement d'étudiants

La liste ci-dessous ne concerne que des étudiants pour lesquels j'ai exercé officiellement un encadrement scientifique, en excluant les collaborations ponctuelles ou les encadrements partiels officieux.

	Titre du mémoire	Niveau	Université/ Structure
L. Schoen 1998	<i>Étude par pétrophysique, géochimie et géochimie isotopique du fonctionnement d'un système de faille dans les grès</i>	DEA chimie et physique de la Terre	ULP/EOST
F. Surma 1999	<i>Étude des mécanismes de colmatage d'un grès affecté par une faille normale</i>	DEA chimie et physique de la Terre	ULP/EOST
C. Vassas 2003	<i>Caractérisation chimique sédimentaire et radiologique des placers de minéraux lourds en Camargue</i>	IUP DENTES	CEREGE/Aix-Marseille III
C. Vassas 2004	<i>Radioactivité des sables de plages de Camargue : un nouveau marqueur des origines et dynamiques sédimentaires</i>	DEA géosciences de l'environnement	CEREGE/Aix-Marseille III
N. Solovitch-Vella 2004-2005	<i>Migration des radioéléments artificiels ^{90}Sr, ^{241}Am, plutonium dans les sols</i>	Post-doctorat	IRSN
G. Leroux 2006- 2008	<i>Traçage des retombées globales des radioéléments artificiels par ^{210}Pb atmosphérique</i>	Post-doctorat	IRSN
B. Besson 2006-2009	<i>Sensibilité radioécologique des zones de prairie permanentes</i>	Thèse de doctorat	Université de France-Comté

Tableau 6. Bilan de l'encadrement de jeunes chercheurs.

7.2 Participations à des jurys de thèse de doctorat d'universités

Candidat	Titre de la thèse	Université	Directeur de thèse	Date de soutenance
M. Schertz	<i>Séparation radiochimique par extraction séquentielle de transuraniens et produits de fission : application à l'étude d'une zone Alpine (Boréon, Mercantour)</i>	Nice	G. Barci-Funel	03/12/2004
M. Zhyanski	<i>Variabilité des propriétés des sols forestiers brunifiés du sud du massif de Rila (Bulgarie), conséquences sur les systèmes racinaires et sur les transferts d'éléments dans le système sol-arbre</i>	Franche-Comté	P-M. Badot	01/12/2006
M. Saïdou	<i>Mesure de la radioactivité naturelle environnementale par spectrométrie γ et α et calcul de la dose au public : application à la région uranifère de Poli, nord Cameroun</i>	Lausanne Douala	P. Froideveaux	29/11/2007

Tableau 7. Bilan des participations à des jurys de thèse de doctorat en tant qu'« invité ».

7.3 Activités d'enseignement

Université/ structure	Filière	Année	Modules enseignés	Responsables
ULP/EOST	Licence physique et chimie de la Terre	1997-1998	Introduction géochimie	F. Chabaux
ULP/EOST	Maitrise physique et chimie de la terre	1997-1998	Géochimie isotopique bassins sédim. diagénèse	R. Montigny L. Martinez
Aix-Marseille III CEREGE	Master sciences de l'environ. terrestre filère professionnelle 1 ^{ère} année	Depuis 2004	Pollution des sols par la radioactivité	J. Carpena
AIEA	IAEA Training course	Depuis 2006	Source and Environmental monitoring	D. Telleria
Institut national des sciences et des techniques du nucléaire (CEA)	Formation continue - radioprotection, environnement	Depuis 2006	Radioécologie, impact des installations nucléaires sur l'environnement et mécanismes de transfert des radionucléides	C. Tamponnet

Tableau 8. Bilan des activités d'enseignement, en tant qu'ATER (1997-1998), puis en tant qu'intervenant extérieur IRSN.

Bibliographie

Agapkina, G.I., Tikhomirov, F.A., Shcheglov, A.I., Kracke, W., Bunzl, K., 1995. Association of Chernobyl-derived $^{239+240}\text{Pu}$, ^{241}Am , ^{90}Sr and ^{137}Cs with organic matter in the soil solution. *Journal of Environmental Radioactivity*, 29, 257-269.

