



HAL
open science

Impacts environnemental et sanitaire des isotopes du plutonium étude bibliographique et quantification

Philippe Guetat, Marguerite Monfort, Eric Ansoborlo, Lionel Bion, Lionel Boucher, Franck Jourdain, Valérie Moulin, Pascal E. Reiller, François Van Dorpe, Thomas Vercouter, et al.

► To cite this version:

Philippe Guetat, Marguerite Monfort, Eric Ansoborlo, Lionel Bion, Lionel Boucher, et al.. Impacts environnemental et sanitaire des isotopes du plutonium étude bibliographique et quantification: Rapport dédié à Charles MADIC. [Rapport de recherche] RAPPORT CEA-R-6186, CEA. 2008. cea-01270155

HAL Id: cea-01270155

<https://cea.hal.science/cea-01270155>

Submitted on 5 Feb 2016

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

**IMPACTS ENVIRONNEMENTAL ET SANITAIRE
DES ISOTOPES DU PLUTONIUM
ÉTUDE BIBLIOGRAPHIQUE ET QUANTIFICATION**

Rapport dédié à Charles MADIC

par

Philippe GUETAT, Marguerite MONFORT
*** Eric ANSOBORLO, Lionel BION, Lionel BOUCHER,**
Franck JOURDAIN, Valérie MOULIN, Pascale REILLER,
François VAN DORPE, Thomas VERCOUTER
**** Annabelle COMTE, Anne FLURY HERARD, Paul FRITSCH,**
Florence MENETRIER

CEA

DIRECTION DES APPLICATIONS MILITAIRES
DIRECTION DE L'ÉNERGIE NUCLÉAIRE *
DIRECTION DES SCIENCES DU VIVANT **



DIRECTION DES SYSTÈMES
D'INFORMATION

RAPPORT
CEA-R-6186

2008

- Rapport CEA-R-6186 -

CEA

Direction des Applications Militaires

Direction de L'Energie Nucléaire *

Direction des Sciences du Vivant **

IMPACTS ENVIRONNEMENTAL ET SANITAIRE
DES ISOTOPES DU PLUTONIUM
ÉTUDE BIBLIOGRAPHIQUE ET QUANTIFICATION

Rapport dédié à Charles MADIC

par

Philippe GUETAT, Marguerite MONFORT

* Eric ANSOBORLO, Lionel BION, Lionel BOUCHER, Franck JOURDAIN,
Valérie MOULIN, Pascal REILLER, François VAN DORPE, Thomas VERCOUTER

** Annabelle COMTE, Anne FLURY HERARD, Paul FRITSCH, Florence MENETRIER

- Mai 2008 -

RAPPORT CEA-R-6186 – Philippe GUETAT, Marguerite MONFORT, Eric ANSOBORLO, Lionel BION, Lionel BOUCHER, Franck JOURDAIN, Valérie MOULIN, Pascal REILLER, François VAN DORPE, Thomas VERCOUTER, Annabelle COMTE, Anne FLURY HERARD, Paul FRITSCH, Florence MENETRIER

«Impacts environnemental et sanitaire des isotopes du plutonium, étude bibliographique et quantification»

Résumé - Ce document, qui concerne les différents isotopes du plutonium, présente les principaux paramètres à prendre en compte lors d'une étude d'impact, propose une hiérarchisation de ces paramètres et fournit des valeurs représentatives de ces paramètres permettant une approche du comportement du plutonium dans les installations, l'homme et l'environnement, par la modélisation. Une première partie présente les caractéristiques des isotopes du plutonium ainsi que ses origines. Elle décrit les propriétés physiques et chimiques du plutonium nécessaires à la bonne compréhension de son comportement, tant à l'intérieur des installations que dans l'environnement. Puis sont décrits les termes sources dans les installations et les quantités mesurées dans l'environnement, en fonctionnement normal et en situation accidentelle. La partie suivante correspond à l'étude des paramètres de transfert du plutonium dans les installations et dans l'environnement. On examine notamment les paramètres influençant son comportement dans les installations (forme physico-chimique et événement contribuant à son émission à l'environnement), ainsi que les paramètres influençant son dépôt sur le sol et son transfert aux plantes et aux animaux. Le comportement du plutonium est ensuite décrit après qu'il ait été incorporé par l'homme. Un chapitre est ensuite dédié à l'étude de l'impact dosimétrique d'une source unitaire de chaque isotope, pour différentes conditions météorologiques et situe les rejets vis-à-vis des niveaux d'intervention prévus en situation d'urgence radiologique. Les conséquences de rejet de composition "réaliste" sont également présentées. Un dernier chapitre traite des effets sur la santé. La conclusion fournit en quelques pages les enseignements essentiels à connaître.

Descripteurs proposés : plutonium, impact dosimétrique, aérosol, environnement, paramètres de transfert, impact sanitaire

2008 – Commissariat à l'Énergie Atomique – France

RAPPORT CEA-R-6186 – Philippe GUETAT, Marguerite MONFORT, Eric ANSOBORLO, Lionel BION, Lionel BOUCHER, Franck JOURDAIN, Valérie MOULIN, Pascal REILLER, François VAN DORPE, Thomas VERCOUTER, Annabelle COMTE, Anne FLURY HERARD, Paul FRITSCH, Florence MENETRIER

«Plutonium in the environment – Bibliographic study and quantification»

Abstract - This document deals with the different isotopes of plutonium. It intends to summarize the main features of plutonium behaviour from sources inside installation to the environment and man, and is expected to report the current knowledge about the different parameters used in models for environmental and radiological impact assessment. The objective is to gather scientific information useful for deciders in case of accident or for regulation purposes. It gives main information on radiological and chemical characteristics which are necessary to understand transfers between compartments. Then it reports information on normal and accidental historical sources and present releases. The next part deals with transfer parameters in the installations and in the environment. Parameters that influence its behaviour are examined, inside installation (physico-chemical forms and events that lead to releases), and outside in the environment for deposition to soils and transfer to plants, and animal products. A full chapter is dedicated to presentation of typical assessments, for each isotope and for mixture, and correspondence between activity, mass and dose reference levels are presented and discussed. Transfer and behaviour in man and effects on health are finally presented.

Keywords: plutonium, radiological impact, airborne particles, environment, transfer parameters, health impact

2008 – Commissariat à l'Énergie Atomique – France

REMERCIEMENTS

Ce travail a été réalisé dans le cadre du projet MRIMP "Etude d'impact sur l'environnement" du domaine Maîtrise des Risques à la Direction de l'Energie Nucléaire / Direction du Développement et de l'Innovation Nucléaire / Direction de Programme autres Filières Innovantes et études de Scénarios (DEN/DDIN/DPFIS).

Tous nos remerciements à Messieurs Henri METIVIER, Robert CREUSEFOND, Daniel SCHOULZ, Michel GUILLEMOT, pour leur lecture en temps très limité et leurs commentaires, précisions et suggestions pertinentes. Toutes les propositions de développement n'ont pu être retenues pour cette édition, mais seront conservées pour une prochaine révision.

Les auteurs peuvent être contactés par e-mail aux adresses composées comme suit : prenom.nom@cea.fr.

SOMMAIRE

| | | |
|-----------|--|-----------|
| I | INTRODUCTION | 14 |
| II | CARACTERISTIQUES DES ISOTOPES DU PLUTONIUM..... | 16 |
| II.1 | ORIGINE DES ISOTOPES | 17 |
| II.1.1 | <i>Origine naturelle</i> | 17 |
| II.1.2 | <i>Origine artificielle</i> | 17 |
| II.2 | PROPRIETES NUCLEAIRES DES ISOTOPES | 18 |
| II.2.1 | <i>Activation et filiation</i> | 18 |
| II.2.2 | <i>Fission et criticité</i> | 21 |
| II.2.2.1 | Conditions de criticité | 22 |
| II.2.2.2 | Masse critique | 22 |
| II.2.2.3 | Accident de criticité | 24 |
| II.2.3 | <i>Radiolyse</i> | 25 |
| II.3 | PROPRIETES CHIMIQUES DU PLUTONIUM | 26 |
| II.3.1 | <i>Degrés redox</i> | 26 |
| II.3.2 | <i>Complexation et hydrolyse</i> | 27 |
| II.3.2.1 | Réactions de complexation | 27 |
| II.3.2.2 | Hydrolyse et comportement colloïdal du plutonium (IV) | 28 |
| II.3.3 | <i>Données thermodynamiques</i> | 29 |
| II.3.3.1 | Préambule : principe des analogies chimiques | 29 |
| II.3.3.2 | Couples redox du plutonium | 31 |
| II.3.3.3 | Complexes et solides du plutonium (IV) | 31 |
| II.3.3.4 | Complexes et solides du plutonium (III) | 32 |
| II.3.3.5 | Complexes et solides du plutonium (V) | 33 |
| II.3.3.6 | Complexes et solides du plutonium (VI) | 33 |
| II.4 | PROPRIETES DES AEROSOLS DE PLUTONIUM | 34 |
| II.4.1 | <i>Généralités</i> | 34 |
| II.4.2 | <i>Les aérosols de plutonium générés en milieu industriel</i> | 35 |
| II.4.3 | <i>Paramètres décrivant la taille des aérosols et les méthodes de mesure</i> | 36 |
| II.4.4 | <i>Evaluation de la taille d'aérosols renfermant du plutonium</i> | 39 |
| II.4.4.1 | Données relatives à la densité des particules | 39 |
| II.4.4.2 | Données utilisées par la CIPR 66 pour proposer des tailles d'aérosols par défaut | 40 |
| II.4.4.3 | Bilan des analyses effectuées sur les filtres des balises de MELOX | 43 |
| II.5 | CONCLUSION | 46 |
| II.6 | REFERENCES | 46 |

III SOURCES DE PLUTONIUM ET UTILISATIONS DANS LES INSTALLATIONS..... 51

| | | |
|-----------|--|-----------|
| III.1 | LE PLUTONIUM DANS LES COMBUSTIBLES NUCLEAIRES..... | 51 |
| III.1.2 | <i>Combustibles des Réacteurs de génération 4.....</i> | <i>55</i> |
| III.1.3 | <i>Installations de Traitement des combustibles.....</i> | <i>57</i> |
| III.1.4 | <i>Installation de Fabrication du combustible.....</i> | <i>57</i> |
| III.1.5 | <i>Laboratoires de recherche et développement.....</i> | <i>59</i> |
| III.1.6 | <i>installations de fabrication de matières nucléaires.....</i> | <i>59</i> |
| III.2 | QUANTITES REJETEES DANS L'ENVIRONNEMENT..... | 59 |
| III.2.1 | <i>Essais d'armes nucléaires atmosphériques sur sites d'expérimentation.....</i> | <i>60</i> |
| III.2.2 | <i>Rejets des installations en fonctionnement normal.....</i> | <i>62</i> |
| III.2.2.1 | Phase historique..... | 62 |
| III.2.2.2 | Situation actuelle..... | 64 |
| III.2.3 | <i>Rejets et mesures suite à accident (hormis accident de criticité).....</i> | <i>66</i> |
| III.2.4 | <i>Accidents de criticité mettant en œuvre du plutonium.....</i> | <i>70</i> |
| III.3 | CONCLUSION..... | 72 |
| III.4 | REFERENCES..... | 73 |

IV ETUDE DES PARAMETRES DE TRANSFERT 75

| | | |
|----------|---|------------|
| IV.1 | GENERATION D'AEROSOLS DANS LES INSTALLATIONS..... | 75 |
| IV.1.1 | <i>Métal massif.....</i> | <i>75</i> |
| IV.1.2 | <i>Poudres, pastilles, éléments de combustibles, déchets.....</i> | <i>78</i> |
| IV.1.2.1 | Chute de poudre..... | 79 |
| IV.1.2.2 | Effet missile..... | 79 |
| IV.1.2.3 | Effet de souffle..... | 79 |
| IV.1.2.4 | Cas de l'incendie – Chauffage et destruction du support..... | 80 |
| IV.1.2.5 | Cas de l'explosion..... | 81 |
| IV.1.3 | <i>Liquides.....</i> | <i>83</i> |
| IV.2 | TRANSFERT ATMOSPHERIQUE ET DEPOT SUR LES SOLS ET VEGETAUX..... | 85 |
| IV.2.1 | <i>Dépôt sec.....</i> | <i>85</i> |
| IV.2.1.1 | Vitesse de dépôt sur des sols..... | 86 |
| IV.2.1.2 | Données expérimentales sur des sols..... | 88 |
| IV.2.1.3 | Interception par les supports végétaux..... | 89 |
| IV.2.2 | <i>Dépôt humide.....</i> | <i>92</i> |
| IV.2.2.1 | Interception des dépôts par la pluie des végétaux..... | 93 |
| IV.2.3 | <i>Remise en suspension.....</i> | <i>97</i> |
| IV.3 | TRANSFERT PAR VOIE EAU : RIVIERES, SOLS..... | 103 |
| IV.3.1 | <i>Chimie environnementale du plutonium.....</i> | <i>103</i> |
| IV.3.1.1 | Associations colloïdales..... | 104 |
| IV.3.1.2 | Réactivité des substances humiques..... | 104 |
| IV.3.1.3 | Impact des colloïdes (organiques et inorganiques) sur le transport du plutonium...105 | 105 |

| | | |
|----------|---|-----|
| IV.3.2 | <i>Données opérationnelles et paramètres de transport</i> | 106 |
| IV.3.2.1 | Paramètres obtenus via calculs et base de données thermodynamiques..... | 106 |
| IV.3.2.2 | Paramètres directement mesurés | 107 |
| IV.3.2.3 | Synthèse des résultats concernant les solubilités et les coefficients de rétention...107 | |
| IV.3.3 | <i>Comparaisons avec les données existantes mesurées</i> | 111 |
| IV.3.3.1 | Données sur la rétention et les Kd | 111 |
| IV.3.3.2 | Données sur les profils de migration | 114 |
| IV.3.3.3 | Retour d'expériences sur le comportement environnemental du plutonium dans les eaux ou sédiments..... | 117 |
| IV.4 | TRANSFERT DANS LA CHAÎNE ALIMENTAIRE..... | 120 |
| IV.4.1 | <i>Facteurs de transfert à la plante</i> | 120 |
| IV.4.2 | <i>Facteurs de translocation</i> | 128 |
| IV.4.3 | <i>Période biologique dans les végétaux</i> | 128 |
| IV.4.4 | <i>Facteurs de transfert vers la viande et les œufs</i> | 130 |
| IV.4.5 | <i>Facteurs de transfert vers le lait</i> | 135 |
| IV.4.6 | <i>Facteurs de transfert en milieu aquatique</i> | 137 |
| IV.4.7 | <i>Facteur de décontamination par les pratiques alimentaires</i> | 140 |
| IV.5 | CONCLUSION..... | 141 |
| IV.6 | REFERENCES | 143 |

| | | |
|----------|---|------------|
| V | TRANSFERT ET COMPORTEMENT CHEZ L'HOMME | 152 |
|----------|---|------------|

| | | |
|---------|---|-----|
| V.1 | EFFETS RADIOBIOLOGIQUES DU PLUTONIUM..... | 152 |
| V.2 | BIOCINETIQUE DU PLUTONIUM | 152 |
| V.2.1 | <i>Voies d'entrée et biodisponibilité</i> | 152 |
| V.2.1.1 | Contamination par inhalation..... | 153 |
| V.2.1.2 | Contamination par ingestion..... | 158 |
| V.2.1.3 | Contamination par blessure ou sur une peau saine..... | 158 |
| V.2.2 | <i>Distribution et rétention</i> | 158 |
| V.2.3 | <i>Excrétion</i> | 159 |
| V.2.4 | <i>Transfert materno-fœtal</i> | 159 |
| V.2.5 | <i>Passage dans le lait</i> | 160 |
| V.3 | MODELE BIOCINETIQUE..... | 160 |
| V.3.1 | <i>Paramètres du modèle de la CIPR</i> | 160 |
| V.3.1.1 | Modélisation..... | 160 |
| V.3.2 | <i>Révisions des paramètres de la CIPR [Leggett, 2003]</i> | 164 |
| V.3.2.1 | Modélisation..... | 164 |
| V.3.2.2 | Discussion | 167 |
| V.4 | COEFFICIENTS DE DOSE OU DOSES PAR UNITE D'INCORPORATION (DPUI)..... | 169 |

| | | |
|---------|---|-----|
| V.5 | INCERTITUDES SUR LES EXPOSITIONS, LES CONTAMINATIONS ET LES DOSES PAR UNITE D'INCORPORATION | 169 |
| V.5.1 | <i>Identification des sources d'incertitudes</i> | 169 |
| V.5.1.1 | Calcul et expression des incertitudes | 169 |
| V.5.1.2 | Incertitudes sur le dépôt des aérosols | 170 |
| V.5.1.3 | Incertitudes sur les doses après inhalation | 173 |
| V.5.1.4 | Incertitudes sur les risques de cancer après inhalation | 177 |
| V.5.2 | <i>Intérêt de la connaissance des incertitudes</i> | 179 |
| V.6 | CONCLUSION | 179 |
| V.7 | REFERENCES | 180 |

VI IMPACT DOSIMETRIQUE 184

| | | |
|-------|---|-----|
| VI.1 | HYPOTHESES DE CALCUL ET DONNEES UTILISEES | 184 |
| VI.2 | IMPACT DOSIMETRIQUE POUR UN REJET UNITAIRE A 1 KM DU POINT D'EMISSION | 185 |
| VI.3 | IMPORTANCE RELATIVE DES VOIES D'ATTEINTE POUR UN REJET ATMOSPHERIQUE | 186 |
| VI.4 | INFLUENCE DE L'AGE DES INDIVIDUS SUR LE NIVEAU D'EXPOSITION | 190 |
| VI.5 | INFLUENCE DE LA CATEGORIE D'ADULTES | 190 |
| VI.6 | INFLUENCE DE LA TAILLE DES PARTICULES SUR LE NIVEAU D'EXPOSITION | 190 |
| VI.7 | INFLUENCE DE LA GRANULOMETRIE D'UN REJET SUR L'IMPACT AUX POPULATIONS | 191 |
| VI.8 | TERMES SOURCES POUR DIFFERENTS CRITERES RADIOLOGIQUES OU DE COMMERCIALISATION | 193 |
| VI.9 | IMPACT D'UN REJET DE PLUTONIUM DE COMPOSITION ISOTOPIQUE PREDEFINIE | 195 |
| VI.10 | IMPACT DU RELACHEMENT DE PLUTONIUM ISSU D'UN STOCKAGE GEOLOGIQUE | 201 |
| VI.11 | CONCLUSION | 204 |
| VI.12 | - REFERENCES | 205 |

VII EFFETS SUR LA SANTE..... 206

| | | |
|-----------|---|-----|
| VII.1 | TOXICITE DU PLUTONIUM | 206 |
| VII.1.1 | <i>Données expérimentales et humaines</i> | 206 |
| VII.1.1.1 | Effets déterministes | 206 |
| VII.1.1.2 | Effets aléatoires | 206 |
| VII.1.2 | <i>Données épidémiologiques</i> | 207 |
| VII.1.2.1 | Travailleurs américains et britanniques | 208 |
| VII.1.2.2 | Travailleurs russes | 210 |
| VII.2 | TRAITEMENT DES CONTAMINATIONS | 212 |
| VII.2.1 | <i>Forme pharmaceutique</i> | 213 |
| VII.2.2 | <i>Posologie et voie d'administration</i> | 213 |
| VII.2.3 | <i>Contre-indication</i> | 213 |
| VII.2.4 | <i>Précaution d'emploi</i> | 213 |
| VII.2.5 | <i>Effets secondaires</i> | 213 |

| | | |
|---|---|------------|
| VII.2.6 | <i>Propriétés pharmacologiques et pharmacocinétiques</i> | 214 |
| VII.2.7 | <i>Perspectives : autres formes pharmaceutiques</i> | 214 |
| VII.3 | CONCLUSIONS..... | 215 |
| VII.4 | REFERENCES | 217 |
| VIII CONCLUSIONS | | 220 |
| IX ANNEXE 1 : REACTIONS ALPHA - NEUTRON (α, N) | | 226 |
| X ANNEXE 2 : QUELQUES NOTIONS SUR LA GRANULOMETRIE DES AEROSOLS..... | | 231 |
| X.1 | DIMENSIONS STATISTIQUES DES AEROSOLS..... | 231 |
| X.2 | DISTRIBUTIONS GRANULOMETRIQUES..... | 232 |
| X.3 | UTILISATION DES DIAMETRES | 233 |
| X.4 | RELATIONS ENTRE LES GRANDEURS..... | 233 |
| XI ANNEXE 3 : COEFFICIENTS DE DOSE | | 235 |
| XI.1 | COEFFICIENTS DE DOSE EXTERNE..... | 235 |
| XI.2 | COEFFICIENTS DE DOSE INTERNE - EFFICACE | 235 |
| XI.2.1 | <i>Coefficients de dose par inhalation</i> | 235 |
| XI.2.2 | <i>Coefficients de dose par ingestion</i> | 238 |
| XI.3 | COEFFICIENTS DE DOSE PAR INHALATION PAR ORGANE CIBLE POUR DIFFERENTES CLASSES D'AGE | 238 |
| XI.4 | COEFFICIENTS DE DOSE POUR LES TRAVAILLEURS | 240 |
| XI.5 | DEBITS RESPIRATOIRES EN FONCTION DE L'AGE ET DU SEXE | 241 |
| XI.6 | REFERENCES | 241 |
| XII ANNEXE 4 : PHENOMENOLOGIE D'UN ACCIDENT DE CRITICITE | | 242 |
| XIII ANNEXE 5 : HYPOTHESES DE CALCUL UTILISEES | | 244 |

Liste des tableaux

| | |
|---|----|
| Tableau II-1 : Caractéristiques minéralogiques du plutonium [Prunier, 1987]..... | 16 |
| Tableau II-2 : Caractéristiques radiologiques des isotopes du plutonium, issues de l'évaluation JEFF 3.1 [JEFF Report, 2006]..... | 20 |
| Tableau II-3 : Activité d'un gramme de chaque isotope du plutonium et masse d'isotope correspondant à une activité de 1 Bq..... | 21 |
| Tableau II-4 : Données de référence pour les isotopes fissiles en fonction de la nature et de la masse volumique | 23 |
| Tableau II-5 : Masse critique d'une solution en géométrie sphérique avec modération optimale - Effet des réflecteurs | 23 |
| Tableau II-6 : Masses critiques calculées pour les isotopes à nombre de neutrons pair pour une géométrie sphérique [selon Lingren, cité par Angeletti, 1977a] | 23 |
| Tableau II-7 : Probabilités de production pour une désintégration | 24 |
| Tableau II-8 : Nombre de fissions observé..... | 25 |
| Tableau II-9 : Logarithmes des constantes de complexation (à I=0 et 25°C) pour différents ligands et pour les différents degrés redox du plutonium | 28 |
| Tableau II-10 : Potentiels redox à force ionique nulle et à 25°C des couples du plutonium | 31 |
| Tableau II-11 : Valeurs du DAMA et de σ_g mesurées par différents auteurs [Dorrian, 1995]..... | 41 |
| Tableau II-12 : Autres valeurs du DAMA et de σ_g mesurées par différents auteurs [Dorrian, 1995]. | 42 |
| Tableau III-1 : Composition isotopique et activité d'un combustible REP UOx irradié à 60 000 MWj.t ⁻¹ | 52 |
| Tableau III-2 : Composition isotopique et activité d'un combustible REP MOx irradié à 60 000 MWj.t ⁻¹ | 52 |
| Tableau III-3 : Compositions en pourcentage massique de combustibles UOx enrichis à 3,7% et 4,95% en fonction du niveau d'irradiation | 53 |
| Tableau III-4 : Composition en activité et en masse d'un combustible REP UOx en fonction du niveau d'irradiation | 53 |
| Tableau III-5 : Compositions en pourcentage massique de combustibles REP MOx | 54 |
| Tableau III-6 : Composition isotopique et activité d'un combustible GFR à plaques version 06/04 irradié à 10 atomes% | 56 |
| Tableau III-7 : Production annuelle de l'usine MELOX en tonne de Métal Lourd..... | 58 |
| Tableau III-8 : Inventaire des retombées d'armes (PBq déposés) pour les isotopes 238, 239 et 240 du plutonium [Hardy, 1973] | 60 |
| Tableau III-9 : Compositions isotopiques du plutonium mesurées suite à des essais nucléaires localement ou dans le monde | 62 |
| Tableau III-10 : Rejets liquides en fonctionnement normal et activité totale "émetteurs alpha" (déterminés par comptage alpha) dans différents types d'installations..... | 65 |
| Tableau III-11 : Rejets gazeux en fonctionnement normal et activité totale "émetteurs alpha" dans différents types d'installations | 65 |
| Tableau III-12 : Récapitulatif des accidents (hors accident de criticité) ayant mis en œuvre du plutonium..... | 69 |

| | |
|---|-----|
| Tableau III-13 : Accidents de criticité mettant en œuvre uniquement du plutonium [Miele, 2005] | 71 |
| Tableau IV-1 : Récapitulatif des coefficients de mise en suspension du plutonium métal | 78 |
| Tableau IV-2 : Récapitulatif des coefficients de mise en suspension du plutonium en poudre ou de pastilles | 82 |
| Tableau IV-3 : Récapitulatif des coefficients de mise en suspension du plutonium sous forme liquide | 85 |
| Tableau IV-4 : Vitesse de dépôt pour différents diamètres et densités ($m.s^{-1}$)..... | 86 |
| Tableau IV-5 : Vitesses de dépôt au sol. Données mesurées (police normale) ou données estimées (<i>en italique</i>)..... | 88 |
| Tableau IV-6 : Coefficients d'absorption (μ) obtenus dans des expériences au champ | 90 |
| Tableau IV-7 : Facteur d'interception massique en fonction des précipitations | 95 |
| Tableau IV-8 : Coefficients de remise en suspension mesurés sur différents sites | 99 |
| Tableau IV-9 : Coefficients A et B obtenus suite à Tchernobyl | 100 |
| Tableau IV-10 : Compositions d'eaux naturelles | 108 |
| Tableau IV-11 : Paramètres de transport (S, solubilité) des différents degrés redox du Pu | 109 |
| Tableau IV-12 : Paramètres de transport ($K_d(s)$) des différents degrés redox du Pu | 110 |
| Tableau IV-13 : Estimation de la gamme de valeurs de $K_d(s)$ en fonction des teneurs en argiles et en carbonates dissous | 112 |
| Tableau IV-14 : Coefficients de distribution $K_d(r)$ du plutonium mesurés pour différents sols ; les valeurs AIEA sont les valeurs de référence utilisées dans les bases de données de calculs d'impact | 113 |
| Tableau IV-15 : Comparaison des coefficients de distribution, $K_d(r)$ du plutonium pour différents types de sol ; les valeurs AIEA sont les valeurs de référence utilisées dans les bases de données des calculs d'impact | 114 |
| Tableau IV-16 : Profil de migration dans les sols du plutonium. Données mesurées (police normale) ou données estimées (<i>en italique</i>) | 116 |
| Tableau IV-17: Valeurs de coefficient d'adsorption $K_d(r)$ du plutonium pour des systèmes eau-sédiment..... | 117 |
| Tableau IV-18 : Spéciation du plutonium mesurée dans différents types d'environnement..... | 119 |
| Tableau IV-19 : Facteurs de transfert sol/plante du plutonium, résultats exprimés en masse sèche du végétal. Données mesurées (police normale) ou données estimées (<i>en italique</i>)..... | 124 |
| Tableau IV-20 : Facteurs de transfert sol/plante du plutonium, résultats exprimés en masse fraîche du végétal. Données mesurées (police normale) ou données estimées (<i>en italique</i>)..... | 125 |
| Tableau IV-21 : Facteur de transfert sol/plante du plutonium, en $Bq.kg^{-1}$ de plante/ $Bq.kg^{-1}$ de sol, résultats exprimés en masse fraîche du végétal. Données de la bibliographie (police normale) ou données recalculées (soulignées) avec les taux de matière sèche des végétaux [A.I.E.A., 1994] | 126 |
| Tableau IV-22 : Translocation du plutonium dans les végétaux..... | 128 |
| Tableau IV-23 : Demi-vie biologique pour diverses plantes et pour différentes granulométries de particules..... | 129 |
| Tableau IV-24 : Données permettant le calcul des facteurs de transfert, en $j.kg^{-1}$, du plutonium vers la viande et valeurs calculées en fonction des circonstances. | 131 |

| | |
|---|-----|
| Tableau IV-25 : Facteurs de transfert, en j.kg^{-1} , du plutonium vers la viande. Données calculées et données calculées ou citées dans [Coughtrey, 1990]..... | 132 |
| Tableau IV-26 : Facteurs de transfert, en j.kg^{-1} , du plutonium vers la viande. Données calculées et données calculées ou citées dans [Coughtrey 1990]..... | 132 |
| Tableau IV-27 : Facteurs de transfert, en j.kg^{-1} , du plutonium vers la viande. Données mesurées (police normale) ou données estimées (<i>en italique</i>)..... | 133 |
| Tableau IV-28 : Facteurs de transfert, en j.kg^{-1} , du plutonium vers les œufs. Données mesurées (police normale) ou données estimées (<i>en italique</i>)..... | 134 |
| Tableau IV-29 : Facteurs de transfert, en j.L^{-1} , du plutonium vers le lait. Données mesurées (police normale) ou données estimées (<i>en italique</i>) | 136 |
| Tableau IV-30 : Facteurs de transfert, en L.kg^{-1} , du plutonium en milieu aquatique. Données mesurées (police normale) ou données estimées (<i>en italique</i>)..... | 139 |
| Tableau IV-31 : Effet de la préparation et des transformations des aliments avant consommation sur le contenu en plutonium | 140 |
| Tableau V-1: Effet de la taille sur le pourcentage de tissu pulmonaire irradié pour un même dépôt pulmonaire (activité) après inhalation de $^{239}\text{PuO}_2$ (aérosol monodispersé) [Métivier, 1997]..... | 154 |
| Tableau V-2 : Revue bibliographique des paramètres d'absorption au sang pour différents composés du Pu par inhalation (INH), instillation (IT) ou in vitro | 156 |
| Tableau V-3 : Distribution du plutonium chez le fœtus [CIPR 88, 2002] | 159 |
| Tableau V-4 : Rapport des concentrations totales de plutonium pour le fœtus et la mère [CIPR 88, 2002] | 159 |
| Tableau V-5 : Paramètres biocinétiques du plutonium [CIPR 67, 1993]..... | 162 |
| Tableau V-6 : Paramètres biocinétiques du plutonium – révision des paramètres de la CIPR [Leggett, 2005] | 164 |
| Tableau V-7 : Taux d'excrétion urinaire et rapports des concentrations en plutonium dans le foie et le squelette pour différents groupes de travailleurs de Mayak en fonction de leur état de santé au niveau hépatique [Leggett, 2005]..... | 168 |
| Tableau V-8 : Nombre moyen de particules de $^{239}\text{PuO}_2$ déposées dans les différentes régions du tractus respiratoire et écart type relatif pour des expositions pour un travailleur standard [Fritsch, 2006b] | 173 |
| Tableau VI-1 : Dose efficace (mSv) après 1 an, à 1 km pour un terme source comprenant 1 GBq d'un seul isotope en fonction des différentes conditions météorologiques pour un adulte du public – rejet au niveau du sol – solubilité "M" (moderate)..... | 185 |
| Tableau VI-2 : Ratio des expositions par inhalation entre adulte et enfants en fonction de la nature chimique du rejet..... | 190 |
| Tableau VI-3 : Activité rejetée pouvant conduire à des interventions (confinement, évacuation et interdiction de commercialisation de productions locales à distance de 1 km du point d'émission – DN5 | 194 |
| Tableau VI-4 : Activité (Bq) correspondant à 1 gramme de métal lourd | 195 |
| Tableau VI-5 : Dose efficace (mSv) pour un rejet de 1 GBq de chaque isotope..... | 196 |
| Tableau VI-6 : Impacts radiologiques (mSv) d'un rejet de 1 gramme de métal lourd de différents combustibles. | 196 |
| Tableau VI-7 : Terme source environnement (Bq) correspondant à 1 milligramme d'un mélange de plutonium..... | 197 |

| | |
|--|-----|
| Tableau VI-8 : Dose efficace (mSv) à court terme, à 1 km dans l'axe du vent – solubilité "M" pour les isotopes du plutonium | 197 |
| Tableau VI-9 : Dose efficace (mSv) à court terme, à 1 km dans l'axe du vent – solubilité "S" pour les isotopes du plutonium | 198 |
| Tableau VII-1 : Causes de mortalité de 7 travailleurs du projet Manhattan sur 26 contaminés en 1944-1945, bilan établi en 1991. [Voelz, 1991] | 208 |
| Tableau VII-2 : Caractéristiques principales de la cohorte des travailleurs de Mayak [Koshurnikova, 2002] | 210 |
| Tableau VII-3 : Décès par cancer du poumon et risque relatif pour la mortalité par cancer du poumon en fonction de la dose et du genre [Gilbert, 2004] | 211 |
| Tableau IX-1 : Nombre de neutrons par seconde par fission spontanée et réaction (α , n), en milieu UO_2 par désintégration | 227 |
| Tableau IX-2 : Nombre de neutrons par seconde par fission spontanée et réactions (α , n), par gramme de chaque isotope de plutonium sous forme PuO_2 et PuF_4 | 227 |
| Tableau IX-3 : Nombre de neutrons produits par fission spontanée et réactions (α , n), par gramme de chaque isotope de plutonium sous forme PuO_2 par groupe d'énergie. | 228 |
| Tableau IX-4 : Nombre de neutrons produits par fission spontanée et réactions (α , n), par gramme de chaque isotope de plutonium sous forme PuF_4 par groupe d'énergie. | 229 |
| Tableau XI-1 : Coefficients de dose externe, valables quelle que soit la classe d'âge | 235 |
| Tableau XI-2 : Coefficients de dose efficace par inhalation pour le public ($Sv.Bq^{-1}$) – DAMA = 1 μm [BO, 2003a] | 236 |
| Tableau XI-3 : Coefficients de dose efficace par inhalation pour le public ($Sv.Bq^{-1}$) – DAMA = 5 μm [CIPR 71, 1996] | 237 |
| Tableau XI-4 : Coefficients de dose par ingestion ($Sv.Bq^{-1}$) pour le public [BO, 2003a] | 238 |
| Tableau XI-5 : Coefficients de dose aux organes par inhalation et ingestion pour le public – DAMA = 1 μm , classe "M" [CIPR 71, 1996 ; CIPR 72, 1996] | 240 |
| Tableau XI-6 : Coefficients de dose incorporée pour les travailleurs par inhalation (DAMA = 5 μm) et par ingestion [BO, 2003a] | 240 |
| Tableau XIII-1 : Conditions météorologiques | 244 |
| Tableau XIII-2 : Vitesse de dépôt au sol | 244 |
| Tableau XIII-3 : Ration alimentaire des classes d'âge étudiées | 245 |
| Tableau XIII-4 : Débit respiratoire classes d'âge étudiées | 245 |
| Tableau XIII-5 : Caractéristiques des végétaux | 246 |
| Tableau XIII-6 : Période biologique de décroissance des dépôts sur végétaux | 246 |
| Tableau XIII-7 : Ration alimentaire des animaux | 246 |

Liste des figures

| | |
|--|----|
| Figure II-1 : Principaux isotopes du plutonium et leurs éléments voisins produits à partir de ^{238}U [Condit, 1993]..... | 18 |
| Figure II-2 : Diagramme de Pourbaix simplifié des espèces aqueuses du plutonium à 25°C et en milieu non complexant infiniment dilué (force ionique nulle, $I=0$), établi pour $[\text{Pu}]=10^{-10}$ M, avec les constantes thermodynamiques présentées dans [Guillaumont, 2003]..... | 27 |
| Figure II-3 : Diagramme théorique de prédominance en solution des espèces du Pu(IV) en milieu non complexant obtenu en tenant compte des espèces hydrolysées proposées dans [Guillaumont, 2003] | 29 |
| Figure II-4 : Constantes de formation de complexes de Eu^{3+} , Am^{3+} et Fe^{3+} montrant l'analogie $\text{Eu}^{3+}/\text{Am}^{3+}$ [Guillaumont, 2003 ; Powell, 2004]..... | 30 |
| Figure II-5 : Analogie $\text{Pu}^{4+}/\text{Fe}^{3+}$ en utilisant les constantes de stabilité ($\log K1$) pour chaque élément. La ligne pleine correspond à l'analogie parfaite (1:1). Chaque point correspond à un ligand différent [Ansoborlo, 2007] | 30 |
| Figure II-6 : Dépôt des particules dans l'appareil respiratoire | 35 |
| Figure II-7 : Cartographie par microanalyse X d'une particule de MOx (5% de Pu) recueillie après génération d'un aérosol [Massiot, 1998] | 36 |
| Figure II-8 : Distribution des diamètres physiques et aérodynamiques d'une population d'aérosols et incidence en termes de cumul de nombre ou masse de particules. | 37 |
| Figure II-9 : Distributions des diamètres aérodynamiques exprimées en fraction de l'activité totale et du nombre total de particules pour un aérosol ayant un DAMA de 5 μm et pour deux écart type σ_g | 38 |
| Figure II-10 : Représentation schématique des principaux appareillages permettant une mesure directe du diamètre aérodynamique..... | 38 |
| Figure II-11 : Visualisation des particules émettant des rayonnements alpha sous forme de spots dont les traces présentent une symétrie par rapport à un point..... | 39 |
| Figure II-12 : Influence de l'écart-type σ_g et de la densité sur le nombre de particules de $^{239}\text{PuO}_2$ présentes dans 1 Bq d'aérosol. Les calculs effectués selon Fritsch [Fritsch, 2004] tiennent compte d'un DAMA de 5 μm et d'un facteur de forme de 1,5 | 43 |
| Figure II-13 : Distribution du nombre de filtres positifs en fonction du nombre de particules par Bq de Pu, du DAMA et de son écart-type σ_g pour l'ensemble des filtres positifs analysés à ce jour | 44 |
| Figure II-14 : Distribution de la teneur en Pu des particules renfermant une quantité détectable d'uranium en microanalyse X et de leur diamètre géométrique | 45 |
| Figure III-1: Schéma de principe du procédé PUREX..... | 57 |
| Figure III-2 : Matières radioactives contenues dans un assemblage de combustible utilisé [CEA, 2005] | 58 |
| Figure III-3 : Impact par inhalation résultant des retombées atmosphériques | 60 |
| Figure III-4 : Rejets liquides du site de Marcoule de 1960 à la fermeture de l'usine UP1 | 63 |
| Figure III-5 : Dépôt à la surface du sol de $^{239}, ^{240}\text{Pu}$ lors de l'accident de Tchernobyl à un niveau supérieur à 3700 Bq/m ² | 67 |
| Figure IV-1 : Vitesse de dépôt en fonction du diamètre aérodynamique | 86 |
| Figure IV-2 : Vitesses de dépôt d'après des expérimentations [Sehmel, 1980a]..... | 87 |

| | |
|---|-----|
| Figure IV-3 : Rapport d'interception en fonction de la biomasse pour différents coefficients d'absorption..... | 92 |
| Figure IV-4 : Facteur d'interception massique pour les faibles intensités de pluie..... | 94 |
| Figure IV-5 : Facteur d'interception massique pour les fortes intensités de pluie | 94 |
| Figure IV-6 : Rapport d'interception en fonction des précipitations | 96 |
| Figure IV-7 : Rapport d'interception du dépôt humide..... | 97 |
| Figure IV-8 : Facteur de remise en suspension (K) mesuré en Europe (surface hachurée) après Tchernobyl comparé avec des modèles..... | 99 |
| Figure IV-9 : Evolution de l'activité remise en suspension sur les 14 sites européens | 101 |
| Figure IV-10 : Relation entre la remise en suspension et l'activité initiale déposée..... | 102 |
| Figure IV-11 : Variations de la constante de décroissance en fonction de l'activité déposée | 102 |
| Figure IV-12 : Spéciation du plutonium (10^{-10} M) en fonction de E_H (V/ENH) - pH 7, force ionique 0.1 M, [Carbone Total Inorganique]=8,2 mM et [Acides humiques] = 100 mg/L | 105 |
| Figure IV-13 : Synoptique simplifié présentant le schéma de calcul des paramètres de transport utilisant une base de données thermodynamiques (BDT) et la composition du milieu. Dans le cas de la sorption, le calcul aboutit à des K_d (s)..... | 107 |
| Figure IV-14 : Estimation de la gamme de valeurs de K_d (s) en fonction des teneurs en argiles et en carbonates dissous [EPA, 1999] | 112 |
| Figure IV-15 : Evolution de la fraction restante sur les végétaux | 129 |
| Figure V-1 : Dépôt des aérosols dans l'appareil respiratoire | 154 |
| Figure V-2 : Diagramme des facteurs d'absorption au sang en fonction de la cinétique de dissolution | 155 |
| Figure V-3 : Modèle biocinétique du plutonium [CIPR 67, 1993] | 161 |
| Figure V-4 : Nouveau modèle proposé pour le plutonium [Leggett, 2003]..... | 165 |
| Figure V-5 : Modélisation de la cinétique des formes circulantes du plutonium : initialement (lors du 1 ^{er} passage sanguin : <i>sang 1</i>) et lors des recyclages (après recyclage : <i>sang 2</i>) [Leggett, 2003].. | 166 |
| Figure V-6 : Distribution des dépôts au sein du tractus respiratoire calculés avec le modèle de la CIPR 66 en tenant compte des paramètres par défaut pour le travailleur | 171 |
| Figure V-7 : Comparaison des incertitudes sur le dépôt des aérosols mono et polydispersés de différentes tailles. AI : alvéoles, bb : bronchioles, BB : bronches, ET1 (nez antérieur) et ET2 (autres parties extra thoraciques). (<i>Le σ_g à la puissance 4 donne l'intervalle de confiance à 95%</i>)..... | 172 |
| Figure V-8 : Evolution de la rétention pulmonaire du Pu et de son excrétion urinaire et fécale après inhalation de PuO_2 . Barres : intervalles de confiance à 95% [Fritsch, 2006b ; Fritsch, 2006c]..... | 175 |
| Figure V-9 : Comparaison des incertitudes sur les doses équivalentes engagées et les DPUI lorsque le dépôt des aérosols peut être ou non mesurable. Aérosol de $^{239}PuO_2$ en prenant les valeurs par défaut recommandées par la CIPR pour les travailleurs. Les barres représentent l'intervalle de confiance 95% [Fritsch, 2006b] | 175 |
| Figure V-10 : influence du nombre de particules d'un aérosol de $^{239}PuO_2$ sur les doses équivalentes thoraciques et extra thoraciques et sur les DPUI. LAI nombre de particules pour lequel la dose efficace engagée atteint la limite annuelle d'exposition (20 mSv). Les barres représentent l'intervalle de confiance à 90% [Fritsch, 2004]..... | 176 |
| Figure V-11 : Modèle cytologique de la CIPR 66 pour calculer la dose moyenne aux cellules basales de la région thoracique (nez antérieur exclu) et modèle stochastique utilisé pour évaluer le | |

nombre d'impacts σ par cellule cible. Le parcours des traces alpha pour le ^{239}Pu est de 37 μm . Ainsi, seuls les macrophages contribuent à l'irradiation des cellules basales [Fritsch, 2007b]..... 178

Figure VI-1 : Importance relative des voies d'atteinte pour chaque isotope, à 1 km du point d'émission, pour un terme source mono-isotopique de plutonium (Bilan sur 1 an après l'accident) 189

Figure VI-2 : Dose par unité d'incorporation par inhalation en fonction de la taille des particules .. 191

Figure VI-3 : Evolution des distributions granulométriques des aérosols avec la distance, (scénario atmosphérique DN1) 192

Figure VI-4 : Exposition en fonction de la distance 192

Figure VI-5 : Evolution du coefficient de dose par Bq inhalé avec la distance 193

Figure VI-6 : Contribution des isotopes à la dose efficace – solubilité "M" pour les isotopes du plutonium pour les deux types de combustibles MOx 199

Figure VI-7 : Contribution des isotopes à la dose efficace – solubilité "S" pour les isotopes du plutonium pour les deux types de combustibles MOx 200

Figure VI-8 : Historiques de débits molaires sortant du stockage à 7 mètres des alvéoles - Colis type CU1 UOx3 201

Figure VI-9 : Historiques de débits molaires sortant du Callovo-Oxfordien - Colis type CU1 UOx3202

Figure VI-10 : Evolution à long terme d'un stockage géologique (site de Bure) dans le cas de combustibles usés – Scénario d'évolution normale [ANDRA, 2005] 203

Figure VI-11 : Evolution à long terme d'un stockage géologique (site de Yucca Mountain) dans le cas de combustibles usés – Scénario d'évolution normale [Wigeland, 2006] 203

Figure XI-1 : Débits respiratoires en fonction de l'âge, du sexe et de l'activité 241

I INTRODUCTION

L'évaluation de l'impact des installations est un élément clef de la sûreté nucléaire, à plus d'un titre. Elle intervient :

- lors de la conception des installations dans l'orientation de choix de matériaux, procédés et techniques, en particulier de traitement des effluents et production de déchets, pour les rejets en fonctionnement normal,
- dans la caractérisation des risques accidentels,
- dans la définition des plans particuliers d'intervention et plans post-accidentels pour limiter les conséquences environnementales et sanitaires en précisant l'efficacité des actions possibles et l'étendue des zones concernées.

De nombreuses sciences et techniques contribuent à l'élaboration de ces évaluations. S'il existe des ouvrages très détaillés sur la plupart des maillons de la chaîne des transferts allant de l'inventaire d'une installation jusqu'aux alvéoles pulmonaires d'un individu ou ses différents organes, en passant par la dispersion atmosphérique, le dépôt au sol et sur les végétaux puis les transferts dans la chaîne alimentaire, peu de documents de synthèse existent, destinés à des non-spécialistes sur l'ensemble de la chaîne et permettant à chacun de comprendre l'importance de tel ou tel phénomène pour le besoin de notre société.

Dans cet esprit, le CEA a engagé un travail de plusieurs années, visant un public assez large, sous forme de rapports ciblés sur des éléments chimiques fournissant les informations nécessaires à une bonne compréhension du comportement environnemental de l'élément et de l'impact de chacun de ces isotopes en faisant le pari de se limiter à l'essentiel.

Ces documents visent à compléter des documents à caractère encyclopédique¹, dans un esprit pratique, quantitatif et, par-là même, autorisant, en prenant les précautions d'usage, une hiérarchisation des phénomènes dans l'évaluation globale des impacts.

Le premier rapport concernait les différents isotopes de l'iode, l'un des éléments importants en cas d'accidents de réacteurs nucléaires. Ce second document concerne les différents isotopes du plutonium, un élément majeur de l'histoire énergétique de l'humanité.

La présentation de cet élément sous l'angle environnemental et sanitaire est nécessairement plus complexe que celle de l'iode, pour plusieurs raisons :

- Le plutonium est un métal qui est une matière première de toute une industrie et, en conséquence, peut se trouver sous des formes physico-chimiques très variées selon les procédés utilisés et les différentes installations concernées de production, conditionnement, utilisation, recyclage ou stockage.

¹ On peut citer ci-après **quelques ouvrages de référence sur le plutonium** comme :

- The chemistry of plutonium (1979) Cleveland J. Ed : American Chemical Society
- Challenges in Plutonium Science (2000) Los Alamos Science, Number 26.
- Plutonium in the Environment (2001) Edited Proceedings of the Second Invited International Symposium. Ed. A. Kudo, Elsevier.
- Advances in Plutonium Chemistry 1967-2000 (2002). Ed. D. C. Hoffman, American Chemical Society.
- Plutonium Futures – The Science (2000) Topical Conference on plutonium and actinides. Ed. K.K.S. Pillay and K.C. Kim. American Institute of Physics.
- The Chemistry of the Actinide and Transactinide Elements (2006) Edited by L.R. Morss, N.M. Edelstein and J. Fuger, Springer

- Le principal isotope du plutonium (^{239}Pu) a une période longue comparativement à la durée de vie humaine (24 000 ans) et courte à l'échelle de temps géologique. De ce fait, il convient d'aborder non seulement l'impact immédiat d'un rejet accidentel, mais également les impacts à long terme.
- Le plutonium est utilisé pour une propriété bien particulière, qui est son aptitude à fissionner² sous l'action de neutrons en libérant de l'énergie et d'autres neutrons, ce qui est éminemment intéressant dans des conditions maîtrisées, mais qui peut également être une source d'accident, dit accident de criticité, qu'il convient d'explicitier.

Ce document se propose de mettre en évidence les principaux paramètres à prendre en compte lors d'études d'impact liées au plutonium, de proposer une hiérarchisation de ces paramètres et de fournir des valeurs représentatives de ces paramètres permettant une approche du comportement du plutonium par la modélisation.

Le deuxième chapitre du document présente les caractéristiques des isotopes du plutonium ainsi que ses origines. Il décrit également les propriétés physiques et chimiques du plutonium nécessaires à la bonne compréhension de son comportement, tant à l'intérieur des installations que dans l'environnement, et utiles à une évaluation d'impact. Il n'est pas question ici de développer les aspects relatifs à la chimie d'extraction et à la métallurgie du plutonium. Ces domaines ne seront abordés que dans la mesure où ils ont une incidence sur le comportement de l'élément dans l'environnement.

Le troisième chapitre décrit les sources dans les installations et les quantités mesurées dans l'environnement, en fonctionnement normal et en situation accidentelle.

Le quatrième chapitre correspond à l'étude des paramètres de transfert du plutonium dans les installations et dans l'environnement. On examine notamment les paramètres influençant son comportement dans les installations (forme physico-chimique et événement contribuant à son émission à l'environnement), ainsi que les paramètres influençant son dépôt sur le sol et son transfert aux plantes et aux animaux.

Le cinquième chapitre décrit le comportement du plutonium après qu'il ait été incorporé par l'homme.

Le sixième chapitre consiste en l'étude de l'impact dosimétrique d'une source unitaire, de chaque isotope, pour différentes conditions météorologiques et situe les rejets vis-à-vis des niveaux d'intervention prévus en situation d'urgence radiologique. Les conséquences d'un rejet de composition "réaliste" sont également présentées.

Le septième chapitre traite des effets sur la santé.

La conclusion fournit en quelques pages les enseignements essentiels à connaître.

Enfin, des annexes présentent respectivement des notions concernant la granulométrie des aérosols, les coefficients de dose associés aux isotopes du plutonium, décrivent la phénoménologie d'un accident de criticité ainsi que les réactions nucléaires.

² Se casser

II CARACTERISTIQUES DES ISOTOPES DU PLUTONIUM

Le plutonium (numéro atomique $Z=94$) est un élément de la famille des actinides, de symbole chimique Pu, et de masse atomique 244. A l'état pur, il s'agit d'un métal de couleur grise et de très grande densité (plus dense que le plomb).

Il existe à la pression atmosphérique six variétés allotropiques³ α , β , γ , δ , δ' et ϵ pour le plutonium métal, chacune ayant une stabilité en fonction de la température et une masse volumique particulières. Selon la variété, la densité du plutonium métal varie entre 16 et 19,8 [Alvarez 1997 ; Coleman, 1965] (cf. Tableau II-1).

| Phase | Structure | Nombre d'atomes | Densité |
|--------------------------|-------------------------------|-----------------|---------|
| α jusqu'à 119°C | Monoclinique simple | 16 | 19,82 |
| β jusqu'à 204°C | Monoclinique centrée | 34 | 17,8 |
| γ jusqu'à 315°C | Orthorhombique à face centrée | 8 | 17,14 |
| δ jusqu'à 457°C | Cubique à face centrée | 4 | 15,92 |
| δ' jusqu'à 479°C | Tétraogonale centrée | 2 | 16 |
| ϵ jusqu'à 640°C | Cubique centrée | 2 | 16,51 |

Tableau II-1 : Caractéristiques minéralogiques du plutonium [Prunier, 1987]

L'utilisation du plutonium α sous forme de pièce est impossible compte tenu des mauvaises propriétés mécaniques de la phase α à la température ordinaire. Seules les phases δ et ϵ ont des structures cristallines simples et par conséquent des propriétés isotropes.

On s'est efforcé de stabiliser la phase δ par de faibles additions dans un large domaine de températures incluant la température ambiante. Les principaux alliages de plutonium sont à base de scandium, gallium ou aluminium. Ces alliages ne sont pas fragiles. Les alliages Pu Al à des teneurs allant jusqu'à 20% en poids d'aluminium (2,7 % en atomes) ont été les premiers à être utilisés à grande échelle dans les réacteurs thermiques.

Le plutonium métal est pyrophorique ; il peut s'enflammer spontanément dans certaines conditions, en atmosphère humide, en particulier lorsqu'il se trouve sous forme de poudre ou de copeaux. Tous les isotopes, soit 15 au total (isotopes 232 à 246), sont radioactifs.

Les caractéristiques de l'isotope 239 (^{239}Pu) ont conduit à l'utiliser dans des applications civiles comme combustible (source d'énergie) dans les centrales électronucléaires, et à des fins militaires comme matériau fissile. C'est en effet un isotope fissile, c'est-à-dire apte à se casser sous l'action d'un bombardement de neutrons de faible énergie, tout en générant d'autres neutrons et en libérant de l'énergie.

³ Arrangements des atomes dans la structure métallique

II.1 ORIGINE DES ISOTOPES

II.1.1 ORIGINE NATURELLE

L'**isotope 239 du plutonium**, dont la période est de 24 milliers d'années, existe à l'état naturel. Il résulte de l'absorption de neutrons d'origine terrestre (produits par fission spontanée et réaction α - n^4 sur des éléments légers par l'uranium 238, présent dans les sols). Il existe également dans le minerai d'uranium, où les neutrons sont alors issus de la fission spontanée de ^{235}U .

Dans les minerais d'uranium, la concentration maximale en ^{239}Pu est de $4,8 \cdot 10^{-12}$ g par gramme de minerai, soit environ 10 Bq par kilogramme de minerai d'uranium [Angeletti, 1977a]. L'extraction de 20 millions de tonnes d'uranium, besoin annuel de l'industrie électronucléaire mondiale, est accompagnée d'environ 100 grammes de ^{239}Pu , soit 0,22 TBq.

On estime que la couche supérieure de l'écorce terrestre en contient naturellement quelques kilogrammes, soit environ 10 TBq [Després, 1995].

L'autre isotope du plutonium naturellement présent est le **plutonium 244**, dont la période est de 80 millions d'années. **Les astrophysiciens pensent que le système solaire a été formé suite à une explosion de supernova au cours de laquelle les atomes les plus lourds auraient été créés.** Au moment de la formation de la Terre, il y a 4,5 milliards d'années, la plupart des isotopes du plutonium avaient déjà disparu du fait de la décroissance. On ne retrouve des traces de ^{244}Pu primordial que dans des roches précambriennes, dans des minéraux riches en terres rares, de type bastnasite, à des concentrations infinitésimales ($7 \cdot 10^{-24}$ à $3 \cdot 10^{-22}$ g.kg $^{-1}$) [Taylor, 2001].

II.1.2 ORIGINE ARTIFICIELLE

Pendant la seconde guerre mondiale, les recherches sur l'arme atomique et le besoin des différentes puissances militaires à en disposer, ont conduit l'homme à produire du ^{239}Pu métal de grande pureté en tant que matériau fissile des armes.

Le plutonium 238 a été obtenu le 14 décembre 1940 par Glenn Theodore Seaborg par bombardement de l'uranium 238 à l'aide de deutons produits dans un cyclotron. Le plutonium 239 a été découvert en 1941.

La source de production de plutonium est aujourd'hui le traitement et le recyclage de la matière nucléaire utilisée pour le combustible des centrales électriques. Le plutonium ainsi produit est d'une composition isotopique peu intéressante pour un usage militaire. Il peut par contre entrer dans la fabrication de combustible MOx (Mixed Oxyde), utilisé de façon croissante dans les réacteurs électronucléaires.

Le plutonium présent aujourd'hui dans l'environnement provient en grande partie des essais d'armes nucléaires de 1945 à 1980 avec un maximum de dispersion en 1961-1962 dans l'hémisphère nord, ce qui représente $1,2 \cdot 10^{16}$ Bq de ^{239}Pu et ^{240}Pu dans l'atmosphère, dont 60% de ^{239}Pu et $1,42 \cdot 10^{17}$ Bq de ^{241}Pu . [UNSCEAR, 2000] (environ 4 tonnes rejetées).

Le ^{238}Pu trouve des applications spécifiques comme source d'énergie utilisée pour les satellites de la NASA pour les générateurs thermoélectriques type SNAP (System for Nuclear Auxiliary Power) et en raison de son rayonnement alpha et de sa période radioactive dans les stimulateurs cardiaques et dans les détecteurs d'incendie. Dans l'environnement, cet isotope est issu, pour sa majeure partie, de rentrées dans l'atmosphère de satellites, avec soit une dispersion à l'échelle globale en cas de désintégration en altitude soit la chute de morceaux, heureusement pour la plupart tombés en mer.

⁴ Le principe des réactions neutroniques est décrit en paragraphe IX.

II.2 PROPRIETES NUCLEAIRES DES ISOTOPES

II.2.1 ACTIVATION ET FILIATION

Les quinze isotopes connus du plutonium, de nombre de masse allant de 232 à 246, sont tous instables.

Il est possible de classer les isotopes en deux familles, selon qu'ils sont de périodes radioactives assez longues et formés lors de réactions mettant en jeu ^{238}U (^{236}Pu , ^{238}Pu à ^{246}Pu) ou de périodes radioactives courtes et formés à partir de ^{235}U (^{232}Pu à ^{237}Pu).

Seuls les isotopes 238 à 242 sont présents de façon significative dans les combustibles nucléaires, et proviennent tous de réactions mettant en jeu ^{238}U [Angeletti, 1977a ; Madic, 1995]. La réaction principale est la réaction $^{238}\text{U} (n,\gamma)^{239}\text{U}$. L'isotope ^{239}U fournit par filiation le ^{239}Pu , qui est l'isotope prépondérant en masse dans les combustibles et générant, par absorptions neutroniques successives, tous les isotopes de masse atomique supérieure. Le ^{238}Pu résulte d'un ensemble de réactions différentes qui génère moins d'atomes (cf. Figure II-1).

Le ^{236}Pu , qui est un isotope mineur, peut être généré par filiation du ^{236}Np , lui-même produit à partir du ^{237}Np par réaction $(n, 2n)$.

Les isotopes 232 à 236 du plutonium ont une période courte à très courte, d'où leur présence en quantités (masse) très faibles dans les combustibles usés.

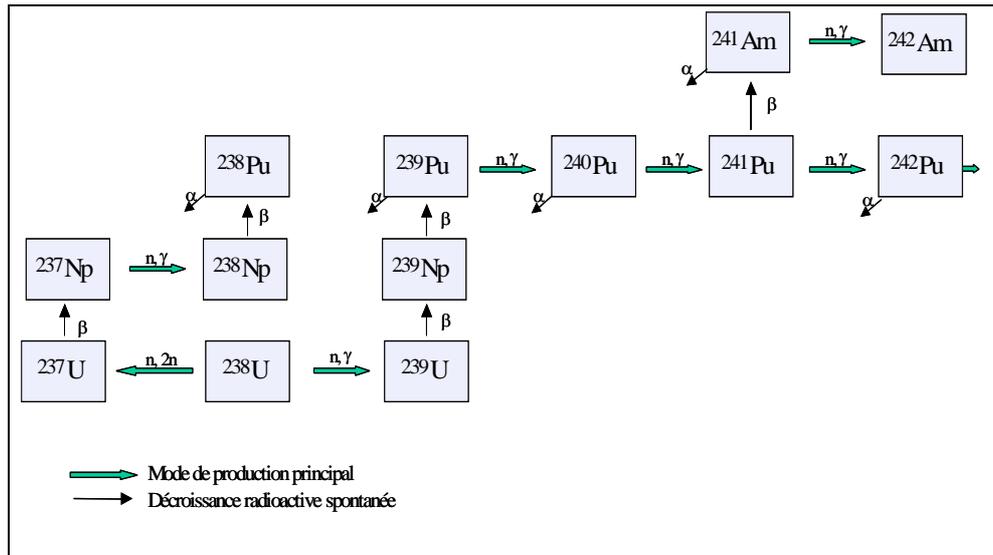


Figure II-1 : Principaux isotopes du plutonium et leurs éléments voisins produits à partir de ^{238}U [Condit, 1993]

Plus un combustible reste en réacteur, c'est-à-dire sous flux de neutrons, plus le nombre des atomes de plutonium de masse élevée augmente suite aux réactions nucléaires (n,γ) , la décroissance radioactive étant relativement négligeable sur quelques années.

En termes de radioactivité, c'est-à-dire en nombre de désintégrations par seconde, le classement est modifié en raison de la proportionnalité de l'activité et de la constante radioactive. L'activité associée aux isotopes aux périodes les plus courtes est plus forte. A titre d'exemple, l'activité associée au ^{241}Pu est généralement plus importante que celle du ^{238}Pu , alors que la masse est plus faible (cf. Chapitre III).

Le Tableau II-2 présente les isotopes du plutonium, leur mode de production, les caractéristiques de leurs émissions et leurs descendants, ainsi que les caractéristiques du principal descendant (^{241}Am).

Les principaux isotopes du plutonium, c'est-à-dire ^{238}Pu , ^{239}Pu , ^{240}Pu et ^{242}Pu , sont des isotopes à vie longue (période de 88 à 370 000 années), et ont un mode de désintégration α , c'est-à-dire qu'ils émettent un noyau d'hélium animé d'une forte énergie (4 à 5 MeV - méga électron-volt - par désintégration). Compte tenu de la masse importante de cette particule, à l'échelle de l'atome, son parcours dans les milieux traversés est très court (3,5 cm dans l'air, 45 μm dans l'eau, 21 μm dans l'aluminium et 1 μm dans le plomb) et le dépôt d'énergie est très localisé. De ce fait, comme on le verra au paragraphe VII, leurs effets radiologiques ne sont observés qu'après incorporation (inhalation et ingestion), en raison du contact direct entre l'élément et les cellules vivantes voisines.

On distinguera donc :

- Des isotopes à vie longue, émetteurs α , soit : ^{238}Pu , ^{239}Pu , ^{240}Pu , ^{242}Pu , ^{244}Pu

Ils ont tous des énergies par désintégration voisines et des périodes radiologiques longues ou assez longues par rapport à la vie humaine.

A cette catégorie sont à ajouter deux isotopes :

- Le ^{241}Pu , isotope essentiellement émetteur β , de période courte vis-à-vis de cette catégorie (14,4 ans) avec son fils, ^{241}Am , qui est un émetteur alpha de période longue (433 ans). De ce fait, le couple père-fils est à prendre en compte dans les calculs d'impact (cf. paragraphe VI).
- Le ^{236}Pu , émetteur α , d'assez faible importance, qui se caractérise par une période courte vis-à-vis de cette catégorie (2,9 ans).
- Des isotopes à vie courte, émetteurs β (période de 11 à 45 jours) : ^{237}Pu , ^{246}Pu .

De période supérieure à la journée, ces isotopes sont les fils de radionucléides produits dans la chaîne d'activation de l'uranium 238.

- Des isotopes à vie très courte (période de 21 minutes à 11 heures) : ^{232}Pu , ^{233}Pu , ^{234}Pu , ^{235}Pu , ^{243}Pu et ^{245}Pu .

Ils sont indiqués ici à titre d'exhaustivité mais ne présentent pas d'intérêt car, dans les applications actuelles, ils sont toujours très secondaires.

Afin de compléter la présentation des caractéristiques des isotopes du plutonium, le Tableau II-3 liste les activités spécifiques de chacun des isotopes (Bq par gramme d'isotope pur) ainsi que la masse, en gramme, correspondant à une activité de 1 Bq.

| Pères | Isotope | Période | Mode de décroissance | Energie moyenne émise par désintégration (MeV) | | | Filiation |
|--|-------------------|-------------------------|--------------------------------|--|----------------------|----------------------|--|
| | | | | α | β | γ | |
| Emetteurs α, obtenus à partir de ^{238}U | | | | | | | |
| - ^{240}Cm (α) - ^{236}Np (β^-) | ^{236}Pu | 2,9 ans | α FS | 5,85 | $1,3 \cdot 10^{-2}$ | $1,6 \cdot 10^{-3}$ | ^{232}U (100%) FS ($8,2 \cdot 10^{-8}\%$) |
| - ^{242}Cm (α) - ^{238}Am (CE) - ^{238}Np (β^-) | ^{238}Pu | 87,8 ans | α FS | 5,58 | $1,1 \cdot 10^{-2}$ | $1,5 \cdot 10^{-3}$ | ^{234}U (100%) FS ($1,8 \cdot 10^{-7}\%$) |
| - ^{243}Cm (α) - ^{239}Am (CE) - ^{239}Np (β^-) | ^{239}Pu | $2,4 \cdot 10^4$ ans | $\alpha 1$ $\alpha 2$ FS | 5,24 | $7,4 \cdot 10^{-3}$ | $7,1 \cdot 10^{-4}$ | ^{235}U (0,01%) $^{235\text{m}}\text{U}$ (99,99%) FS ($3 \cdot 10^{-10}\%$) |
| - ^{244}Cm (α) - ^{240}Am (CE) - ^{240}Np (β^-) | ^{240}Pu | $6,6 \cdot 10^3$ ans | α FS | 4,97 | $1,1 \cdot 10^{-2}$ | $1,29 \cdot 10^{-3}$ | ^{236}U (100%) FS ($5,75 \cdot 10^{-6}\%$) |
| - ^{246}Cm (α) - ^{242}Am (CE) | ^{242}Pu | $3,7 \cdot 10^5$ ans | α FS | 4,97 | $9,4 \cdot 10^{-3}$ | $1,29 \cdot 10^{-3}$ | ^{238}U (99,99%) FS ($5,5 \cdot 10^{-4}\%$) |
| - ^{248}Cm (α) | ^{244}Pu | $8,0 \cdot 10^7$ ans | α FS | 4,87 | $7,7 \cdot 10^{-3}$ | $9,75 \cdot 10^{-3}$ | ^{240}U (99,88%) FS ($1,25 \cdot 10^{-1}\%$) |
| Emetteur β, période assez longue, obtenu à partir de ^{238}U | | | | | | | |
| - ^{245}Cm (α) | ^{241}Pu | 14,33 ans | β^- α | $1,2 \cdot 10^{-4}$ | $5,2 \cdot 10^{-3}$ | $1,7 \cdot 10^{-6}$ | ^{241}Am (99,99%) ^{237}U ($2,46 \cdot 10^{-3}\%$) |
| Emetteurs β, obtenus à partir de ^{238}U | | | | | | | |
| - ^{247}Cm (α) | ^{243}Pu | 5 h | β^- | - | 0,17 | $2,5 \cdot 10^{-2}$ | ^{243}Am |
| | ^{245}Pu | 10,5 h | β^- | - | 0,33 | 0,4 | ^{245}Am |
| - ^{250}Cm (α) | ^{246}Pu | 10,9 jours | β^- | - | 0,11 | 0,12 | $^{246\text{m}}\text{Am}$ (100%) |
| Isotopes à période courte ou très courte obtenus à partir de ^{235}U | | | | | | | |
| | ^{232}Pu | 34,1 mn | CE α | 0,74 | 0,04 | 0,09 | ^{232}Np (89%) ^{228}U (11%) |
| | ^{233}Pu | 20,9 mn | CE α | $7,7 \cdot 10^{-3}$ | 0,7 | 0,7 | ^{233}Np (99,88%) ^{229}U (0,12%) |
| - ^{238}Cm (α) | ^{234}Pu | 8,8 h | CE α | 0,378 | $1,85 \cdot 10^{-2}$ | $3,7 \cdot 10^{-2}$ | ^{234}Np (94%) ^{230}U (6%) |
| | ^{235}Pu | 25,3 mn | CE α | $1,66 \cdot 10^{-4}$ | 0,38 | 0,38 | ^{235}Np (99,99%) ^{231}U ($2,8 \cdot 10^{-3}\%$) |
| - ^{237}Am (EC) - ^{241}Cm (α) | ^{237}Pu | 45,3 jours | CE α | $2,3 \cdot 10^{-4}$ | 0,017 | $5,5 \cdot 10^{-2}$ | ^{237}Np (99,99%) ^{233}U ($4,2 \cdot 10^{-3}\%$) |
| Emetteurs α, obtenus à partir de ^{241}Pu | | | | | | | |
| ^{241}Pu (β^-) | ^{241}Am | 432,8 ans | α | 5,55 | 0,039 | 0,027 | ^{237}Np (99,999%) FS ($4,8 \cdot 10^{-10}\%$) |

FS : fission spontanée - CE : capture électronique

Tableau II-2 : Caractéristiques radiologiques des isotopes du plutonium, issues de l'évaluation JEFF 3.1 [JEFF Report, 2006]

| Isotope | Activité en Bq pour une masse de 1 g | Masse en g pour une activité de 1 Bq |
|---|--------------------------------------|--------------------------------------|
| Isotopes obtenus à partir de ²³⁸U | | |
| ²³⁶ Pu | 1,9E+13 | 5,2E-14 |
| ²³⁸ Pu | 6,3E+11 | 1,6E-12 |
| ²³⁹ Pu | 2,3E+09 | 4,3E-10 |
| ²⁴⁰ Pu | 8,3E+09 | 1,2E-10 |
| ²⁴¹ Pu | 3,8E+12 | 2,6E-13 |
| ²⁴² Pu | 1,5E+08 | 6,8E-09 |
| ²⁴³ Pu | 9,5E+16 | 1,0E-17 |
| ²⁴⁴ Pu | 6,8E+05 | 1,5E-06 |
| ²⁴⁵ Pu | 4,5E+16 | 2,2E-17 |
| ²⁴⁶ Pu | 1,8E+15 | 5,6E-16 |
| Isotopes obtenus à partir de ²³⁵U | | |
| ²³² Pu | 8,9E+17 | 1,1E-18 |
| ²³³ Pu | 1,4E+18 | 7,0E-19 |
| ²³⁴ Pu | 5,6E+16 | 1,8E-17 |
| ²³⁵ Pu | 1,2E+18 | 8,5E-19 |
| ²³⁷ Pu | 4,5E+14 | 2,2E-15 |
| Fils | | |
| ²⁴¹ Am | 1,3E+11 | 7,9E-12 |

Tableau II-3 : Activité d'un gramme de chaque isotope du plutonium et masse d'isotope correspondant à une activité de 1 Bq

II.2.2 FISSION ET CRITICITE

Les atomes de plutonium, comme la plupart des atomes d'actinides, ont la caractéristique d'être fissiles ou fissibles, c'est-à-dire de pouvoir se casser en atomes plus légers (généralement deux) sous l'action d'un choc avec un neutron. Un atome fissible est un atome dont le noyau est susceptible de subir une fission par interaction avec des neutrons de haute énergie (rapides), alors qu'un atome fissile est susceptible de subir une fission par interaction avec des neutrons lents (thermiques). Tous les atomes fissiles sont fissibles, alors que les atomes fissibles ne sont pas fissiles [Angeletti, 1977a].

On distingue les atomes à nombre de neutrons pair qui sont fissibles, comme le ²³⁸₉₄Pu, ²⁴⁰₉₄Pu (et ²⁴¹₉₅Am ...) et ceux à nombre de neutrons impair qui sont fissiles, comme ²³⁹₉₄Pu, ²⁴¹₉₄Pu (et ²³⁵₉₂U ...).

La réaction de fission émet également des neutrons et de l'énergie sous différentes formes. Cette dernière se décompose en énergie cinétique des produits de fission et des neutrons, en énergie électromagnétique (photons) directement émise pendant la fission et, enfin, en énergie libérée ultérieurement par les produits de fission eux-mêmes.

La fission est spontanée dans des proportions très faibles. Elle peut être consécutive à un choc de neutrons, que celui-ci soit d'origine externe ou provenant d'une fission d'un atome voisin.

Les neutrons émis dans une réaction de fission ont une énergie cinétique élevée, de l'ordre de quelques MeV (méga électron-volt).

Le nombre de neutrons émis dans une réaction de fission est en moyenne de 2,9 pour le plutonium 239. On voit donc qu'il est possible, dans certaines configurations et concentrations de matière,

qu'une réaction en chaîne s'amorce, une fission pouvant induire, via ces neutrons, plusieurs fissions.

Cependant, les neutrons produits par fission ne provoquent pas automatiquement d'autres fissions. En effet, certains neutrons s'échappent de la matière fissile et se dispersent dans l'air, d'autres sont absorbés par des éléments stables ou non fissiles de leur environnement. Le phénomène trouve alors ses limites généralement par la modification de la géométrie de la matière (dispersion, écoulement...), par "l'empoisonnement" par des éléments chimiques d'apports non fissiles, ou par une disparition significative des atomes fissiles.

II.2.2.1 Conditions de criticité

Les conditions de criticité dépendent de la capacité du milieu fissile à produire des neutrons ou à favoriser la fuite des neutrons ou leur capture sans fission. Ceci se traduit par un paramètre, appelé coefficient ou facteur de multiplication neutronique qui exprime le bilan neutronique du milieu fissile :

$$k_{\text{eff}} = \text{Production} / (\text{Absorption} + \text{Fuite})$$

- **si $k_{\text{eff}} < 1$** , la réaction est inhibée. Il s'agit de l'**état sous-critique**, qui caractérise l'absence de risque de criticité (laboratoires et usines).
- **si $k_{\text{eff}} = 1$** , la réaction est maîtrisée. Il s'agit de l'**état critique** des réacteurs nucléaires. L'ensemble des éléments de conduite a pour objectif de maintenir cet état critique et les éléments de sûreté ont pour objectif de ramener le cœur à l'état sous-critique.
- **si $k_{\text{eff}} > 1$** , la réaction de fission en chaîne démarre. Il s'agit de l'**état sur-critique** qui peut conduire, en absence de maîtrise, à un accident de criticité.

II.2.2.2 Masse critique

La masse de matière fissile pour laquelle on a $k_{\text{eff}} = 1$, dans une configuration donnée, s'appelle "**masse critique**". Cette masse critique, qui peut varier de quelques centaines de grammes à plusieurs dizaines de kilogrammes, dépend de nombreux facteurs, à savoir :

- la nature du produit : la masse critique est plus faible pour le liquide que pour le solide ;
- la densité des produits secs : la masse critique est plus faible pour le métal que pour l'oxyde ;
- la concentration des solutions : la masse critique passe par un minimum pour une concentration de 33 g/L pour le plutonium 239 ;
- la présence ou non de poisons (absorbeurs de neutrons), ou de modérateurs (ralentisseurs de neutrons). Le ralentissement les rend plus aptes à induire une nouvelle fission. C'est le cas en particulier de l'hydrogène ;
- la géométrie, les formes géométriques à faible surface (sphère, cube) diminuent la fuite des neutrons, et donc la masse critique ;
- la distance entre emballages ; il peut y avoir interaction neutronique entre deux unités ;
- la nature des matériaux qui environnent la matière. Ils peuvent jouer le rôle de réflecteur et renvoyer des neutrons vers la matière.

Le Tableau II-4, le Tableau II-5 et le Tableau II-6 ci-dessous illustrent l'influence de ces facteurs sur quelques valeurs de référence.

| ²³⁹ Pu | Masse volumique (kg.L ⁻¹) | Masse critique d'une sphère (kg) |
|-------------------------|---------------------------------------|----------------------------------|
| métal α | 19,6 | 5,42 |
| métal δ | 15,8 | 7,6 |
| fritté PuO ₂ | 11 | 11 |
| poudre PuO ₂ | 3 | 78 |
| poudre PuO ₂ | 2 | 144 |
| solution aqueuse. | 0,032 | 0,510 |
| ²⁴¹Pu | | |
| solution aqueuse. | 0,032 | 0,26 |
| métal | | 5,9 |

Tableau II-4 : Données de référence pour les isotopes fissiles en fonction de la nature et de la masse volumique

| ²³⁹ Pu en solution | Masse critique d'une sphère (kg) | ²³⁹ Pu en solution | Masse critique d'une sphère (kg) |
|-------------------------------|----------------------------------|-------------------------------|----------------------------------|
| Eau | 0,510 | Plomb | 0,218 |
| Eau lourde | 0,200 | U non enrichi | 0,300 |
| Béryllium | 0,160 | Béton ordinaire | 0,480 |
| Graphite | 0,226 | | |

Tableau II-5 : Masse critique d'une solution en géométrie sphérique avec modération optimale - Effet des réflecteurs

| Isotope | Masse volumique (kg/L) | Rapport atomique hydrogène / actinide H/Pu | Facteur de multiplication infinie | Sphère critique - masse (kg) | | |
|-------------------|------------------------|--|-----------------------------------|------------------------------|-----------------------------|-------------------------------|
| | | | | sans réflecteur | avec réflecteur eau (20 cm) | avec réflecteur acier (20 cm) |
| ²³⁸ Pu | 19,6 | 0 | 2,805 | 7,2 | 5,6 | 4,5 |
| | 11,25 | 1 | 1,668 | 25,8 | 23,3 | 13,3 |
| | 7 | 2,62 | 1,283 | 163,6 | 159,8 | 85,4 |
| | 6,078 | 3 | 1,144 | 489,2 | - | - |
| | 5,7 | 3,73 | 1,008 | - | 58,8 | - |
| | 5,1 | 3,83 | 0,992 | - | - | - |
| ²³⁹ Pu | 19,6 | 0 | 2,85 | 9,7 | 5,2 | 4,8 |
| ²⁴⁰ Pu | 19,6 | 0 | 1,634 | 158,4 | 148,3 | 96,4 |
| | 19457 | 0,01 | 1,591 | 166,4 | 157,3 | 101 |
| | 18,905 | 0,05 | 1,496 | 202,3 | 191,8 | 124,3 |
| | 18,257 | 0,1 | 1,203 | 261,9 | - | 163,4 |
| | 17,653 | 0,15 | 1,042 | 344,6 | - | - |
| | 17,5 | 0,16 | 1 | - | 35,4 | - |
| | 17,092 | 0,2 | 0,917 | - | - | - |
| ²⁴¹ Am | 11,7 | 0 | 1,944 | 113,6 | 105,3 | 71,4 |
| | 9,607 | 0,5 | 1,337 | 394,4 | 358,9 | 269,2 |
| | 8,361 | 1 | 1,093 | 2985 | 2730,7 | - |
| | 7,6 | 1,2 | <1 | | | |

Tableau II-6 : Masses critiques calculées pour les isotopes à nombre de neutrons pair pour une géométrie sphérique [selon Lingren, cité par Angeletti, 1977a]

II.2.2.3 Accident de criticité

L'accident de criticité se traduit par un dégagement considérable de rayonnements (neutrons et γ), un échauffement important du milieu fissile et le relâchement de produits de fission radioactifs vapeurs et gaz (iode, krypton, xénon...) et, en fonction des circonstances, d'aérosols.

Les conséquences humaines peuvent être dramatiques pour le personnel travaillant à proximité de l'équipement concerné par l'accident (irradiation importante, voire mortelle).

Pour une excursion conduisant à 10^{18} fissions, l'exposition est de respectivement 200 Gy en dose neutron et 250 Gy en dose gamma en milieu modéré et 400 Gy en dose neutron et de 60 Gy gamma en milieu rapide. On rappelle que la dose létale 50% (DL50) est de 5 Gy.

Les calculs d'impact radiologique sont effectués à partir :

- **d'une composition de référence** des produits de fission générés par désintégration ; le Tableau II-7 fournit l'ordre de grandeur des probabilités de production exprimée en Becquerel pour une désintégration. Il convient de noter que ces valeurs sont des valeurs intégrées sur quelques heures, ce qui, compte tenu de l'importance des radionucléides à période courte, peut conduire à une surestimation.
- **du nombre de fissions** (Tableau II-8), lequel dépend de la nature du milieu critique, en particulier de sa capacité à se disperser ou à se recomposer. Olson, cité dans le DOE HDBK-3010-94 [DOE, 1994] a recensé 34 accidents d'excursion critique portant à la fois sur ^{235}U et ^{239}Pu .
- **des possibilités de libération des différents éléments** hors du milieu critique. On distingue en particulier les milieux liquides, les poudres et les solides massifs.

Pour les poudres, la Nuclear Regulatory Commission (NRC) américaine considère un rejet de 50% des gaz rares, 5% des iodes et des tellures et $5 \cdot 10^{-4}$ pour les radionucléides non volatils. Pour les métaux, la NRC suppose de façon majorante qu'un dixième du métal fond et libère les iodes et gaz rares contenus. Pour les liquides, on suppose généralement que tous les gaz rares sont émis à l'atmosphère. Pour les iodes, la NRC considère un rejet d'un quart de l'iode produit. Une valeur de $5 \cdot 10^{-4}$ est retenue pour la sortie des éléments non volatiles de l'eau.

| Gaz | Probabilité | Iodes | Probabilité | Aérosols | Probabilité |
|---------------------------|--------------------|------------------|-------------------|---------------------------|--------------------|
| $^{83\text{m}}\text{Kr}$ | $5 \cdot 10^{-7}$ | ^{131}I | $3 \cdot 10^{-8}$ | ^{132}Te | $1 \cdot 10^{-7}$ |
| $^{85\text{m}}\text{Kr}$ | $3 \cdot 10^{-7}$ | ^{132}I | $1 \cdot 10^{-7}$ | $^{133\text{m}}\text{Te}$ | $6 \cdot 10^{-6}$ |
| ^{85}Kr | $5 \cdot 10^{-12}$ | ^{133}I | $5 \cdot 10^{-7}$ | ^{134}Te | $2 \cdot 10^{-5}$ |
| ^{87}Kr | $3 \cdot 10^{-6}$ | ^{134}I | $1 \cdot 10^{-5}$ | ^{134}Cs | $1 \cdot 10^{-7}$ |
| ^{88}Kr | $2 \cdot 10^{-6}$ | ^{135}I | $2 \cdot 10^{-6}$ | ^{137}Cs | $5 \cdot 10^{-11}$ |
| ^{89}Kr | $7 \cdot 10^{-5}$ | | | ^{138}Cs | $1 \cdot 10^{-5}$ |
| $^{131\text{m}}\text{Xe}$ | $4 \cdot 10^{-10}$ | | | ^{88}Rb | $2 \cdot 10^{-6}$ |
| $^{133\text{m}}\text{Xe}$ | $1 \cdot 10^{-7}$ | | | ^{89}Rb | $2 \cdot 10^{-5}$ |
| ^{133}Xe | $1 \cdot 10^{-7}$ | | | ^{89}Sr | $6 \cdot 10^{-9}$ |
| $^{135\text{m}}\text{Xe}$ | $1 \cdot 10^{-5}$ | | | ^{90+}Sr | $3 \cdot 10^{-11}$ |
| ^{135}Xe | $2 \cdot 10^{-6}$ | | | ^{140}Ba | $4 \cdot 10^{-8}$ |
| ^{137}Xe | $2 \cdot 10^{-4}$ | | | ^{140}La | $1 \cdot 10^{-8}$ |
| ^{138}Xe | $4 \cdot 10^{-5}$ | | | | |

Tableau II-7 : Probabilités de production pour une désintégration

| | Nombre d'observations | Valeur basse | Valeur haute | Cas extrême |
|---|-----------------------|-------------------|---------------------|---------------------|
| Solutions aqueuses | 12 | 10^{15} | $1,3 \cdot 10^{18}$ | $4 \cdot 10^{19}$ |
| Métaux | 11 | $3 \cdot 10^{15}$ | $1,5 \cdot 10^{17}$ | $3,8 \cdot 10^{18}$ |
| Poudres et pastilles | 3 | $6 \cdot 10^{15}$ | $3 \cdot 10^{17}$ | |
| Système inhomogène modéré à l'eau (réacteurs) | 9 | $3 \cdot 10^{16}$ | 10^{20} | 10^{20} |
| Expériences d'excursion sur réacteur | 5 | $3 \cdot 10^{17}$ | $5 \cdot 10^{18}$ | |

Tableau II-8 : Nombre de fissions observé

Les conséquences matérielles des accidents de criticité sont généralement faibles, les énergies mises en œuvre n'étant pas suffisantes pour entraîner des dommages aux appareillages ou équipements. $1,45 \cdot 10^{17}$ fissions correspondent à une énergie de 1 kg d'équivalent TNT [UNSCEAR, 2000].

Les conséquences au voisinage des installations sont normalement assez faibles, car les rejets se limitent essentiellement, en raison de la présence de filtres de très haute efficacité, aux gaz rares et aux iodes.

Après l'accident, il peut y avoir également une radioactivité induite par l'activation neutronique des matériaux se trouvant dans l'environnement de la source. Le rayonnement dû à l'activation est cependant très faible par rapport à l'irradiation résiduelle, en provenance de la source, due aux radionucléides de fission produits par les réactions en chaîne.

II.2.3 RADIOLYSE

La radiolyse est l'ensemble des phénomènes physicochimiques consécutifs à l'interaction d'un rayonnement ionisant avec la matière. Elle n'est pas spécifique au rayonnement du plutonium. Cependant, compte tenu du fait que le plutonium peut être travaillé à l'état de métal pur ou sous forme de poudre ou pastille d'oxyde, son rayonnement alpha est alors de forte intensité sur une très courte distance, et ces phénomènes ne peuvent être négligés.

La radiolyse conduit à la dégradation de molécules soumises aux rayonnements, avec en particulier, les cas de l'eau et des matières organiques qui conduisent à une production d'hydrogène. Le risque considéré est alors le risque d'explosion dans des milieux confinés (fûts étanches aux gaz par exemple). Ces phénomènes peuvent également conduire à un vieillissement d'emballages tels que des enveloppes en PVC, qu'il convient de prendre en compte dans la gestion de matières nucléaires.

La production d'hydrogène peut être significative dans le cas de déchets organiques contenant en mélange intime du plutonium de moyenne activité. Le phénomène est également observé sur des déchets enrobés dans du béton, en raison de la présence d'eau liée.

D'une manière générale, les phénomènes sont relativement complexes, dépendent des atomes composant les matières irradiées (H O N Cl C en particulier) et leurs liaisons, de l'atmosphère entourant le milieu considéré, de l'étanchéité des conteneurs (aux gaz ou aux particules), du contact entre les particules radioactives et les molécules du support, le parcours des particules alpha étant extrêmement faible. Ceci peut conduire à la production d'un mélange explosif avec l'oxygène (du ciel de cuve ou de fût), ou à la disparition de l'oxygène ou à la création de molécules d'acides HCl ou HNO₃, pouvant conduire à un vieillissement chimique de conteneurs.

Les essais et mesures effectués pour mieux appréhender les risques associés montrent que le risque d'explosion est très théorique, en pratique très faible, et les conséquences d'importance mineure, mais pouvant conduire à une dispersion dans le local des produits considérés.

II.3 PROPRIETES CHIMIQUES DU PLUTONIUM

Comme indiqué précédemment, le plutonium (numéro atomique $Z=94$) appartient à la famille des actinides.

II.3.1 DEGRES REDOX

L'élément plutonium peut exister sous les degrés redox +III à +VI, les ions aquo ou oxo correspondant étant Pu^{3+} , Pu^{4+} , PuO_2^+ , PuO_2^{2+} . Le degré redox +VII a été identifié en milieu ultra alcalin oxydant mais ne sera pas retenu dans ce rapport, en raison de sa faible pertinence par rapport aux milieux environnementaux et biologiques [Hoffman, 2002], sauf peut-être en cas d'accident sur un réacteur rapide mettant en œuvre du sodium [Métivier, 1974 ; Métivier, 1976].