Albers, B. P.; Steindl, H.; Schimmack, W.; Bunzl, K., 2000. Soil-to-plant and plant-to-cow's milk transfer of radiocaesium in alpine pastures: Significance of seasonal variability. *Chemosphere*, 41, 717-723.

Aoyama, M., Hirose, K., Igarashi, Y., 2006. Construction and updating our understanding on the global weapons tests ^{137}Cs fallout. *Journal of Environmental Monitoring*, 8, 431-438.

Aubert, D., Stille, P., Probst, A., 2001. REE fractionation during granite weathering and removal by waters and suspended loads: Sr and Nd isotopic evidence. *Geochim. Cosmochim. Acta* 65, 387-406.

Baize, D., Sterckeman, T., 2001. Of the necessity of knowledge of the natural pedo-geochemical background content in the evaluation of the contamination of soils by traces elements. *Science of the Total Environment* 264, 127-139.

Ballestra, S. B., Holm, E., Walton, A., Whitehead, N.E., 1987. Fallout deposition at Monaco following the Chernobyl accident. *Journal of Environmental Radioactivity*, 5, 391-400.

Barbante, C, Veysseyre, A., Ferrari, C, Van De Velde, K., Morel, C, Capodaglio, G., Cescon, P., Scarponi, G., Boutron, C, 2001. Snow evidence of large scale atmospheric contamination for platinum, palladium, and rhodium. *Environmental Science and Technology*, 35, 835-839.

Barbante, C, Van De Velde, K., Cozzi, G., Capodaglio, G, Cescon, P., Planchon, F., Hong, S., Ferrari, C, Boutron, C, 2001. Post-World War II uranium changes in dated Mont Blanc ice and snow. *Environmental Science and Technology*, 35, 4026-4030.

Barci-Funel, G., Dalmasso, J., Ardisson, G., 1992. Indirect determination of ^{241}Am activity in soils using low energy photon spectrometers. *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 156, 83-88.

Baskaran, M., Asbill, S., Santschi, P., Brooks, J., Champ, M., Adkinson, D., Colmer, M.R., Makeyev, V., 1996. Pu, ^{137}Cs and excess ^{210}Pb in Russian Arctic sediments. *Earth and Planetary Science Letters* 140, 243-257.

Battiston, G.A., Degetto, S., Gerbasi, R., Sbrignadello, G., Tositti, L. 1988. Fallout distribution in Padua and northeast Italy after the Chernobyl nuclear reactor accident. *Journal of Environmental Radioactivity* 8, 183-191.

Beasley, T.M., Kelley, J.M., Orlandini, K.A., Bond, L.A., Aarkrog, A., Trapeznikov, A.P., Pozolotina, V.N., 1998. Isotopic Pu, U, and Np signatures in soils from Semipalatinsk-21, Kazakh Republic and the Southern Urals, Russia. *Journal of Environmental Radioactivity* 39, 215-230.

Belli, M., Blasi, M., Borgia, A., Sansone, U., Deluisa, A., Menegon, S., Nazzi, P., Michelutti, G., Pividori, G., 1989. The behaviour of caesium in mountainous soils. In : Ed., Workshop on the transfer of radionuclides in natural and semi natural environments, Udine (Italy) sept 11-15 1989, vol. 707, *Elsevier applied science*, 143-151.

Blais, J.M., Schindler, D.W., Muir, D.C.G, Kimpe, L.E., Donald, D.B., Rosenberg, B., 1998. Accumulation of persistent organochlorine compounds in mountains of western Canada. *Nature*, 395, 585-588.

Bossew, P., Ditto, M., Flakner, T., Eberhardt, H., Kienzl, K., Rapelsberger, U, 2001. Contamination of Austrian soil with caesium 137. *Journal of environmental radioactivity* 55, 187-194.

Bossew, P., Kirchner, G., 2004. Modelling the vertical distribution of radionuclides in soil. Part 1: the convection-dispersion equation revisited. *J. Environ Radioactiv.* 73, 127-150.

Bossew, P., Gastberger, M., Gohla, H., Hofer, P., Hubmer, A. 2004. Vertical distribution of radionuclides in soil of a grassland site in Chernobyl exclusion zone. *J. Environ Radioactiv.*, 73, 87-99.

Bouisset P., Barker E., Masson O., Gurriaran R., Cagnat X., Mekhlouche D., Aubry S., Hadjaj M., Saey L. 2004. Concentration de ^{137}Cs et de ^7Be dans les aérosols en France métropolitaine et à Tahiti de 1959 à 2002. *Radioprotection*, 39, 367-381.

Bradley, D.J., Frank, C.W., Mikerin, Y., 1996. Nuclear contamination from weapons complexes in the former Soviet Union and the United States. *Physics Today*, American Institute of Physics 49, 40-45.

Brandford, D., Fowler, D., Moghaddam, M.V., 2004. Study of aerosol deposition at a wind exposed forest edge using ^{210}Pb and ^{137}Cs soil inventories. *Water, air and soil pollution*, 157, 107-116.

Bros, R., Turpin, L., Gauthier-Lafaye, F., Holliger, P., Stille, P., 1993. Occurrence of naturally enriched ^{235}U : implications for plutonium behaviour in natural environments. *Geochimica et Cosmochimica Acta* 57, 1351-1356.

Bundt, M.; Albrecht, A.; Froidevaux, P.; Blaser, P.; Fluhler, H., 2000. Impact of preferential flow on radionuclide distribution in soil. *Environ. Sci. Technol.* 34, 3895-3899.

Bunzl K., Kracke W. 1988 - Cumulative deposition of ^{137}Cs , ^{238}Pu , and ^{241}Am from global fallout in soils from forest, grassland and arable land in Bavaria (FRG). *J. Environ. Radioactiv.* 8, 1-14.

Bunzl, K., Kracke, W., Schimmack, W., 1995. Migration of fallout $^{239+240}\text{Pu}$, ^{241}Am and ^{137}Cs in the various horizons of a forest soil under pine. *J. Environ. Radioactiv.* 28, 17-34.

Bunzl, K., Kracke, W., Schimmack, W., Zelles, L., 1998. Forms of fallout ^{137}Cs and $^{239} + ^{240}\text{Pu}$ in successive horizons of a forest soil. *J. Environ. Radioactiv.*, 39, 55-68.

Brewster, G.R., Astatkie, T., 1999. The depth distribution of ^{137}Cs in non-eroded soil profiles, Annapolis valley, Nova Scotia, Canada. *Radiochimica Acta*, 86, 175-181.

Capo, R.C., Stewart, B.W., Chadwick, O. A. 1998. Strontium isotopes as tracers of ecosystem processes : theory and methods. *Geoderma* 82, 197-225.

Capo, R.C., Chadwick, O. A., 1999. Sources of strontium and calcium in desert soil and calcrete. *Earth Planet. Sc. Lett.* 170, 61-72.

Chester, R., Nimmo, M., Corcoran, P.A., 1997. Rainwater-aerosol trace metal relationship at Cap- Ferrat: a coastal site in the western Mediterranean. *Marine Chemistry* 58, 293-312.

Cigna, A.A., Rossi, L. C., Sgorbini, S., Zurlini, G., 1987. Environmental study of fallout plutonium in soils from the piemonte region (North-West Italy). *J. Environ. Radioact.* 54, 71-81.

Clark, M.J., Smith, F.B., 1988. Wet and dry deposition of Chernobyl releases. *Nature* 332, 245-249.

Cochran, J.K., Moran, S.B., Fisher, N.S., Beasley, T.M., Kelley, J.M., 2000. Sources and transport of anthropogenic radionuclides in the Ob River system, Siberia. *Earth and Planetary Science Letters* 179, 125-137.