La présence de ces quatre degrés redox, associée à une chimie de coordination très riche, rend la chimie du plutonium extrêmement complexe. La zone de prédominance des différentes espèces aqueuses du plutonium en fonction du pH et du potentiel d'oxydo-réduction (Eh) est résumée sur le diagramme de Pourbaix simplifié, présenté sur la Figure II-2.

Tous les ions des éléments issus du bloc f du tableau de la classification périodique des éléments (lanthanides et actinides) présentent des liaisons de type essentiellement ionique avec les atomes de première coordination des ligands. Ce sont ainsi des ions "durs" (par opposition aux ions covalents) [Guillaumont, 1993 ; Seaborg, 1993].

Il résulte de ceci deux points importants concernant la chimie de complexation du plutonium :

- la très forte dépendance de la complexation en fonction du degré d'oxydation et
- la forte interaction avec les molécules oxygénées.

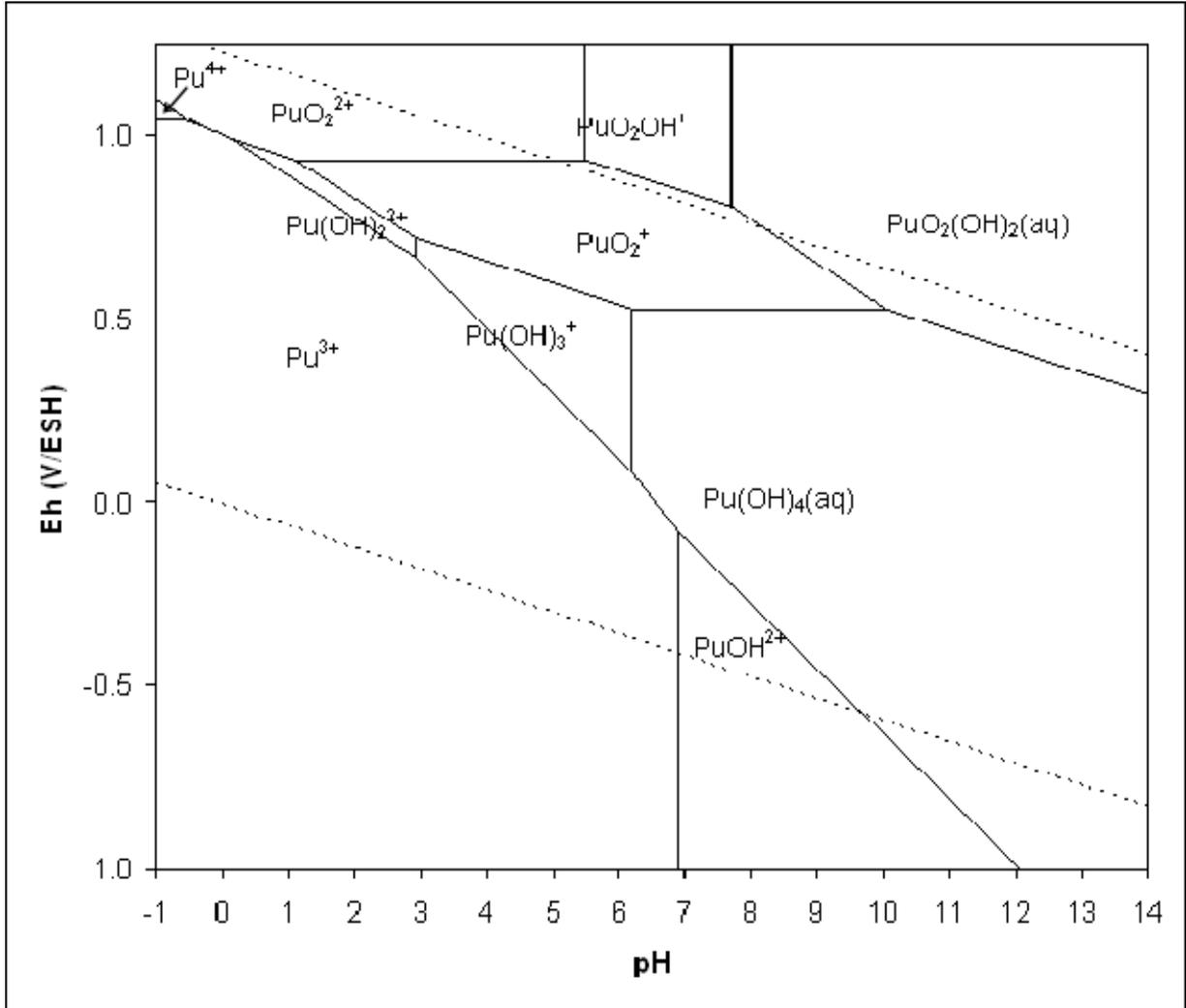


Figure II-2 : Diagramme de Pourbaix simplifié des espèces aqueuses du plutonium à 25°C et en milieu non complexant infiniment dilué (force ionique nulle, $I=0$), établi pour $[Pu]=10^{-10}$ M, avec les constantes thermodynamiques présentées dans [Guillaumont, 2003]

II.3.2 COMPLEXATION ET HYDROLYSE

II.3.2.1 Réactions de complexation

La complexation de cations durs étant régie quasi exclusivement par des phénomènes électrostatiques, le rapport "charge sur rayon ionique" du cation va être un paramètre principal quant à sa complexation.

Ainsi, pour un même ligand, on retrouve de manière systématique la série de complexation suivante [Guillaumont, 1993 ; Seaborg, 1993] (cf. Tableau II-9 ci-dessous) :



| | M=Pu ⁴⁺ | M=Pu ³⁺ | M=Pu ^V O ₂ ⁺ | M=Pu ^{VI} O ₂ ⁺⁺ |
|--|---------------------|--------------------|---|---|
| $M^{Z+} + H_2O = M(OH)^{+Z-1} + H^+$ | 0,0* | -6,9 | -11,3 ⁽¹⁾ | -5,5 |
| $M^{Z+} + CO_3^{2-} = M(CO_3)^{+Z-2}$ | | 8,0 ⁽²⁾ | 5,1 | 9,5 |
| $M^{Z+} + HSO_4^{2-} = M(SO_4)^{+Z-2} + H^+$ | 4,9 | 1,9 | -1,5 ⁽³⁾ | 1,4 ⁽³⁾ |
| $M^{Z+} + SO_4^{2-} = M(SO_4)^{+Z-2}$ | 6,9 ⁽³⁾ | 3,9 ⁽³⁾ | 0,4 ⁽¹⁾ | 3,4 |
| $M^{Z+} + Citrate^{3-} = M(Cit)^{+Z-3}$ | 15,3 ⁽⁴⁾ | 8,6 ⁽²⁾ | 3,7 ⁽¹⁾ | 9,0 ⁽⁵⁾ |
| $M^{Z+} + EDTA^{4-} = M(EDTA)^{+Z-4}$ | 31,2 ⁽⁶⁾ | 20,2** | 9,2 ⁽¹⁾ | 13,7 ⁽⁵⁾ |

(1) analogie avec Np(V)
(2) analogie avec Am(III)
(3) valeur calculée avec $\log_{10}K = -1,98$ pour la dissociation de HSO_4^- en SO_4^{2-} et H^+ .
(4) I=0,5 M
(5) analogie avec U(VI)
(6) analogie avec Np(IV)

Tableau II-9 : Logarithmes des constantes de complexation (à I=0 et 25°C) pour différents ligands et pour les différents degrés redox du plutonium

[Guillaumont, 2003 ; *Yun, 2007 ; **Hummel, 2005]

La chimie de complexation est essentiellement régie par des interactions avec les molécules oxygénées (ligands durs) et, en moindre mesure, avec les molécules fluorées (autres ligands durs, mais de problématique moindre) [Guillaumont, 1993 ; Seaborg, 1993].

Suivant les conditions du milieu, on trouvera en proportion plus ou moins importante :

- la très forte hydrolyse (y compris à des pH fortement acides, voir Figure II-3) [Seaborg, 1993 ; Neck, 2001 ; Moriyama, 2005],
- la complexation par les oxoanions inorganiques (carbonate, sulfate...) [Powell, 2004],
- la complexation par les molécules possédant des fonctions sulfonates et surtout carboxyliques (depuis l'acide formique [Powell, 2004] jusqu'aux substances humiques [Choppin, 1997 ; Fjeld, 2003 ; Reiller, 2005 ; Runde, 2003].

II.3.2.2 Hydrolyse et comportement colloïdal du plutonium (IV)

Un colloïde est une entité définie par sa taille comprise entre 1 nm et 1 µm, qui reste en suspension dans l'eau par mouvement brownien. Des changements de conditions physico-chimiques (pH, force ionique...) peuvent entraîner une instabilité de la suspension et conduire à des phénomènes de floculation, agrégation et sédimentation [Koopal, 2001].

Le plutonium (IV) est présent en solution acide sous la forme de l'ion aquo Pu⁴⁺. Compte tenu de sa très forte hydrolyse, les espèces hydrolysées en solution allant de PuOH³⁺ à Pu(OH)₄ ont des zones de prédominances extrêmement faibles, et l'on observe une précipitation de PuO₂ (ou Pu(OH)₄) suivant la cinétique de précipitation) à des pH supérieurs à 2 (voir Figure II-3). La très forte hydrolyse conduit à la précipitation du plutonium dès pH=2. A pH croissant, le passage des espèces hydrolysées en solution vers les solides PuO₂/ Pu(OH)₄ s'effectue via la formation de colloïdes complexes dont l'association avec les colloïdes naturels est un paramètre majeur pour la modélisation du transport de l'actinide.

Ceci permet d'expliquer le comportement du plutonium dans l'environnement [Seaborg, 1993 ; Choppin, 1997]. Ce point est discuté plus en détails dans la partie IV.3.1.

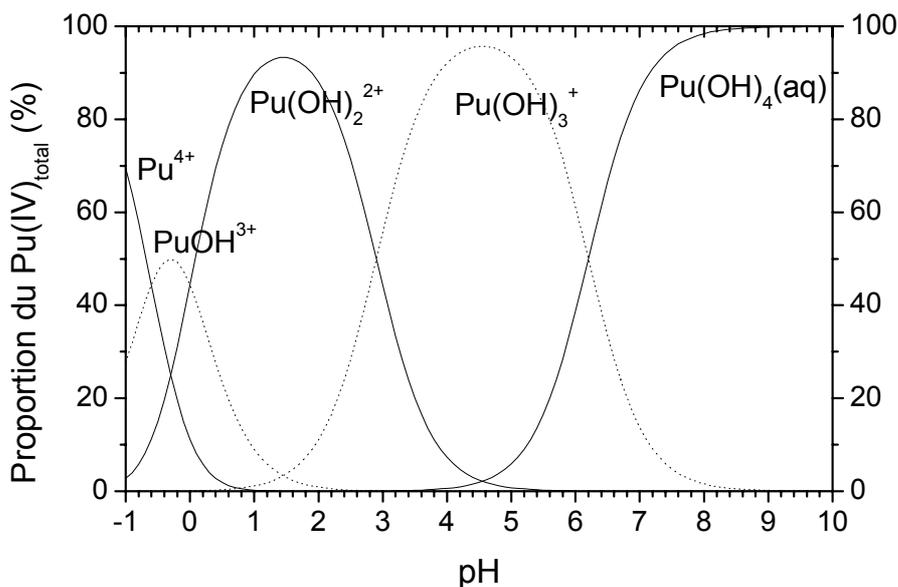


Figure II-3 : Diagramme théorique de prédominance en solution des espèces du Pu(IV) en milieu non complexant obtenu en tenant compte des espèces hydrolysées proposées dans [Guillaumont, 2003]

II.3.3 DONNEES THERMODYNAMIQUES

II.3.3.1 Préambule : principe des analogies chimiques

De nombreuses analogies inter-éléments sont couramment utilisées pour approximer les constantes thermodynamiques manquantes des équilibres d'un élément. D'une manière générale, une analogie sera d'autant meilleure que plusieurs des critères suivants seront respectés :

- Critère 1 - les deux éléments sont issus de la même famille de transition ou plus généralement du même "bloc" du tableau périodique ("bloc 4f" pour les lanthanides et 5f pour les actinides),
- Critère 2 - les deux éléments possèdent le même degré d'oxydation,
- Critère 3 - les deux éléments possèdent le même degré de covalence,
- Critère 4 - les deux éléments possèdent un rapport charge sur rayon ionique voisin.

Les analogies au sein d'un même bloc d'éléments de transition peuvent facilement s'expliquer :

- de par la nature identique des niveaux de valences mis en jeu dans les liaisons chimiques avec ces cations (critère 1) et
- de par leurs rayons ioniques proches, ce qui impose aussi que les analogies se fassent uniquement à charge égale (critère 4).

Il est ainsi très courant de rencontrer les analogies suivantes :

- analogie inter-lanthanides (III) [Seaborg, 1993 ; Ticknor, 1996 ; Bion, 2003],
- analogie inter-actinides (pour un même degré d'oxydation) [Seaborg, 1993 ; Madic, 1995 ; Ticknor, 1996 ; Choppin, 1999 ; Hummel, 2002 ; Guillaumont, 2003 ; Vitorge, 2003 ; Bion, 2003]
- analogie lanthanides (III) - actinides (III) [Seaborg, 1993 ; Ticknor, 1996 ; Choppin, 1999 ; Vitorge, 2003],

- analogie lanthanides (IV) (cérium) - actinides (IV) [Ticknor, 1996 ; Vitorge, 2003 ; Bion, 2003],
- analogie au sein d'autres familles d'éléments de transition [Ticknor, 1996 ; Powell, 2004].

On peut voir (Figure II-4) la bonne analogie entre l'américium (III) et l'euporium (III) pour la formation de complexes en solution. Cette analogie peut être effectuée pour de nombreux autres équilibres.

Sur la Figure II-4, le fer (III), autre élément trivalent non analogue (élément de transition 3d qui est plus petit que Eu(III) et Am(III)), est présenté comme contre exemple. Par contre, on peut noter la très bonne analogie entre Fe(III) et Pu(IV) (Figure II-5) [Ansoborlo, 2007].

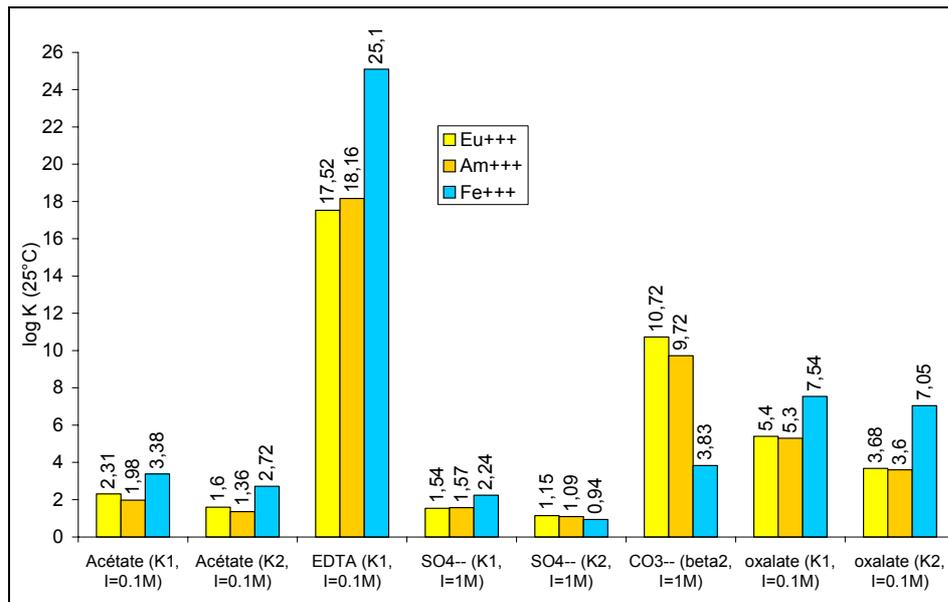


Figure II-4 : Constantes de formation de complexes de Eu^{3+} , Am^{3+} et Fe^{3+} montrant l'analogie $\text{Eu}^{3+}/\text{Am}^{3+}$ [Guillaumont, 2003 ; Powell, 2004]

Fe^{3+} est ici présenté comme un contre-exemple, non analogue des deux autres éléments

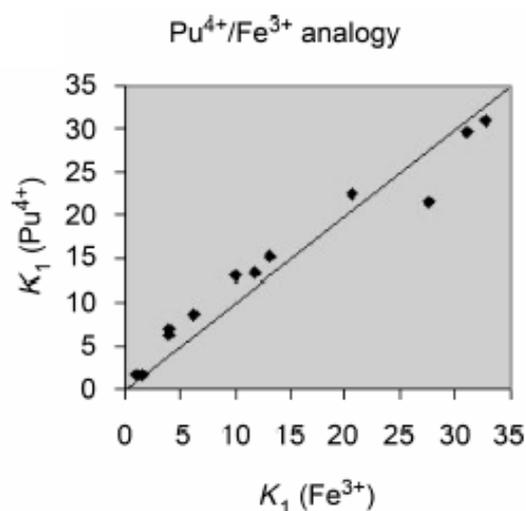


Figure II-5 : Analogie $\text{Pu}^{4+}/\text{Fe}^{3+}$ en utilisant les constantes de stabilité ($\log K_1$) pour chaque élément. La ligne pleine correspond à l'analogie parfaite (1:1). Chaque point correspond à un ligand différent [Ansoborlo, 2007]

Nous avons été amenés à utiliser les analogies entre les différents degrés redox des actinides U, Np, Pu et Am, afin de combler le manque de données sur les espèces redox instables du plutonium, dont l'acquisition dans les laboratoires présente de grandes difficultés. Ainsi, l'américium (III), le neptunium (V) et l'uranium (VI) sont utilisés comme des analogues, respectivement du plutonium (III), plutonium (V) et plutonium (VI).

Le plutonium (IV) a fait l'objet de nombreuses études proposant des constantes thermodynamiques de formation certifiées.

N.B. : Comme décrit ci-dessus, le principe des analogies chimiques entre actinides est basé sur des principes électrostatiques d'interaction avec des ligands et sur l'ionicité des liaisons que peuvent présenter ces éléments. Par conséquent, seuls sont concernés les équilibres de coordination au sein d'un même degré redox (complexation, rétention, solubilités, et, dans un autre domaine, extraction par solvant). Les équilibres correspondant à des changements redox ne sont pas concernés par ces notions d'analogies.

II.3.3.2 Couples redox du plutonium

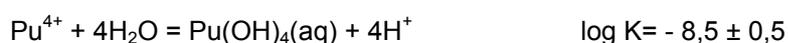
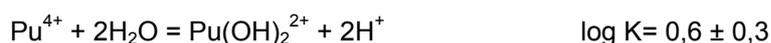
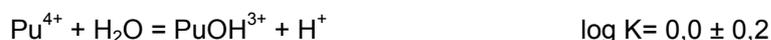
La compréhension de la réactivité redox du plutonium est une des problématiques fondamentales pour la modélisation de son comportement dans l'environnement (cf. § IV.3). Dans la pratique, la spéciation de cet élément va être fortement dépendante du potentiel redox (Eh) du milieu. Les valeurs recommandées des potentiels redox des couples du plutonium sont données Tableau II-10.

| Couple | Equation | Potentiel (V/ENH) | Référence |
|--------|---|-----------------------------|---------------------|
| IV/III | $\text{Pu}^{4+} + \text{e}^- = \text{Pu}^{3+}$ | $E^\circ = 1.047 \pm 0,037$ | [Vitorge, 2003] |
| V/IV | $\text{PuO}_2^+ + \text{e}^- + 4\text{H}^+ = \text{Pu}^{4+} + \text{H}_2\text{O}$ | $E^\circ = 1.033 \pm 0,037$ | [Vitorge, 2003] |
| VI/V | $\text{PuO}_2^{2+} + \text{e}^- = \text{PuO}_2^+$ | $E^\circ = 0.936 \pm 0,032$ | [Guillaumont, 2003] |
| VI/IV | $\text{PuO}_2^{2+} + 2\text{e}^- + 4\text{H}^+ = \text{Pu}^{4+} + \text{H}_2\text{O}$ | $E^\circ = 0.984 \pm 0,010$ | [Guillaumont, 2003] |

Tableau II-10 : Potentiels redox à force ionique nulle et à 25°C des couples du plutonium

II.3.3.3 Complexes et solides du plutonium (IV)

Les actinides tétravalents sont parmi les cations les plus acides. Compte tenu des réactions d'hydrolyse [Yun, 2007 ; Guillaumont, 2003],



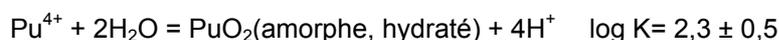
$\text{Pu}(\text{OH})_4(\text{aq})$ est majoritaire en solution pour des pH supérieurs à 7. Les complexes inorganiques simples capables d'entrer en compétition avec ces réactions d'hydrolyse sont rares. On considère

que seuls les ions carbonate sont potentiellement capables de former des complexes impactant la spéciation géochimique du plutonium (IV) [Guillaumont, 2003] :

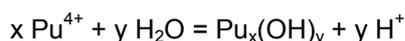


Dans la majeure partie des cas, l'impact des ions phosphate et fluorure, en concentration trop faible dans l'environnement, peut être négligé.

Compte tenu des ordres de grandeurs des solubilités observées en contexte géochimique, seuls les solides hydroxydes de Pu(IV) sont à prendre en compte ici, particulièrement la formation de la phase amorphe et hydratée de PuO_2 :



Dans le cas où seul le complexe soluble $\text{Pu}(\text{OH})_4(\text{aq})$ est formé en solution ($8 < \text{pH} < 13$), la solubilité en Pu(IV) est d'environ $4 \cdot 10^{-10}$ mol/L, ce qui pu être confirmé expérimentalement. Néanmoins, plusieurs études de solubilité de PuO_2 montrent que la seule constante de formation de $\text{Pu}(\text{OH})_4(\text{aq})$ ne permet pas en général d'expliquer les valeurs mesurées plus élevées [Neck, 2007]. Ainsi, les complexes hydroxydes de Pu(IV) ont finalement une faible importance en contexte géochimique. D'une part, la solubilité peut être affectée par un changement de l'état d'oxydation du Pu en solution et dans le solide (par exemple, phase mixte de Pu(IV) et Pu(V), $\text{PuO}_{2+x}(\text{s})$). D'autre part, elle peut être augmentée d'environ deux ordres de grandeur en raison de la polymérisation de Pu(IV) et de la formation de colloïdes à pH neutre et alcalin. Ces colloïdes résultent de l'hydrolyse et de la condensation des monomères $\text{Pu}(\text{OH})_4(\text{aq})$:

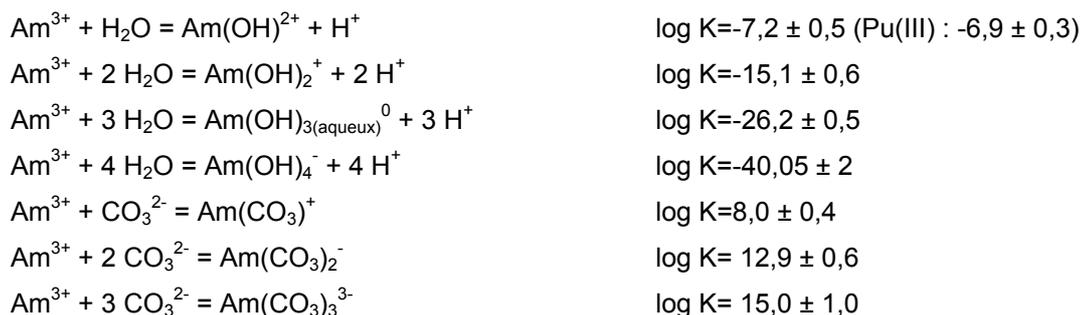
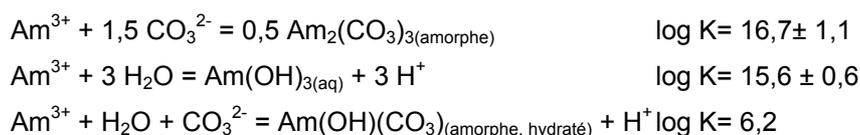


Peu de données fiables sont à citer quant à leurs constantes de formation et leurs stœchiométries exactes. Toutefois, une étude récente propose l'équilibre suivant pour des colloïdes d'environ 2 nm [Neck, 2007] :



II.3.3.4 Complexes et solides du plutonium (III)

Du fait de l'instabilité redox du plutonium (III), la formation de complexes en solution de Pu(III) correspond à des équilibres dont les constantes sont peu ou pas connues. Il est ainsi très courant, et recommandé, d'effectuer une analogie chimique entre les espèces solubles des deux actinides plutonium et américium. En effet, l'américium (III) étant le degré redox stable de l'élément Am, les données thermodynamiques sont beaucoup plus nombreuses et fiables. Pour les solides, l'analogie n'est pas nécessaire puisque les solides de Pu(III) ne sont pas stables dans le domaine d'électroactivité de l'eau. Ces données thermodynamiques ont été utilisées dans les calculs de solubilité et de rétention (sont toutefois rappelées les valeurs données pour Pu(III) quand elles existent [Guillaumont, 2003]) :

Complexes en solution :**Solides :**

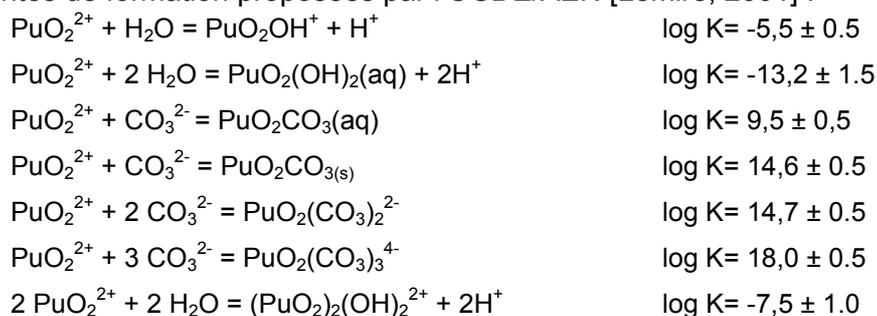
La formation d'un complexe tetrahydroxyde $\text{Am}(\text{OH})_4^-$ peut être négligé en milieu NaOH pour $\text{pH} < 13$ [Guillaumont, 2003]. Ceci a été montré pour Cm(III), également analogue chimique de Pu(III) [Edelstein, 2006]. En première approximation, il devrait donc en être de même pour $\text{Pu}(\text{OH})_4^-$. Toutefois, notons que le complexe $\text{Cm}(\text{OH})_4^-$ a été identifié en milieu alcalin et CaCl_2 concentré [Edelstein, 2006]. Ainsi, $\text{Pu}(\text{OH})_4^-$ pourrait être à prendre en compte pour la spéciation de Pu(III) dans de tels milieux par analogie avec Cm(III).

II.3.3.5 Complexes et solides du plutonium (V)

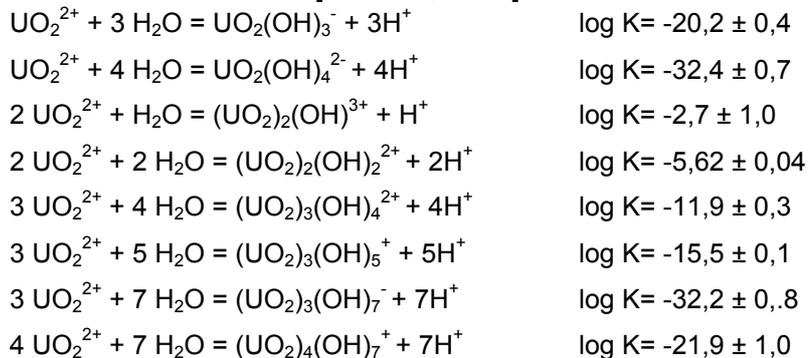
Tout comme il a été fait avec Pu(III), remplacé dans les calculs par son analogue Am(III) (voir plus haut), nous recommandons d'utiliser l'analogie entre Pu(V) et Np(V) afin de compléter le jeu de données, particulièrement pour les espèces polynucléaires [Vitorge, 2003 ; Bion, 2003] (sont toutefois rappelées les valeurs données pour Pu(V) quand elles existent [Guillaumont, 2003]) :

**II.3.3.6 Complexes et solides du plutonium (VI)**

La plupart des espèces mononucléaires hydroxyde et carbonate du plutonium (VI) ont des constantes de formation proposées par l'OCDE/AEN [Lemire, 2001] :



Tout comme il a été fait avec Pu(III), remplacé dans les calculs par son analogue Am(III) (voir plus haut), nous recommandons d'utiliser l'analogie entre Pu(VI) et U(VI) afin de compléter le jeu de données, particulièrement pour les espèces polynucléaires [Vitorge, 2003 ; Bion, 2003], données fondées sur celles de Grenthe [Grenthe, 1992] :



II.4 PROPRIETES DES AEROSOLS DE PLUTONIUM

II.4.1 GENERALITES

Au sein d'une installation comme dans l'environnement, une source pulvérulente peut, par un acte mécanique ou thermique quelconque, se retrouver en suspension dans l'air.

Ce phénomène appelé "mise en suspension", est généralement attribué aux particules dont la vitesse limite de chute ou vitesse de sédimentation, est inférieure à environ 30 cm.s^{-1} . Ceci correspond approximativement à des particules de diamètre aérodynamique inférieur à $100 \mu\text{m}$, limite supérieure habituellement admise pour définir un aérosol [Renoux, 1998].

Les aérosols sont définis comme des particules solides ou liquides en suspension dans un milieu gazeux. Leur diamètre aérodynamique varie de quelques nanomètres à presque 100 microns. Ces particules sont également caractérisées par leur distribution en taille, leur morphologie et leur composition chimique [Buffle, 1992 ; Madeleine, 1980].

Une attention toute particulière doit être portée aux aérosols dans l'atmosphère des installations et dans leur environnement, pour plusieurs raisons :

- Divers procédés d'extraction, d'élaboration et d'usinage du métal ou de la réalisation de poudres et pastilles d'oxyde, conduisent à la génération d'aérosols très concentrés.
- Les aérosols constituent le véhicule de la radioactivité de la source de production jusqu'à l'homme.
- L'influence de la taille et de la densité des particules est grande dans l'évaluation des proportions mises en suspension à la source, puis dans le transfert atmosphérique où la vitesse de chute va jouer sur l'importance relative des dépôts, enfin dans l'évaluation de l'exposition par inhalation, voie principale d'atteinte de l'homme.
- Les aérosols inhalés par l'homme se distribuent dans les voies respiratoires. L'efficacité de pénétration est une fonction de nombreux paramètres physiques et physiologiques, et varie en fonction de la taille des particules (Figure II-6). Les particules déposées à différents niveaux de l'appareil respiratoire peuvent provoquer des effets variés sur la santé qui dépendent de leurs propriétés toxicologiques [CIPR 66, 1994 ; Renoux, 1998 ; Fabriés, 1992].

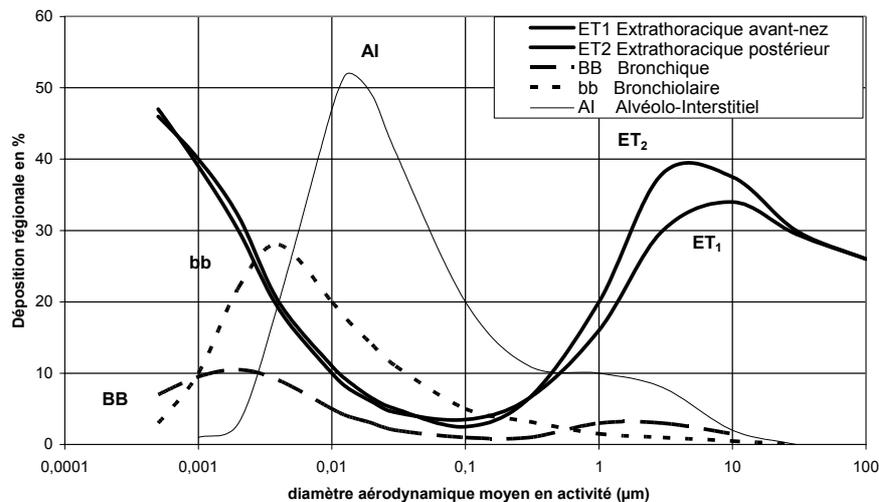


Figure II-6 : Dépôt des particules dans l'appareil respiratoire

Des informations relatives à la granulométrie des aérosols sont présentées au paragraphe X.

II.4.2 LES AÉROSOLS DE PLUTONIUM GÉNÉRÉS EN MILIEU INDUSTRIEL

Différents aérosols contenant du plutonium peuvent être générés au sein des installations nucléaires en conditions normales ou altérées. Il s'agit, d'une part, des composés présents dans les "boîtes à gants" qui sont dispersés dans l'atmosphère ambiante à la suite d'une rupture de confinement, et, d'autre part, de formes chimiques complexes formées, par exemple, au cours d'un incendie ou d'une explosion, qui modifie la composition chimique initiale des composés.

Le suivi radiologique des travailleurs est assuré par des prélèvements qui permettent une mesure de la radioactivité alpha atmosphérique liée à la présence d'actinides. En France, cette surveillance est assurée en continu aux postes de travail par des balises mesurant la concentration des émetteurs alpha présents dans l'atmosphère, balises dont le seuil de détection est de l'ordre de 0,5 désintégration alpha par seconde. Ces appareils font une discrimination entre les rayonnements alpha émis par les actinides et ceux issus du radon et de ses descendants. Dans certains pays, ce type de surveillance est complété par des systèmes de prélèvements individuels qui permettent, *a posteriori*, un suivi radiologique de chaque travailleur.

Schématiquement, deux principaux types d'aérosols de plutonium sont distingués :

- les aérosols "purs" formés de particules renfermant du plutonium et présentant une composition chimique "homogène" ;
- les aérosols mixtes formés d'un mélange de composés renfermant ou non du plutonium.

Dans la pratique, la plupart des aérosols sont mixtes du fait, d'une part, de la présence d'aérosols non radioactifs dans les atmosphères des installations (agrégation des différentes particules en suspension dans l'air), et d'autre part, des procédés industriels qui utilisent, par exemple, des mélanges d'oxydes d'actinides (MOX). La Figure II-7 illustre l'hétérogénéité d'une particule d'un aérosol de MOX fabriqué selon le procédé MIMAS [Haas, 1994].

Les principales formes chimiques de plutonium pouvant être présentes dans les aérosols sont des oxydes, des nitrates, des oxalates et des complexes organiques avec le TriButylPhosphate (TBP).

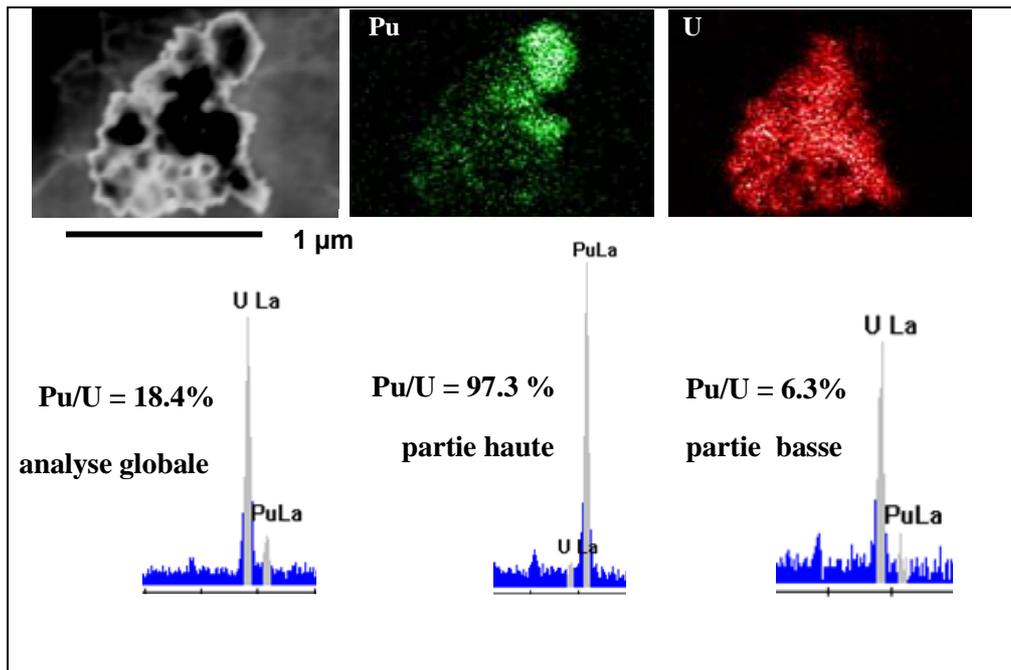


Figure II-7 : Cartographie par microanalyse X d'une particule de MOx (5% de Pu) recueillie après génération d'un aérosol [Massiot, 1998]

II.4.3 PARAMETRES DECRIVANT LA TAILLE DES AEROSOLS ET LES METHODES DE MESURE

La vitesse de déplacement d'une particule individuelle dans un fluide dépend de son volume, de sa forme et de son poids.

Les théories de la physique des aérosols sont le plus souvent établies pour des particules sphériques. Toutefois, dans la plupart des cas, une particule que l'on rencontre dans l'air n'a pas cette géométrie de référence. Le problème se pose alors de définir une dimension de référence qui permette de rendre compte de ses dimensions réelles ou de son comportement dynamique.

On définit ainsi différents diamètres, dont le plus important en termes de transfert est le diamètre aérodynamique d_{ae} , qui est défini comme le diamètre d'une sphère de densité $\rho_0 = 1$ ayant la même vitesse limite de chute que la particule réelle. Ce diamètre correspond au phénomène physique de sédimentation et s'applique pour des particules de taille supérieure à $0,1 \mu\text{m}$. Le diamètre physique équivalent d_p de la particule peut être déduit de son poids et de sa masse volumique ρ_p , lesquels permettent de calculer son volume et par la même le diamètre d'une sphère occupant ce même volume.

Cette définition nécessite l'introduction d'un facteur correctif supplémentaire appelé facteur de forme dynamique χ , lequel prend la valeur 1 dans le cas d'une sphère, $\chi = 1$, et augmente d'autant plus que la forme de la particule s'éloigne de la forme sphérique. Dans le cas de l'aérosol nucléaire, on estime que $1 < \chi < 1,5$.

La formule donnant le diamètre aérodynamique (d_{ae}) en fonction de la masse volumique ρ_p , du facteur de forme dynamique χ et du diamètre physique d_p est donnée ci-après :

$$d_{ae} = d_p \sqrt{\frac{\rho_p}{\chi}}$$

Pour les particules de petite taille ($< 1 \mu\text{m}$) et soumises au phénomène physique de diffusion, on utilise la notion de diamètre thermodynamique équivalent ou d_{th} qui serait le diamètre d'une

particule sphérique ayant le même coefficient de diffusion dans l'air que la particule d'intérêt. Dans ce cas $d_{th} = d_p$.

On s'intéresse généralement à une population de particules présentant une hétérogénéité de dimension. Il est d'usage de représenter cette population en considérant une distribution suivant une loi log normale. La Figure II-8 présente un exemple de distribution observée.

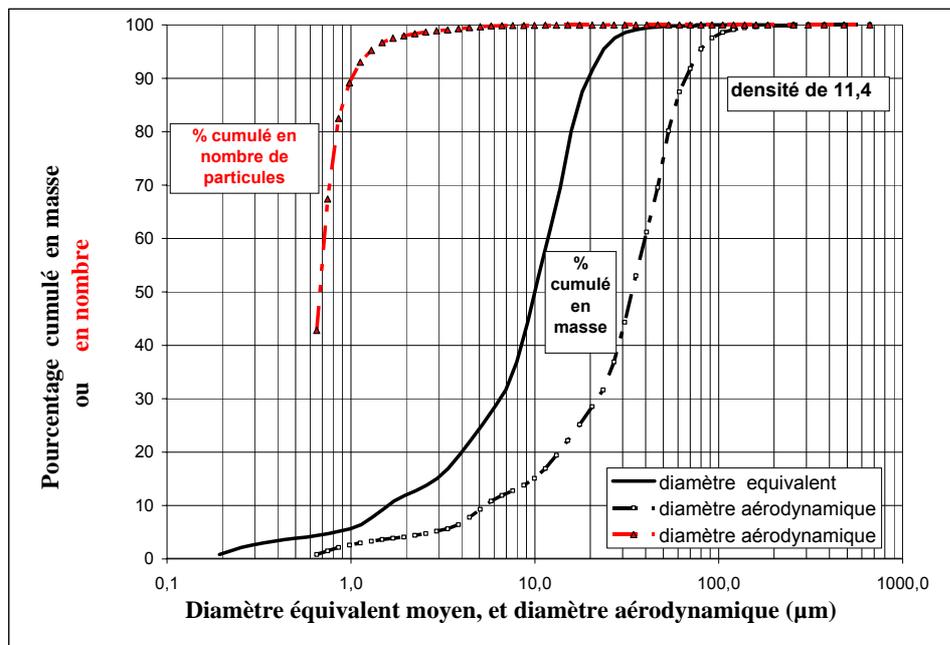


Figure II-8 : Distribution des diamètres physiques et aérodynamiques d'une population d'aérosols et incidence en termes de cumul de nombre ou masse de particules.

On y voit que 50% des particules ont un diamètre aérodynamique de 0,7 µm, alors que 50% de la masse d'aérosols est atteinte avec les particules de diamètre aérodynamique allant jusqu'à 25 µm, ces mêmes particules ayant un diamètre physique "équivalent" allant jusqu'à 10 µm seulement.

Notons enfin que l'activité d'une particule est proportionnelle à sa masse.

Quatre paramètres permettent alors de décrire les propriétés physiques des aérosols :

- la densité des particules et le facteur de forme dynamique, que l'on considérera relativement homogène au sein de la population issue d'une même source ;
- le Diamètre Aérodynamique Médian en Activité (DAMA) et l'écart-type géométrique de la distribution log normale en activité des diamètres aérodynamiques (σ_g).

Le paragraphe X donne des compléments sur les paramètres décrivant la granulométrie des aérosols.

Ces paramètres sont utilisés dans le calcul des vitesses de dépôt au sol des particules en cas d'émission à l'atmosphère et ont été introduits dans le modèle de la Commission Internationale de Protection contre les Rayonnements (CIPR) présenté dans son rapport n° 66, pour calculer leur dépôt au sein du tractus respiratoire afin d'évaluer les doses engagées.

Un aérosol est dit monodispersé lorsque $\sigma_g = 1$; ceci signifie que les particules ont sensiblement la même taille. En pratique, en milieu industriel, on rencontre surtout des aérosols polydispersés. La Figure II-9 illustre d'une autre manière le fait que le DAMA est différent de la taille physique des particules constituant l'aérosol. Pour caractériser la population, il faut alors également connaître l'écart-type σ_g de la distribution des diamètres aérodynamiques exprimée en activité, la densité des aérosols et la forme des particules.