Commission of the European Communities, 2000. Commission recommendations on the application of article 36 of the Euratom Treaty concerning the monitoring of the level of radioactivity in the environment for the purpose of assessing the exposure of the population as a whole. *Off. J. Eur. Communities*, july 27, 2000, 2000/473/Euratom.

Curti, E., 1999, Coprecipitation of radionuclides with calcite: estimation of partition coefficient based on a review of laboratory investigations and geochemical data. *Applied Geochemistry* 14, 433-445.

Daly, G.L., Wania, F., 2005. Organic contaminants in mountains *Environmental. Science and Technology*, 39, 385-398.

DeBortoli, M., Gaglione, P., 1974. Variability of washout ratio for some fallout radionuclides. In: Physical behavior of radioactive contaminants in the atmosphere. *Proceeding of an International Atomic Energy Agency symposium*. Vienna.

Denk, H.J., Felsmann, M., 1990. Spatial concentration distributions in soil of natural and man made radionuclides. *Atomwirtsch.* 35, 343-345.

Devell, L., Tovedal, H., Bergtröm, U., Appelgren, A., Chrystler, J., Anderson, L., 1986. Initial observations of fallout from the reactor at Chernobyl. *Nature*, 321, 192-195.

Duffa, C., Renaud, P., 2005. ^{238}Pu and $^{239+240}\text{Pu}$ inventory and distribution through the lower Rhone valley terrestrial environment (Southern France). *Science of the Total Environment*, 348, 164-172.

European Commission. 1998 ATLAS of caesium deposition on Europe after the Chernobyl accident. EUR 16733. *Office for Publications of the European Communities*, Luxembourg, European Commission, 176 A3.

Froidevaux, P.; Geering, J.-J.; Pillonel, L. ; Bosset, J.-O.; Valley, J.-F., 2004. ^{90}Sr , ^{238}U , ^{234}U , ^{137}Cs , ^{40}K and $^{239/240}\text{Pu}$ in Emmental type cheese produced in different regions of Western Europe. *J. Environ. Radioactiv.* 72, 287-298.

Froidevaux, P., Dell, T., Tossell, P., 2006. Radionuclides in foodstuffs and food raw material, in Radionuclides Concentrations in food and the environment, Pöschl, M., Nollet, L., editors, 458 p.

Galle, P., Paulin, R., Coursaget, J. 2003 Metrological data and risk assessment in France during the Chernobyl accident. Historical statement [Données météorologiques et évaluation des risques en France lors de l'accident de Tchernobyl (26 avril 1986). Mise au point historique]. *Comptes Rendus - Biologies* 326, 699-715.

Gastberger, M.; Steinhäusler, F., Gerzabek, M. H., Lettner, H., Hubmer, A., 2000. Soil-to-plant transfer of fallout caesium and strontium in Austrian lowland and alpine pastures. *J. Environ. Radioactiv.* 49, 217-233.

Gauthier-Lafaye, F., Holliger, P., Blanc, P. L. 1996. Natural fission reactors in the Francevillien basin, Gabon : a review, of the conditions and results of a «critical event» in a geological system. *Geochimica et Cosmochimica Acta* 60, 4831-4852.

Geering, J.-J.; Froidevaux, P.; Valley, J.-F.; Burger, M.; Holzer, R.; Figueiredo, V.; Hermann, A., 1997. Environmental radioactivity and radiation exposure in Switzerland, Swiss Federal Office of Public Health. Fribourg. ISBN3-905235-28-5.

Graustein, W.C., Turekian, K.K., 1989. The effects of forests and topography on the deposition of sub-micrometer aerosols measured by lead-210 and cesium-137 in soils. *Agricultural & Forest Meteorology*, 47, 199-220.

Hardy, E.P., Krey, P., Volchok, H.L., 1973. Global inventory and distribution of fallout plutonium. *Nature*, 241, 444-445.