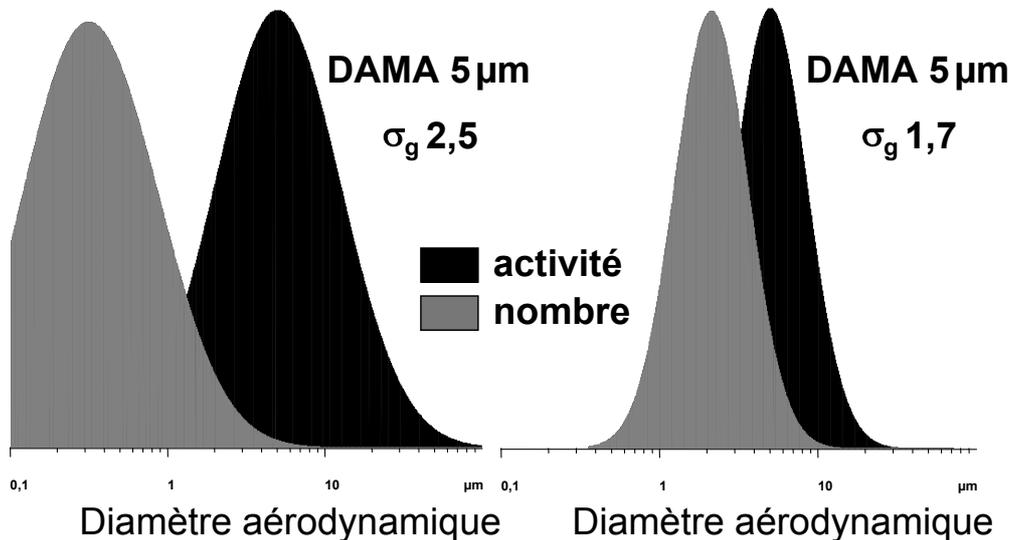


Figure II-9 : Distributions des diamètres aérodynamiques exprimées en fraction de l'activité totale et du nombre total de particules pour un aérosol ayant un DAMA de 5 µm et pour deux écart type σ_g

Différentes méthodes permettent une évaluation ou une mesure directe du DAMA d'un aérosol. La Figure II-10 schématise les principaux appareils de mesure utilisés.

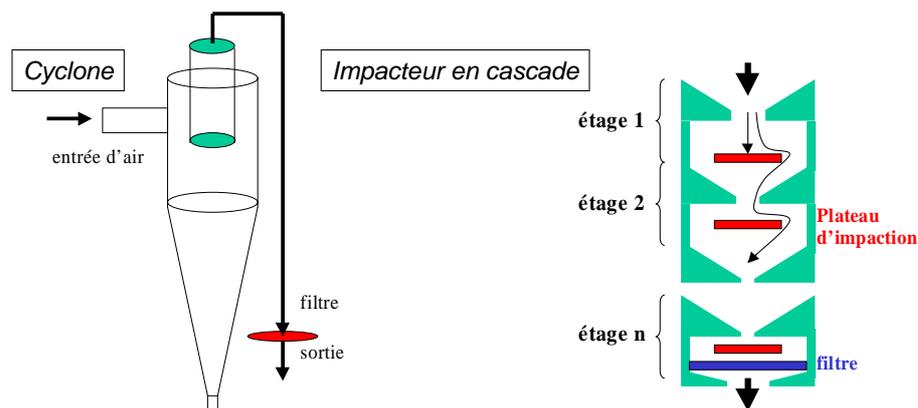


Figure II-10 : Représentation schématique des principaux appareillages permettant une mesure directe du diamètre aérodynamique

Ces méthodes apparaissent comme les plus pertinentes pour caractériser les aérosols dans le cadre de la radioprotection. En effet, les mesures tiennent compte de la densité et de la forme des particules, et, dans le cas d'un impacteur ou d'un cyclone multi étages, le σ_g peut être obtenu après une analyse graphique de la distribution des activités impactées. Cependant, la mise en place de

ces appareillages pour une surveillance systématique aux différents postes de travail ne s'avère pas possible.

Des méthodes indirectes peuvent être utilisées pour une estimation du DAMA. Il faut alors supposer que les valeurs de la densité et de la forme des particules sont connues.

Dans le cas d'aérosols renfermant du plutonium qui sont recueillis sur les balises de surveillance atmosphérique, les méthodes actuellement utilisables sont :

1. une mesure directe de la taille des particules et de leur composition chimique après examen en microscopie électronique à balayage et microanalyse X.
2. une évaluation de la distribution de l'activité alpha des particules après des analyses autoradiographiques quantitatives. Les protocoles nécessaires à cette dernière approche ont été mis au point et ont été appliqués à des filtres positifs au cours des différentes étapes du procédé industriel MIMAS qui sont effectuées dans l'usine MELOX pour la fabrication du combustible MOX [Fritsch, 2002 ; Fritsch, 2007a].

La Figure II-11 montre, pour une même zone d'un filtre, des autoradiographies par contact ayant des durées d'exposition allant de 3 à 96 heures. Deux particules sont ici visibles, l'activité de la plus grosse est mesurable entre 3 et 18 heures, après quoi le nombre de traces devient trop important. Au contraire, l'activité de la plus petite n'est mesurable que pour des expositions d'une durée comprise entre 18 et 96 heures.

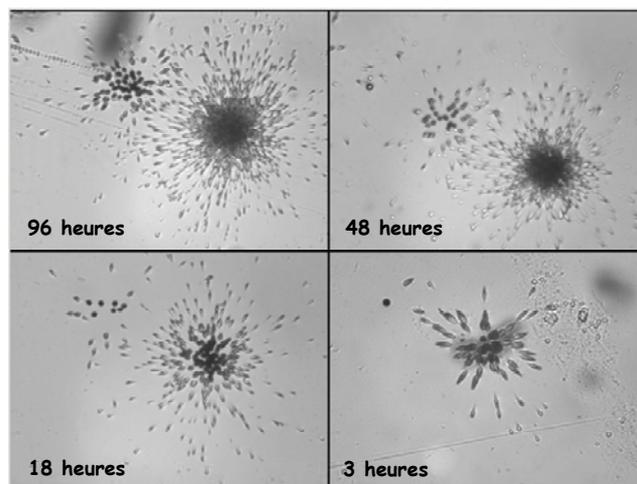


Figure II-11 : Visualisation des particules émettant des rayonnements alpha sous forme de spots dont les traces présentent une symétrie par rapport à un point

Ainsi, après un temps d'exposition adapté, l'activité de chaque particule peut être estimée par comptage des traces.

II.4.4 EVALUATION DE LA TAILLE D'AEROSOLS RENFERMANT DU PLUTONIUM

II.4.4.1 Données relatives à la densité des particules

Dans sa publication n°66, la CIPR [CIPR 66, 1994] recommande une densité de 3 g.cm^{-3} comme valeur par défaut (c'est-à-dire pour l'ensemble des composés industriels, dont toutes les formes physico-chimiques du plutonium) pour la modélisation du dépôt dans l'arbre respiratoire.

La densité théorique de l'oxyde de plutonium est de $11,5 \text{ g.cm}^{-3}$ et la densité des particules qui en découle est normalement inférieure à celle-ci.

Ansoborlo [Ansoborlo, 2002] indique, à partir de mesures en milieu industriel sur des composés d'uranium considérés comme un analogue, une valeur de densité de 9 g.cm^{-3} pour UO_2 .

Le fait que la densité des particules d'un aérosol soit inférieure à la densité du composé solide s'explique par l'agrégation de particules unitaires. En revanche, pour des aérosols issus de solution nitrique par exemple, une densité de 3 g.cm^{-3} est plus appropriée.

II.4.4.2 Données utilisées par la CIPR 66 pour proposer des tailles d'aérosols par défaut

Cette évaluation a été principalement effectuée à l'aide d'impacteurs en cascades placés dans des boîtes à gants mais très peu de données concernent des mesures réalisées sur des prélèvements atmosphériques réalisés aux postes de travail. Une synthèse de différents résultats obtenus pour des aérosols renfermant du plutonium a été rapportée [Dorrian, 1995].

Le Tableau II-11 et le Tableau II-12 résument les différents résultats qui ont été pris en compte.

A partir de ces données, la CIPR 66 [CIPR 66, 1994] a modifié les paramètres par défaut qui décrivaient les aérosols rencontrés en milieu industriel et dans l'environnement. Auparavant, on considérait un DAMA unique, égal à $1 \mu\text{m}$. Aujourd'hui, en considérant une valeur limite pour σ_g égale à 2,5 (si elle est supérieure, cela sous entend la présence simultanée de différents types d'aérosols), les paramètres proposés par défaut sont les suivants :

- Pour les travailleurs :

DAMA $5 \mu\text{m}$, σ_g 2,5, densité 3 g.cm^{-3} et facteur de forme 1,5

- Pour la population :

DAMA $1 \mu\text{m}$, σ_g 2,47, densité 3 g.cm^{-3} et facteur de forme 1,5

En milieu industriel, la valeur retenue apparaît adaptée aux différents oxydes de plutonium. Une valeur similaire du DAMA a été rapportée pour les oxydes d'uranium [Ansoborlo, 2002]. En revanche, la valeur des σ_g apparaît le plus souvent inférieure à celle proposée par défaut. De plus, la mesure de leur densité fournit une valeur (9 g.cm^{-3}) très supérieure à la valeur par défaut (3 g.cm^{-3}).

La Figure II-12 montre, pour un aérosol de $^{239}\text{PuO}_2$, l'influence de la valeur du σ_g et de la densité sur le nombre de particules présentes dans un aérosol d'1 Bq.

| Lieu | Opération ou procédé | DAMA (μm) | σ_g | Technique de mesure | Références | |
|--|--|------------------------|------------|---|---------------------------------------|--------------|
| Industrie de production d'énergie | | | | | | |
| Centrale nucléaire (Magnox) | Enceinte du bassin de refroidissement | 5,7 | 4,5 | Impacteur en cascade | Strong (1979) | |
| | | 5,8 | 4,6 | | | |
| Centrale nucléaire (REP) | Générateur de vapeur : "tente" Lors d'un changement | 6,8 | 3,7 | Impacteur en cascade | Mis (1989) | |
| | | 5,4 | 5,3 | | | |
| Centres de recherches | | | | | | |
| Centre de recherches | Pesage du PuO_2 et réarrangement des matériaux en B-à-G | 1,5 | 1,5 | Spectromètre d'aérosol (centrifugeuse) | Kotrappa (1975) | |
| Etablissement de recherches | Passage du matériau en B-à-G | 5,0 | - | PAS avec têtes d'échantillonnage de différentes tailles | Bull (1989) | |
| Installations du cycle du combustible (usines de fabrication) | | | | | | |
| Etablissements de recherches | Laboratoire de fabrication du combustible : Forage d'une boîte en aluminium scellée contenant du Pu (prélèvement à 3m) Laboratoire de chimie : mélange de PuO_2 et d'acier avec HCl chaud en B-à-G | 6,0 | - | Centripète en cascade et autoradiographie | Ramsden (1970) | |
| | | 0,16 | | | | |
| Usines de fabrication de MOx | Opérations en B-à-G : Tamisage et mélange Mélange d'oxydes Opération de jet milling Déversement après jet milling Mélange après jet milling Pressage Broyage Pressage des pastilles Broyage des pastilles | 2,1 | 1,6 | Impacteur en cascade | Newton (1977) | |
| | | 2,5 | 1,5 | | | |
| | | 1,6 | 1,6 | | | |
| | | 2,3 | 1,7 | | | |
| | | 2,6 | 1,5 | | | |
| | | 3,1 | 1,5 | | | |
| | | 2,3 | 1,7 | | | |
| Opérations en B-à-G | Broyage | 2,4 | 1,6 | | Yeh (1978) | |
| | | Mélange d'oxydes | 1,9 | 1,6 | Impacteur en cascade et spectrométrie | Raabe (1978) |
| | | | 2,3 | 1,6 | | |
| Installations Pu | Fabrication de MOx ou usine de préparation Pu métal et oxyde En conditions normales En conditions altérées | 9,0 | - | Autoradiographie | Brunskill (1966) | |
| | | 16,5 | - | | | |
| | Décontamination de masques | 11,5 | - | | | |
| | Surveillance de la décontamination | 7,5 | - | | | |

Tableau II-11 : Valeurs du DAMA et de σ_g mesurées par différents auteurs [Dorrian, 1995]

B-à-G : boîte à gants

| Lieu | Opération ou procédé | DAMA (μm) | σ_g | Technique de mesure | Références |
|---|---|------------------------|----------------------|----------------------------------|------------------------|
| Installations du cycle du combustible (retraitement) | | | | | |
| Usine de retraitement du combustible | Zone de transfert du combustible | 7,5 | - | Cyclone | Kotrappa et al. (1974) |
| | Laboratoire Pu | 6,8 | - | | |
| | Maintenance dans labo Pu | 5,2 | - | | |
| | Laboratoire Pu | 5,9 | 2,1 | Centripète en cascade et cyclone | Menon et al. (1975) |
| | | 6,2 | - | | |
| | Zone d'opérations chimiques | | | | |
| | Gants secoués dans B-à-G : | | | | |
| | Zone non-préfiltrée | 7,0 | 2,5 | | |
| | Zone préfiltrée | 1,3 | 2,0 | | |
| | Analyse chimique | 2,1 | 1,6 | | |
| | Aucune activité | 4,0 | 1,5 | | |
| | Opérations mécaniques | 3,5 | 1,9 | Impacteur en cascade | Perrin (1987) |
| | Opérations de décontamination : | | | | |
| | Nettoyage de zone de travail | 1,7 | 2,6 | | |
| | Ensablement de murs | 4,5 | 2,6 | | |
| Déclassement de B-à-G avec torche | | | | | |
| A plasma | 3,5 | 1,7 | | | |
| A oxy-arc | 1,3 – 1,9 | 2,3 – 3,8 | | | |
| Laboratoire de reconversion Pu | | | | | |
| Opérations normales : | 5,6 | - | Cyclone | Kotrappa (1977) | |
| Opérations spécifiques (changement de gants, décontaminations mineures) | 7,0 | - | | | |
| Maintenance (réparation d'équipements, décontaminations importantes) | 8,3 à 9,8 | - | | | |
| Local de R&D 1 | 1,8 | 2,2 | Impacteur en cascade | Elder (1974) | |
| Local de R&D 2 | 2,3 | 3,5 | | | |
| Local de fabrication 1 | 4,0 | 1,7 | | | |
| Local de fabrication 2 | 2,7 | 2,4 | | | |
| Local de récupération chimique | 0,3 | 5,4 | | | |
| Autres installations (catégorie non précisée) | | | | | |
| Installations Pu | Zones de B-à-G | 0,2 | 2,8 | Autoradiographie | Ettinger (1972) |
| Décontamination | Diverses opérations | 4,0 | 2,5 | Centripète en cascade | Sundararajan (1974) |
| Examen du combustible de réacteur | Décontamination de cellules | 9 | - | Impacteur en cascade | Tomii 1985) |
| Nevada Test Side | Nettoyage | 5,5 | - | Impacteur en cascade | Shinn (1989) |
| Retrait du combustible irradié | Transfert, coupe, stockage et cargaison | 6,8 | 2,8 | Impacteur en cascade | Dua (1987) |

Tableau II-12 : Autres valeurs du DAMA et de σ_g mesurées par différents auteurs [Dorrian, 1995]

B-à-G : boîte à gants

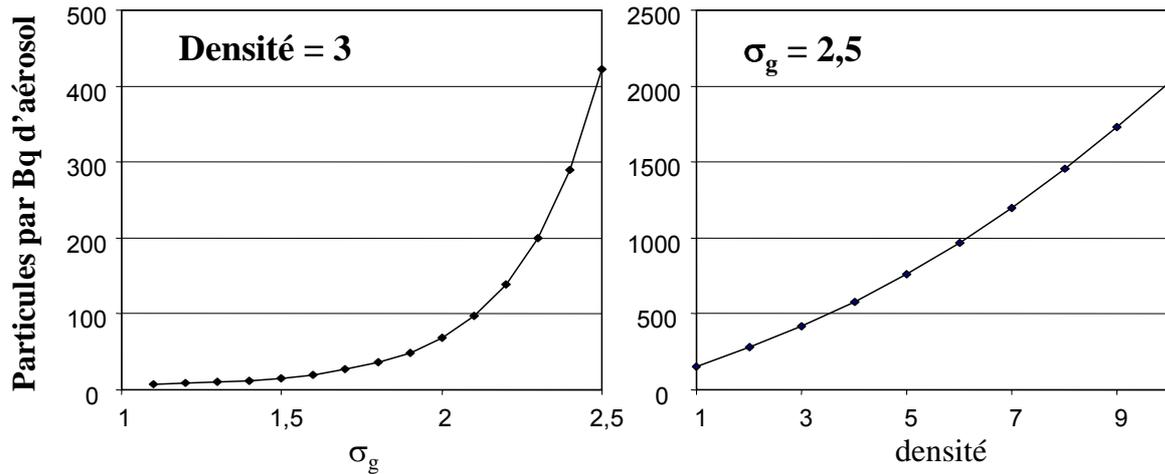


Figure II-12 : Influence de l'écart-type σ_g et de la densité sur le nombre de particules de $^{239}\text{PuO}_2$ présentes dans 1 Bq d'aérosol. Les calculs effectués selon Fritsch [Fritsch, 2004] tiennent compte d'un DAMA de 5 μm et d'un facteur de forme de 1,5

Pour les oxydes d'actinides, si l'on prend en compte une densité de 9 $\text{g}\cdot\text{cm}^{-3}$, pour un même DAMA, le nombre de particules par Bq d'aérosol est beaucoup plus élevé que celui obtenu en utilisant les paramètres par défaut. Cependant, c'est la valeur du σ_g qui influe le plus sur le nombre de particules par unité d'activité.

Pour des aérosols générés à partir de solutions renfermant du plutonium, le DAMA apparaît beaucoup plus faible. Par ailleurs, des études expérimentales effectuées pour caractériser les aérosols libérés après des feux de plutonium/magnésium et de plutonium/sodium ont montré la présence de très fines particules représentant une fraction significative de l'activité totale des aérosols [Métivier, 1980 ; Stradling, 1978]. Enfin, il faut souligner que les aérosols prélevés dans les enceintes confinées pourraient ne pas être représentatifs des aérosols libérés dans l'atmosphère aux postes de travail.

II.4.4.3 Bilan des analyses effectuées sur les filtres des balises de MELOX

Un bilan des résultats obtenus après analyse auto-radiographique des filtres positifs (c'est-à-dire ayant capté des particules actives ayant une activité alpha totale > 0,5 Bq) des balises de surveillance atmosphérique de MELOX a été effectué récemment [Fritsch, 2007a]. En tenant compte des valeurs proposées par défaut par la CIPR 66 [CIPR 66, 1994], un aérosol de MOX (5% Pu) de 1 Bq renferme environ 10000 particules. Ce nombre augmente d'un facteur 4 lorsque l'on suppose une densité de 9 $\text{g}\cdot\text{cm}^{-3}$. Les résultats obtenus sur les 23 filtres positifs de MELOX correspondant aux différentes étapes du procédé industriel MIMAS sont résumés dans la Figure II-13 qui montre que le nombre de particules par Bq (entre 2 et 2000 particules par Bq, avec une médiane de 70 particules par Bq) est très inférieur à celui calculé précédemment.

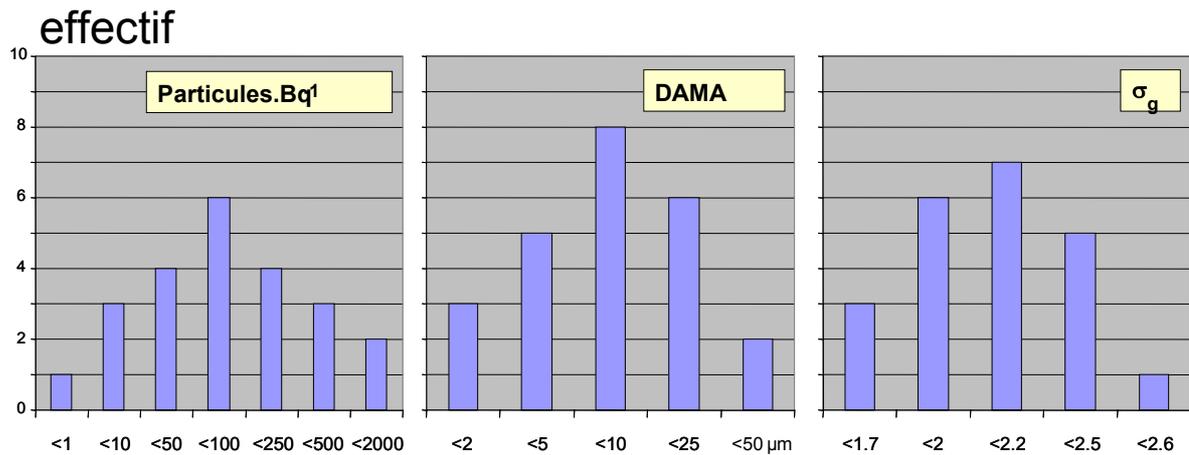


Figure II-13 : Distribution du nombre de filtres positifs en fonction du nombre de particules par Bq de Pu, du DAMA et de son écart-type σ_g pour l'ensemble des filtres positifs analysés à ce jour

Deux paramètres expliquent ces différences : le DAMA des aérosols, qui est souvent supérieur à $5 \mu\text{m}$, et la valeur du σ_g qui est souvent inférieur à 2,5. Ainsi, par exemple, pour un aérosol de $^{239}\text{PuO}_2$, lorsque le σ_g est égal à 2,5, 1 Bq correspond en moyenne à 420 particules, alors que pour un σ_g de 1,7, il ne correspond qu'à 30 particules.

L'évaluation de la taille des aérosols à partir de la distribution de l'activité alpha des particules implique différentes hypothèses concernant :

- la densité des particules qui est supposée égale à 9 ;
- une composition chimique homogène, ce qui n'est pas le cas, à l'échelle submicronique, pour les MOx fabriqués à l'aide du procédé MIMAS [Massiot, 1998] et pour les aérosols générés avant le frittage (mélanges $\text{UO}_2 / \text{PuO}_2$) ;
- une teneur moyenne en Pu qui est égale à 5% ;
- une activité spécifique alpha du PuO_2 de $10^{10} \text{ Bq.g}^{-1}$.

Une autre méthode peut être utilisée pour évaluer la taille des aérosols : la mesure directe de leur diamètre géométrique. Dans ce but, une approche basée sur l'utilisation d'un microscope électronique à balayage équipé d'une microanalyse X s'avère la mieux adaptée. Le but des études en cours est de comparer, sur un même échantillon, l'évaluation de la taille des particules effectuée à l'aide des deux méthodes.

Après dépôt d'une couche de carbone, le filtre a été examiné en microscopie électronique. L'appareil est équipé d'une platine motorisée qui est pilotée par un logiciel. Cet outil permet également la détection de particules qui présentent une masse atomique moyenne supérieure à un seuil (ici $Z > 39$) grâce à la visualisation des électrons rétrodiffusés, et la sélection, après microanalyse X, des particules renfermant de l'uranium. Ces deux types d'analyses sont effectués automatiquement. La Figure II-14 montre les résultats obtenus pour une vingtaine de particules renfermant de l'uranium, identifiées après l'examen du filtre sur une surface de l'ordre de $0,5 \text{ cm}^2$.

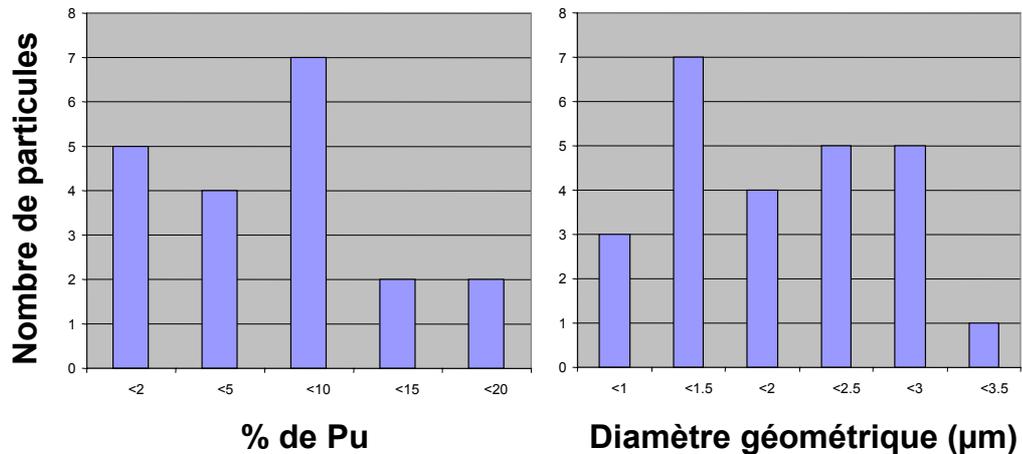


Figure II-14 : Distribution de la teneur en Pu des particules renfermant une quantité détectable d'uranium en microanalyse X et de leur diamètre géométrique

La durée de l'analyse est de l'ordre de 24 heures. La surface analysée renferme plus de 10000 particules. L'évaluation de la teneur en Pu n'est qu'approximative car l'analyse ne concerne que la partie centrale des particules et que la tension utilisée est limitée à 30 kV (auto-absorption du faisceau d'électrons au sein des particules). Néanmoins, la teneur médiane apparaît proche de celle retenue pour l'analyse auto-radiographique (5%). Le diamètre géométrique médian est de l'ordre de 2 µm, ce qui correspondrait à un diamètre aérodynamique d'environ 6 µm.

Les études auto-radiographiques montrent donc que le nombre de particules présent dans les aérosols est souvent beaucoup plus faible que celui proposé par défaut. Ce phénomène est lié à un DAMA supérieur à 5 µm et/ou une valeur médiane de l'écart type géométrique, σ_g , qui est inférieure à 2,5.

Une nouvelle analyse auto-radiographique de l'échantillon est en cours. Sachant que la position de chaque particule sur le filtre a été répertoriée au cours des analyses en microscopie électronique, l'auto-radiographie permettra de mesurer leur activité alpha.

Les résultats attendus concernent :

- une corrélation entre la composition chimique, la taille géométrique et l'activité des particules ;
- une validation de l'approche en microscopie électronique en vérifiant que, dans la zone analysée, toutes les particules renfermant une quantité significative d'éléments transuraniens ont été détectées.

Ils pourront permettre de définir le plateau technique nécessaire à une analyse systématique des filtres pour des expositions accidentelles significatives à des aérosols renfermant des émetteurs alpha.

En cas d'incidents significatifs pouvant entraîner une contamination interne des travailleurs par inhalation, des études sur les filtres des balises de surveillance atmosphériques seraient nécessaires pour améliorer leur suivi radiologique. En fait, ce type d'incident nécessite une analyse au cas par cas.

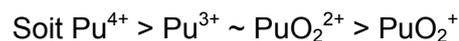
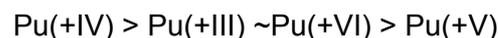
II.5 CONCLUSION

Bien qu'il existe quinze isotopes connus du plutonium, seuls les isotopes 238 à 242 présentent un réel intérêt. Les isotopes ^{238}Pu , ^{239}Pu , ^{240}Pu et ^{242}Pu sont des isotopes à vie longue et sont des émetteurs alpha de forte énergie. Le ^{241}Pu est un émetteur beta à vie courte.

De part ses propriétés fissiles (aptitude à fissionner sous l'action de neutrons en libérant de l'énergie et d'autres neutrons), le plutonium 239 est utilisé dans le combustible des réacteurs nucléaires pour fournir de l'énergie. Il constitue également un des matériaux fissiles des armes nucléaires.

Dans des conditions particulières de masse, géométrie et environnement, la réaction en chaîne peut s'amorcer spontanément avant dispersion du plutonium concerné et conduire ainsi à un accident dit "de criticité". L'irradiation neutronique peut alors être importante localement, voire mortelle pour les travailleurs présents dans le proche voisinage. Par contre, la production de produits de fission gaz, vapeurs et aérosols est suffisamment faible pour ne pas conduire à des rejets d'impact significatif.

Le plutonium présente une chimie particulièrement complexe de part l'existence de plusieurs degrés redox (+III à +VI) et une chimie de coordination riche. C'est un ion dit "dur" qui réagit de façon quasi-exclusive avec les molécules oxygénées et qui pour un même ligand, réagit suivant l'ordre de complexation (ou l'affinité) suivante :



Ces propriétés chimiques vont conditionner le comportement environnemental du plutonium. L'hydrolyse et la formation d'espèces colloïdales du plutonium à la valence IV vont notamment engendrer des comportements complexes dans les milieux aquatiques ou terrestres.

Le risque principal, c'est-à-dire le plus probable, lié au plutonium est son transfert sous forme d'aérosols hors des boîtes à gants où il est manipulé. L'impact des particules est dépendant principalement de la densité des particules, de leur Diamètre Aérodynamique Médian en Activité (DAMA) et de l'écart-type géométrique de la distribution log normale en activité des diamètres aérodynamiques.

II.6 REFERENCES

- [Alvarez, 1997] Alvarez, A. Etude de l'émission d'aérosols radioactifs suite à la combustion et au chauffage de composés plutonifères. Rapport IPSN/DES/04/97, 1997.
- [Angeletti, 1977a] Angeletti, L. Les transuraniens, propriétés physico-chimiques et comportement dans l'environnement. Comportement dans les sols, les eaux et les sédiments. Transferts à la biomasse aquatique et aux végétaux. Rapport CEA-R-4987, 1977.
- [Ansoborlo, 2002] Ansoborlo, E., Chazel, V., Hengé-Napoli, M.H., Pihet, P., Rannou, A., Bailey, M.R., Stradling, N., Determination of the physical and chemical properties, biokinetics, and dose coefficients of uranium compounds handled during nuclear fuel fabrication in France. Health Phys., 82, 279-289, 2002.
- [Ansoborlo, 2007] Ansoborlo E., Bion L., Doizi D., Moulin C., Lourenco V., Madic C., Cote G., Van der Lee, J., Moulin V. Current and future radionuclide speciation studies in biological media. Radiation Protect. Dosimetry Advance Access, June 19, 2007.
- [Bion, 2003] Bion L. BASSIST: an applied thermodynamic database for radionuclide chemistry. Radiochimica Acta, 91, 633-637, 2003.
- [Brunskill, 1966] Brunskill R.T., Hermiston S.T. The detection and measurement of plutonium airborne contamination in major plutonium facilities. In: Proc. First Int. Cong. of Radiation Protection, Rome, Italy, 5-10 september 1966 (Oxford, Pergamon Press), Part 2, 961-973, 1966.

- [Buffle, 1992] Buffle J., van Leeuwen H.P., Environmental Particles, volume 1, Lewis Publishers, 1992.
- [Bull, 1989] Bull, R.K., Gibson, J.A.B., Experiences at Harwell in estimating intakes of actinides. In: Radiation protection, Theory and practice. Proc. 4th Int. Symp. Of the Society for Radiological Protection, Malvern, 4-9 June 1989. Ed. E. P. Goldfinch (Bristol, Institute of Physics), 215-218, 1989.
- [Choppin, 1997] Choppin G.R., Bond A.H., Hromadka P.M. Redox speciation of plutonium. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry 219, 203-210, 1997.
- [Choppin, 1999] Choppin G.R. Utility of oxidation state analogs in the study of plutonium behaviour. Radiochimica Acta 85, 89-95, 1999.
- [CIPR 66, 1994] ICRP Publication 66. Human respiratory tract model for radiological protection. ICRP publication 66, Ann. ICRP, 24(1-3), Oxford: Pergamon Press, 1994.
- [Coleman, 1965] Coleman G.H. The radiochemistry of plutonium. Rapport AEC contract n°W-7405-eng-48, 1965.
- [Condit, 1993] Condit R.H., Plutonium: an introduction. Rapport UCRL-JC-115357: pp. 30, 1993.
- [Després, 1995] Després A. Les sources de plutonium dans l'environnement. Revue Générale Nucléaire, 1, 24-29, Janvier-Février 1995.
- [DOE, 1994] Airborne release fractions/rates and respirable fractions for nonreactor nuclear facilities. Rapport DOE-HDBK-3010-94. Volume I – Analysis of Experimental Data. DOE-HDBK-3010-94, U. S. Department of Energy, Washington, D. C. 20585, 359 pages, December 1994.
- [Dorrian, 1995] Dorrian M.D., Bailey M.R. Particle size distributions of radioactive aerosols measured in the workplaces. Radiat. Prot. Dosim., 60, 119-133, 1995.
- [Dorrian, 1997] Dorrian M.D. Particle size distributions of radioactive aerosols in the environment. Radiat. Prot. Dosim., 69, 117-132, 1997.
- [Dua, 1987] Dua S.K., Maniyan C.G., Kotappa P. Inhalation exposures during operations in Spent fuel bays. Radiat. Prot. Dosim., 19, 165-172, 1987.
- [Edelstein, 2006] N. M. Edelstein, R. Klenze, T. Fanghanel and S. Hubert *Coordination Chemistry Reviews* **2006**, 250, 948-973.
- [Elder, 1974] Elder J.C., Gonzales M., Ettinger H.J. Plutonium aerosol size characteristics. Health Phys., 23, 41-46, 1974.
- [Ettinger, 1972] Ettinger H.J., Moss W.D., Johnson L.J. Size selective sampling for plutonium-238. Health Phys., 23, 41-46, 1972.
- [Fabriès, 1992] Fabriès JF, Health related measurement of particulate fractions. Respirable and Thoracic dust. Staub-Reinhalt, 52, 279-281, 1992.
- [Fjeld, 2003] Fjeld R.A., Serkiz S.M., McGinnis P.L., Elci A., Kaplan D. Evaluation of a conceptual model for the subsurface transport of plutonium involving surface mediated reduction of Pu(V) to Pu(IV). Journal of Contaminant Hydrology 67, 79-94, 2003.
- [Fritsch, 2002] Fritsch P., Guillet K. Granulometry of aerosols containing transuranium elements at the work place: an estimate using autoradiographic analysis. Ann. Occup. Hyg., 46 sup1 292-295, 2002.
- [Fritsch, 2004] Fritsch P., Uncertainties in doses due to the number of aerosol particles: study on ²³⁹PuO₂ using default parameters for workers. Health Phys., 87, 416-422, 2004.
- [Fritsch, 2007a] Fritsch P., Raynaud P., Blanchin N., Miele A., Limits of DPUI application associated with the number of particles within actinide aerosols. Radiat. Prot. Dosim. Advance Access published September 6, 2007.
- [Guillaumont, 1993] Guillaumont R., Adloff J-P. Fundamentals of radiochemistry. Ed. CRC Press, 1993.
- [Guillaumont, 2003] Guillaumont R., Fanghanel T., Fuger J., Grenthe I., Neck V., Palmer D.A., Rand M. H. Update of the Chemical Thermodynamics of uranium, neptunium, plutonium, americium and technetium. Vol.5. OECD Nuclear Energy Agency, Ed., Elsevier, 2003.

- [Grenthe, 1992] Grenthe I., Fuger J., Konings R.J.M., Lemire R.J., Muller A.B., Nguyen-Trung C., Wanner H. Chemical thermodynamics of uranium. Amsterdam Elsevier Science Publishers, H. Wanner, Forest I. eds, 1992.
- [Haas, 1994] Haas D., Vandergheynst A., Van Vliet J., Lorenzelli R., Nigon J.L. Mixed-oxide fuel fabrication technology and experience at Belgonucléaire and CFCa plants and further developments for the MELOX plant. Nuclear Technology, 106, 60-82, 1994.
- [Hoffman, 2002] Hoffman D. Seaborg G. Advances in Plutonium Chemistry 1967-2000. American Nuclear Society, La Grange Park, Illinois, USA
- [Hummel, 2002] Hummel W., Berner U., Curti E., Pearson F.J., Thoenen T. Nagra/PSI chemical thermodynamic Data Base 01/01. Universal Publishers Ed, 2002.
- [Hummel, 2005] Hummel W., Anderegg G., Rao L., Puigdoménech I., Tochiyama O. Chemical thermodynamics of Compounds and Complexes of U, Np, Pu, Am, Tc, Se, Ni and Zr with Selected Organic Ligands. OECD Nuclear Energy Agency, Elsevier, 2005.
- [JEFF Report, 2006] JEFF Report 21, JEFF3.1 nuclear data library, Novembre 2006, http://www.nea.fr/html/dbdata/projects/nds_jef.htm
- [Koopal, 2001] Koopal L.K. IUPAC. Manual of symbols and terminology for physico-chemical quantities and units, Appendix II Definitions, terminology and Symbols in Colloid and Surface Chemistry. Part I, prepared for Internet Consultancy, 2001.
- [Kotrappa, 1974] Kotrappa P. HASL cyclone as an instrument for measuring aerosol parameters for new lung model. In: Proc. Third Int. Cong. of IRPA, Washington D.C., USA, (Oak Ridge, Tennessee, US Atomic Energy Commission), 9-14 september 1973, 2, 1226-1231, 1974.
- [Kotrappa, 1977] Kotrappa P., Bhat I.S., Vashi V.D., Suryanarayanan C., Chandramouli S., Particle size and solubility characteristics of aerosols in Pu processing aerosols and in BWR type power reactors. In: Proc. 4th cong. IRPA, Paris, 3, 1977.
- [Lemire, 2001] Lemire R., Fuger J., Nitsche H., Rand M. H., Rydberg J., Sullivan J., Ullman W., Vitorge P., Spahiu K., Wanner H., Potter, P. Chemical Thermodynamics of Neptunium and Plutonium. Vol 4 NEA-OECD Elsevier, Amsterdam, 2001.
- [Madeleine, 1980] Madeleine G., Perrin ML, Renoux A. Mesure de la composante fine de l'aérosol atmosphérique. Colloque Météorologie et Environnement, MECV, EERM, Paris 13-21, cité dans rapport INERIS-DRC-04-567 70 – IARE – n°0401-OBI
- [Madic, 1995] Madic C. Le Plutonium – Brève présentation de ses propriétés nucléaires et physico-chimiques. Revue Générale Nucléaire – Le Plutonium, 1, 7-13, Janvier-Février 1995.
- [Massiot, 1998] Massiot P., Le Prince B., Lizon C., Bailly I., Le Foll L., Rateau G., Fritsch P. Physico-chemical properties of inhalable MOx particles according to the industrial process. Radiat. Prot. Dosim., 79, 43-48, 1998.
- [Menon, 1975] Menon G.J., Sundararajan A.R., Joshi P.P., Kotrappa P. Evaluation of cyclone assembly for field use in the measurement of aerosol parameter, AMAD. Health Phys., 28, 618-620, 1975.
- [Métivier, 1980] Métivier H., Masse R., Rateau G., Lafuma J. Experimental study of respiratory contamination by a mixed oxide aerosol formed from the combustion of a plutonium magnesium alloy. Health Phys., 38, 769-776, 1980.
- [Métivier, 1976] Métivier H., Masse R., Nenot J.C. Nolibé D., Lafuma J. Etude expérimentale de la contamination par un mélange issu de la combustion de sodium en présence d'oxyde de plutonium, in diagnosis and treatment of incorporated radionuclides IAEA Vienna 1976, 107-117 (IAEA-SR-6/13)
- [Métivier, 1974] Evolution Physico-chimique des mélanges d'aérosols d'oxyde de sodium et plutonium. Radioprotection 1974, 9, 3, 187-191.
- [Mis, 1989] Mis F.J., Warren Steven B., Harrison M.C., Voillequé P.G. Particle size distributions for PuO₂ aerosol useful in autoradiographic particle size analysis. Health Phys., 56, 233-238, 1989.
- [Moriyama, 2005] Moriyama H. Sasaki T. Kobayashi T., Takagi I. Systematics of polymeric hydrolysis constants of actinide ions. Journal of Alloys and Compounds, 42, 626-635, 2005.

- [Neck, 2001] Neck, V. Kim, J.I. Solubility and hydrolysis of tetravalent actinides. *Radiochim. Acta.* 89, 1-16, 2001.
- [Neck, 2007] V. Neck, M. Altmaier and T. Fanghänel *Comptes Rendus Chimie* **2007**, 10, 959-977.
- [Newton, 1977] Newton G.J., Yeh, H.C., Stanley, J.A. Plutonium-containing aerosols found within containment enclosures in industrial mixed-oxide reactor fuel fabrication. *Inhalation Toxicology Research Institute Annual Report 1976-1977*. Lovelace biomedical and environmental research foundation, Albuquerque, New Mexico (National technical Information Service, Springfield, Virginia) LF-58, 5-9, 1977.
- [Perrin, 1987] Perrin, M.L. Plutonium aerosol size distributions in a reprocessing plant and during decommissioning operations. In: *Proc. Department of Energy Workshop on Workplace*, Napa, California, 28-30 october 1985. Eds J.L. Kenoyer, E.J. Vallario and B.L. Murphy (Washington, PNL), 79-84, 1987.
- [Prunier, 1987], Prunier C, *Métallurgie du Plutonium – CEA-INSTN Ecole du Plutonium*
- [Powell, 2004], Powell K.J., *IUPAC Stability Constants Database*. Academic Software, 2004.
- [Raabe, 1978] Raabe O.G., Newton G.J., Wilkinson C.J., Teague S.V. Plutonium aerosol characterization inside safety enclosures at a demonstration mixed-oxide fuel fabrication facility. *Health Phys.*, 35, 649-661, 1978.
- [Ramsden, 1970] Ramsden D., Bains M.E.D., Fraser D.C. In vivo and bioassay results from two contrasting cases of plutonium-239 inhalation. *Health Phys.*, 19, 9-17, 1970.
- [Reiller, 2005] Reiller P. Prognosticating the humic complexation for redox sensitive actinides through analogy, using the charge neutralisation model. *Radiochimica Acta* 93, 43-55, 2005.
- [Renoux, 1998] Renoux A., Boulaud D. *Les aérosols : physique et métrologie*, Edition Tec et Doc, Lavoisier, Paris, 1998.
- [Runde, 2003] Runde W., Conradson S.D., Eford D.W., NingPing L., VanPelt C.E., Tait D.C. Solubility and sorption of redox-sensitive radionuclides (Np, Pu) J-13 water from the Yucca Mountain site: comparison between experiment and theory. *Applied Geochemistry* 17, 837-853, 2003.
- [Seaborg, 1993] Seaborg G.T. Overview of the actinide and lanthanide elements. *Radiochimica Acta* 61, 115-122, 1993.
- [Shinn, 1989] Shinn J.H., Essington E.H., Miller J.F.L., O'Farrell T.P., Orcutt J.A., Romney E.M., Shugart J.W., Sorom, E.R. Results of a cleanup and treatment test at the Nevada Test Site: evaluation of vacuum removal of Pu-contaminated soil. *Health Phys.*, 57, 771-779, 1989.
- [Stradling, 1978] Stradling G.N., Loveless B.W., Ham G.J., Smith H., The biological solubility in the rat of plutonium present in mixed plutonium-sodium aerosols. *Health Phys.*, 35, 229-235, 1978.
- [Strong, 1979] Strong J.C., Darley P.J., Hodgson A., James A.C., Stather, J.W. Physical characteristics of aerosols arising from pond storage of damaged Magnox fuel elements. *NRPB, Annual Research and development report*, 1978, 1979.
- [Sundararajan, 1974] Sundararajan A.R., Deworm J.P., Berckmans S. Comments on the autoradiographic method for obtaining particle size data of plutonium aerosols. *Health Phys.*, 27, 137-139, 1974.
- [Taylor, 2001] Taylor D.M. *Environmental plutonium – Creation of the universe to twenty-first century mankind*. Plutonium in the Environment, Ed A. Kudo, Vol. 1, 1-14, 2001.
- [Ticknor, 1996] Ticknor K.V., Vandergraaf T.T. *Compilation révisée des coefficients de sorption à utiliser dans les modèles de la géosphère pour l'évaluation de la tenue d'une installation de stockage permanent du combustible irradié creusé dans un milieu granitique*. Rapport AECL 11343, 1996.
- [Tomii, 1985] Tomii H., Sato K., Izumi Y., Aoyagi Y. Air radioactivity concentration and resuspension factor in the cell of a reactor fuel examination facility during decontamination. In: *19th annual meeting of the japan health physics society*, Sendai, Japan, 21-24 june 1984, *Health Phys.*, 49, 378-379, 1985.
- [UNSCEAR, 2000] U.N.S.C.E.A.R. Sources and effects of ionizing radiation. Report to the general assembly with scientific annexes. Volume I: Sources, 2000.
- [Vitorge, 2003] Vitorge P., Capdevila H. Thermodynamic data for modelling actinide speciation in environmental waters. *Radiochimica Acta* 91, 623-631, 2003.

[Yeh, 1978] Yeh H.C., Newton G.J., Teague S.V., Charge distribution on plutonium-containing aerosols produced in mixed-oxide reactor fuel fabrication and laboratory. *Health Phys.*, 35, 500-503, 1978.

[Yun, 2007] Yun J.Y, Cho H.-R., Neck V., Altmairer M., Seibert A., Marquardt C. M., Walther C. and Fanghänel C.. *Radiochim. Acta* 95, 89–95 (2007)

III SOURCES DE PLUTONIUM ET UTILISATIONS DANS LES INSTALLATIONS

Ce paragraphe présente les différentes utilisations et installations dans lesquelles il existe du plutonium, la ou les formes sous lesquelles il se trouve. Ce paragraphe fournit également les principales indications sur les rejets de plutonium dans l'environnement, rejets passés, actuels autorisés ou accidentels.

III.1 LE PLUTONIUM DANS LES COMBUSTIBLES NUCLEAIRES

Le plutonium étant un élément essentiellement produit par l'homme, sa source de production se trouve dans les réacteurs nucléaires à partir des combustibles constitués d'uranium comportant les trois isotopes 238, 234 et 235. Le plutonium est un sous-produit des réactions neutroniques mises en œuvre pour obtenir les réactions de fissions de l'uranium 235 et la libération recherchée de l'énergie associée. Le principal isotope, le plutonium 239, est obtenu à partir de l'absorption de neutron par l'uranium 238.

Le combustible à l'origine du plutonium est donc du combustible uranium, qu'il soit à isotopie naturelle comme dans la filière UNGG (uranium naturel graphite gaz) ou enrichie en uranium 235 comme dans le combustible "REP UOx", oxyde d'uranium utilisé seul dans les premiers temps des réacteurs à eau pressurisée (REP).

Mais, en raison de ses propriétés fissiles, le plutonium 239 peut être à son tour utilisé comme source d'énergie par fission dans du combustible "MOx" - oxyde mixte U et Pu-, où le plutonium remplace l'²³⁵U initial. Le réacteur fonctionne alors en consommateur de plutonium et non plus en producteur, avec cependant une évolution de l'isotopie.

Ceci implique qu'il y ait, d'une part des installations de traitement des combustibles usés permettant de séparer et d'extraire des combustibles l'uranium et le plutonium, d'autre part des installations de fabrication de combustibles mixtes neufs, enfin des réacteurs pouvant accueillir le combustible mixte. C'est le rôle des usines de la Hague en France ou de Windscale en Grande Bretagne pour le traitement, le rôle de l'usine MELOX à Marcoule qui a pris, pour la fabrication, la suite des ateliers Pu (ATPu) à Cadarache, et, pour les réacteurs, les réacteurs REP actuels.

C'est ainsi que l'on trouve du plutonium dans les réacteurs, dans les usines de traitement des combustibles, les usines de fabrication de combustible mixte et dans les installations de recherches et développement où sont mis au point et étudiés ces différents combustibles.

Il n'est pas question ici de passer en revue les nombreux types de combustibles selon leur conception et leurs enrichissements, mais de donner quelques éléments permettant de situer le rôle du plutonium, et son évolution dans l'ensemble du cycle nucléaire.

III.1.1 COMBUSTIBLES DES REACTEURS ACTUELS ET DE TROISIEME GENERATION

On s'intéresse ici aux combustibles des filières actuelles (REP UOx et REP MOx) et des réacteurs de troisième génération de type EPR. Les compositions isotopiques après irradiation dépendent de la technologie du réacteur, du type de combustible contenu dans le réacteur, de son taux de combustion et du temps de refroidissement du combustible.

Pour illustration, les compositions isotopiques de combustibles UOx et MOx de REP, irradiés à 60 000 MWj.t⁻¹, sont données dans le Tableau III-1 et dans le Tableau III-2 pour deux durées de refroidissement. Elles ont été calculées avec le code CESAR-version 5.1 [Vidal, 2006]. Les taux de combustion utilisés sont considérés comme étant enveloppes des taux de combustion moyens au déchargement envisagés pour le parc actuel et pour les réacteurs de troisième génération de type EPR.

Dans les calculs réalisés, le plutonium provenant des UOx est recyclé dans le combustible MOx, après un refroidissement du combustible de 5 ans et un vieillissement du Pu de 2 ans. La teneur en Pu équivalent pour le MOx est calculée pour atteindre un taux de combustion de 60 000 MWj.t⁻¹ en gestion par quart.

| REP UOX à enrichissement 4,95% en ²³⁵ U irradié à 60 000 MWj.t ⁻¹ | | | | | | | |
|---|-----------------|------------------------------------|-----------------------|--------------------------|-------------------------|-------------------------|------------------------|
| Isotopes du Pu | Teneur initiale | Composition (g/tmli ⁵) | | Activité (TBq/tmli) | | Composition en % à 90 j | |
| | | Durée de refroidissement | | Durée de refroidissement | | en masse | en activité alpha |
| | | 90 jours | 5 ans | 90 jours | 5 ans | | |
| ²³⁶ Pu | 0 | 3,5 10 ⁻⁰³ | 1,1 10 ⁻⁰³ | 6,77 10 ⁻⁰² | 2,17 10 ⁻⁰² | ε | 0,02 |
| ²³⁷ Pu | | 8,5 10 ⁻⁰⁵ | 2,4 10 ⁻¹⁶ | 3,82 10 ⁻⁰² | 1,09 10 ⁻¹³ | ε | 0,01 |
| ²³⁸ Pu | | 447 | 450 | 283 | 285 | 3,5 | 87 |
| ²³⁹ Pu | | 6280 | 6280 | 14,5 | 14,5 | 49,3 | 4,5 |
| ²⁴⁰ Pu | | 3060 | 3080 | 25,6 | 25,7 | 24,0 | 7,9 |
| ²⁴¹ Pu | | 1910 | 1520 | 0,18 alpha 7320 beta | 0,14 alpha 5820 beta | 15,0 | 0,1 alpha 2261 beta |
| ²⁴² Pu | | 1040 | 1040 | 0,154 | 0,154 | 8,2 | 0,048 |
| ²⁴³ Pu | | 7,7 10 ⁻¹³ | 7,7 10 ⁻¹³ | 7,4 10 ⁻⁰⁸ | 7,4 10 ⁻⁰⁸ | ε | ε |
| ²⁴⁴ Pu | | 0,114 | 0,114 | 7,7 10 ⁻⁰⁸ | 7,7 10 ⁻⁰⁸ | ε | ε |
| ²⁴¹ Am | | 82,7 | 471 | 10,5 | 59,8 | 0,6 | 3,2 |
| Somme des Pu | | 12,7 kg | 12,4 kg | 324 TBq alpha | 326 TBq alpha | 100% | 100% alpha |

Tableau III-1 : Composition isotopique et activité d'un combustible REP UOx irradié à 60 000 MWj.t⁻¹

| REP MOX à teneur initiale 11,6% Pu+Am irradié à 60 000 MWj.t ⁻¹ | | | | | | | | | |
|--|---|----------------------------------|--------------------------|------------------------|------------------------------|------------------------------------|-------------------------------------|-------------------------|------------------------|
| Isotopes du Pu | Composition initiale du Pu (% massique) | Composition (g/tmli) | | | Activité (TBq/tmli) | | | Composition en % à 90 j | |
| | | Masse initiale avant irradiation | Durée de refroidissement | | Activité initiale avant irr. | Durée de refroidissement | | en masse | en activité |
| | | | 90 jours | 5 ans | | 90 jours | 5 ans | | |
| ²³⁶ Pu | 0 | 0 | 7,92 10 ⁻⁴ | 2,54 10 ⁻⁴ | 0 | 0,0153 | 4,91 10 ⁻³ | ε | 5,6E-06 |
| ²³⁷ Pu | 0 | 0 | 6,33 10 ⁻⁴ | 1,82 10 ⁻¹⁵ | 0 | 0,285 | 8,17 10 ⁻¹³ | ε | 0,01 |
| ²³⁸ Pu | 3,64 | 4,22 10 ³ | 3,90 10 ³ | 3,96 10 ³ | 2670 | 2470 | 2510 | 4,8 | 89,89 |
| ²³⁹ Pu | 50,78 | 5,89 10 ⁴ | 2,84 10 ⁴ | 2,84 10 ⁴ | 136 | 65,4 | 65,4 | 35,0 | 2,38 |
| ²⁴⁰ Pu | 24,91 | 2,89 10 ⁴ | 2,49 10 ⁴ | 2,51 10 ⁴ | 241 | 208 | 210 | 30,7 | 7,57 |
| ²⁴¹ Pu | 11,15 | 1,29 10 ⁴ | 1,30 10 ⁴ | 1,03 10 ⁴ | 4,95 10 ⁴ | 1,22 alpha 4,97 10 ⁴ | 0,974 alpha 3,96 10 ⁴ | 16,0 | 0,04% alpha 1808,74 |
| ²⁴² Pu | 8,40 | 9,75 10 ³ | 1,10 10 ⁴ | 1,10 10 ⁴ | 1,44 | 1,62 | 1,62 | 13,5 | 0,06 |
| ²⁴³ Pu | 0 | 0 | 9,53 10 ⁻¹² | 9,53 10 ⁻¹² | 0 | 9,09 10 ⁻⁷ | 9,09 10 ⁻⁷ | ε | ε |
| ²⁴⁴ Pu | 0 | 0 | 9,32 10 ⁻¹ | 9,32 10 ⁻¹ | 0 | 6,31 10 ⁻⁷ | 6,31 10 ⁻⁷ | 0,0011 | ε |
| ²⁴¹ Am | 1,13 | 1,31 10 ³ | 1,68 10 ³ | 4,32 10 ³ | 166 | 213 | 5,47 10 ² | 2,1 | 7,75 |
| somme des Pu | | 114,7 kg | 81,2 kg | 78,8 kg | | 2750 alpha | 2790 alpha | 100% | 100% alpha |

Tableau III-2 : Composition isotopique et activité d'un combustible REP MOx irradié à 60 000 MWj.t⁻¹

⁵ tmli = tonne de métal lourd initial

Le Tableau III-3 présente l'influence du taux d'irradiation sur la composition, exprimée en pourcentage massique, du plutonium issu de combustibles UOx enrichis à 3,7% et 4,95% en ^{235}U . Les calculs ont été réalisés à l'aide du code PEPIN [Tsilanzara, 1997].

| % massique | UOx : enrichissement initial ^{235}U : 3,7% | | | | UOx enrichissement initial ^{235}U : 4,95% | | |
|-------------------|--|----------------------|-----------------------|-----------------------|---|---------|---------|
| | irradiation | 11GWj/t (1 cycle) | 22GWj/t (2 cycles) | 33GWj/t (3 cycles) | 55GWj/t (4 cycles) | 60GWj/t | 90GWj/t |
| ^{238}Pu | 0,18% | 0,67% | 1,47% | 3,50% | 3,51% | 6,54% | 7,68% |
| ^{239}Pu | 83% | 70% | 61% | 50% | 49% | 40% | 36% |
| ^{240}Pu | 13% | 19% | 23% | 25% | 24% | 24% | 23% |
| ^{241}Pu | 3,7% | 7,50% | 9,70% | 11% | 15% | 14% | 13% |
| ^{242}Pu | 0,44% | 2,1% | 4,59% | 9,34% | 7,79% | 15% | 19% |
| ^{241}Am | 0,37% | 0,75% | 0,97% | 1,10% | 0,65% | 0,91% | 0,80% |

Tableau III-3 : Compositions en pourcentage massique de combustibles UOx enrichis à 3,7% et 4,95% en fonction du niveau d'irradiation

Le Tableau III-4 présente l'influence du taux d'irradiation sur la composition d'un combustible UOx enrichi à 4,95% en ^{235}U . Les calculs ont été réalisés à l'aide du code PEPIN [Tsilanzara, 1997].

| REP (UOx) enrichi à 4,95 % de ^{235}U - Composition (TBq/tmli) | | | |
|---|---------------------|---------------------|----------------------|
| Irradiation | 60 000 MWj/t | 90 000 MWj/t | 120 000 MWj/t |
| Temps de refroidissement | 3 mois | 6 mois | 6 mois |
| ^{236}Pu | $6,8 \cdot 10^{-2}$ | $7,4 \cdot 10^{-2}$ | $9,5 \cdot 10^{-2}$ |
| ^{237}Pu | $3,8 \cdot 10^{-2}$ | $3,9 \cdot 10^{-3}$ | $5,4 \cdot 10^{-3}$ |
| ^{238}Pu | $2,8 \cdot 10^2$ | $6,3 \cdot 10^2$ | $7,9 \cdot 10^2$ |
| ^{239}Pu | $1,5 \cdot 10^1$ | $1,4 \cdot 10^1$ | $1,3 \cdot 10^1$ |
| ^{240}Pu | $2,6 \cdot 10^1$ | $3,1 \cdot 10^1$ | $3,2 \cdot 10^1$ |
| ^{241}Pu | $7,3 \cdot 10^3$ | $8,0 \cdot 10^3$ | $8,0 \cdot 10^3$ |
| ^{242}Pu | $1,5 \cdot 10^{-1}$ | $3,2 \cdot 10^{-1}$ | $4,4 \cdot 10^{-1}$ |
| ^{241}Am | $1,1 \cdot 10^1$ | $1,7 \cdot 10^1$ | $1,7 \cdot 10^1$ |
| REP (UOx) enrichi à 4,95 % de ^{235}U - Composition (g/tmli) | | | |
| Irradiation | 60 000 MWj/t | 90 000 MWj/t | 120 000 MWj/t |
| Temps de refroidissement | 3 mois | 6 mois | 6 mois |
| ^{236}Pu | $3,5 \cdot 10^{-3}$ | $3,8 \cdot 10^{-3}$ | $4,85 \cdot 10^{-3}$ |
| ^{237}Pu | $8,5 \cdot 10^{-5}$ | $8,8 \cdot 10^{-6}$ | $1,2 \cdot 10^{-5}$ |
| ^{238}Pu | 450 | 990 | 1250 |
| ^{239}Pu | 6300 | 6000 | 5900 |
| ^{240}Pu | 3100 | 3600 | 3750 |
| ^{241}Pu | 1900 | 2100 | 2100 |
| ^{242}Pu | 1000 | 2300 | 3150 |
| ^{241}Am | 83 | 138 | 131 |
| TOTAL | 12,8 kg/t | 15,1 kg/t | 16,3 kg/t |

Tableau III-4 : Composition en activité et en masse d'un combustible REP UOx en fonction du niveau d'irradiation

Le Tableau III-5 présente les compositions massiques en Pu avant et après irradiation pour le combustible MOx actuel (33 GWj.t⁻¹) et le combustible MOx en cours d'implantation (45 GWj.t⁻¹). Les calculs ont été réalisés à l'aide du code PEPIN [Tsilanizara, 1997].

| localisation | Taux de combustion 33 GWj.t ⁻¹ | | | Taux de combustion 45 GWj.t ⁻¹ | |
|--------------------------|---|-------------------|--------------|---|-------------------|
| | avant irradiation* | après irradiation | | avant irradiation | après irradiation |
| | | zone périphérique | zone interne | moyenne | |
| <i>enrichissement Pu</i> | | 2,91% | 5,63% | 8,65% | |
| ²³⁸ Pu | 0,86% | 2,07% | 1,89% | 2,50% | 3,85% |
| ²³⁹ Pu | 66,65% | 42,20% | 45,80% | 54,50% | 38,50% |
| ²⁴⁰ Pu | 20,65% | 29,90% | 31,60% | 25,20% | 32,40% |
| ²⁴¹ Pu | 8,14% | 13,40% | 12,40% | 8,60% | 12,10% |
| ²⁴² Pu | 2,90% | 11,20% | 6,95% | 7,90% | 11,90% |
| ²⁴¹ Am | 0,79% | 1,34% | 1,25% | 1,30% | 1,21% |

* : 5 ans de refroidissement avant retraitement + 2 ans de vieillissement du Pu

Tableau III-5 : Compositions en pourcentage massique de combustibles REP MOx

A la lecture de ces tableaux, plusieurs remarques peuvent être faites :

- L'importance relative des isotopes est très différente selon que l'on regarde les masses ou les activités. Des erreurs importantes peuvent être faites en absence de précision sur la nature de la composition lorsque l'on parle en pourcentage.
- L'exposition de personnes étant liée en partie à l'activité et à la nature du rayonnement, on voit, pour le combustible MOx comme pour le combustible UOx, la nette prééminence du ²³⁸Pu alors qu'il compte relativement peu en masse.
- Le ²⁴¹Pu étant principalement un émetteur beta, mais parfois comptabilisé sur mesure alpha, le Tableau III-1 et le Tableau III-2 montrent qu'il convient d'être très précis sur la signification de l'activité annoncée. Par ailleurs, et bien qu'émetteur beta, compte tenu de son abondance, il contribue souvent à une fraction significative de l'exposition dans les évaluations d'impact.
- Pour une irradiation de 60 000 MWj.t⁻¹, le combustible UOx produit un peu plus de 12 kg/tmli de plutonium, alors que dans les mêmes conditions, le combustible MOx en consomme 33 kg/tmli.
- Au déchargement, les masses significatives vont jusqu'à l'isotope 242 avec cependant un niveau sensiblement moins élevé en ²⁴²Pu pour le REP UOx. On voit par ailleurs que le recyclage conduit à une proportion plus importante de ²⁴⁰Pu et à une augmentation significative de ²⁴¹Am, descendant irradiant du ²⁴¹Pu, ce qui présente des inconvénients pour des recyclages multiples.
- Le plutonium provenant des REP UOx est caractérisé par une présence de ²³⁹Pu en masse de l'ordre de 50%, contre 35% pour le REP MOx, et, pour mémoire, des valeurs de l'ordre de 80% pour des UNGG.
- La composition isotopique des combustibles varie en fonction du taux de combustion des combustibles. Pour le combustible REP UOx, on voit que l'augmentation du taux d'irradiation conduit à une stabilisation de la teneur en ²³⁹Pu au profit du ²⁴⁰Pu et de la teneur en ²⁴¹Pu au profit du ²⁴²Pu.

III.1.2 COMBUSTIBLES DES REACTEURS DE GENERATION 4

Les réacteurs de génération 4 envisagés en France sont de technologie radicalement différente des réacteurs actuels et des réacteurs de troisième génération puisque ce sont des réacteurs à neutrons rapides. Ils sont de deux types :

- Sodium Fast Reactor (SFR) : réacteur à neutrons rapides refroidi au sodium ;
- Gas cooled Fast Reactor (GFR) : réacteur à neutrons rapides refroidi au gaz.

Les réacteurs de génération IV sont prévus, dès leur conception, pour transmuter les actinides mineurs. Dans la suite de ce document, nous considérerons uniquement le cas des GFR à plaques (version 06/04).

Les GFR admettent par conception jusqu'à 5% d'actinides mineurs en homogène au chargement, et les SFR peuvent accepter 2,5% d'actinides mineurs en homogène. Les résultats présentés correspondent donc à un cas enveloppe, les compositions isotopiques et les activités calculées tiendront compte des isotopes du plutonium et des actinides mineurs.

Le Tableau III-6 indique la composition isotopique et l'activité du plutonium et des actinides mineurs contenu dans du combustible neuf et irradié dans un GFR. Le plutonium et les actinides mineurs du combustible neuf proviennent du retraitement de combustible REP UOx à 75% et REP MOx à 25%. L'année de chargement est l'année 2050, c'est-à-dire l'année où le pourcentage d'actinides mineurs au chargement est maximal et égal à 5%.

On constate que, pour le combustible irradié, l'activité est dominée par ^{242}Cm pour des temps de refroidissement courts. Compte tenu de la période très courte du ^{242}Cm (163 jours), après 5 ans de refroidissement, l'isotope ayant l'activité dominante est le ^{241}Pu , suivi du ^{238}Pu , du ^{244}Cm et de ^{241}Am .

| Combustible GFR plaques (version 06/04) à teneur initiale : 22,3% Pu et 5,1% Am | | | | | | |
|---|-----------------------------------|--------------------------|------------------------|-------------------------------------|--------------------------|------------------------|
| Isotopes | Bilan matière (g/tmli) | | | Activité (TBq/tmli) | | |
| | Teneur Initiale avant irradiation | Temps de refroidissement | | Activité Initiale avant irradiation | Temps de refroidissement | |
| | | 90 jours | 5 ans | | 90 jours | 5 ans |
| ²³⁷ Np | 6,99 10 ⁺⁰³ | 4,06 10 ⁺⁰³ | 4,20 10 ⁺⁰³ | 1,82 10 ⁻⁰¹ | 1,06 10 ⁻⁰¹ | 1,10 10 ⁻⁰¹ |
| ²³⁹ Np | | | | 0 | 4,30 10 ⁺⁰¹ | 4,30 10 ⁺⁰¹ |
| ²³⁶ Pu | 0 | 2,14 10 ⁻⁰² | 6,72 10 ⁻⁰³ | 0 | 4,20 10 ⁻⁰¹ | 1,32 10 ⁻⁰¹ |
| ²³⁷ Pu | 0 | 3,67 10 ⁻⁰³ | 1,27 10 ⁻¹⁴ | 0 | 1,64 | 5,69 10 ⁻¹² |
| ²³⁸ Pu | 8,09 10 ⁺⁰³ | 1,56 10 ⁺⁰⁴ | 1,56 10 ⁺⁰⁴ | 5,13 10 ⁺⁰³ | 9,87 10 ⁺⁰³ | 9,86 10 ⁺⁰³ |
| ²³⁹ Pu | 1,13 10 ⁺⁰⁵ | 9,87 10 ⁺⁰⁴ | 9,87 10 ⁺⁰⁴ | 2,56 10 ⁺⁰² | 2,24 10 ⁺⁰² | 2,24 10 ⁺⁰² |
| ²⁴⁰ Pu | 7,12 10 ⁺⁰⁴ | 7,12 10 ⁺⁰⁴ | 7,17 10 ⁺⁰⁴ | 6,00 10 ⁺⁰² | 6,00 10 ⁺⁰² | 6,04 10 ⁺⁰² |
| ²⁴¹ Pu | 7,17 10 ⁺⁰³ | 9,52 10 ⁺⁰³ | 7,57 10 ⁺⁰³ | 2,73 10 ⁺⁰⁴ | 3,63 10 ⁺⁰⁴ | 2,88 10 ⁺⁰⁴ |
| ²⁴² Pu | 2,32 10 ⁺⁰⁴ | 2,13 10 ⁺⁰⁴ | 2,13 10 ⁺⁰⁴ | 3,28 | 3,01 | 3,01 |
| ²⁴³ Pu | 0 | 1,28 10 ⁻¹⁰ | 1,28 10 ⁻¹⁰ | 0 | 1,23 10 ⁻⁰⁵ | 1,23 10 ⁻⁰⁵ |
| ²⁴⁴ Pu | 0 | 6,81 10 ⁻⁰¹ | 6,81 10 ⁻⁰¹ | 0 | 4,47 10 ⁻⁰⁷ | 4,47 10 ⁻⁰⁷ |
| ²⁴¹ Am | 3,63 10 ⁺⁰⁴ | 1,88 10 ⁺⁰⁴ | 2,06 10 ⁺⁰⁴ | 4,61 10 ⁺⁰³ | 2,38 10 ⁺⁰³ | 2,61 10 ⁺⁰³ |
| ^{242m} Am | 1,39 10 ⁺⁰² | 1,46 10 ⁺⁰³ | 1,43 10 ⁺⁰³ | 5,02 10 ⁺⁰¹ | 5,28 10 ⁺⁰² | 5,16 10 ⁺⁰² |
| ²⁴³ Am | 6,11 10 ⁺⁰³ | 5,84 10 ⁺⁰³ | 5,84 10 ⁺⁰³ | 4,50 10 ⁺⁰¹ | 4,30 10 ⁺⁰¹ | 4,30 10 ⁺⁰¹ |
| ²⁴² Cm | 0 | 5,74 10 ⁺⁰² | 3,97 10 ⁺⁰⁰ | 0 | 7,03 10 ⁺⁰⁴ | 4,86 10 ⁺⁰² |
| ²⁴³ Cm | 2,10 10 ⁺⁰¹ | 1,22 10 ⁺⁰² | 1,10 10 ⁺⁰² | 3,57 10 ⁺⁰¹ | 2,07 10 ⁺⁰² | 1,87 10 ⁺⁰² |
| ²⁴⁴ Cm | 8,48 10 ⁺⁰² | 3,16 10 ⁺⁰³ | 2,64 10 ⁺⁰³ | 2,54 10 ⁺⁰³ | 9,46 10 ⁺⁰³ | 7,89 10 ⁺⁰³ |
| ²⁴⁵ Cm | 4,56 10 ⁺⁰² | 4,56 10 ⁺⁰² | 4,56 10 ⁺⁰² | 2,89 | 2,88 | 2,88 |
| ²⁴⁶ Cm | 3,00 10 ⁺⁰¹ | 7,24 10 ⁺⁰¹ | 7,23 10 ⁺⁰¹ | 3,42 10 ⁻⁰¹ | 8,26 10 ⁻⁰¹ | 8,26 10 ⁻⁰¹ |

Tableau III-6 : Composition isotopique et activité d'un combustible GFR à plaques version 06/04 irradié à 10 atomes%⁶

⁶Indique le taux de combustion d'un combustible, exprimé en % du nombre de noyaux atomiques d'un élément ou d'un ensemble d'éléments lourds donnés qui disparaissent par fission sur le nombre de noyaux initialement présents dans le combustible. Il est exprimé en % FIMA (number of Fission per Initial Metal Atom), unité abrégée par at%. Par exemple, 10 atomes% signifie que l'on a fissionné 10% des atomes de métal lourd initiaux ; ceci correspond à peu près à 10 000 MWj/t.

III.1.3 INSTALLATIONS DE TRAITEMENT DES COMBUSTIBLES

Les grandes usines de retraitement actuellement en service (La Hague en France, Sellafield en Grande-Bretagne et Rokkashomura, au Japon) utilisent le procédé PUREX ou une variante proche, c'est-à-dire un procédé d'extraction par solvant consistant à faire circuler une phase organique à contre-courant d'une phase aqueuse [CEA, 2005 ; OCDE, 2005]. En général, l'uranium et le plutonium sont séparés des produits de fission dans un premier cycle. L'uranium est ensuite séparé du plutonium au cours des cycles suivants et les deux produits sont purifiés jusqu'au niveau requis.

La Figure III-1 présente le schéma de principe du procédé PUREX. Dans la version la plus courante du procédé PUREX, la solution aqueuse est une solution d'acide nitrique qui circule dans un contacteur à contre-courant d'une solution de TBP diluée à 30% dans du kérosène ou du dodécane. L'uranium et le plutonium sont extraits par le TBP dans la phase organique, alors que les produits de fission et les autres impuretés demeurent dans la phase aqueuse. L'uranium est séparé du plutonium dans un second contacteur, par réduction à l'aide d'uranium (IV) en excès, stabilisé par de l'hydrazine ajoutée à la phase aqueuse.

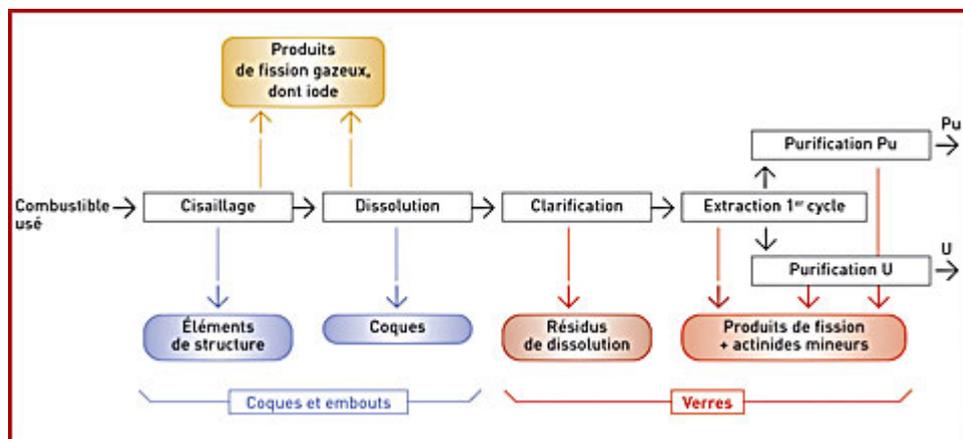


Figure III-1: Schéma de principe du procédé PUREX

A l'issue du retraitement, la plus grande partie du plutonium est récupérée (Figure III-2), il en reste cependant de l'ordre de 0,5 à 1% dans les déchets [Després, 1995].

III.1.4 INSTALLATION DE FABRICATION DU COMBUSTIBLE

L'usine MELOX (AREVA) à Marcoule fabrique, entre autres, à partir de poudres, des pastilles de MOx servant à l'élaboration d'élément de combustibles. Cette usine met à l'heure actuelle en œuvre des poudres d'oxyde de plutonium provenant de combustibles irradiés dans des réacteurs à eau pressurisée (REP) à des taux de combustion variant de 33 000 à 45 000 MWj.t⁻¹. Le Tableau III-7 donne les productions annuelles (en tonnes de Métal Lourde, tML) de l'usine MELOX depuis 2004 [MELOX, 2006].

L'usine de Dessel, en Belgique, réalise des activités similaires.

Les opérations sont des opérations essentiellement mécaniques sur des matériaux solides.

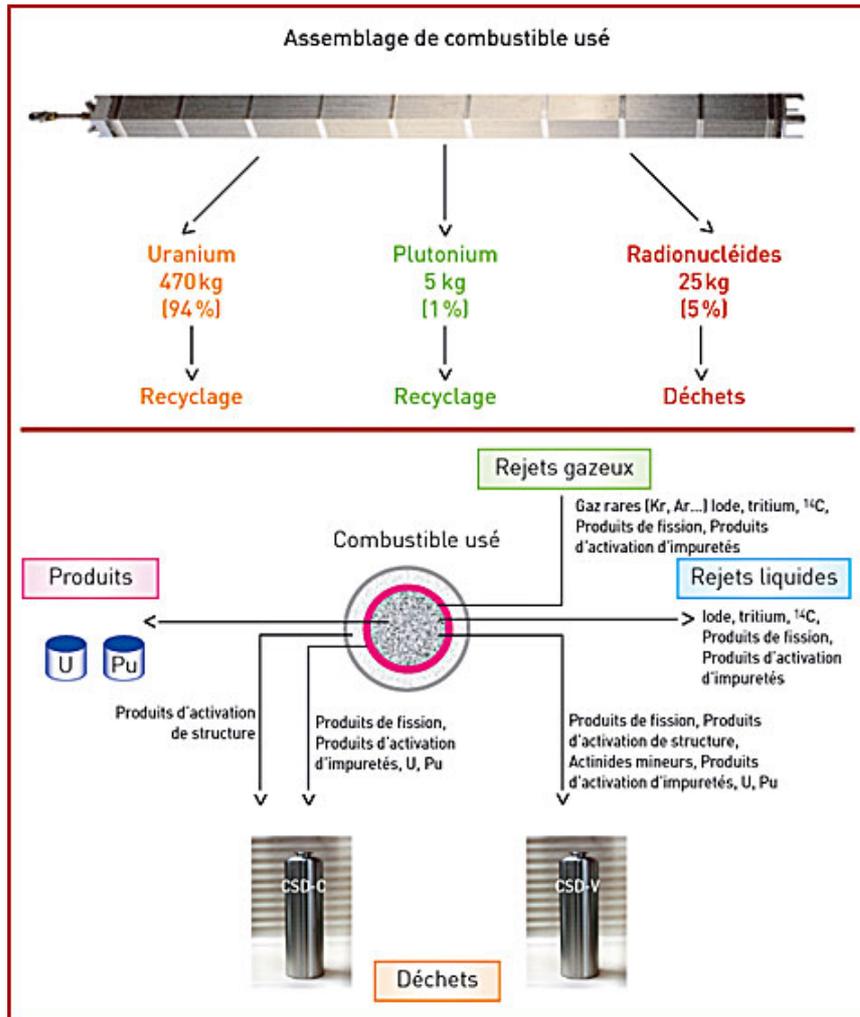


Figure III-2 : Matières radioactives contenues dans un assemblage de combustible utilisé [CEA, 2005]

| Production annuelle | 2004 | 2005 | 2006 | 2007* |
|---------------------|------------------|------|------|-------|
| Production en tML | 122 ² | 145 | 145 | 195 |

*autorisation du décret 2007-607 du 26 avril 2007

Tableau III-7 : Production annuelle de l'usine MELOX en tonne de Métal Lourde

III.1.5 LABORATOIRES DE RECHERCHE ET DEVELOPPEMENT

Les laboratoires de R&D ont, soit une vocation d'examen de combustibles ou morceaux de combustibles, soit une vocation de fabrication de prototypes, d'analyses et d'études. Les quantités sont faibles, mais sous formes variées.

Les **combustibles** peuvent se trouver sous forme :

- **d'éléments** :
 - "entiers" : aiguilles RNR ou crayons REP entiers ;
 - "tronçons", c'est-à-dire aiguilles RNR ou crayons REP découpés, conservant leur gaine, mais avec du combustible à nu à chaque extrémité ;
- **de "boues"**, – boues sèches ou "caviar" - issues des opérations de tronçonnage et de polissage.
- **de contamination** telle que des dépôts labiles ou fixés de matières combustibles sur les surfaces internes des enceintes blindées.

Les **matières fissiles** peuvent se trouver sous forme de poudre ou de pastilles frittées ou être gainées sous forme de crayons destinés à être testés.

III.1.6 INSTALLATIONS DE FABRICATION DE MATIERES NUCLEAIRES

Ces installations ont pour vocation de maintenir des matières nucléaires à un niveau très haut de pureté dans des géométries très particulières. Ceci implique en particulier des opérations de purification et de métallurgie. Pour des raisons liées à la non prolifération, ces opérations ne seront pas abordées ici.

En ce qui concerne les risques d'accident et les rejets de fonctionnement normal, ces opérations ne génèrent pas de situations significativement différentes de celles des installations du cycle des combustibles.

III.2 QUANTITES REJETEES DANS L'ENVIRONNEMENT

Même s'il existe des isotopes du plutonium présents naturellement, le plutonium mesurable aujourd'hui dans l'environnement provient essentiellement des activités humaines. La source essentielle en est les essais d'armes nucléaires dits atmosphériques, qui ont conduit à une dispersion des produits radioactifs à l'échelle de la planète. Les essais souterrains n'ont pas conduit à des émissions de plutonium dans l'environnement.

Les installations nucléaires ne rejettent pratiquement pas de plutonium par voie atmosphérique, ceci en raison des principes d'isolation des matières nucléaires par de multiples barrières et des filtres utilisés qui sont de très haute efficacité pour tout ce qui est sous forme particulaire, en particulier le plutonium qui est un élément très dense.

La seconde source est le rejet en mer ou en rivière des installations de traitement des combustibles, qui réalisent en particulier les opérations d'extraction du plutonium en faisant intervenir des procédés de traitement de liquides. Il convient ici de distinguer également une phase historique et la situation moderne.

La troisième source résulte d'accidents ayant conduit à la rupture de toutes les barrières. Ceux-ci ont été très rares et relèvent de deux catégories : la première concerne les réacteurs électrogènes, pour lesquels la présence d'un rejet de particules implique l'existence simultanée de rejets de gaz et de vapeurs beaucoup plus importants en termes d'impact. La seconde concerne des accidents de transport d'armes ou d'installations pour les applications militaires conduisant à la dispersion à une échelle réduite du plutonium contenu.

III.2.1 ESSAIS D'ARMES NUCLEAIRES ATMOSPHERIQUES SUR SITES D'EXPERIMENTATION

Entre 1945 et 1995, 543 essais d'armes ont été réalisés dans l'atmosphère principalement par les Etats-Unis (197) et l'ex-URSS (219) et, dans une moindre mesure, par la Grande-Bretagne (21), la France (46), et la Chine (22). Le rapport [UNSCEAR, 2000] présente un inventaire de ces essais par pays, et indique que les essais ont conduit à la dissémination de :

- 0,84 PBq de ^{238}Pu (1 petabecquerel = 1 PBq = 10^{15} Bq = 1000 TBq),
- 6,5 PBq de ^{239}Pu
- 4,35 PBq de ^{240}Pu
- 142 PBq de ^{241}Pu

Ces estimations sont plus complètes mais assez voisines de celles de 1973 [Hardy, 1973] présentées par hémisphère dans le Tableau III-8 ci-dessous.

| Hémisphère | ^{238}Pu armes | $^{239+240}\text{Pu}$ armes |
|------------|-------------------------|-----------------------------|
| Nord | $0,226 \pm 30$ | $9,48 \pm 1220$ |
| Sud | $0,059 \pm 11$ | $2,56 \pm 520$ |
| Nord + Sud | $0,285 \pm 33$ | $12,04 \pm 1330$ |

Tableau III-8 : Inventaire des retombées d'armes (PBq déposés) pour les isotopes 238, 239 et 240 du plutonium [Hardy, 1973]

Le dépôt de plutonium dans l'hémisphère nord est plus important que dans l'hémisphère sud en raison de la répartition mondiale des essais sur la planète (environ 90% des essais ont eu lieu dans l'hémisphère nord), et du très faible échange des masses d'air entre les deux hémisphères.

La Figure III-3 ci-dessous montre l'influence pour l'individu moyen des retombées globales et du plutonium et américium [UNSCEAR, 2000].

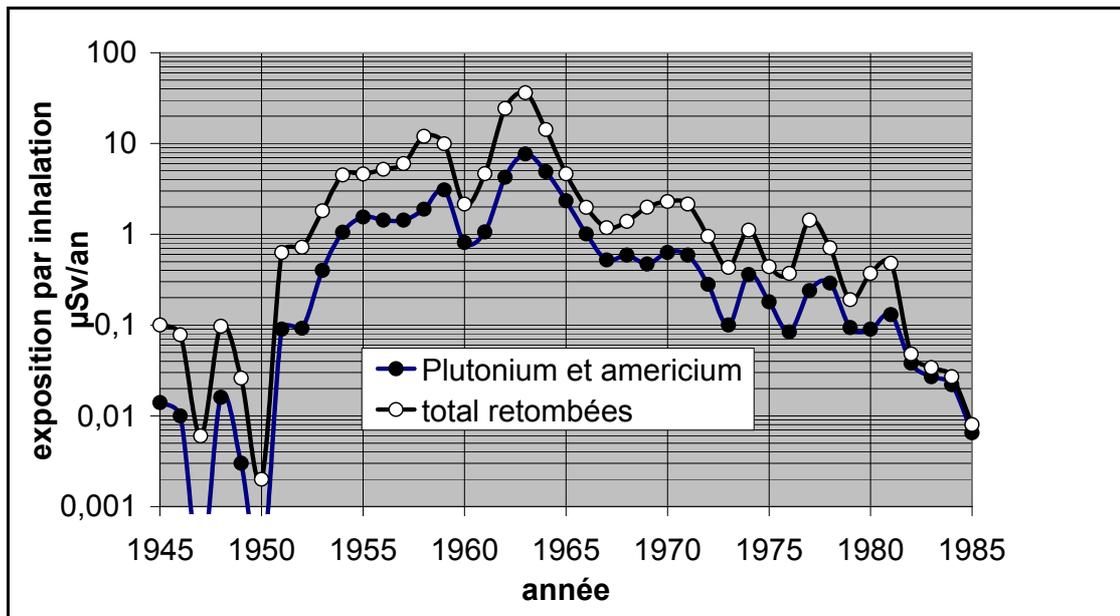


Figure III-3 : Impact par inhalation résultant des retombées atmosphériques

Nous renvoyons à la référence [Ministère de la Défense, 2006] pour ce qui concerne le détail des activités françaises en Polynésie et leur impact radiologique et environnemental. Nous ne reprendrons ici que quelques éléments explicatifs des mécanismes ayant conduit aux retombées mondiales.

Pour l'explosion d'une bombe de 1 mégatonne d'équivalent TNT (1 Mt), la vitesse d'élévation moyenne du sommet du nuage est de l'ordre de 400 km.h^{-1} pendant la première minute. Il en résulte de violents courants d'air ascendants. Le nuage atteint sa hauteur maximale au bout d'une dizaine de minutes, lorsque, après avoir traversé la tropopause, il arrive dans la stratosphère où il se stabilise. Le sommet du nuage stabilisé se situe vers 23 km d'altitude et sa base vers 16 km. Son diamètre moyen peut atteindre 40 km au bout de 10 mn.

On peut distinguer deux types de rejets suivant les conditions de tirs atmosphériques :

- Lors des tirs effectués à faible altitude ou au sol, la terre, l'eau et les débris divers sont aspirés et forme une colonne verticale entre le sol et la sphère de gaz chauds. Les échanges thermiques entre le nuage ascendant et l'air ambiant produisent des mouvements tourbillonnaires toriques, les gaz s'élevant dans la partie centrale du nuage et redescendant par l'extérieur. Dans certains cas, les débris aspirés dans la colonne retombent vers le sol sous forme d'un cône qui entoure la partie haute de la colonne en s'évasant vers le bas. Lors des explosions sur barge, les aérosols avaient une majorité de particules de taille comprise entre $25 \mu\text{m}$ et 1 mm , conduisant à des dépôts locaux. La France, comme la plupart des autres pays, est rapidement passée à des essais en altitude sous ballon à des hauteurs de quelques centaines de mètres. Les aérosols alors générés avaient une distribution comprise entre $0,05$ et $100 \mu\text{m}$, tels les cristaux de sels générés par l'évaporation de l'eau de mer.
- Tous les tirs atmosphériques réalisés ont provoqué une dispersion en altitude des contaminants à l'échelle planétaire. On distingue les retombées troposphériques avec des dépôts s'effectuant sur une durée de l'ordre du mois et concernant la bande de latitude centrée sur la zone d'essais et les retombées stratosphériques qui formaient la plus grande partie des retombées mondiales.

Une étude réalisée par Crocker [Crocker, 1966] met en évidence que ces conditions de tirs, associées à l'engin utilisé, engendrent des caractéristiques spécifiques de particules (intervalle de taille, forme, etc.). Ainsi, les tirs réalisés :

- en haute altitude, engendrent des particules sphériques, denses, faiblement solubles, de dimensions comprises entre quelques microns et 1 mm , avec une distribution uniforme des radionucléides et une haute activité spécifique,
- au sol, donnent naissance à des particules irrégulières, relativement solubles, de quelques millimètres de diamètre, avec une contamination en surface et une faible activité spécifique.

Le Tableau III-9 présente quelques évaluations de l'abondance isotopique du plutonium déposé à partir de mesures.

| Isotopes du plutonium | Abondance relative en masse (%) | | | |
|-----------------------|---|---------------------------------|----------------|------------------------|
| | Essais Mike 1952 Retombées locales Diamond (1960) | Retombées d'armes dans le monde | | |
| | | Bennett (1981) | Perkins (1980) | D'après UNSCEAR (2000) |
| ^{238}Pu | - | 0,01% | - | 0,04% |
| ^{239}Pu | 70,1% | 84,0% | 83,35% | 83,4% |
| ^{240}Pu | 25,9% | 15,0% | 15,27% | 15,4% |
| ^{241}Pu | 2,7% | 0,65% | 1,06% | 1,1% |
| ^{242}Pu | 1,3% | 0,33% | 0,32% | Non évalué |

Tableau III-9 : Compositions isotopiques du plutonium mesurées suite à des essais nucléaires localement ou dans le monde

On constate que, dans les retombées des essais, le ^{239}Pu est l'isotope du plutonium présent de façon majoritaire en masse.