He, Q., Walling, D.E., 1996. Interpreting particle size effects in the adsorption of ^{137}Cs and unsupported ^{210}Pb by mineral soils and sediments. *Journal of Environmental Radioactivity*, 30, 117-137.

Hidaka, H., Sugiyama, T., Ebihara, M., Holliger, P., 1994. Isotopic evidence for the retention of ^{90}Sr inferred from excess ^{90}Zr in the Oklo natural fission reactors: implication for geochemical behaviour of fissionogenic Rb, Sr, Cs and Ba. *Earth & Planetary Science Letters* 122, 173-182.

Holgye, Z., Filgas, R., 1995. Inventory of ^{238}Pu and $^{239,240}\text{Pu}$ in the soil of Czechoslovakia in 1990. *Journal of Environmental Radioactivity* 27, 181-189.

Höltz, H., Rosner, G., Winkler, R., 1987. Ground depositions and air concentrations of Chernobyl fallout radionuclides at Munich-Neuherberg. *Radiochimica Acta* 41, 181-190.

Institut de Protection et de Sûreté Nucléaire, 1987. Mesure de radioactivité dans l'environnement et évaluation de l'exposition des populations en France après l'accident de Tchernobyl. *Radioprotection* 22, 29-54.

International Atomic Energy Agency, 2004. Isotope Hydrology Information System. The ISOHIS Database. <http://isohis.iaea.org>

International Atomic Energy Agency, 1998. The radiological accident in the reprocessing plant at Tomsk, ISBN 92-0-103798-8, Vienna, 77 p.

Isaksson, M., Erlandsson, B., Linderson, M., 2000. Calculations of the deposition of ^{137}Cs from nuclear bomb tests and from the Chernobyl accident over the province of Skane in the southern part of Sweden based on precipitation. *Journal of Environmental Radioactivity* 49, 97-112.

Jia, G; Testa, C; Desideri, D.; Guerra, F.; Meli, M.; Roselli, C; Belli, M., 1999. Soil concentration, vertical distribution and inventory of plutonium, ^{241}Am , ^{90}Sr and ^{137}Cs in the Marche Region of Central Italy. *Health Phys.*, 77, 52-61.

Karadeniz, O, Yaprak, G, 2007. Dynamic equilibrium of radiocesium with stable cesium within the soil-mushroom system in Turkish pine forest. *Environmental Pollution* 148, 316-324.

Keith-Roach, M.J., Day, J.P., Fifield, L.K., Bryan, N.D., Livens, F.R., 2000. Seasonal variations in interstitial water transuranium element concentrations. *Environmental Science and Technology*, 34, 4273-4277.

Kelley, J.M., Bond, L.A., Beasley, T.M., 1999. Global distribution of Pu isotopes and ^{237}Np , *Science of the Total Environment* 237-238, 483-500.

Kenna, T.C., Sayles, F.L., 2002. The distribution and history of nuclear weapons related contamination in sediments from the Ob River, Siberia as determined by isotopic ratios of plutonium and neptunium. *Journal of Environmental Radioactivity* 60, 105–137.

Ketterer, M.E., Hafer, K.M., Mietelski, J.W., 2004. Resolving Chernobyl vs. global fallout contributions in soils from Poland using Plutonium atom ratios measured by inductively coupled plasma mass spectrometry. *Journal of Environmental Radioactivity* 73, 183-201.

Lettner, H.; Bossew, P.; Hubmer, A.K., 1999. Spatial variability of fallout Caesium-137 in Austrian alpine regions. *J. Environ. Radioactiv.* 47, 71-82.

Lee, M.H., Lee, C.W., 2000. Association of fallout-derived ^{137}Cs , ^{90}Sr and $^{239+240}\text{Pu}$ with natural organic substances in soils. *Journal of Environmental Radioactivity*, 47, 253-262.

Lind, O.C., Oughton, D.H., Salbu, B., Skipperud, L., Sickel, M.A., Brown, J.E., Fifield, L.K., Tims, S.G., 2006. Transport of low $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ atom ratio plutonium-species in the Ob and Yenisey Rivers to the Kara Sea. *Earth and Planetary Science Letters* 251, 33-43.