III.2.2 REJETS DES INSTALLATIONS EN FONCTIONNEMENT NORMAL

Il convient de distinguer une période historique allant jusqu'aux années 70 et la situation moderne.

III.2.2.1 Phase historique

La situation historique concerne les complexes d'installations de production de matériaux nucléaires destinés aux armes et en particulier les installations de retraitement de combustibles.

En France, le site de Marcoule a eu une vocation essentiellement militaire de 1958 à 1965, puis une phase mixte jusqu'en 1993 et enfin une phase strictement civile après 1993. La Figure III-4 présente l'évolution des rejets liquides depuis l'origine du site [Duffa, 2001]. Il n'apparaît pas de différences significatives entre les différentes phases militaires et civiles. L'activité globale rejetée est de l'ordre de 1 TBq.

Entre 1980 et 1990, l'usine de Marcoule a rejeté 23 GBq/an de $^{239+240}\text{Pu}$ et 32 GBq/an de ^{238}Pu et ^{241}Am [Després, 1995].

L'établissement d'un bilan pour les rejets atmosphériques est difficile en raison du nombre de mesures non significatives. Toutefois, Duffa [Duffa, 2001] estime, à partir des mesures effectuées dans l'environnement, une émission atmosphérique d'environ 28 GBq sur toute la période dont 10% déposés sur une surface de 30 km² autour du site.

De 1966 à 1993, l'usine de La Hague a rejeté en mer environ 0,1 à 0,15 TBq de plutonium par an, constitué à 70% de ^{239}Pu et 30% de ^{238}Pu .

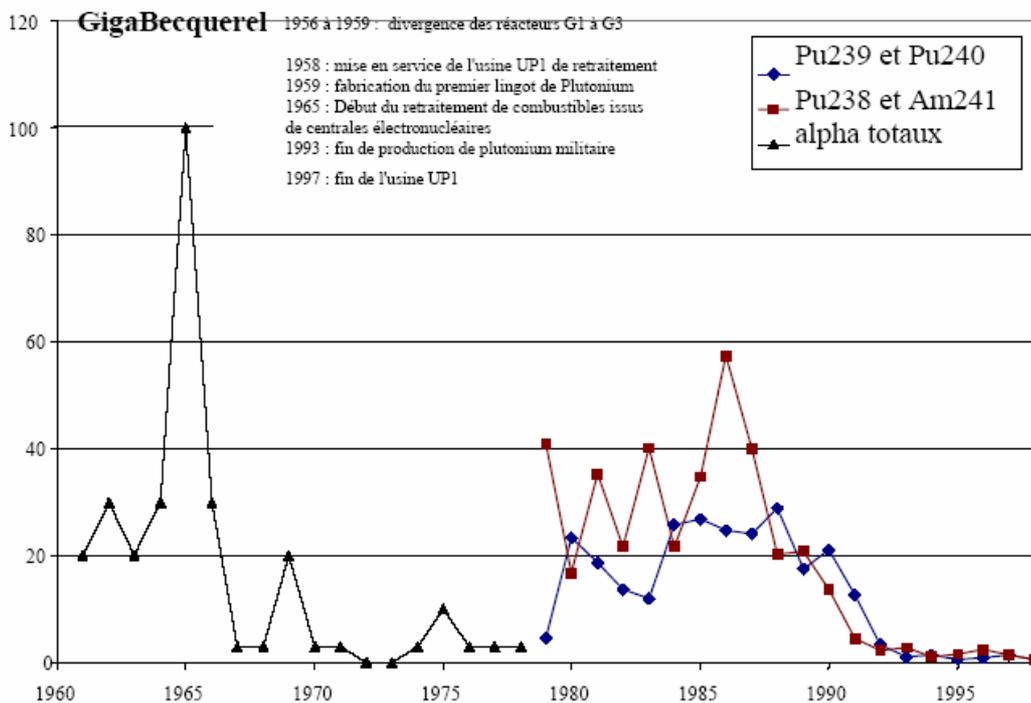


Figure III-4 : Rejets liquides du site de Marcoule de 1960 à la fermeture de l'usine UP1

En Grande Bretagne, l'activité α rejetée dans la mer d'Irlande représente au total environ 500 TBq de $^{238-239-240}\text{Pu}$ et 450 TBq de ^{241}Am , essentiellement rejetée entre 1975 et 1977 [OCDE, 1981 ; Després, 1995 ; Salbu, 2001 ; Kershaw, 2001]. La plus grande partie du plutonium et de l'américium rejetés dans la mer est fixée rapidement sur les sédiments, et peut ensuite être transportée et déposée sur les fonds marins et les plages. D'après Després [Després, 1995], au total, environ 1000 TBq de plutonium (émetteurs α uniquement) ont été rejetés dans la mer par les usines de retraitement, dont environ 70% de ^{239}Pu et 30% de ^{238}Pu (en masse).

En Europe, l'usine de Windscale est responsable de la majorité des rejets. Toutefois, depuis cette époque, les quantités rejetées ont baissé et sont actuellement du même ordre de grandeur que celles de l'usine de La Hague (0,1 à 0,15 TBq.an⁻¹), ce qui correspond à des rejets bien maîtrisés.

Aux Etats-Unis, les activités de défense nationale concernent plusieurs sites.

A Handford (Washington, USA), usine servant pour la production de plutonium pour la défense nationale, des rejets de routine en ^{239}Np ayant généré du ^{239}Pu par décroissance ont eu lieu entre 1961 et 1965 dans la rivière Columbia et ses estuaires. Environ 3,7 TBq de ^{239}Pu ont été rejetés sous forme liquide [OCDE, 1981].

Sur le site de Savannah River (Caroline du Sud, USA), des rejets de routine ont été évalués [OCDE, 1981] à 190 GBq, composés aux 2/3 de ^{238}Pu , dont 69% par voie atmosphérique et 31% par voie liquide. Sur la période 54-89, les rejets sont évalués dans [UNSCEAR 2000] à 140 GBq en atmosphérique et 23 GBq en liquide.

A Los Alamos (Nouveau Mexique, USA), des rejets sous forme liquide et sous forme d'aérosols remis en suspension à partir du sol ont été évalués à 59 GBq de ^{238}Pu , ^{239}Pu et ^{240}Pu dont 81% par voie atmosphérique et 19% dans les sols

A Rocky Flats, les rejets de routine de 1953 à 1983 se sont élevés à 1,7 GBq par voie atmosphérique. Sur la période 1965-1969, l'aire de stockage a conduit à un rejet atmosphérique de 260 GBq.

En Russie, 3 principaux complexes pour la production de matériaux nucléaires existent. Le complexe de production de matériaux nucléaires de Mayak est situé dans la région de Chelyabinsk et comprend des réacteurs uranium-graphite pour la production de plutonium et une usine de retraitement depuis 1948. Le complexe sibérien de Tomsk comprend 5 réacteurs uranium-graphite dont trois ont été arrêtés en 1990-1992, des installations d'enrichissement et de fabrication de combustible ainsi qu'une usine de retraitement. Le complexe de Krasnoyarsk comprend 3 réacteurs, une usine de radiochimie pour le retraitement de combustibles irradiés et un entrepôt d'éléments de combustible.

En raison de l'importance des rejets de diverses installations et des rejets d'autres radionucléides, on dispose de peu d'informations sur les rejets de plutonium.

Pour le Complexe Mayak, des rejets liquides assez importants ont eu lieu dans la rivière Techa entre 1949 et 1956. 95% des rejets ont eu lieu en 1950-51. L'activité rejetée en plutonium est comparativement mineure et a été de l'ordre de 8 GBq de ^{239}Pu et ^{240}Pu (0,1 à 0,5 Bq.m⁻³).

A titre d'exhaustivité, il convient de mentionner sur cette période les sites d'immersion en mer de déchets [OCDE, 1983], même si l'on ne peut parler ici de rejets.

Plusieurs sites ont été utilisés par les différentes puissances nucléaires pour immerger en mer des déchets radioactifs solides à des fins de stockage.

Ainsi, les Etats-Unis ont immergé des déchets dans le nord-est de l'océan Pacifique et le nord-ouest de l'océan Atlantique, alors que l'URSS a immergé des déchets dans le Pacifique ouest et dans les mers de Kara et de Barents (16 réacteurs de sous-marins, dont 6 avec leurs combustibles usagés, ont été immergés à faible profondeur).

Les pays européens membres de l'OCDE ont également procédé à des immersions de déchets solides jusqu'en 1982 sur un site d'environ 4000 km² dans l'Atlantique nord, à une profondeur moyenne de 4000 m. L'activité totale immergée pour les isotopes 238, 239 et 240 du plutonium est d'environ 630 TBq [OCDE, 1983].

III.2.2.2 Situation actuelle

Aujourd'hui, les centrales nucléaires en fonctionnement normal ne produisent pas d'effluent contenant du plutonium. Ceci provient du fait que la matière fissile est isolée du milieu caloporteur primaire par la gaine des crayons de combustible, le circuit primaire étant lui-même isolé du reste de l'installation. Après exploitation, les éléments de combustible sont retirés du cœur et évacués vers les usines de retraitement après une période de refroidissement en piscine sans autre manipulation que celles nécessaires au transport.

Il en va de même de la plupart des installations en ce qui concerne les rejets atmosphériques. Cependant, comme il n'est pas possible de garantir l'inexistence de rejets par les mesures de contrôle, les installations où l'on utilise de la matière sous forme libre (liquides, poudres) disposent d'autorisation de rejets "alpha" fondées sur les limites de détection des appareils de mesures, après décroissance de la radioactivité alpha naturelle apportée par les descendants du radon.

Les usines de traitement du combustible ont fortement réduit leur rejet par voie liquide. Les déchets liquides produits sont traités avant de pouvoir être rejetés après contrôle dans la mer ou les estuaires des fleuves.

Le Tableau III-10 et le Tableau III-11 fournissent les niveaux d'autorisation de rejets d'effluents liquides ou gazeux pour les émetteurs alpha (en activité totale) pour différents types d'installations (traitement, stockage, centres de recherche) ainsi que les bilans des rejets radiologiques. Ces niveaux annuels autorisés sont fixés dans des arrêtés interministériels et/ou préfectoraux. Au vu de ces tableaux, il apparaît que les rejets effectifs sont faibles, voire très faibles comparés aux autorisations de rejets.

| Installation | Valeur limite annuelle (en GBq) | Rejets pour l'année 2006 (en GBq) | % limite annuelle | Source |
|--|---------------------------------|---|-------------------|-------------------|
| Usine MELOX (fabrication combustible) | 0,120 | < 0,0004 | < 0,3% | [MELOX, 2006] |
| Usine La Hague (traitement des combustibles) | 100 | 25 | 25 % | [La Hague, 2006] |
| Centre de stockage de la Manche | 0,125 | 0,0038 | 3 % | [ANDRA, 2006a] |
| Centre de stockage de surface CSA | 0,0004 | 3,7 10 ⁻⁶ | < 1 % | [ANDRA, 2006b] |
| Centre CEA de Cadarache | 0,13 | 0,00531 pour le 1 ^{er} semestre 0,000143 pour le 2 nd semestre | 4 % 0,1 % | [Cadarache, 2006] |
| Centre CEA de Saclay | 0,74 | < 0,1* | < 13 % | [Saclay, 2006] |
| Centre CEA de Fontenay-aux-Roses | 1 | 0,006 | 0,57 % | [Fontenay, 2006] |
| Centre CEA de Grenoble | 0,022 | 0,0004 | 2 % | [Grenoble, 2006] |
| Centre CEA de Marcoule | 150 | 0,95 | 0,6 % | [Marcoule, 2006] |

* aucune activité n'est décelée par comptage, la valeur donnée correspond à une limite de détection des appareils de mesure multipliée par le volume d'eau rejetée.

Tableau III-10 : Rejets liquides en fonctionnement normal et activité totale "émetteurs alpha" (déterminés par comptage alpha) dans différents types d'installations

| Installation | Valeur Limite annuelle (en GBq) | Rejets pour l'année 2006 (en GBq) | % limite annuelle | Source |
|--|---------------------------------|-----------------------------------|-------------------|------------------|
| Usine MELOX (fabrication combustible) | 0,074 | < 0,0004 | < 0,5% | [MELOX, 2006] |
| Site AREVA NC La Hague (traitement des combustibles) | 0,001 | 0,00017 | 17 % | [La Hague, 2006] |

Tableau III-11 : Rejets gazeux en fonctionnement normal et activité totale "émetteurs alpha" dans différents types d'installations

III.2.3 REJETS ET MESURES SUITE A ACCIDENT (HORMIS ACCIDENT DE CRITICITE)

Parmi les accidents survenus sur les lieux des activités civiles, il faut distinguer :

- les accidents de réacteur,
- les accidents de laboratoires et usines.

Des accidents suite à des lancements/chute de satellites ou de transports d'arme se sont également produits.

La majorité des accidents sur sites nucléaires (réacteurs, laboratoires et usines) ont eu uniquement un impact local. Seuls l'incendie de Windscale et l'accident de Tchernobyl ont eu des conséquences à plus grande échelle. Le Tableau III-12 récapitule les différents accidents survenus de par le monde. Les cas de Tchernobyl et de Windscale ainsi que ceux de Thulé et de Palomarès font l'objet d'une attention plus particulière.

Accident de Windscale - 1957

L'accident qui est survenu entre le 7 et 12 octobre 1957 à Windscale (Royaume Uni) s'est produit sur un réacteur graphite gaz à uranium naturel lors d'une opération d'entretien du graphite. Des produits de fission, essentiellement 740 TBq d'iode 131, c'est-à-dire mille fois moins qu'à Tchernobyl, ont été rejetés à l'extérieur. L'activité rejetée en ^{239}Pu a été de l'ordre de 1 GBq, sous forme de particules (de taille comprise entre 20 et 500 μm) associées à de l'oxyde d'uranium, jusqu'à environ 4 km du site [Salbu, 2001].

L'accident de Windscale est classé au niveau 5 sur l'échelle internationale des événements nucléaires INES [ASN, 2008], qui comporte 8 niveaux de 0 à 7. Les autorités ont pris toutes les mesures nécessaires pour limiter les conséquences radiologiques liées aux rejets d'iodes, notamment le contrôle et l'arrêt des livraisons de lait effectuées par les producteurs de la région. Sur les 238 personnes examinées, 126 étaient légèrement contaminées au niveau de la thyroïde par l'iode.

Accident de Tchernobyl - 1986

De tous les accidents survenus jusqu'à aujourd'hui sur des installations nucléaires, celui de Tchernobyl, le 26 avril 1986, est sans conteste le plus marquant en raison de sa gravité [UNSCEAR, 2000].

L'accident s'est produit dans un réacteur à eau bouillante de type RBMK modéré au graphite et d'une puissance de 1000 MWe. Les causes de cet accident sont autant matérielles qu'humaines. 134 personnes ont été gravement irradiées sur le site ; 31 sont décédées dans les trois mois qui ont suivi. Cet accident majeur a été classé au niveau 7 de l'échelle internationale des événements nucléaires INES.

A la suite de l'explosion suivie d'un incendie d'un des réacteurs, environ 6 à 8 tonnes de combustible UO_2 ont été dispersées dans l'atmosphère. Environ 50 kg de plutonium, dont l'activité était en majeure partie due au ^{241}Pu , ont été dispersés à proximité du lieu de l'accident. Près de 10% de la radioactivité contenue dans le cœur au moment de l'accident a été libérée : des produits de fission (100% des gaz rares, 15 à 20% des produits volatils, 3 à 5% des produits non volatils) et des transuraniens (éléments les plus lourds du combustible).

Des particules relativement grosses composées de radionucléides variables ont été retrouvées à proximité du site (dans une zone de 30 km), alors que des particules plus fines ont été identifiées jusqu'à une distance de 2000 km (on en a retrouvé jusqu'en Europe de l'ouest et au Japon). Parmi celles-ci, on a identifié des "particules chaudes", c'est-à-dire contenant du plutonium inclus dans

une matrice de UO_2 . Il s'agit de particules fortement radioactives, qui ont une composition proche de celle du cœur de la centrale et probablement issues de ce cœur. L'isotope ^{238}Pu ainsi que d'autres isotopes ont été identifiés dans ces particules. Les diamètres observés varient de 0,5 à 150 μm , avec un diamètre médian de 0,6 μm pour les aérosols libérés au moment de l'accident et de 6 μm pour ceux remis en suspension à partir du dépôt [Ansoborlo, 2000].

Les rejets pour les isotopes du plutonium ont été estimés à 3% de l'inventaire dans [UNSCEAR, 2000] soit à : 6 PBq pour ^{241}Pu , 100 TBq pour $^{238, 239, 240}Pu$. La Figure III-5 donne la carte des dépôts au sol de plutonium suite à l'accident (pour une activité supérieure à $3700 Bq.m^{-2}$).

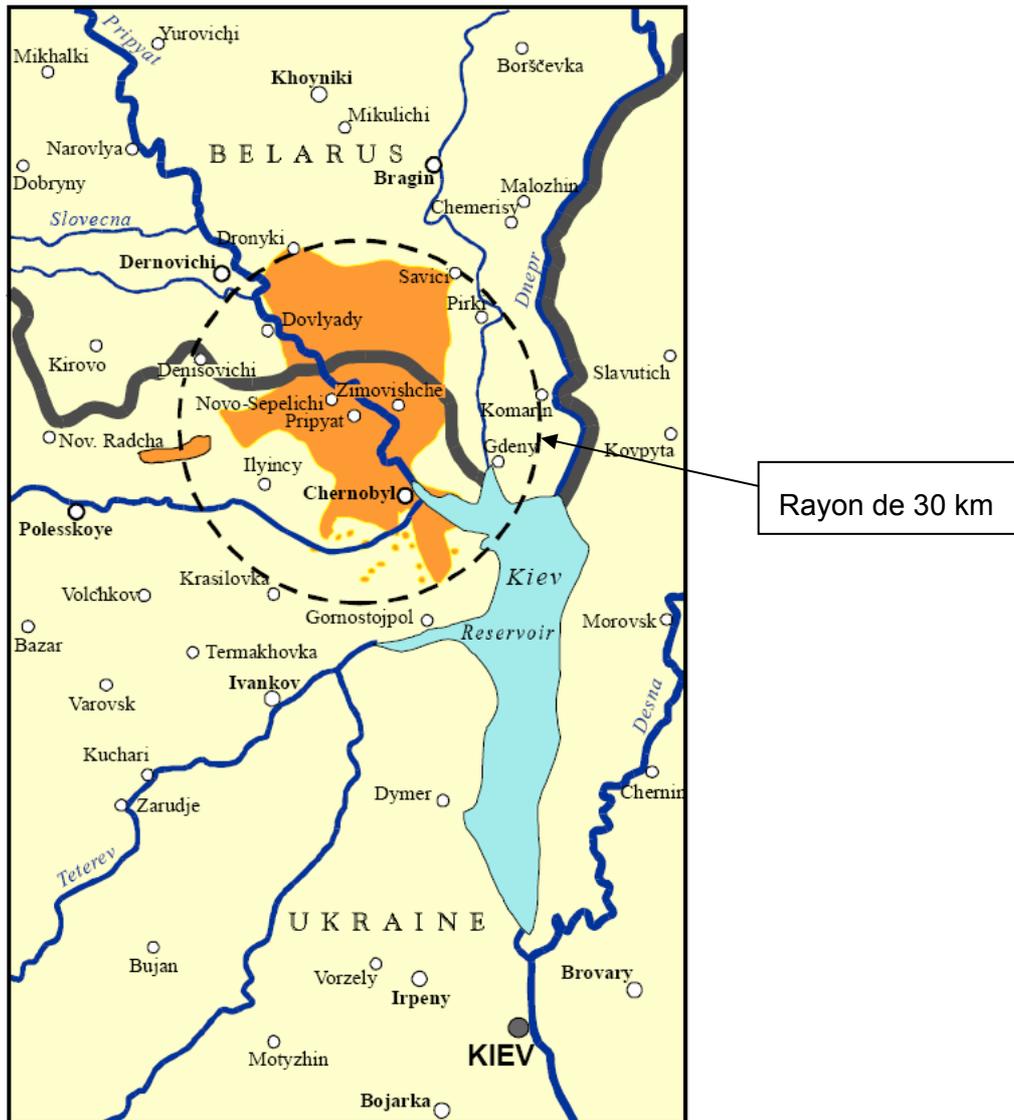


Figure III-5 : Dépôt à la surface du sol de $^{239, 240}Pu$ lors de l'accident de Tchernobyl à un niveau supérieur à $3700 Bq/m^2$

Comme ont pu le montrer ces deux accidents de réacteurs (Windscale et Tchernobyl), quand une dispersion dans l'environnement de plutonium a lieu, les conséquences sanitaires ne sont pas liées au plutonium, et si une surveillance médicale est mise en place (cf. Tchernobyl), cette surveillance n'est pas liée au plutonium dispersé lors de l'accident.

Accidents de Palomarès et Thulé

En 1966, une explosion des détonateurs chimiques de deux engins nucléaires transportés par un bombardier B52 rentré en collision avec un autre appareil a eu lieu au-dessus de Palomarès (Espagne) [Ramos, 1966]. 0,1 TBq de ^{239}Pu ont été dispersés sous forme de fine poudre d'oxyde et de particules de taille variant du submicronique au fragment de quelques millimètres [OCDE, 1981 ; Després, 1995 ; Salbu, 2000]. Au niveau local, environ 200 hectares de sols ont été contaminés. L'activité mesurée sur 2 hectares cultivés était supérieure à 10^6 Bq.m^{-2} , et, sur environ 16 hectares, l'activité était comprise entre 10^5 et 10^6 Bq.m^{-2} .

En 1968, à proximité de la base de l'US Air Force de Thulé (Groenland), un accident d'avion (écrasement d'un bombardier B52 contenant quatre engins nucléaires) a conduit à la dispersion d'uranium et de plutonium. Après décontamination de la zone, il reste environ 1,4 TBq de $^{239+240}\text{Pu}$ (soit environ 0,5 kg) et 0,025 TBq de ^{238}Pu [Dahlggaard, 2001 ; Salbu, 2001].

Pour ces deux accidents, aucune conséquence sanitaire liée au plutonium n'a été notée. Toutefois, il y a eu dispersion de plutonium dans l'environnement, ce qui conduit à de nombreuses mesures et études environnementales.

| Lieu / Année | Circonstances | Isotopes | Quantité de Pu relâchée | Où | Référence |
|--|--|---------------|---|--|--|
| Mound (USA) 1969 | Faible dans un conduit transférant des déchets d'un bâtiment à un autre | 238 | 10 TBq sous forme solide | Dans l'environnement | Harley, 1980 ; Després, 1995 |
| Océan Indien 1964 | Désintégration du générateur SNAP-9A contenu dans un satellite | 238 | 560 TBq sous forme de particules submicroniques | Dans la haute atmosphère | Harley, 1980 ; Hardy, 1973 |
| Canada 1978 | Accident du satellite soviétique Cosmos 954 lors de sa rentrée dans l'atmosphère | 239 | Non connue (quantité présente initialement 0,27 TBq) | Dans l'atmosphère | Salbu, 2000 |
| Rocky Flats, Colorado (USA) 1957, 1958, 1968 | Incidents (incendie, fuite d'huile de coupe contaminée, ...) dans l'usine de fabrication d'armes et de récupération de Pu dans des déchets | 239, 240 | 520 GBq, sous forme de très petites particules sujettes à la remise en suspension | 70% de l'activité émise détectable sur le sol du site (0,2 à 15 Bq.kg ⁻¹) - 28% sur le sol hors du site.- 0,3% émise dans l'atmosphère - 0,7% dans les cours d'eau | OCDE, 1981 |
| Complexe Mayak, site de Tcheliabinsk (Oural) 1957 | Explosion d'un réservoir de stockage | Non connus | Non connue (74 PBq de produits de fission conduisant à une émission de particules solides sous forme d'aérosols, composées de produits de fission et de plutonium) | 90% de l'activité dispersée au voisinage immédiat du réservoir 10% restants ont été dispersés sur plusieurs centaines de km | UNSCEAR, 2000 |
| Palomarès (Espagne) 1966 | Accident entre deux avions dont un transportant deux engins nucléaires | 239 | 0,1 TBq dispersés sous forme de fine poudre d'oxyde et de particules | Au niveau local, environ 200 hectares de sols contaminés. | OCDE, 1981 ; Després, 1995 ; Salbu, 2000 |
| Thulé (Groenland) 1968 | Ecrasement d'un avion transportant 4 engins nucléaires | 238, 239, 240 | Quantité restante : 0,025 TBq en ²³⁸ Pu, 1,4 TBq en ²³⁹⁺²⁴⁰ Pu (soit environ 0.5 kg) ; particules de l'ordre de 2 mm | Dans les sédiments marins et sols recouverts de glace | Dahlgaard, 2001 Salbu, 2001 |
| Tchernobyl (Ukraine) 1986 | Accident réacteur nucléaire type RBMK | 241 | 50 kg à proximité du lieu de l'accident sous forme de particules | Dans l'environnement | UNSCEAR, 2000 |
| Windscale (RU) 1957 | Accident sur réacteur nucléaire graphite gaz | 239 | 10 ⁹ Bq sous forme de particules associées à UO ₂ | Dans l'environnement | Salbu, 2001 |

Tableau III-12 : Récapitulatif des accidents (hors accident de criticité) ayant mis en œuvre du plutonium

Plusieurs accidents, au cours desquels le plutonium présent dans l'engin est resté confiné, se sont produits sur des sous-marins (parfois équipés d'ogives nucléaires) et des navires à propulsion nucléaire, créant là encore des sources potentielles de contamination : 48 armes et 11 réacteurs ont officiellement été déclarés perdus sur le fond des océans [UNSCEAR, 1993]. Il n'existe pas d'information sur les quantités ainsi immergées. Toutefois, les mesures d'activité effectuées autour de certains points d'impact ne mettent pas en évidence d'augmentation de la radioactivité. Par ailleurs, six sous-marins de l'ex-URSS, transportant chacun plusieurs charges nucléaires, ont officiellement été reconnus perdus (aux larges des Bermudes, dans l'Atlantique nord-est, dans la baie de Naples ...). L'activité du combustible contenu dans chaque réacteur dépend du taux de combustion, mais elle est de l'ordre de 30 TBq pour chacun des isotopes 239 et 240 et de 5000 à 10000 TBq de ^{241}Pu , l'essentiel du plutonium étant contenu dans les armes [Després, 1995].

III.2.4 ACCIDENTS DE CRITICITE METTANT EN ŒUVRE DU PLUTONIUM

Le Tableau III-13 rassemble les accidents de criticité ayant mis en jeu du plutonium [CEA, 2002 ; Miele, 2005]. Depuis 1945, une soixantaine d'accidents de criticité mettant en œuvre du plutonium ou de l'uranium (la plupart aux Etats-Unis et dans l'ex-URSS) se sont produits dans le monde nucléaire : deux tiers dans les réacteurs de recherche et sur les assemblages critiques, le dernier tiers dans les installations du cycle du combustible. Ils ont entraîné le décès d'une dizaine de personnes et une irradiation significative d'une vingtaine de personnes. Ils n'ont pas provoqué de rejets radioactifs significatifs dans l'environnement.

Pratiquement tous les accidents de criticité dans les installations du cycle du combustible ont eu lieu en solution aqueuse. Il convient de rappeler, qu'en présence d'eau, les masses minimales critiques sont faibles (870 g pour de l'uranium très enrichi et 510 g pour du plutonium). De ce fait, les installations de traitement chimique de l'uranium et du plutonium sont les plus sensibles. Cette sensibilité est accrue lorsque ces installations font l'objet de fréquentes modifications de procédé ou d'appareillage, comme c'est le cas pour les ateliers pilotes.

Dans le cas des accidents de criticité mettant en œuvre du plutonium, les conséquences environnementales dues au plutonium sont inexistantes (pas de rejets et donc pas de contamination environnementale), alors que les conséquences sanitaires, surtout sur le personnel présent à proximité, sont importantes : **ces accidents donnent lieu à des fortes irradiations externes** (neutrons, rayonnement gamma) pouvant conduire aux décès⁷ des personnes irradiées qui sont les personnes se trouvant sur les lieux de l'accident donc au plus près, c'est-à-dire le personnel travaillant dans les installations.

⁷ La Dose Létale 50 pour une irradiation externe globale est de 4,5 Gy.

| DATE ET LIEU | PERSONNES IRRADIEES | NOMBRE DE FISSIONS | CIRCONSTANCES, DEROULEMENT ET CAUSES |
|--|------------------------------------|--|---|
| Accidents de criticité survenus sur les réacteurs de recherche et dans les laboratoires sur des assemblages critiques | | | |
| 21/08/45 LOS ALAMOS | 1 mort | 10^{16} fissions | Plutonium pur, mise en place d'un réflecteur à la main. |
| 21/05/46 LOS ALAMOS | 1 mort 8 irradiés | $3 \cdot 10^{15}$ fissions | Plutonium pur, mise en place d'un réflecteur à la main. |
| 16/11/51 HANDFORD | pas d'irradié | $8 \cdot 10^{16}$ fissions | Accident dans une solution de nitrate de plutonium, retrait trop rapide des barres de contrôle. |
| 09/04/53 VVIIEF | 2 irradiés faiblement (~ 1 rem) | 10^{16} fissions | Erreur d'un opérateur travaillant seul sur un assemblage critique (deux demi sphères de plutonium de 10 cm de diamètre) ; fusion d'une partie. |
| 26/03/63 VVIIEF | 6 irradiés | $5 \cdot 10^{15}$ fissions 370 à 500 rems (3,7 à 5 Sv) | Violation des consignes dans une expérimentation sur un assemblage critique (deux demi sphères de Pu de 135 mm de diamètre) ; pas de conséquence sur l'assemblage. |
| Accidents de criticité survenus sur les installations du cycle du combustible | | | |
| 30/12/58 LOS ALAMOS | 1 pic 1 mort | $1,5 \cdot 10^{17}$ fissions 12 000 rads (120 Gy) | Solvant contenant 3,27 kg de plutonium sur phase aqueuse ; réaction lors de la mise en route de l'agitateur ; arrêt par stoppage de l'agitateur. |
| 24/08/70 WINDSCALE | 5 à 10 secondes | | Introduction d'eau dans un bac de solvant chargé de plutonium (55g/l). |
| 05/12/60 MAYAK | 2 pics plusieurs irradiés | 10^{17} fissions 5 rads | 40 litres ; arrêt par éjection de la solution ; mauvaise appréciation de la masse de plutonium. |
| 13/12/78 SIBERIAN CHEMICAL COMBINE | 1 pic 1 irradié + 7 irradiés | $3 \cdot 10^{15}$ fissions 250 rads (2,5 Gy) 5 à 60 rads (0,05 à 0,6 Gy) | Introduction d'un nombre trop élevé de lingots de plutonium dans un conteneur. Ejection du quatrième lingot lors de son introduction. Extraction manuelle du troisième par l'opérateur. |

Tableau III-13 : Accidents de criticité mettant en œuvre uniquement du plutonium [Miele, 2005]

III.3 CONCLUSION

Le plutonium trouve sa source de production dans les réacteurs à partir de combustibles constitués d'uranium.

En raison de ses propriétés fissiles, le plutonium 239 peut, à son tour, être utilisé comme source d'énergie par fission dans le combustible d'oxydes mixtes uranium-plutonium.

Le plutonium est ainsi utilisé, produit ou manipulé dans différents types d'installations (réacteurs, usines de traitement et de fabrication du combustible et installations de recherche), ce qui conduit à le trouver sous différentes formes physico-chimiques et conditionnements :

- Dans les usines de traitement des combustibles, le plutonium des combustibles usés est séparé de l'uranium et des produits de fission. On le trouve sous forme dissoute dans des phases aqueuses et organiques puis stabilisé sous forme de PuO₂.
- Dans les usines de fabrication de combustible, le plutonium est presque toujours sous forme d'oxyde qui est incorporé à l'oxyde d'uranium. On le trouve essentiellement sous forme solide, successivement en poudre, pastilles, pastilles frittées et crayons (ou aiguilles).
- Dans le cas des réacteurs, le plutonium se trouve dans les éléments de combustible.

La composition isotopique du plutonium évolue au cours de l'irradiation et est fonction du type de combustible, du taux de combustion, du temps d'attente avant recyclage ainsi que de la neutronique mise en œuvre dans le cœur. Toutefois, quelles que soient ces conditions, le ²³⁹Pu reste majoritaire en masse. Les isotopes 238 et 241 sont également importants d'un point de vue activité.

Le plutonium mesurable aujourd'hui dans l'environnement provient essentiellement des activités humaines. La source essentielle en est les essais d'armes nucléaires dits atmosphériques entre 1959 et 1963, qui ont conduit à une dispersion des produits radioactifs à l'échelle de la planète (**environ 10 000 TBq**) ainsi que de la désintégration du satellite américain SNAP 9A.

La seconde source est le rejet en mer ou en rivière des installations de traitement des combustibles. Il convient de distinguer une période historique allant jusqu'aux années 70 et la situation moderne. La situation historique concerne les complexes d'installations de production de matériaux nucléaires destinés aux armes et, en particulier, les installations de retraitement de combustibles (**de l'ordre de 1000 TBq en mer et jusqu'à quelques dizaines de TBq en rivières**).

Aujourd'hui, les centrales nucléaires en fonctionnement normal ne produisent pas d'effluent contenant du plutonium. Il en va de même de la plupart des installations en ce qui concerne les rejets atmosphériques. Les usines de traitement du combustible ont fortement réduit leur rejet par voie liquide (autorisation de l'ordre de 0,1 TBq/an).

La troisième source résulte d'accidents ayant conduit à la rupture de toutes les barrières. L'impact est alors essentiellement local.

L'accident de Tchernobyl a libéré environ **100 TBq** à proximité du réacteur et les deux accidents d'avions B52 porteur d'armes, à Palomarès et à Thulé, ont donné lieu à une dissémination notable de ²³⁹Pu (**0,1 à 10 TBq**).

Dans les accidents de réacteurs, l'incidence radiologique d'une présence de plutonium est très faible en relatif et toute gestion de crise et de surveillance médicale de population s'effectuerait vis-à-vis d'autres éléments radioactifs, iodes et césium en particulier.

On dénombre neuf accidents de criticité mettant en œuvre du plutonium, entre 1945 et 1978. Trois morts et environ une trentaine d'irradiation sont à déplorer parmi le personnel des installations. Aucune conséquence hors site n'a été signalée.

III.4 REFERENCES

- [ANDRA, 2006a] Centre de stockage de la Manche, Bilan annuel de surveillance du Centre et de son environnement. Année 2006. Site internet ANDRA
- [ANDRA, 2006b] Bilan annuel de surveillance du centre et de son environnement – Centre CSFMA. Année 2006. Site internet ANDRA
- [Ansoborlo, 2000] Ansoborlo E., Stather J. Review of the characterisation of hot particles released into the environment and pathways for intake of particles. Radiation Protection Dosimetry, 92, 1-3, 139-143, 2000.
- [ASN, 2008] site internet <http://www.asn.fr>
- [Bennett, 1981] Bennett B. G. Estimation of environmental transfer of plutonium and the dose to man. Rapport IAEA-TECDOC-255, September 1981.
- [Cadarache, 2006] Rapport Transparence et sécurité nucléaire 2006 – CEA Cadarache – Tome 1. <http://www-cadarache.cea.fr/fr/installations/pdf/TSNp24rejets.pdf>
- [CEA, 2002] Clefs CEA n°45. L'étude de la phénoménologie des accidents de criticité, 2002.
- [CEA, 2005] Rapport Axe 1/Séparation et Transmutation des Radionucléides à vie longue - Les déchets radioactifs à haute activité et à vie longue / Recherches et Résultats – Loi du 30 décembre 1991, 2005
- [Crocker, 1966] Crocker G. R., O'Connor J. D., Freiling E. C. Physical and Radiochemical properties of fallout particles. Health Physics, 12, 1099-1104, 1966.
- [Dahlgard, 2001] Dahlgard H., Eriksson M., Ilus E., Ryan T., McMahon C.A., Nielsen S.P. Plutonium in the marine environment at Thule, NW-Greenland after a nuclear weapons accident. Dans Plutonium in the Environment, Ed A. Kudo, Elsevier, Volume 1, 15-30, 2001.
- [Després, 1995] Després A. Les sources de plutonium dans l'environnement. Revue Générale Nucléaire, 1, 24-29, Janvier-Février 1995.
- [Diamond, 1960] Diamond, H. Fields, P. R. Stevens, C. S. Studier, M. H. Fried, S. M. Inghram, M. G., Hess, D. C. Heavy isotopes Abundances in Mike Thermonuclear Device. Physical Review, 119, Issue 6, pp. 2000-2004, 1960.
- [Duffa, 2001] Duffa C. Répartition du plutonium et de l'américium dans l'environnement terrestre de la basse vallée du Rhône, 2001. Rapport CEA-R-5977, 2001
- [Fontenay, 2006] Rapport Transparence et sécurité nucléaire 2006 – CEA Fontenay-aux-Roses. www.cea.fr/content/download/4554/27049/file/Bilan-loi-TSN-CEA-Fontenay-aux-Roses-2006.pdf
- [Grenoble, 2006] Rapport Transparence et sécurité nucléaire 2006 – CEA Grenoble. http://www.cea.fr/le_cea/les_centres_cea/grenoble
- [Hardy, 1973] Hardy E. P., Krey P. W., Volchok H. L., Global inventory and distribution of fallout Plutonium. Nature, 241, February 16, 444-445, 1973.
- [Harley, 1980] Harley J. H. Plutonium in the environment: a review. Journal of Radiation Research, 21, 83-104, 1980.
- [Kershaw, 2001] Kershaw P. J., Leonard K. S., McCubbin D., Aldridge J. N. Plutonium: the legacy of Sellafield. Plutonium in the Environment, Ed A. Kudo, Vol. 1, 305-328, 2001.
- [La Hague, 2006] Rapport Sécurité Nucléaire et Radioprotection 2006 - AREVA NC Etablissement la Hague. Site internet AREVA NC
- [Marcoule, 2006] Rapport Transparence et sécurité nucléaire 2006 – CEA Marcoule. <http://www-marcoule.cea.fr/home/liblocal/docs/CSNSQ/TSN%20Marcoule%202007.pdf> et Rapport Environnemental Marcoule 2006 (site internet)
- [MELOX, 2006] Rapport Sécurité Nucléaire et Radioprotection 2006 - AREVA NC Etablissement MELOX. Site internet AREVA NC
- [Miele, 2005] Miele A. Lebaron-Jacobs L. Conduite à tenir face aux victimes d'un accident de criticité. Initial medical management of criticality accident victims. Rapport CEA-R-6080, 2005.

- [Ministère de la Défense, 2006] Dimension radiologique des essais nucléaires en Polynésie, http://www.defense.gouv.fr/defense/enjeux_defense/politique_de_defense/suivi_des_essais_nucleaires/le_suivi_des_essais_nucleaires_en_polynesie_francaise
- [OCDE, 1981] OCDE, Comportement mésologique et biologique du plutonium et de certains autres éléments transuraniens. Rapport d'un groupe d'experts. Agence pour l'Energie Nucléaire, Septembre 1981.
- [OCDE, 1983] Interim oceanic description of the N-E atlantic Site for the disposal of the low-level radioactive Waste. Rapport d'un groupe d'experts, Agence pour l'Energie Nucléaire, 1983.
- [OCDE, 2005] La sûreté du cycle du combustible nucléaire. OCDE, Troisième édition, 2005.
- [Perkins, 1980] Perkins R. W., Thomas C. W. Worldwide fallout. Transuranic elements in the environment, W. C. Handson ed., US-DOE/TIC-22800, 55-82, 1980.
- [Ramos, 1966] Ramos E., Iranzo E. Junta de Energia Nuclear, II Symposium International sur les dangers des radiations nucléaires, Organisation Internationale de Protection Civile, Monaco, 10-15 octobre 1966.
- [Saclay, 2006] Rapport Transparence et sécurité nucléaire 2006 – CEA Saclay . <http://www.cea.fr/var/cea/publications/pdf/Bilan-Loi-TSN-CEA-Saclay-2006.pdf>
- [Salbu, 2000] Salbu B. Source-related characteristics of radioactive particles: a review. Radiation Protection Dosimetry, 92, 1-3, 49-54, 2000.
- [Salbu, 2001] Salbu B. Actinides associated with particles. Plutonium in the Environment, Ed A. Kudo, Elsevier, Vol. 1, 121-138, 2001.
- [UNSCEAR, 1993] UNSCEAR. Sources and effects of ionizing radiation. Report to the general assembly with scientific annexes. 1993.
- [UNSCEAR, 2000] UNSCEAR. Sources and effects of ionizing radiation. Report to the general assembly with scientific annexes. Volume I: Sources, 2000.
- [Vidal, 2006] Vidal J. M., Grouiller J.P., Launay A., Berthion Y., Marc A., Toubon H., CESAR: a code for nuclear fuel and waste characterization, Waste Management Conference WM'06, Tucson, Arizona, 2006.

IV ETUDE DES PARAMETRES DE TRANSFERT

IV.1 GENERATION D'AEROSOLS DANS LES INSTALLATIONS

Pour ce qui est des risques accidentels, et dès lors que le risque de criticité est maîtrisé par les limitations appropriées (masse, géométrie, concentration), la sûreté des installations mettant en œuvre du plutonium repose essentiellement sur la maîtrise de la génération d'aérosols et l'efficacité des techniques de confinement. La forme physicochimique du matériau plutonium ou du matériau le contenant joue un rôle prépondérant dans la génération d'aérosols.

Les principales conclusions de l'étude [Guétat, 2006] sont rappelées ici en considérant successivement le métal solide massif, les poudres et pastilles et les liquides.

IV.1.1 METAL MASSIF

Le plutonium s'oxyde à l'air. C'est pour cette raison qu'il est travaillé sous atmosphère inerte.

A température ambiante, comme l'oxydation est lente, il est souhaitable d'utiliser comme paramètre le flux de matières en suspension ($\text{ng.cm}^{-2}.\text{h}^{-1}$) pour évaluer l'activité émise vers l'atmosphère. L'oxydation est plus rapide en atmosphère humide. La vitesse de réaction dépend également de la forme minérale du plutonium, la forme δ étant la moins réactive.

L'oxydation génère de l'oxyde de plutonium. La forme chimique des aérosols libérés semble être essentiellement du PuO_2 .

Les événements à éviter sont ceux qui conduisent à une mise à l'air, en particulier à l'air humide.

En situation de type accidentel avec rupture de confinement, l'air ambiant n'est pas exempt d'humidité ; à l'inverse, il est très rarement à saturation.

Une valeur en particules inhalables de **1 $\text{ng.cm}^{-2}.\text{h}^{-1}$** semble être l'ordre de grandeur à retenir **pour l'état pur** et une valeur 10 fois plus faible paraît être l'ordre de grandeur pour la forme δ .

A température ambiante, la granulométrie des aérosols est fine. En atmosphère sèche, environ 70% des aérosols seraient inhalables, cette proportion diminuerait quand l'humidité augmente jusqu'à environ 10% dans l'air saturé.

Ceci correspondrait à une fraction globale de mise en suspension de l'ordre de 10^{-6} pour le métal pur sur le temps complet d'oxydation (plusieurs centaines d'heures).

L'étude **des effets thermiques** est réalisée pour des accidents du type "mise de pièce chaudes en contact avec l'air" ou "incendie suffisamment long chauffant des pièces avec également exposition à l'air".

A température allant jusqu'à environ 200°C, l'augmentation de température conduit à une augmentation de la mise en suspension, de façon analogue à celle de l'humidité, mais les deux effets ne se cumulent pas. A 200°C, le paramètre humidité ne semble plus avoir d'influence, au moins sur la forme α .

L'augmentation du flux de mise en suspension s'accompagne d'une augmentation de la taille des particules.