Livens, F.R., Baxter, M.S., 1988. Particle size and radionuclide levels in some West Cumbrian soils. *Science of the Total Environment*, 70, 1-17.

Miller, W., Russel, A., Chapman, N., McKinley, I., Smellie, J., 1994. Natural analogue studies in the geological disposal of radioactive wastes. *Studies in Environmental Science* 57, Elsevier Ed., 395 p.

Misaelides, P., Sikalidis, C., Tsitouridou, R., Alexiades, C., 1987. Distribution of fission products in dust samples from the region of Thessaloniki, Greece, after the Chernobyl nuclear accident. *Environmental Pollution* 47, 1-8.

Mitchell, P.I., Sanchez-Cabeza, J.A., Ryan, T.P., Mcgarry, A.T., Vidal-Quatras, A., 1990. Preliminary estimates of cumulative caesium and plutonium deposition in the Irish terrestrial environment. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 1990. 138, 241-256.

Mitchell, P.I., Vintro, L.L., Omarova, A., Burkitbayev, M., Napoles, H.J., Priest, N.D., 2005. Tritium in well waters, streams and atomic lakes in the East Kazakhstan Oblast of the Semipalatinsk Nuclear Test Site. *Journal of Radiological Protection* 25, 141-148.

McAulay, I.R., Moran, D., 1991. Relationships between deposition of Chernobyl originating caesium and ruthenium radionuclides and rainfall in Ireland. *Analyst* 117, 455-459.

Mück, K., 1995. Long term reduction of caesium concentration in milk after nuclear fallout. *Sci Total Environ* 162, 63.

Munschenk, H., 1996. Occurrence and behavior of radionuclides in the Moselle River – Part I : Entry of natural and artificial radionuclides, *J. Environ. Radioact.* 30, 199-232.

NCI-NDC, 2001. Health consequences to the american population of nuclear weapons tests conducted by the United States. A report prepared for the US congress 2001.

Oktay, S.D., Santschi, P.H., Moran, J.E., Sharma, P., 2000. The ¹²⁹Iodine bomb pulse recorded in Mississippi River Delta sediments: Results from isotopes of I, Pu, Cs, Pb and C., *Geochim. Cosmochim. Acta* 64, 989-996.

Olivier, S., Bajo, S., Fifield, L.K., Gaggeler, H.W., Papina, T., Santschi, P.H., Schotterer, U., Schwikowski, M., Wacker, L., 2004. Plutonium from global fallout recorded in an ice core from the Belukha Glacier, Siberian Altai. *Environmental Science and Technology*, 38, 6507-6512.

Ovsyannikova, S.V., Sokolik, G.A., Eismont, E.A., Kil'chitskaya, S.L., Kimlenko, I.M., Zhukovich, N.V., Rubinchik, S.Ya., 2000. Interstitial soil solutions in transport of ¹³⁷Cs, ⁹⁰Sr, ^{239,240}Pu, and ²⁴¹Am. *Geochemistry International*, 38, 193-204.

Palsson, S.E., Howard, B.J., Wright, S.M., 2006. Prediction of spatial variation in global fallout of ^{137}Cs using precipitation. *Science of the Total Environment*, 367, 745-756.

Paatero, J., Jaakkola, T., Ikäheimonen, T.K. 2002. Regional distribution of Chernobyl-derived plutonium deposition in Finland. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 252, 407-412.

Peckar, M., 1996. Regional models LPMOD and ASIMD algorithms, parameterization and results of application to Pb and Cd in Europe scale. Co-operative Program for Monitoring and evaluation of the long range transmission of air-pollutants in Europe. EMEP/MSC-E Report 9/96.

Pourchet, M., Magand, O., Frezzotti, M., Ekaykin, A., Winther, J.-G., 2003. Radionuclides deposition over Antarctica. *Journal of Environmental Radioactivity*, 68, 137-158.