La vitesse d'oxydation est de l'ordre de $0.1 \text{ g.cm}^{-2}.\text{h}^{-1}$ à 200°C.

Une valeur de l'émission d'aérosols de l'ordre de **10 $\text{ng.cm}^{-2}.\text{h}^{-1}$** semble être l'ordre de grandeur à retenir **pour l'état pur** et, comme précédemment, une valeur 10 fois plus faible est à considérer pour de l'alliage de forme δ pour du chauffage à température inférieure à la température d'inflammation. On considérera une fraction inhalable d'environ 10%.

- Le plutonium est un matériau pyrophorique, il s'enflamme spontanément à l'air dans certaines conditions. *La température d'inflammation se situe entre 300 et 500°C* et dépend en particulier de la géométrie du matériau, de l'humidité et de la vitesse de l'air. L'inflammation et la combustion vont conduire à une montée de la température interne par autothermie oscillant entre 600 et 1350°C et conduisant à la fonte du métal (point de fusion 639,4°C).

Sur des pièces de quelques grammes, l'oxydation semble être complète en un temps assez court de l'ordre de la dizaine de minutes. Pour des quantités plus importantes, il se peut que la réaction ne s'entretienne pas jusqu'au bout. La vitesse d'oxydation semble se situer autour de $1 \text{ à } 10 \text{ g.cm}^{-2}.\text{h}^{-1}$.

Compte-tenu de la durée assez courte de la combustion et du fait que la réaction de combustion est assez complète, l'utilisation du paramètre "fraction mise en suspension" semble être la plus appropriée, à l'échelle de temps de quelques minutes à quelques heures, en fonction des masses considérées.

- Dans la gamme de températures (comprises entre la température de fusion - 639,4°C - et 1300°C), on ne dispose pas d'une information univoque. Par ailleurs, les notions de dynamique et statique utilisées par les auteurs apparaissent assez floues lorsqu'on parle de circulation d'air à côté d'objets dépassant les 500°C. Il faut principalement considérer l'apport d'oxygène à la surface du métal. D'autres phénomènes, tels que l'abaissement de la teneur en oxygène de l'air dans un incendie, seraient à prendre en considération.

Des résultats de fractions mises en suspension assez différents existent entre Stewart (GB) [Stewart, 1963] et Mishima (USA) [Mishima, 1966]. En conditions statiques (faible circulation d'air), pour des objets de quelques grammes à une quinzaine de grammes, Stewart donne des valeurs variant entre 10^{-5} et 10^{-4} avec une valeur de 2.10^{-3} pour des billettes en métal pur alors que Mishima donne des valeurs entre 10^{-8} et 10^{-7} . En conditions dynamiques (écoulement d'air à 5 m.s^{-1}), Mishima donne des valeurs comparables à celles de Stewart.

La granulométrie des particules étudiée est celle de l'oxyde formé, qui ne doit pas être confondue avec celle des aérosols émis. Dans des conditions dynamiques d'apports d'air, la taille de l'oxyde formé augmente avec la température, de quelques μm à la centaine de μm au voisinage de la température d'inflammation, à un diamètre médian en masse de 300 μm à 1 mm aux températures de combustion. Par contre, les résultats donnés pour les aérosols font apparaître des diamètres médians correspondant à des aérosols respirables ($< 10 \mu\text{m}$), et la fraction respirable des aérosols est estimée à 50% par le DOE américain [DOE, 1994].

Comme le DOE, nous préconisons de retenir la valeur de fraction mise en suspension de 5.10^{-4} en cas de perte de confinement vis-à-vis de l'extérieur, pour des quantités significatives, sans s'intéresser particulièrement à la vitesse de l'air. Cette approche semble raisonnablement pessimiste si l'on regarde par ailleurs le retour d'expérience des accidents. On considérera que 50% des aérosols sont de type inhalable ($< 10 \mu\text{m}$). Une réflexion reste souhaitable en fonction de la nature, la quantité et la forme du métal ainsi que des conditions d'apport d'oxygène.

Compte tenu de la température réelle atteinte par le métal, il ne semble pas que des chauffages à température allant jusqu'à 1500°C, et correspondant à des incendies de produits très combustibles conduisent à une valeur différente.

L'approche effectuée dans le passé par la Commission de Sécurité des Laboratoires et Usines [CSLU, 1975] et faisant intervenir la masse surfacique proposait la valeur de 10^{-3} h^{-1} pour les pièces massives ($m_s > 2,5 \text{ g.cm}^{-2}$), de 10^{-2} h^{-1} ($0,25 < m_s < 2,5 \text{ g.cm}^{-2}$) et 10^{-1} h^{-1} ($m_s < 0,25 \text{ g.cm}^{-2}$). Cette approche, qui n'est pas associée à un domaine de définition, conduirait dans de nombreux cas à des valeurs très surestimées et n'est plus recommandée.

Pour des conditions de métal fondu sous fortes turbulences conduisant à un renouvellement rapide de la surface d'échange avec l'air, des températures de 2000°C, voire plus, peuvent être

atteintes. A ces températures, qui sont encore assez loin de la température d'ébullition du Pu métal (3235°C), le passage à l'état vapeur va pouvoir commencer très ponctuellement à apparaître. On dispose d'assez peu d'expérimentations dans ces conditions, mais l'étude de chutes de gouttelettes fondues dans l'air conduisant à des jets d'étincelles montre la présence de grosses particules sphériques (0,1 à 1 mm) et celle de vapeurs.

On obtient une fraction de mise en suspension de 10^{-2} (100% respirables) comme valeur maximale à 95% de confiance et une valeur 3.10^{-3} (100% respirables) comme valeur moyenne.

Dans les expériences où le métal pur est conduit à la vaporisation [DOE, 1994] dans le cadre des réacteurs à neutrons rapides, on obtient finalement des particules fines inhalables, sphériques et de diamètre réel de l'ordre du micron au dixième de micron. La fraction mise en suspension sous forme de particules inhalables est d'environ la moitié de la masse étudiée (50%). Ces informations fondamentales sont intéressantes du point de vue de la compréhension des mécanismes mais ne présupposent pas du devenir de ces particules, ni de leur interaction possible avec d'autres aérosols produits simultanément dans les matériaux de structures ou de l'environnement.

Dans le cas de détonation de l'explosif conventionnel d'une arme nucléaire, d'après Stephens [Stephens, 1995], il apparaît que la très grosse partie du métal est fragmentée en très petites particules, dont environ 20% seraient inhalables.

En ce qui concerne les **explosions chimiques**, dans le régime des déflagrations, les surpressions restent inférieures à une dizaine de bars ; dans le régime de détonation, les surpressions atteignent 20 à 30 bars. Au phénomène lié à la surpression se superposent les effets liés à l'énergie libérée. A partir de quelques données de la littérature, Steindler et Seefeldt [Steindler, 1980] font apparaître que le paramètre le plus significatif serait le rapport de la masse de matériau solide ou liquide sur la masse d'explosif exprimée en équivalent TNT. Des formules semi-empiriques ont été établies [Ayer, 1988]. On constate que plus le rapport augmente, plus le diamètre médian en masse augmente, réduisant ainsi la fraction inhalable. Pour un ratio de **10**, on aurait une émission de 6 g d'aérosols par gramme d'équivalent TNT et 6 mg d'aérosols inhalables par gramme d'équivalent TNT ; pour un ratio de **100**, 0,1 mg inhalable par gramme d'équivalent TNT.

Le Tableau IV-1 rassemble les coefficients de mise en suspension du plutonium métal.

| Température | Paramètre influant | Inhalables | Autres informations |
|----------------------|--|--|---|
| Explosion | R = masse Pu sur masse équivalent TNT | 6 mg inhalable/g TNT 0,1 mg inhalable/g TNT | Si R= 10 : 6 g d'aérosols/g TNT Si R = 10 ² : 15 g d'aérosols/g TNT |
| Ebullition 3235°C | | Tout inhalable : 0,1 à 1 µm | 5.10 ⁻¹ |
| De 2000 à 3235°C | | 100% inhalable | 3.10 ⁻³ |
| Jusqu'à 2000°C | | 50% inhalable | 5.10 ⁻⁴ |
| 639,4°C | Point de fusion | | Oxyde de 300 µm à 1 mm de DAMA |
| Vers 500°C | Inflammation | | |
| 300 à 500 °C | Inflammation potentielle selon configuration | Quelques dizaines de ng.cm ⁻² .h ⁻¹ | Vitesse d'oxydation 1 à 10 g.cm ⁻² .h ⁻¹ |
| 20 à 200 °C | Température sur granulométrie et oxydation 10% inhalable à 200°C | Inhalable : 10 ng.cm ⁻² .h ⁻¹ 1 ng.cm ⁻² .h ⁻¹ (forme delta) | Vitesse d'oxydation 0,10 g.cm ⁻² .h ⁻¹ |
| Température Ambiante | Durée de l'oxydation Humidité sur granulométrie 70% inhalable si air sec à 10% si air saturé | Inhalable : 1 ng.cm ⁻² .h ⁻¹ 0,1 ng.cm ⁻² .h ⁻¹ (forme delta) | 10 ⁻⁶ en plusieurs centaines d'heures |

Tableau IV-1 : Récapitulatif des coefficients de mise en suspension du plutonium métal

IV.1.2 POUDRES, PASTILLES, ELEMENTS DE COMBUSTIBLES, DECHETS

Plusieurs types d'accidents ou d'incidents sont à considérer vis-à-vis des poudres :

- la contamination de sol dans un local,
- le renversement de récipient lors de manipulation,
- l'impact de missile sur une poudre ou l'écrasement de pastilles,
- le renversement de récipients, la destruction de leur confinement suite à séisme,
- l'incendie.

Les phénomènes élémentaires à considérer sont les suivants :

- entraînement par l'air de particules déposées au sol dans un local,
- souffle de vent sur des tas de poudre,
- mise en suspension par chute d'une poudre sur une surface,
- chute de charge sur une poudre ou pastille.

La **mise en suspension à partir du sol** est classiquement traitée en considérant un taux de mise en suspension (h⁻¹). La quasi-totalité des valeurs se situe en dessous de 10⁻³ h⁻¹ pour des conditions relativement standard dans les locaux. Des valeurs de 10⁻² peuvent être atteintes avec

des fortes ventilations ou des vitesses de vent allant à près de 10 m.s^{-1} . Dans des conditions peu perturbées, une valeur de 10^{-4} h^{-1} semble être le bon ordre de grandeur. Le rapport DOE [DOE, 1994] recommande une valeur plus basse d'un facteur 2,5, que nous ne retiendrons pas pour une approche générique. Par contre, il propose un facteur 10 en dessous (10^{-5} h^{-1}) pour des surfaces présentant des débris provenant de structure, ce qui paraît un ordre de grandeur raisonnable pour une surface à forte rugosité. On notera enfin que l'humidité joue un rôle significatif dans la réduction du taux de mise en suspension. On pourra en particulier considérer la quasi-absence de mise en suspension tant qu'il y a de l'eau liquide.

La question du **séisme** conduit à enchaîner deux phénomènes, le premier est le renversement de récipients avec, le cas échéant, impaction d'objets missiles, et le deuxième le soufflage éventuel des tas si l'on considère une installation dont le confinement statique est détruit.

IV.1.2.1 Chute de poudre

La chute de poudre d'une hauteur de **1 m** conduit à une fraction mise en suspension de $2 \cdot 10^{-4}$ et une fraction d'environ 50% de particules inhalables. La chute d'une hauteur de **3 m** conduit à une fraction mise en suspension de 10^{-3} avec 40% de particules inhalables, en choisissant des valeurs raisonnablement pessimistes. Pour des chutes de hauteurs moindres, de **25 à 50 cm**, les fractions mises en suspension se situent plutôt entre 10^{-6} et 10^{-4} .

IV.1.2.2 Effet missile

Langer [Langer, 1987] indique que des chutes de 3,5 m de **pierres de 1 à 2 kg sur des poudres** de diamètre aérodynamique moyen en masse voisin de $100 \mu\text{m}$, conduisent à une fraction mise en suspension de 10^{-4} à 10^{-3} .

En pratique, dans le cas de chute directe sur poudre nue, on peut retenir une valeur de 10^{-2} au total et 10^{-3} en particules inhalables, valeurs très voisines de celles recommandées par le DOE [DOE, 1994].

La question de la protection des poudres par les différents **emballages, boîtes et récipients** est une question importante, dépendant principalement de la résistance de ces barrières à la déformation. Le DOE [DOE, 1994] préconise une réduction d'un facteur 10 sur la base d'une ancienne expérimentation. Cette approche ne nous paraît pas satisfaisante. Il semble préférable d'évaluer le risque d'écrasement et de libération de poudre à l'air libre et de le répartir sur le nombre de récipients. La même approche peut être étendue au cas des **déchets**, la première mise en suspension caractérisant le passage de l'état sorbé sur une matrice à l'état libre dans l'air avoisinant, valeur ne devant pas excéder 10^{-3} , puis il convient d'estimer la fraction d'air pouvant passer les différents sacs et parois compte tenu de leur résistance ou de leur détérioration.

En ce qui concerne l'écrasement de **pastilles**, les fractions mises en suspension pour une pastille ayant été brisée sont d'environ 10^{-7} . On est en droit de penser que, dans le cas de morceaux de **crayons**, à plus forte raison s'ils sont gainés, les valeurs seraient encore plus faibles.

IV.1.2.3 Effet de souffle

L'impact d'un **souffle** sur de la **poudre** déposée sur une surface est fonction des caractéristiques de l'écoulement, de la poudre et de la surface. L'angle d'impact de l'air sur la surface est important. D'après Royster et Fish [Royster, 1967], la mise en suspension est nettement plus efficace pour des écoulements **d'air s'impactant sur la surface : à 10 m.s^{-1}** , ils observent qu'environ $3 \cdot 10^{-2}$ des particules de ThO_2 ayant un diamètre de $5 \mu\text{m}$ sont entraînées.

L'effet du **soufflage** (parallèle à la surface) **sur des tas de poudre** peut être caractérisé comme suit [Alloul-Marmor 2002 ; Fromentin 1989] :

- *Influence du temps de soufflage - léchage*

Ce phénomène est parfois modélisé par un taux de mise en suspension. En pratique, les différents auteurs montrent que ce phénomène décroît assez rapidement avec le temps et qu'une très grande partie de la mise en suspension est réalisée en quelques dizaines de minutes. Le phénomène de léchage apparaît ainsi d'intérêt très limité. Il semble plus pertinent d'utiliser une fraction mise en suspension.

- *Effet de la granulométrie et de la vitesse de vent*

La fraction mise en suspension pour des particules très fines ($< 10 \mu\text{m}$) et des vitesses de vent habituellement rencontrées ($< 20 \text{ km.h}^{-1}$ ou 5 m.s^{-1}) est très faible ($\ll 10^{-5}$).

Avec des vitesses de vent relativement plus élevées et beaucoup moins fréquentes, de 7 à 10 m.s^{-1} (soit 25 à 36 km.h^{-1}), la fraction mise en suspension se situe entre 10^{-5} et $2 \cdot 10^{-3}$. Une vitesse de 20 m.s^{-1} conduit à une émission de 10^{-1} .

Des particules plus grosses (non inhalables, de diamètre de 20 à $60 \mu\text{m}$) semblent beaucoup plus aptes à être émises à des vitesses de vents intermédiaires (7 à 10 m.s^{-1} , soit 36 km.h^{-1}) avec une émission de 10^{-1} .

IV.1.2.4 Cas de l'incendie – Chauffage et destruction du support

L'incendie peut concerner diverses poudres de plutonium, soit comme substances manipulées, soit contenues dans des déchets. On distinguera le dioxyde de plutonium, le nitrate et le fluorure.

Pour le **PuO₂**, un incendie réel [Mishima, 1968a] avec feu de kérosène a fourni une fraction de mise en suspension de $3 \cdot 10^{-4}$ en particules inhalables. Seehars [Seehars, 1983], expérimentant sur le même sujet, donne des valeurs allant de $5 \cdot 10^{-5}$ à 10^{-3} , et des valeurs en 10^{-5} pour les **pastilles** frittées ou non. Les expériences de Fernandez [Fernandez, 1994] montrent des différences significatives sur des essais de type incendie de boîte à gants selon qu'il s'agit de plaques verticales ou de "fonds de boîtes" horizontaux. Près de la moitié de l'activité des panneaux verticaux serait émise alors qu'on retrouve les ordres de grandeurs précédents et jusqu'à $5 \cdot 10^{-3}$ depuis le fond. Notons que la majorité de l'activité se trouve normalement sur le fond.

Pour cet ensemble de raisons, nous retiendrons pour le dioxyde de plutonium la valeur de $5 \cdot 10^{-3}$ comme valeur très probablement enveloppe en situation réaliste et garderons une valeur de $5 \cdot 10^{-4}$ en particules inhalables.

Pour les poudres "réactives", nous suivrons, sur les mêmes bases, les propositions du DOE [DOE, 1994] en considérant que les chauffages "à température d'incendie" (de quelques centaines de degrés à 1000°C) conduisent :

- pour le **nitrate** à un taux de mise en suspension de 10^{-2} et en particules inhalables de 10^{-5} ;
- pour le **PuF₄**, à un taux de mise en suspension de 10^{-3} et en particules inhalables de 10^{-6} .

Dans le cas de déchets organiques brûlés dans de bonnes conditions (kleenex, tarlatane, cartons ondulés), entre 10^{-1} et $4 \cdot 10^{-1}$ de la contamination serait émise. Si ces valeurs peuvent être utilisées pour ce type de produits sur le plateau d'une boîte ou d'une cellule, il est déconseillé de les utiliser pour des fûts de déchets, dans lesquels les conditions de brûlage sont d'une toute autre nature et l'activité en grande partie sous forme de diverses poussières et débris. Par ailleurs, les colis contiennent généralement des mélanges de déchets métalliques et organiques. Il nous semble raisonnable de retenir comme première approximation une valeur de l'ordre de 10^{-3} par défaut et au

plus de 10^{-2} , dans le cas où des produits organiques intimement contaminés seraient présents en grande quantité.

IV.1.2.5 Cas de l'explosion

Les effets de souffle provenant de détonations ou de déflagrations entraînent la mise en suspension de la poudre sans que celle-ci ne se divise de façon importante en plus fines particules.

Une *explosion physique* est liée à une variation de pression interne de l'équipement.

L'explosion physique peut correspondre à deux cas de figures :

- la détente d'un gaz sous pression au travers d'une poudre,
- la détente d'une poudre initialement sous pression.

Les études de Sutter [Sutter, 1983] et Ballinger [Ballinger, 1987], qui ont exploré ces cas de figures, font référence dans le domaine. On note que, pour un même niveau de surpression, le phénomène de décharge de pression d'un gaz dans une poudre conduit à des K_{MeS} qui sont supérieurs de 20 à 130% à ceux correspondant au phénomène de détente d'une poudre initialement sous pression. De même, on note qu'une masse de poudre plus importante conduit à une fraction mise en suspension moindre. Ces phénomènes sont cependant marginaux comparés à l'influence du paramètre surpression, pour des variations allant de 0,6 à 30 bar. Le DOE [DOE, 1994] fait intervenir une surpression de 1,7 bar et propose deux valeurs. Il nous apparaît que cette valeur n'est pas un point singulier mais qu'il existe une courbe assez progressive (en log-log), allant de 10^{-4} à 0,6 bar, 10^{-3} à 1 bar, 10^{-2} à 3 bar et 10^{-1} à 20 bar. Les données relatives à la granulométrie de ces deux expériences ne paraissent pas d'une grande fiabilité. On retiendra que l'effet de souffle est assez peu discriminant pour des vitesses de l'air élevées, et l'on recommandera d'utiliser la granulométrie des poudres concernées.

En ce qui concerne les *explosions chimiques*, dans le régime des déflagrations, les surpressions restent inférieures à une dizaine de bars ; dans le régime des détonations, les surpressions atteignent 20 à 30 bars.

Lorsque la poudre n'est **pas directement exposée** au souffle (par exemple dans le cas d'un récipient ouvert), d'après le DOE [DOE, 1994], des fractions globales d'émission de $5 \cdot 10^{-3}$ et de 10^{-3} en particules inhalables s'appliqueraient à une contamination de surface, ou à divers scénarios de ruines avec explosion externe à boîte à gants. On se référera aux valeurs précédentes indiquées pour les explosions physiques lorsqu'on se situe à une distance significative.

Lorsque la poudre est directement affectée à courte distance, il convient de considérer que 100% de la poudre est émise avec la granulométrie d'origine.

Le Tableau IV-2 rassemble les coefficients de mise en suspension du plutonium sous forme poudre ou de pastilles.

| Type d'évènement | Paramètres | Précisions | Emission | |
|--|---|---|------------------------------|-----------|
| Poudre sur sol | Surface à forte rugosité | - | 10^{-5} h^{-1} | |
| | Conditions normales | - | 10^{-4} h^{-1} | |
| | Forte ventilation $> 10 \text{ m.s}^{-1}$ | - | 10^{-2} h^{-1} | |
| Chute de poudre | 0,25 à 0,5 m | - | $10^{-6} \text{ à } 10^{-4}$ | |
| | 1 m | 50% inhalable | $2 \cdot 10^{-4}$ | |
| | 3 m | 40% inhalable | 10^{-3} | |
| Effet missile | Pierres de 1 à 2 kg sur poudre | 10% inhalable | 10^{-2} | |
| | Ecrasement de pastilles | - | 10^{-7} | |
| | Crayons gainés | - | $< 10^{-7}$ | |
| Effet de souffle sur poudre | Décroit rapidement avec le temps | | | |
| | Vent $< 5 \text{ m.s}^{-1}$ | Inhalable $\ll 10^{-5}$ | - | |
| | Vent 7 à 10 m.s^{-1} | 10^{-5} à $2 \cdot 10^{-3}$ | - | |
| | Vent 20 m.s^{-1} | Voir fraction inhalable de la poudre initiale | 10^{-1} | |
| Incendie | PuO ₂ poudre | $5 \cdot 10^{-4}$ inhalable | $5 \cdot 10^{-3}$ total | |
| | PuO ₂ pastille | 10^{-5} inhalable | | |
| | Nitrate | 10^{-5} inhalable | 10^{-2} | |
| | PuF ₄ | 10^{-6} inhalable | 10^{-3} | |
| | Déchets | Mélange en fût | | 10^{-3} |
| | | Fût organique pur | | 10^{-2} |
| Organique à l'air libre (kleenex sur paillasse) | | | 10^{-1} | |
| Explosion | Chimique hors souffle, récipient ouvert à proximité | 10^{-3} inhalable | $5 \cdot 10^{-3}$ total | |
| | Physique ou chimique à distance | 0,6 bar | | 10^{-4} |
| | | 1 bar | | 10^{-3} |
| | | 3 bar | | 10^{-2} |
| | | 20 bar | | 10^{-1} |
| Chimique, poudre au cœur ou très près du souffle | Voir fraction inhalable de la poudre initiale | | total | |

Tableau IV-2 : Récapitulatif des coefficients de mise en suspension du plutonium en poudre ou de pastilles

IV.1.3 LIQUIDES

Les liquides correspondent à un nombre important de produits de caractéristiques extrêmement variables et les situations d'accidents ou d'incidents couvrent également une large gamme de situations. Le métal fondu est traité précédemment dans le paragraphe relatif au métal.

Cette variété de situations, et également le fait que les événements impliquant des liquides sont rarement importants, conduisent à disposer d'assez peu d'informations pour un cas donné. Dans les scénarios considérés, il convient d'apprécier l'influence des différents paramètres avec, en particulier, la nature et la quantité de liquide en jeu, la hauteur de chute ou la viscosité.

A titre d'exemple, la chute d'un moteur d'avion sur une cuve de déchets liquides aqueux pourrait émettre une gerbe d'eau de l'ordre de 1 m^3 de liquide avec déversement à une hauteur de plusieurs mètres. L'utilisation d'une valeur de fraction mise en suspension (K_{MeS}) de 10^{-5} telle qu'évaluée avec les formules de Ballinger [Ballinger, 1987] conduirait à 10 grammes de liquide volatilisé dans l'air. Cette valeur peut être comparée à la quantité d'eau pouvant être absorbée par un air sec à l'intérieur d'un local, qui est de l'ordre de 10 g.m^{-3} d'eau. L'évènement reviendrait donc à saturer un mètre cube d'air.

Les incidents ou accidents concernant des liquides peuvent être :

- la fuite de cuve ou de tuyauterie conduisant à une chute, un épandage puis un séchage,
- la chute d'objet dans une cuve (effet missile avec destruction simultanée du confinement),
- le renversement de bonbonnes ou de cuves, en cas de séisme par exemple,
- l'incendie suite à une chute d'avion, qui combine effet missile, chauffage, perte de confinement...
- l'incendie de carburant sur des liquides aqueux ou organiques.

Les mécanismes élémentaires mis en jeu sont :

- l'aérosolisation pendant la chute et au moment de l'impact sur le sol,
- l'entraînement ultérieur par évaporation du liquide épandu.

D'une manière très générale, les particules émises à partir de liquide semblent être essentiellement des particules inhalables, et l'on retiendra un taux de **100%** de particules inhalables.

De façon pénalisante, on retient l'approche proposée dans le rapport DOE [DOE, 1994] pour une **hauteur de chute de 3 m** d'un litre de solution :

- pour des **solutions aqueuses** dont la masse volumique est inférieure à $1,2 \text{ g.cm}^{-3}$, $K_{\text{MeS} < 10 \mu\text{m}}$ est de l'ordre de 10^{-4} ,
- pour des **solutions de sels métalliques concentrées** en métal lourd dont la masse volumique est supérieure à $1,2 \text{ g.cm}^{-3}$, $K_{\text{MeS} < 10 \mu\text{m}}$ est de l'ordre de $2 \cdot 10^{-5}$,
- pour des **solutions visqueuses** (viscosité $> 8 \cdot 10^{-2}$ Poise), $K_{\text{MeS} < 10 \mu\text{m}}$ est de l'ordre de $5 \cdot 10^{-6}$,
- pour des **boues** (phase solide $< 40\%$), $K_{\text{MeS} < 10 \mu\text{m}}$ est de l'ordre de $5 \cdot 10^{-5}$.

La mise en suspension **dépend fortement de la hauteur** : elle diminue d'un facteur **10** entre 3 m et 80 cm. La mise en suspension **décroit assez légèrement avec l'augmentation du volume**, de l'ordre d'un facteur 2 entre 1 litre et 1 m^3 et d'un facteur 4 entre 1 cm^3 et 1 litre. L'effet de la viscosité devient sensible (réduction d'un facteur 5 environ) pour une viscosité huit fois supérieure à celle de l'eau.

A température ordinaire, l'évaporation entraîne très peu de plutonium. Les travaux de Mishima [Mishima, 1968b] indiquent des valeurs en 10^{-9} pour 3 mL dans un récipient de 2,5 cm de diamètre. L'évaporation de l'eau à 20°C dans un local à 4 renouvellements horaires est de l'ordre de $50 \mu\text{m}\cdot\text{h}^{-1}$, soit 5% par heure pour une flaque de 100 cm^3 répandue sur 10 dm^2 .

Les facteurs d'entraînement classiquement retenus pour l'évaporation de piscines de réacteurs sont de l'ordre de 10^{-6} , ce qui conduirait à un **taux d'émission** pour la flaque précédente de $5 \cdot 10^{-8} \text{ h}^{-1}$. En pratique, le DOE [DOE, 1994] préconise une valeur de $4 \cdot 10^{-7} \text{ h}^{-1}$, valeur probablement très surestimée, mais dont l'intérêt est très secondaire puisque, dans la très grande majorité des cas, cette composante du rejet sera mineure comparée à l'émission initiale. Il est recommandé d'utiliser des calculs d'évaporation du liquide en retenant un facteur d'entraînement dès lors que l'événement concerne de grands volumes ou/et des radionucléides de volatilités très différentes.

Il faut noter que l'activité remise en suspension s'amplifie nettement après assèchement de la flaque, phénomène observé qualitativement dans les installations sur de petits événements.

Dans le cas de **chauffage** de liquide, la mise en suspension est essentiellement le résultat de l'entraînement de gouttes de liquide résultant de la rupture des bulles durant l'ébullition. Les gouttes sont alors transportées par la vapeur. Pour des températures plus basses, le mécanisme est une rupture de film par réduction de la tension superficielle. Dans les deux cas, les aérosols générés sont supposés inhalables [DOE, 1994].

Le chauffage par lampe infrarouge de 3 cm^3 de solution concentrée de nitrate de plutonium pendant 2 heures à 90°C conduit à une fraction mise en suspension de $5 \cdot 10^{-7}$. Cette fraction mise en suspension est de $3 \cdot 10^{-5}$ à 100°C. Pour des solutions diluées, la plupart des auteurs trouvent des valeurs de l'ordre ou inférieures à $2 \cdot 10^{-4}$. Mishima [Mishima, 1968b] donne des valeurs variant de 10^{-6} à $2 \cdot 10^{-3}$ (de 65° à 100°C), les valeurs à 100°C étant entachées de problèmes expérimentaux.

On retiendra les valeurs de 10^{-6} à 10^{-5} pour le coefficient d'entraînement pour des températures de l'ordre de **50 à 90°C** et de $2 \cdot 10^{-4}$ comme référence, par rapport à l'activité contenue dans le liquide évaporé à **température d'ébullition**.

Dans le cas des incendies mettant en jeu du carburant de type essence ou kérosène, on peut considérer plusieurs cas de figures :

- dans le cas d'un carburant en feu surnageant un liquide aqueux en quantité importante, la combustion conduit à un simple chauffage du liquide et l'on peut estimer la **quantité d'eau pouvant être évaporée** par l'énergie rayonnante du combustible et utiliser pour cette quantité la valeur de $2 \cdot 10^{-4}$ indiquée précédemment.
- dans le cas où la **quantité de liquide aqueux est faible** et où le feu est suffisant pour assécher la totalité du liquide, une valeur de mise en suspension de $3 \cdot 10^{-2}$ de l'activité contenue peut être retenue [Mishima, 1973].
- pour un **mélange TBP kérosène**, Jordan [Jordan, 1983] trouve des valeurs voisines de 10^{-2} avec une légère augmentation de $8 \cdot 10^{-3}$ à $1,5 \cdot 10^{-2}$ quand la concentration d'uranium (analogue non volatile) passe de quelques grammes à $80 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$.

Le Tableau IV-3 récapitule les coefficients de mise en suspension du plutonium sous forme liquide.

| Evènement | Paramètres | Précisions | Emission |
|--|---|--|--|
| Chute de 3 m sur le sol de 1 litre de solution | Solution aqueuse | Fraction émise | 10^{-4} |
| | Solution de sels métalliques concentrée | Fraction émise | 2.10^{-5} |
| | Solution visqueuse | Fraction émise | 5.10^{-6} |
| | Boues | Fraction émise | 5.10^{-5} |
| Effet hauteur | à 80 cm | | 10 fois moins |
| Effet quantité | De 1 L à 1 m ³ | | 2 fois moins |
| | De 1 L à 1 cm ³ | | 4 fois plus |
| Evaporation de solution | Température ordinaire | Coefficient d'entraînement* Taux d'évaporation de l'eau | $\cong 10^{-6}$ $\cong 50 \mu\text{m.h}^{-1}$ |
| | 50 à 90°C | Coefficient d'entraînement* | 10^{-6} à 10^{-5} |
| | à ébullition | Coefficient d'entraînement* | 2.10^{-4} |
| Carburant sur liquide aqueux | Quantité de liquide évaporé | Coefficient d'entraînement* | 2.10^{-4} |
| Avec assèchement de la flaque d'eau | | Fraction émise | 3.10^{-2} |
| Mélange TBP kérosène | | Fraction émise | 10^{-2} |

*activité émise rapportée à l'activité initiale du liquide évaporé.

Tableau IV-3 : Récapitulatif des coefficients de mise en suspension du plutonium sous forme liquide

IV.2 TRANSFERT ATMOSPHERIQUE ET DEPOT SUR LES SOLS ET VEGETAUX

IV.2.1 DEPOT SEC

Les paramètres relatifs à la caractérisation des aérosols ont été définis au chapitre II.4 et en annexe page 226. Le diamètre physique est le diamètre d'une sphère ayant la même masse que la particule étudiée et le diamètre aérodynamique représente le diamètre d'une sphère ayant la même vitesse de chute que la particule et une masse spécifique égale à 1 g.cm^{-3} .

Suivant le diamètre aérodynamique (d_{ae}) des particules, différents phénomènes interviennent majoritairement lors du dépôt, majoritairement :

- pour de petits aérosols ($d_{ae} < 0,1 \mu\text{m}$), des phénomènes de diffusion brownienne,
- pour des aérosols de taille moyenne (d_{ae} de $0,1 \leq d_{ae} \leq 10 \mu\text{m}$), des phénomènes d'impaction,
- pour des aérosols dont la taille excède les $10 \mu\text{m}$ ($d_{ae} > 10 \mu\text{m}$), des phénomènes de sédimentation.

Dans les études expérimentales, on caractérise le transfert de particules de l'air à la surface du sol en utilisant le rapport entre le flux de dépôts (gramme par mètre carré et par seconde) et la concentration moyenne de l'air (gramme par mètre cube d'air), ceci pendant le temps de passage du nuage. Ce rapport s'exprime en mètre par seconde, correspondant donc à une vitesse.

On utilise la notion de **vitesse de dépôt** qui couvre les trois phénomènes précédemment indiqués : diffusion, impaction et sédimentation. En toute rigueur, la vitesse de dépôt doit devenir équivalente à la vitesse de sédimentation lorsque la sédimentation devient le phénomène prépondérant, c'est-à-dire pour les grosses particules.

IV.2.1.1 Vitesse de dépôt sur des sols

Aérosols de diamètre supérieur à 10 μm (vitesse de sédimentation)

Pour les aérosols dont le diamètre est supérieur à 10 μm , la vitesse de sédimentation, définie comme le mouvement des particules sous l'effet de la pesanteur, peut être estimée à l'aide de la formule proposée par Florin [Renoux, 1998].

Le Tableau IV-4 et la Figure IV-1 présentent les vitesses de dépôt estimées pour différents diamètres aérodynamiques.

| | Vitesse de dépôt en m.s^{-1} pour différents diamètres | | | |
|----------------|---|---------------------|---------------------|---------------------|
| | 10 μm | 20 μm | 50 μm | 100 μm |
| Densité = 1 | $2,8 \cdot 10^{-3}$ | $1,1 \cdot 10^{-2}$ | $6,7 \cdot 10^{-2}$ | $2,3 \cdot 10^{-1}$ |
| Densité = 4 | $1,1 \cdot 10^{-2}$ | $4,4 \cdot 10^{-2}$ | $2,5 \cdot 10^{-1}$ | $7,7 \cdot 10^{-1}$ |
| Densité = 11,5 | $3,2 \cdot 10^{-2}$ | $1,2 \cdot 10^{-1}$ | $6,5 \cdot 10^{-1}$ | 1,8 |

Tableau IV-4 : Vitesse de dépôt pour différents diamètres et densités (m.s^{-1})

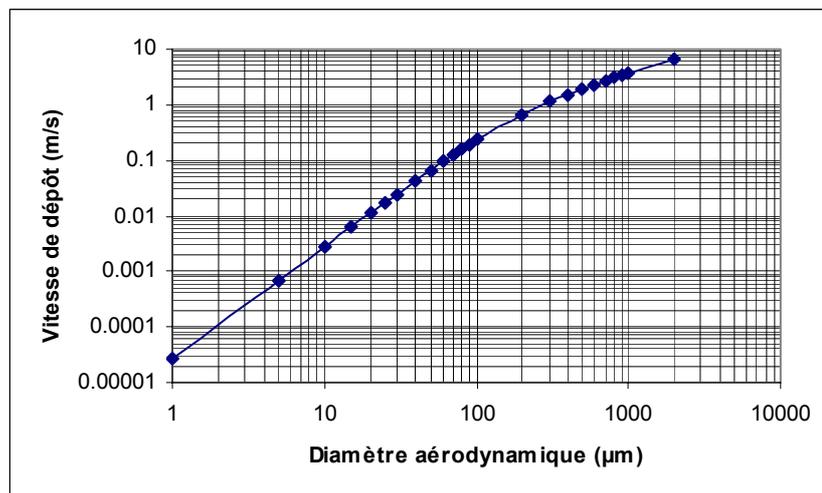


Figure IV-1 : Vitesse de dépôt en fonction du diamètre aérodynamique

Aérosols de diamètre inférieur à 10 μm

Pour les aérosols de diamètre inférieur à 10 μm ou ayant une vitesse de sédimentation inférieure à $5 \cdot 10^{-3} \text{ m.s}^{-1}$, d'autres phénomènes interviennent comme l'impaction, l'interception et la diffusion. Ces phénomènes sont étroitement liés à la hauteur de la couche limite, qui varie avec la nature de surface de dépôt et modifie les écoulements.

Dans ce cas, la vitesse de dépôt ne correspond plus à la vitesse de sédimentation. Les vitesses de dépôt des petites particules ont été estimées par Sehmel (1980) à partir d'expérimentations.

La Figure IV-2 présente les vitesses de dépôt pour des aérosols de trois densités différentes et pour plusieurs hauteurs de rugosité [Sehmel, 1980a].

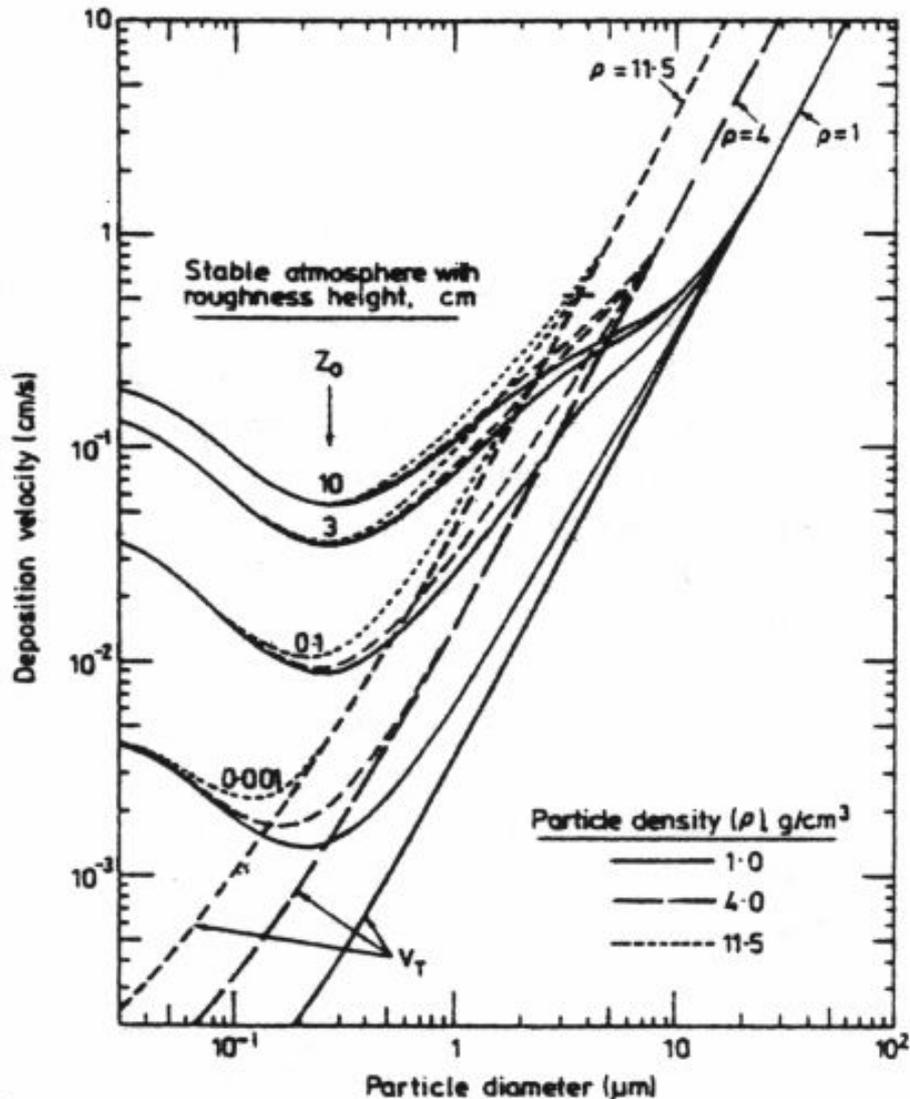


Figure IV-2 : Vitesses de dépôt d'après des expérimentations [Sehmel, 1980a]

En général, en absence d'informations permettant de déterminer une vitesse de dépôt, les calculs de dispersion atmosphérique sont réalisés avec une valeur de $5 \cdot 10^{-3} \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$.

IV.2.1.2 Données expérimentales sur des sols

Le Tableau IV-5 présente des valeurs de vitesses de dépôt mesurées sur des sols.

| Conditions | Vitesse de dépôt (m.s ⁻¹) | Référence |
|---|--|-------------------------------------|
| Vitesse de dépôt de particules issues de la combustion en laboratoire de différentes formes de plutonium dans l'air DAMA 4,2 µm DAMA 9 µm DAMA 16 µm DAMA 22 µm DAMA 58 µm | 3,6 à 4,2.10 ⁻² 3,7.10 ⁻² 3,4 à 4,8.10 ⁻² 3,5.10 ⁻² 3,2.10 ⁻² | Stewart ,1963 |
| Vitesse de dépôt des particules chaudes issues de l'accident de Palomarès DAMA < 40 µm 40 < DAMA < 63 µm 63 < DAMA < 200 µm 200 < DAMA < 1000 µm | 2,5.10 ⁻² 0,1 0,25 1 | García-Olivares, 1997 |
| Estimation de la vitesse de dépôt du plutonium issu des retombées (dépôt sec et humide compris) sur New York. Mesures moyennes d'activité déposée par unité de surface et de concentration atmosphérique | <i>1,4.10⁻²</i> | AIEA ,1981 |
| Compilation de données concernant le dépôt sec de plutonium sur plateaux DAMA 0,6 µm DAMA 32-58 µm | 7,3.10 ⁻² 3,2.10 ⁻² | Sehmel, 1980a cite Stewart, 1963 |

Tableau IV-5 : Vitesses de dépôt au sol. Données mesurées (police normale) ou données estimées (*en italique*)

Il y a souvent une confusion entre vitesse de dépôt au sol et vitesse de dépôt sur des végétaux. Ces deux grandeurs diffèrent par un paramètre sans dimension, le **rapport de captation**, encore appelé facteur d'interception dans la littérature internationale, qui identifie la fraction du dépôt restant sur le végétal et pouvant ainsi entrer dans la chaîne alimentaire. Une fraction non négligeable du dépôt traverse le couvert végétal. La vitesse de dépôt au sol couvre la totalité du dépôt.

On ne retiendra pas ici la notion de vitesse de dépôt sur les végétaux, qui ne reflète pas la phénoménologie des dépôts et prête à confusion. On développera par contre l'analyse du mécanisme d'interception du dépôt par les végétaux.

IV.2.1.3 Interception par les supports végétaux

Une synthèse très complète a été réalisée par Pröhl et Hoffman [Pröhl, 1996] dans le document technique IAEA-TECDOC 857. Nous en reprendrons ici largement les informations principales.

Trois grandeurs sont utilisées par les modélisateurs et expérimentateurs :

- le rapport d'interception f , qui est le rapport entre l'activité interceptée par le végétal et l'activité totale déposée au sol,
- le facteur d'interception massique, f/B qui est le rapport d'interception divisé par la masse sèche de végétal B ,
- enfin le coefficient d'absorption μ qui résulte d'une relation de type exponentielle établie par Chamberlain [Chamberlain, 1970] entre le rapport d'interception et le rendement sec des parties aériennes du végétal.

$$F = \frac{f}{B} = \frac{1 - e^{-\mu B}}{B}.$$

Les rendements secs des parties aériennes des végétaux sont de l'ordre de 0,1 à 2 kg.m⁻². Notons qu'il y a là une source de confusion avec le rendement des organes consommés utilisés par ailleurs. A titre d'illustration, pour les pommes de terre, l'interception est réalisée par les feuilles et non par les tubercules.