Puhakainen, M., Riekkinen, I., Heikkinen, T., Jaakkola, T., Steinnes, E., Rissanen, K., Suomela, M., ThÖrning, H., 2001. Effect of chemical pollution on forms of ^{137}Cs , ^{90}Sr and $^{239,240}\text{Pu}$ in Arctic soil studied by sequential extraction. *Journal of Environmental Radioactivity*, 52, 17-29.

Renaud, Ph., Beaugelin, K., Maubert H., Ledenvic, Ph., 1999. Les retombées en France de l'accident de Tchernobyl , EDP Sciences, 146 p.

Renaud, Ph., Louvat, D. 2004. Magnitude of fission products deposition from atmospheric nuclear weapon test fallout in France. *Health Physics* 86, 353-358.

Rosner, G., Hotzl, H., Winkler, R., 1990. Effect of dry deposition, washout and resuspension on radionuclide ratios after the Chernobyl accident. *Science of the Total Environment* 90, 1-12.

Rühm, W., Yoshida, S., Muramatsu, Y., Steiner, M., Wirth, E., 1999. Distribution patterns for stable ^{133}Cs and their implications with respect to the long-term fate of radioactive ^{134}Cs and ^{137}Cs in a semi-natural ecosystem. *J. Environ. Radioact.* 45, 253-270.

Runde, W., Meinrath, G., Kim, J.I., 1992. A study of solid-liquid phase equilibria of trivalent lanthanide and actinide ions in carbonate systems. *Radiochim. Acta*, 58/59, 93-100.

Sanchez-Cabeza J.-A., Garcia-Talavera M., Costa E., Pena V., Garcia-Orellana J., Masque, P., Nalda C, 2007. Regional calibration of erosion radiotracers (^{210}Pb and ^{137}Cs): Atmospheric fluxes to soils (northern Spain). *Environmental Science and Technology*, 41, 1324-1330.

Santchi, P.H., Bohlhader, S., Farrenkolten, K., Lueck, A., Zingg, S., Strurm, M., 1988. Chernobyl radionuclides in the environment : tracers for the tight coupling of atmospheric, terrestrial and aquatic geochemical processes. *Environment Sciences and Technology* 22, 510-516.

Schimmack, W., Schultz, W., 2006. Migration of fallout radiocaesium in a grassland soil from 1986 to 2001. Part I: Activity-depth profiles of ^{134}Cs and ^{137}Cs . *Science of the Total Environment*, 368, 853-862.

Service Central de Protection contre les Rayonnements Ionisants (SCPRI), 1986. Bulletin mensuel de résultats de mesures de mai 1986 SCPRI, République Française, Ministère de la Santé.

Simonetti, A., Gariepy, C, Carignan, J., 2000. Pb and Sr isotopic compositions of snowpack from Quebec, Canada: Inferences on the sources and deposition budgets of atmospheric heavy metals. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 64, 5-20.

Shotyk, W., Goodsite, M.E., Roos-Barraclough, F., Frei, R., Heinemeier, J., Asmund, G., Lohse, C, Hansen, T.S. 2003. Anthropogenic contributions to atmospheric Hg, Pb and As accumulation recorded by peat cores from southern Greenland and Denmark dated using the ^{14}C «bomb pulse curve». *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 67, 3991-4011.

Sigurgeirsson, M.A., Arnalds, O., Palsson, S.E., Howard, B.J., Gudnason, K., 2005. Radiocaesium fallout behaviour in volcanic soils in Iceland. *Journal of Environmental Radioactivity*, 79, 39-53.

Smith, J.T., Appleby, P.G., Hilton, J., Richardson, N., 1997. Inventories and fluxes of ^{210}Pb , ^{137}Cs and ^{241}Am determined from the soils of three small catchments in Cumbria, UK. *Journal of Environmental Radioactivity*, 37, 127-142.

Spezzano, P., 2005. Distribution of pre- and post-Chernobyl radiocaesium with particle size fractions of soils. *Journal of Environmental Radioactivity*, 83, 117-127.

Smith, F. B., Clark, M. J., 1986. Radionuclide deposition from Chernobyl cloud. *Nature* 322, 690- 691.

Steinmann, M., Stille, P., 1997. REE behavior and Pb, Sr, Nd isotope systematics in a heavy metal contaminated soil. *Appl. Geochem.* 12, 607-623.

Stille, P., Steinmann, M., Pierret, M.-C., Gauthier-Lafaye, F., Chabaux, F., Viville, D., Pourcelot, L., Matera, V., Aouad, G., Aubert, D., 2006. The impact of vegetation on REE fractionation in natural surface waters. *Geochim. Cosmochim. Acta* 70, 3217-3230.

Stipp, S.L.S., Christensen, J.T., Lakshtanov, L.Z., Baker, J.A., Waight, T.E., 2006. Rare Earth element (REE) incorporation in natural calcite: Upper limits for actinide uptake in a secondary phase. *Radiochimica Acta*, 94, 523-528.

Strebl, F., Gerzabek, M.H., Bossew, P., Kienzl, K., 1999. Distribution of radiocaesium in an Austrian forest stand, *Science of the Total Environment*, 226, 75-83.

Tcherkezian, V., Galushkin, B., Goryachenkova, T., Kasharov, L., Liul, A., Roshina, I., Rumiantsev, O., 1995. Forms of contamination of the environment by radionuclides after the Tomsk accident (Russia, 1993). *Journal of Environmental Radioactivity* 27, 133-139.

Thomas, A.J., Martin, J.M., 1986. First assessment of Chernobyl radioactive plume over Paris. *Nature* 321, 817-819.

Tricca, A., 1997. Mécanismes de transport des métaux lourds dans les eaux de surface et souterraines aspects géochimiques et isotopiques, Thèse université L. Pasteur, Strasbourg, 234 p.

Ulsh, B.; Rademacher, S.; Ward Whicker, F., 2000. Variations of ^{137}Cs depositions and soil concentrations between alpine and montane soils in northern Colorado. *J Environ Radioact.*, 47, 57-70.

Uyttenhove, J., Pomme, S., Van Waeyenberge, B., Hardeman, F., Buysse, J., Culot, J.-P., 1997; Survey of the ^{137}Cs contamination in Belgium by in-situ gamma spectrometry, a decade after the Chernobyl accident. *Health Physics* 73, 644-646.

Vidal, M., Rauret, G., 1993. A sequential extraction scheme to ascertain the role of organic matter in radionuclide retention in Mediterranean soils. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 173, 79-86.

Waber, U., Von Gunten, H.R., Krähenbühl, U. 1987. The impact of Chernobyl Accident on a river/groundwater aquifer. *Radiochim. Acta*, 41, 191-198.

Warnecke, T., Croudace, I.W., Warwick, P.E., Taylor, R.N., 2002. A new ground-level fallout record of uranium and plutonium isotopes for northern temperate latitudes. *Earth and Planetary Science Letters*, 203, 1047-1057.

Whipkey, C.E., Capo, R.C., Chadwick, O.A., Stewart, B.W., 2000. The importance of sea spray to the cation budget of a coastal Hawaiian soil : a strontium isotope approach. *Chem. Geol.* 168, 37-48.

Whitehead, N.E., Ballestra, S., Holm, E., Walton, A., 1988. Air radionuclide patterns observed at Monaco from the Chernobyl accident. *Journal of Environmental Radioactivity* 7, 249-264.

Wright, S.M., Howard, B.J., Strand, P., Nylén, T., Sickel, M.A.K., 1999. Prediction of ^{137}Cs deposition from atmospheric nuclear weapons tests within the Arctic, *Environmental Pollution* 104, 131-143.

Yoshida, S., Muramatsu, Y., Dvornik, A.M., Zhuchenko, T.A., Linkov, I. J., 2004. Equilibrium of radiocesium with stable cesium within the biological cycle of contaminated forest ecosystems. *J. Environ Radioact* 75, 301-313.