Interception des retombées d'essais nucléaires

Les premières mesures d'interception ont été réalisées lors des essais nucléaires. A Maralinga, Russell et Possingham [Russell, 1965] ont exposé des végétaux à différentes distances du site de l'explosion. Après l'essai, l'activité par kg de poids sec dans les végétaux a été comparée à l'activité mesurée dans les collecteurs de retombées. La fraction interceptée f variait de 0,03 à 0,15, et le facteur d'interception massique f/B de 0,13 à 0,66 m².kg⁻¹. Les deux facteurs f et f/B étaient inversement corrélés avec l'activité totale déposée. Ceci a été attribué à la décroissance de la taille des particules à mesure que l'on s'éloigne du point de tir, les plus grosses particules se déposant à proximité du lieu de tir.

Les tailles des particules n'étaient pas mesurées mais devaient être pour la plupart supérieures à 50 µm et peuvent avoir atteint l'ordre de grandeur du millimètre.

A la suite d'explosions au niveau du sol au site du Nevada Test en 1955 et 1957, Romney [Romney, 1963] a mesuré les retombées et la contamination d'herbage à des distances allant de 11 à 420 km. Le même effet de variation en fonction de la distance a été observé avec une augmentation du facteur d'interception massique f/B allant de 0,01 à proximité jusqu'à 0,4 m².kg⁻¹ à 420 km de l'émission. Ceci a été attribué à la réduction de la taille des particules avec la distance. Des comparaisons entre différentes espèces de plante (blé, trèfle, alfalfa) ont montré des différences dans le facteur d'interception massique f/B n'excédant pas le facteur 2. Dans tous les cas mesurés par Russell et Possingham [Russell, 1965] d'une part, et les travaux de Romney [Romney, 1963] d'autre part, le rapport d'interception f était inférieur à 0,2. Dans ces conditions, le facteur f/B est en première approximation équivalent à μ .

Martin [Martin, 1965] a utilisé des autoradiographies et des micrographies pour étudier les particules des retombées sur les feuilles d'arbrisseaux du désert après le Propit Sedan Test au Nevada. L'activité retenue sur les feuilles était essentiellement associée à des particules de diamètre physique inférieur à 5 µm.

Dans un rapport de synthèse, Russell [Russell, 1966] conclut, à partir des études associées aux essais d'armes nucléaires, que les particules de diamètre excédant 45 µm étaient rarement retenues sur les feuilles, ces particules devant rebondir sur les surfaces pour rejoindre les parties basales des plantes ou la surface du sol.

Si les particules sont plus petites, bien que suffisamment larges pour tomber librement par gravité, elles peuvent demeurer plus facilement sur les surfaces foliaires. La forme des végétaux semble avoir un effet important sur la rétention des particules. Dans l'herbe des pâturages, l'accumulation la plus importante se situe à la base des plantes située en dessous du niveau normalement consommé par les herbivores Ceci est aussi confirmé par l'expérience de Eriksson [Eriksson, 1977].

Expériences au champ de dépôt sec de particules

Chamberlain [Chamberlain, 1970] a analysé les résultats d'expériences au champ dans lesquelles des spores de *Lycopodium* (32 μm), marquées avec de l'iode radioactif, ont été dispersées au-dessus de pâturage à Harwell. Au point de prélèvement en aval du rejet, les activités de l'herbe, du mat racinaire et du sol ont été mesurées et la fraction interceptée rapportée à la densité de l'herbe. Les résultats en termes de coefficient d'absorption μ sont présentés dans le Tableau IV-6. Ultérieurement, Chadwick [Chadwick, 1970] et Chamberlain [Chamberlain, 1970] ont fait d'autres expériences aux champs à Harwell et à Rothamsted sur des cultures de blé. Pour quatre expériences, la culture dans la zone d'échantillonnage a été mouillée par aspersion juste avant le rejet de spores. On savait, d'après des expériences antérieures en tunnel, que la capture de particules par les feuilles était accrue lorsque la surface des feuilles était mouillée ou gluante. Les valeurs de μ pour le blé sec ont été similaires à celles obtenues précédemment avec de l'herbe (Tableau IV-6). Lorsque la culture est mouillée, la valeur de μ est beaucoup plus variable, mais est apparemment supérieure d'un facteur 3 environ par rapport à la culture sèche.

| Matériau déposé | Diamètre (μm) | Végétal | Coefficient d'absorption ($\text{m}^2 \cdot \text{kg}^{-1}$ poids sec) moyenne | Ecart-type | Référence |
|-------------------|----------------------------|----------------|---|------------|---------------------|
| Lycopodium | 32 | Herbe | 3,08 | 0,15 | [Chamberlain, 1970] |
| Lycopodium | 32 | Blé, sec | 3,2 | 0,5 | [Chadwick, 1970] |
| | 32 | Blé humide | 9,6 | 3,7 | |
| Quartz | 44-88 | Herbe | 2,7 | 0,3 | [Peters, 1972] |
| Sable siliceux | 40-63 | Herbe | 0,44 | 0,15 | [Eriksson, 1977] |
| | 63-100 | | 0,23 | 0,07 | |
| | 100-200 | | 0,24 | 0,07 | |
| Sable siliceux | 40-63 | Herbe mouillée | 0,88 | 0,13 | |
| | 63-100 | | 0,69 | 0,16 | |
| | 100-200 | | 0,46 | 0,11 | |
| ^{238}Pu | AMAD ~ 1 | Mais | 3,6 | 0,05 | [Pinder, 1991] |

Tableau IV-6 : Coefficients d'absorption (μ) obtenus dans des expériences au champ

A Oak Ridge National Laboratory, un épandeur à engrais a été utilisé pour épandre des particules de quartz de 48-88 μm sur 4 espèces d'herbe de pâture [Peters, 1972]. Les valeurs du coefficient d'absorption μ se situent entre 2,0 et 3,3 $\text{m}^2 \cdot \text{kg}^{-1}$, avec une moyenne de 2,7 $\text{m}^2 \cdot \text{kg}^{-1}$.

Eriksson [Eriksson, 1977] a utilisé un outil rotatif pour épandre des particules de sable siliceux sur de l'herbe. Les particules marquées par des produits de fission étaient de 3 classes granulométriques (43-63, 63-100 and 100-200 μm). Elles ont été appliquées à des pâtures dont la biomasse variait de 0,05 à 0,3 $\text{kg} \cdot \text{m}^{-2}$ en poids sec. Pour quelques expériences, l'herbe a été légèrement mouillée. Les valeurs de μ déduites des résultats d'Eriksson sont indiquées dans le Tableau IV-6. L'interception par l'herbe mouillée a été 2 à 3 fois supérieure à celle de l'herbe sèche.

Miller [Miller, 1966] a mesuré l'interception de particules émises par un volcan sur des feuillages de plusieurs espèces de plantes. Il a noté une interception plus importante lorsque l'humidité relative est supérieure à 90%, vraisemblablement en raison de la présence de films d'eau se condensant, soit sur les particules, soit sur les feuilles.

Interception de particules contenant du plutonium

Pinder [Pinder, 1988] a mesuré l'interception de ^{238}Pu par des plants de maïs au Laboratoire d'Ecologie de Savannah River. Le plutonium provenait d'une cheminée d'une installation de séparation voisine et se trouvait sous forme de particules d'environ $1\ \mu\text{m}$ (DAMA), composées d'agglomérats de sol et de Pu métal. Les plants de maïs ont poussé en pots, entourés de plantes similaires et ont été exposés aux retombées pendant une semaine. Des plants à des stades de développement différents ont été utilisés pour disposer d'informations en fonction de la densité de biomasse par unité de surface. L'activité du ^{238}Pu par kg de poids sec des plantes après exposition a été comparée à l'activité déposée sur des pièges en papier collant horizontaux exposés à proximité.

Pinder [Pinder, 1988] a confirmé que les résultats correspondaient assez bien au modèle exponentiel de l'interception avec une moyenne égale à $3,60\ \text{m}^2.\text{kg}^{-1}$ (écart type de 0,05), voisine de celle obtenue lors des expérimentations britanniques réalisées avec des spores de *Lycopodium* (Tableau IV-6).

Pinder [Pinder, 1991] a évalué l'inventaire en plutonium des différentes cultures en considérant des dépôts secs et des dépôts par la pluie. Dans leur travail de synthèse, Pröhl et Hoffman [Pröhl, 1996] ont réestimé les coefficients d'absorption μ et le taux de décroissance effective λ_w . μ varie de $2,2\ \text{m}^2.\text{kg}^{-1}$ à $3,6\ \text{m}^2.\text{kg}^{-1}$. Le taux de décroissance effective varie de $0,025\ \text{j}^{-1}$ à $0,065\ \text{j}^{-1}$. Malgré la variabilité de μ et de λ_w , les inventaires estimés étaient en général voisins de ceux observés.

La Figure IV-3 présente les valeurs du rapport d'interception en fonction du rendement en biomasse pour la gamme principale des coefficients d'absorption présentés dans ce paragraphe, à l'exception des coefficients les plus bas observés lors des retombées des essais nucléaires, avec des particules dont la taille atteint le mm.

De cette analyse, on retiendra que les particules inhalables ($<10\ \mu\text{m}$ en DAMA) ont des coefficients d'absorption compris entre 2 et $4\ \text{m}^2.\text{kg}^{-1}$. Dans cette gamme de valeurs, les conséquences numériques sont faibles puisqu'elles n'induisent que des variations de l'ordre de 20 à 30% sur le rapport d'interception dans la gamme de rendements des produits agricoles (entre 0,05 et $2\ \text{kg}.\text{m}^{-2}$). On retiendra également que des particules de diamètre aérodynamique compris entre 100 et $200\ \mu\text{m}$ (en considérant que la densité du sable siliceux est de 2,65) ont des coefficients d'absorption de l'ordre de 0,25 à 0,5, ce qui se traduit par des rapports d'interception allant de quelques % à 20 ou 30% suivant les rendements. Enfin, il semble qu'il ne soit pas utile de s'intéresser à des particules de diamètres aérodynamiques supérieurs.

Une formule empirique couvrant globalement ces observations pourrait être la suivante :

$$\mu = 5.D_{ae}^{-0.6}$$

Dans le cas où les surfaces foliaires sont mouillées, cela se traduirait, pour le dépôt sec, par un coefficient d'absorption 2 à 3 fois supérieur au cas précédent.

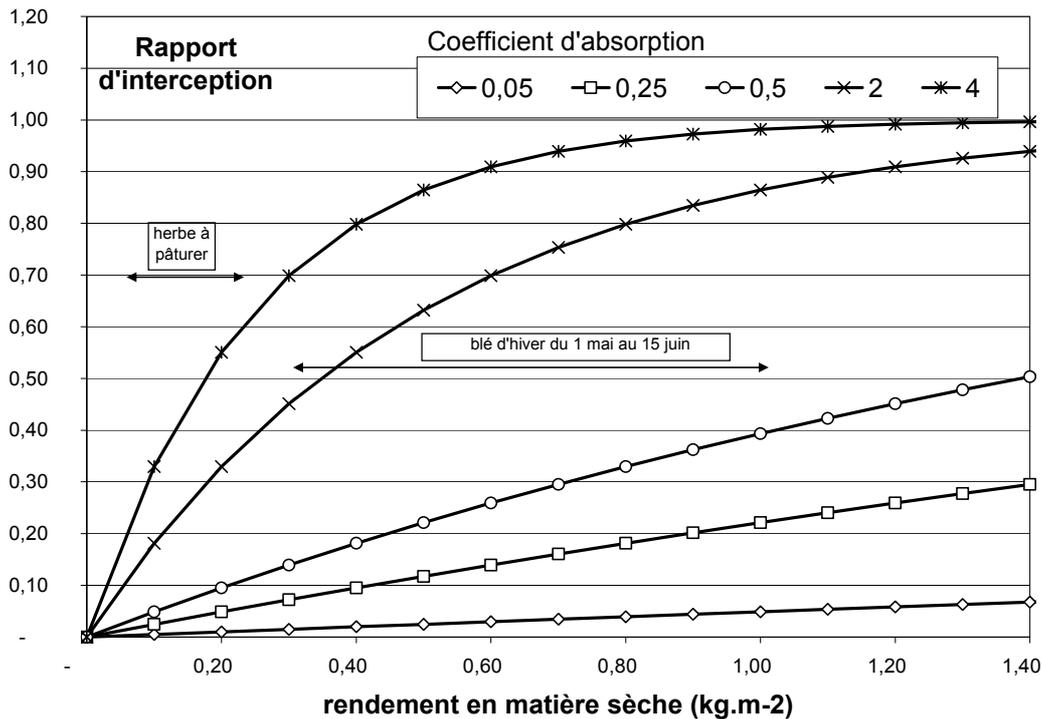


Figure IV-3 : Rapport d'interception en fonction de la biomasse pour différents coefficients d'absorption

IV.2.2 DEPOT HUMIDE

En cas de pluie, il s'ajoute au dépôt "sec" un dépôt par la pluie résultant du lessivage par les gouttes d'eau de l'ensemble du panache traversé.

L'activité contenue dans une bouffée s'appauvrit par dépôt suivant une fonction exponentielle décroissante du produit du taux de lavage par le temps de parcours de la bouffée pour parvenir au point considéré.

La vitesse de dépôt humide de particules est calculée à partir du taux de lavage du nuage par intégration sur la hauteur z par la formule suivante :

$$V_{dép} = \inf \left[\Lambda_p \cdot \frac{1}{2} \sqrt{2\pi} \cdot \sigma_z \cdot e^{-\frac{(h-z)^2}{2\sigma_z^2}} ; \Lambda_p \cdot h_{dl} \right]$$

Équation 1 : Calcul de la vitesse de dépôt humide (m.s⁻¹)

avec : λ_p : taux de lavage (s⁻¹)
 σ_z : coefficient de dispersion vertical (m)
 h : hauteur du point de rejet (m)
 z : hauteur du point d'observation (m)
 h_{dl} : hauteur limite de diffusion (m)

Les valeurs du taux de lavage des aérosols par la pluie dépendent de leur diamètre physique et de l'intensité de la pluie. Le taux de lavage est différent selon la forme physique du radionucléide.

La formule empirique suivante permet d'évaluer le taux de lavage pour des particules de diamètre aérodynamique supérieur à 1,2 μm et des intensités de pluie de 0,1 mm à 100 $\text{mm}\cdot\text{h}^{-1}$. Cette formule résulte d'une approximation majorante des valeurs citées dans le rapport de Doury [Doury, 1981].

$$\lambda_p = 1,2 \cdot 10^{\frac{(-2,9 G^{-1,2-3,3})}{1-10^{-4,5(G-1)}}} I^{(0,25 G^{-0,77}+0,74)}$$

Équation 2 : Calcul du taux de lavage

avec : λ_p : taux de lavage (s^{-1})
 G : diamètre aérodynamique médian (μm)
 I : intensité de la pluie ($\text{mm}\cdot\text{h}^{-1}$)

IV.2.2.1 Interception des dépôts par la pluie des végétaux

Comme pour l'interception des dépôts secs, Pröhl et Hoffman ont repris de nombreuses expérimentations testant des apports solubles d'anions, cations et d'aérosols [Pröhl, 1996]. On s'intéressera ici essentiellement aux aérosols.

Expériences mettant en œuvre de la pluie simulée

Hoffman [Hoffman, 1989 ; Hoffman, 1992] ont conduit une série importante d'expérimentations au laboratoire d'Oak Ridge avec un apport de radioactivité par de la pluie simulée. Les hauteurs de pluie investiguées couvrent la gamme de 1 à 30 mm avec des intensités allant de 14 à 120 $\text{mm}\cdot\text{h}^{-1}$. Divers vecteurs de radioactivité ont été utilisés :

- des microsphères de polystyrène de 3, 9 ou 25 μm de diamètre, marquées respectivement au ^{141}Ce , ^{95}Nb et ^{85}Sr .
- ^7Be en solution sous forme de BeCl_2 .
- ^{131}I en solution sous forme de IO_4^- ou I^- .

L'activité a été déposée sur des parcelles de trèfle, fétuque et d'herbes mélangées de vieux pâturages. Des différences minimales ont été observées entre les différentes espèces d'herbe.

Les mesures aux champs conduites par Hoffman [Hoffman, 1989 ; Hoffman, 1992] sont résumées dans la Figure IV-4 pour les faibles intensités de pluie et la Figure IV-5 pour les fortes intensités de pluie.

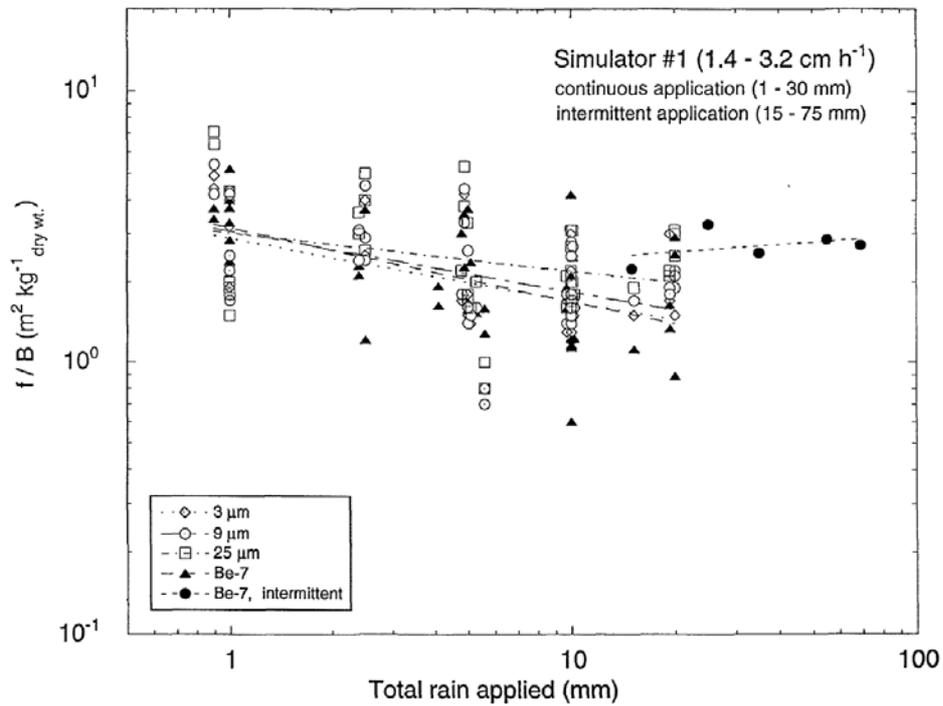


Figure IV-4 : Facteur d'interception massique pour les faibles intensités de pluie

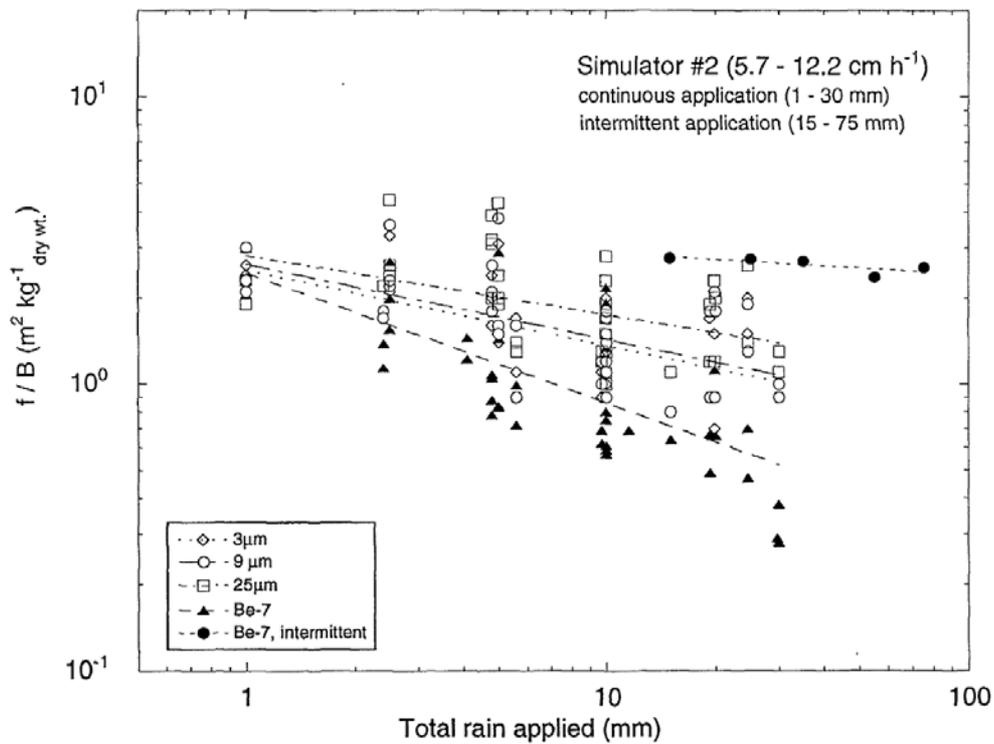


Figure IV-5 : Facteur d'interception massique pour les fortes intensités de pluie

Les valeurs observées montrent des différences importantes selon les formes chimiques (anions - cations). Pour les particules insolubles, les valeurs du facteur d'interception massique f/B diminuent lorsque la hauteur de pluie augmente, mais de façon moins importante que pour l'iode sous forme dissoute. L'intensité de la pluie semble n'avoir qu'un effet mineur sur les valeurs du facteur d'interception massique. Enfin, la granulométrie des microbilles semble n'avoir aucun effet, tout au moins dans la gamme de diamètres considérée. Pröhl et Hoffman [Pröhl, 1996] indiquent que l'interception serait moindre pour des particules de diamètres supérieurs à 40 μm , mais ce point n'est pas développé dans leur document.

Dans une expérience simulant une pluie intermittente allant de 15 à 75 mm, les valeurs de f/B sont relativement indépendantes de la quantité de pluie apportée. Cette observation laisserait penser que, dès lors qu'une rétention a lieu, une pluie ultérieure est inefficace à éliminer le matériau déposé précédemment.

Dans une autre expérience, Hoffman [Hoffman, 1995] a montré qu'une normalisation de la fraction interceptée par l'indice foliaire des plantes étudiées permettait de réduire les différences entre espèces.

Les valeurs de facteurs d'interception massique f/B mesurées par Angeletti [Angeletti, 1977b] et [Angeletti, 1980] sont résumées dans le Tableau IV-7. A nouveau, on voit que le facteur d'interception massique décroît lorsque la quantité de pluie augmente. Il est intéressant de noter que les facteurs d'interception massique de l'eau sont plus faibles que ceux du strontium. On voit aussi que la décroissance du facteur d'interception massique en fonction inverse de la quantité de pluie pour le strontium (cation) est beaucoup moins marquée que pour l'iode (anion). Ceci peut s'expliquer par une absorption active par les feuilles, la cuticule agissant comme un échangeur de cations à des pH supérieurs à 3, ce qui conduit à une absorption forte des cations et à une inhibition de l'absorption des anions [Schönherr, 1977 ; Schaefer, 1990].

Par ailleurs, les résultats présentés dans [Angeletti, 1977b] semblent indiquer des facteurs d'interception massique plus importants pour le trèfle que pour l'herbe. Ceci pourrait être dû à une masse par unité de surface plus faible ou au port plus horizontal des feuilles de trèfle (Tableau IV-7 et Figure IV-6).

| Précipitation (mm) | herbe | | | Trèfle | | |
|-----------------------|--------------|----------------------|--------------------|--------------|----------------------|--------------------|
| | I^- | H_2O | $^{90}\text{Sr}^+$ | I^- | H_2O | $^{90}\text{Sr}^+$ |
| 1 | 4,3 | 6,2 | 7,6 | 8,7 | 11,1 | 8,2 |
| 2 | 1,6 | 4,3 | 5,1 | 4,1 | 5,9 | 8,0 |
| 4 | 1,1 | 1,8 | 4,8 | 2,5 | 4,0 | 8,2 |
| 8-12 | 0,6 | 1,2 | 4,2 | 1,0 | 2,2 | 8,6 |
| 16-22 | 0,27 | 0,45 | 1,3 | 0,44 | 0,9 | 4,3 |

Tableau IV-7 : Facteur d'interception massique en fonction des précipitations

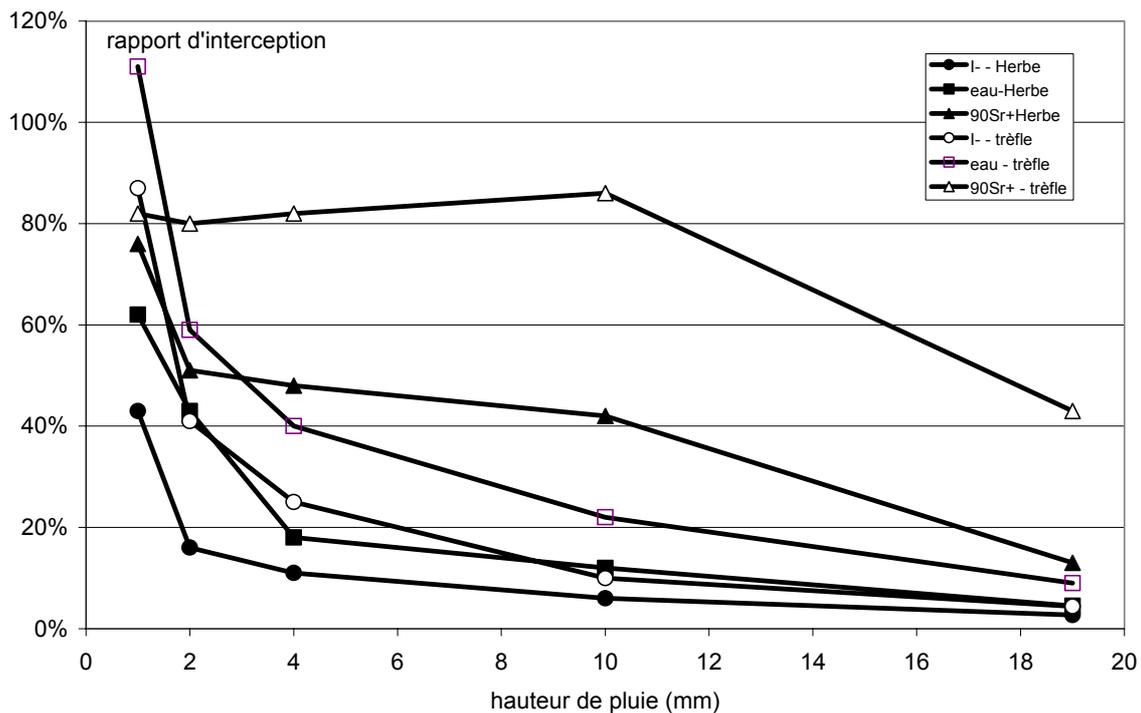


Figure IV-6 : Rapport d'interception en fonction des précipitations

L'interception de l'eau de pluie apparaît donc surtout corrélée à la surface foliaire des parties aériennes et à la hauteur d'eau précipitée. Par ailleurs, la plante se sature à partir d'une quantité d'eau variable selon le type de végétal. Enfin, la nature de l'épiderme des plantes, voire leur géométrie, joue également un rôle.

On se limite généralement à l'utilisation de formules simples. Une formule médiane pour les aérosols est la suivante :

$$R_p = \text{Inf} \left(\frac{IF S_2}{P} \left(1 - 2^{-\frac{p}{3s_2}} \right); 1 \right)$$

Équation 3 : Rapport d'interception du dépôt humide

| | | | |
|--------------|---|--|----------------------------------|
| avec : R_p | : | rapport d'interception pluie | (sans dimension) |
| IF | : | indice foliaire du végétal à son stade végétatif | (sans dimension) |
| S_2 | : | coefficient de saturation pris égal à 0,3 | (pour des aérosols) |
| P | : | hauteur de pluie | (en mm, soit L.m ⁻²) |

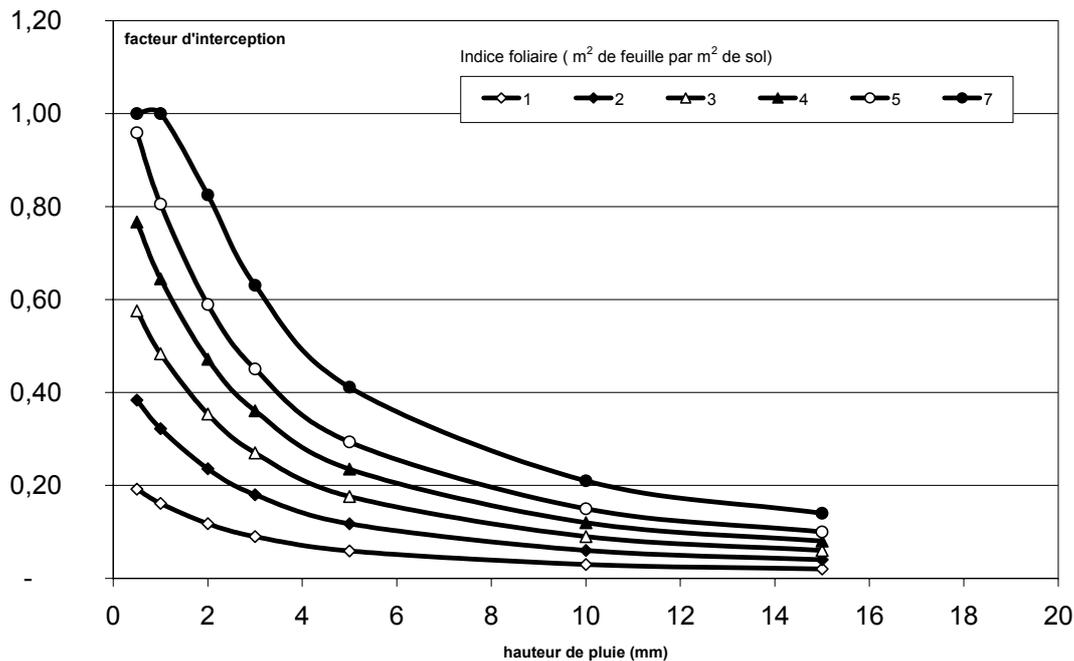


Figure IV-7 : Rapport d'interception du dépôt humide

En résumé, ni l'intensité de la pluie, ni la taille des aérosols ($< 40 \mu\text{m}$) n'ont une influence significative sur l'interception. Par contre, la variation de hauteur de pluie peut modifier l'interception d'un facteur 10 entre une rétention pratiquement totale pour une pluie de 1 mm à quelques pourcents pour une pluie de 15 mm. L'indice foliaire joue également un rôle significatif puisque l'interception peut varier d'un facteur 5 entre un indice de 1 (surface de feuilles égale à la surface du sol) et un indice de 7, correspondant à un blé à pleine maturité.

IV.2.3 REMISE EN SUSPENSION

La remise en suspension concerne les particules qui ont été déposées au sol et qui se retrouvent à nouveau en suspension. Elle est à dissocier de la mise en suspension qui a été abordée dans le paragraphe relatif au transfert dans les installations (cf. paragraphe IV.1) et qui concerne la dispersion de radioéléments au sein de l'installation.

La remise en suspension correspond à la fraction de plutonium retrouvée dans l'air rapportée à celle présente au sol, lorsqu'il n'y a plus d'apport extérieur de radioactivité.

On distingue trois sortes de remise en mouvement des particules : les mouvements au sol, la saltation et la remise en suspension.

- les mouvements au sol interviennent pour les particules dont le diamètre est trop important ($> 1000 \mu\text{m}$) pour leur permettre d'être soulevées par le vent ; ce type de mouvement ne nous intéresse pas car il ne présente pas de risque d'exposition des personnes.
- la saltation intervient pour les particules de 50 à $1000 \mu\text{m}$. Il s'agit du déplacement de particules par sauts. Si ce déplacement n'est pas à l'origine de contamination des plantes, car il s'agit de déplacements minimes, il peut engendrer la mise en suspension de particules plus petites lors du rebond.

- enfin, la remise en suspension, phénomène qui nous intéresse plus particulièrement, concerne les particules de taille inférieure à 50 µm, qui peuvent être remises en suspension par le vent (vitesse minimale de 3 km.h⁻¹) ou l'activité humaine (activité agricole, marche, course, véhicules...): 90% par le vent, 6% par l'homme, sauf cas particuliers de type labourage ... Plus précisément, les particules de taille inférieure à 20 µm peuvent être remises en suspension sur de grandes distances, celles de taille inférieure à 10 µm pouvant être remises en suspension pour une distance "illimitée" [Newman, 1974].

Divers facteurs jouent sur la remise en suspension des particules : la vitesse du vent, l'humidité du substrat (la remise en suspension étant moins importante du fait de la cohésion entre particules liées par l'eau [Newman, 1974]), la distribution granulométrique des particules dans la granulométrie, la couverture végétale, la structure du substrat (rugosité, présence de sillons, pente, etc.), la masse volumique des particules ... [Healy, 1958].

On admet que la remise en suspension est identique pour tous les radionucléides dans la mesure où un temps de contact assez long a existé avec les particules de sol qui constituent le vecteur de la remise en suspension. Les observations post-Tchernobyl portent essentiellement sur le césium 137, élément à période assez longue et facilement mesurable.

Le document [Garland, 1992] développe une large synthèse sur la remise en suspension en s'appuyant largement sur les observations réalisées après l'accident de Tchernobyl.

Historiquement, les données disponibles à partir d'observations effectuées sur des sites américains et des sites d'essais atomiques ont été rassemblées par [Sehmel, 1980a] et la grande dispersion des mesures présentée également par [Sehmel, 1980b] et [Nicholson, 1988]. En général, les données ont été obtenues dans des milieux arides ou semi-désertiques et une forte dépendance à la vitesse du vent a été mise en évidence. Des études ont été également réalisées en tunnel ou en conditions contrôlées pour mieux définir les mécanismes de remise en suspension [Garland, 1979 ; Garland, 1982]. Les impacts de la circulation routière, de l'agriculture et d'autres types de perturbation ont été résumés par [Nicholson, 1988].

Le Tableau IV-8 présente des coefficients de remise en suspension, exprimés en m⁻¹, mesurés sur différents sites.

Les expérimentations destinées à investiguer l'influence des différents facteurs ont également montré l'importante réduction de la resuspension avec le temps. De nombreux modèles ont proposé des formulations assez simples de ces effets.

La Figure IV-8 présente les différentes modélisations réalisées dans la période antérieure à l'accident de Tchernobyl. Les équations des modèles sont :

$$\text{USAEC (1974)} \quad K = 10^{-5} \cdot e^{-0,0139t} + 10^{-9} ;$$

$$\text{Anspaugh (1975)} \quad K = 10^{-4} \cdot e^{-0,15 \cdot \sqrt{t}} + 10^{-9} ;$$

$$\text{USAEC (1975)} \quad K = 10^{-5} \cdot e^{-0,0185t} + 10^{-9} ;$$

$$\text{Linsley (1978)} \quad K = 10^{-6} \cdot e^{-0,01t} + 10^{-9} ;$$

$$\text{Garland (1982)} \quad K = 1,2 \cdot 10^{-6} \cdot t^{-1}$$

où t est le temps écoulé après le dépôt, exprimé en jours et K est en m⁻¹.

| Auteurs | Elément | $K_{s,mes}$ | Localisation |
|---------------------|------------|--|--|
| Anspaugh/1970/* | I131 | 10^{-7} à 10^{-5} | Nevada |
| Stewart/1976/* | I131 | $2 \cdot 10^{-6}$ à 10^{-5} | essai de défense, aire libre |
| Stewart/1976/* | I131 | $4.6 \cdot 10^{-6}$ à $5 \cdot 10^{-5}$ | essai de défense, opération de nettoyage |
| Anspaugh/1975/* | Pu | $3 \cdot 10^{-10}$ à $3 \cdot 10^{-9}$ | Nevada |
| Rosner/1997/,/2001/ | Pu 239,240 | $1.2 \cdot 10^{-9}$ | Munich, semi-rural |
| Benett/1976/* | Pu 238 | $5 \cdot 10^{-8}$ | New York |
| Benett/1976/* | Pu 238 | $5 \cdot 10^{-9}$ | UK |
| from Icanzo/1976/* | Pu | $1.4 \cdot 10^{-9}$ à $7.8 \cdot 10^{-6}$ | Palmares Spain |
| from Icanzo/1976/* | Pu | $1.2 \cdot 10^{-10}$ à $8.7 \cdot 10^{-7}$ | Palmares Spain - champs mis en culture |
| from Milham/1976/* | Pu | $5 \cdot 10^{-8}$ à $1 \cdot 10^{-6}$ | champs contaminés, passage de tracteurs |
| from Milham/1976/* | Pu | $7.9 \cdot 10^{-10}$ | champs contaminés, fertilisation |
| from Milham/1976/* | Pu | $5 \cdot 10^{-6}$ | champs contaminés, labours |
| from Milham/1976/* | Pu | $1.8 \cdot 10^{-8}$ à $7.9 \cdot 10^{-6}$ | plantation dans un champs contaminé |
| from Milham/1976/* | Pu | $1.8 \cdot 10^{-5}$ | mouvements dans un champs contaminé |
| Langham/1971/* | Pu | $7 \cdot 10^{-6}$ | Nevada, site rural contaminé |
| Langham/1971/* | Pu | $7 \cdot 10^{-5}$ | Nevada, présence de trafic |
| Schmel/1973/* | Pu | 10^{-9} à 10^{-5} | Kentucky |
| Myers/1976/* | Pu | $5.6 \cdot 10^{-8}$ | traitement de déchets contaminés |
| Stewart/1967/* | Pu | $3 \cdot 10^{-7}$ à $7 \cdot 10^{-4}$ | essais à Maralinga, poussières à 0.3 m de haut |
| Rosner/2001/ | Cs137 | $2 \cdot 10^{-9}$ | Munich semi-rural |
| Hollander/1994/ | Cs137 | 10^{-5} à 10^{-6} | Hannovre urbain |
| Fogh/1999/ | Cs137 | $3.6 \cdot 10^{-10}$ | Danemark urbain |
| Nair/1997/ | Cs137 | 10^{-9} | Kiev urbain |
| Garger/1997/ | Cs137 | $4.3 \cdot 10^{-10}$ | Chernobyl urbain |
| Kasparov/2000/ | Cs137 | $1.6 \cdot 10^{-10}$ | Chernobyl feu de forêts |
| Rosner/2001/ | Ra | 10^{-9} à $1.2 \cdot 10^{-9}$ | Munich semi-rural |
| Stewart/1967/* | U238 | 10^{-4} | essais à Maralinga, 8 ^{ème} hr |
| Stewart/1967/* | U238 | $3 \cdot 10^{-4}$ | essais à Maralinga |
| Rosner/2001/ | U238 | $3.2 \cdot 10^{-9}$ | Munich semi-rural |
| Rosner/2001/ | K40 | $3.2 \cdot 10^{-9}$ | Munich semi-rural |

Les références suivies d'une étoile proviennent du rapport DOE de 1994 [DOE, 1994].

Tableau IV-8 : Coefficients de remise en suspension mesurés sur différents sites

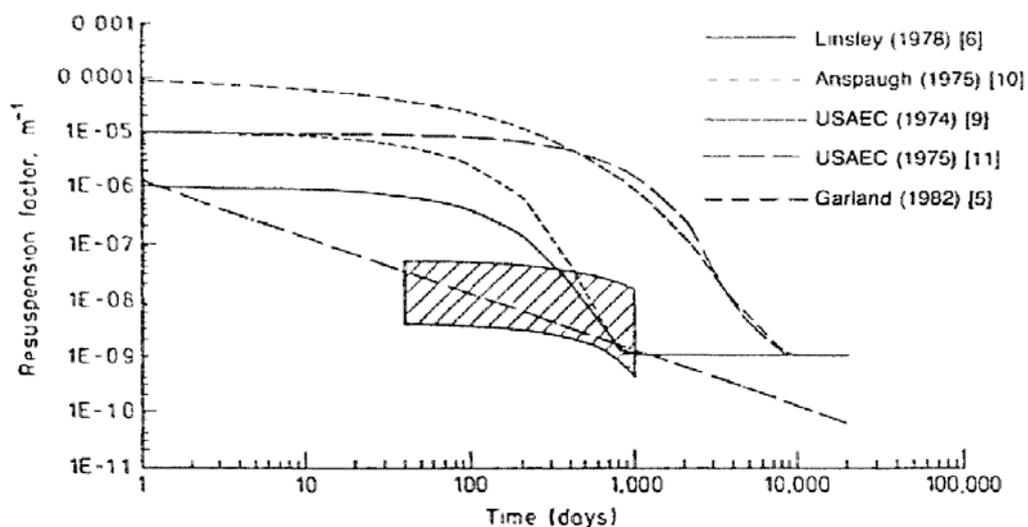


Figure IV-8 : Facteur de remise en suspension (K) mesuré en Europe (surface hachurée) après Tchernobyl comparé avec des modèles

L'accident de Tchernobyl a permis d'observer la remise en suspension après un évènement bref sur une large étendue et dans des conditions climatiques européennes.

Sur 14 sites, le dépôt initial a varié de 52 à 43700 Bq.m⁻².

En pratique, juste après le dépôt, les valeurs de remise en suspension sont de l'ordre de 10⁻⁶ à 10⁻⁴ m⁻¹. En quelques années, elles tendent plus ou moins rapidement vers la valeur de 10⁻⁹ m⁻¹. Dans tous les cas, le facteur de remise en suspension K a diminué avec le temps. Une fonction de type exponentielle décroissante $A \exp(-Bt)$ rend compte avec une bonne approximation des données mesurées :

- Les valeurs du paramètre A, correspondant à K à mi-juin 1986, se situent entre 3,6.10⁻⁹ et 49.10⁻⁹ m⁻¹
- Les valeurs du paramètre B, qui caractérise la décroissance, varient de 0,026 et 0,124 par mois (cf. Tableau IV-9).

| Lieu | dépôt initial | période d'observation | A (m ⁻¹) | B |
|-----------------------|---------------|-----------------------|----------------------|-------|
| Klagenfurt, Austria | 43700 | 1/87-12/89 | 3,60E-09 | 0,049 |
| Neuherberg, Germany | 19700 | 7/86-12/88 | 7,40E-09 | 0,09 |
| Bregenz, Austria | 13200 | 1/87- 8/89 | 5,30E-09 | 0,061 |
| Ispra, Italy | 11900 | 7/86- 6/88 | 5,90E-09 | 0,026 |
| Nurmijärvi, Finland | 7100 | 7/86-12/89 | 1,00E-08 | 0,063 |
| Vienna, Austria | 4000 | 1/87- 8/89 | 1,28E-08 | 0,053 |
| Warsaw, Poland | 3200 | 7/86-10/89 | 1,50E-08 | 0,062 |
| Braunschweig, Germany | 2700 | 7/86-12/88 | 2,80E-08 | 0,124 |
| Eskmeals, UK | 2500 | 7/86- 6/89 | 1,60E-08 | 0,082 |
| Berlin, Germany | 2300 | 7/86-12/88 | 3,50E-08 | 0,099 |
| Riso, Denmark | 800 | 7/86-12/88 | 3,10E-08 | 0,106 |
| Bornholm, Denmark | 620 | 7/86-12/88 | 3,10E-08 | 0,082 |
| Skibotn, Norway | 195 | 7/86-12/88 | 3,50E-08 | 0,06 |
| Chilton, UK | 52 | 7/86- 6/89 | 4,90E-08 | 0,037 |

Tableau IV-9 : Coefficients A et B obtenus suite à Tchernobyl

La Figure IV-9 montre l'évolution de l'activité de l'air sur les différents sites pendant 1 an, schématisés selon la relation précédemment indiquée.

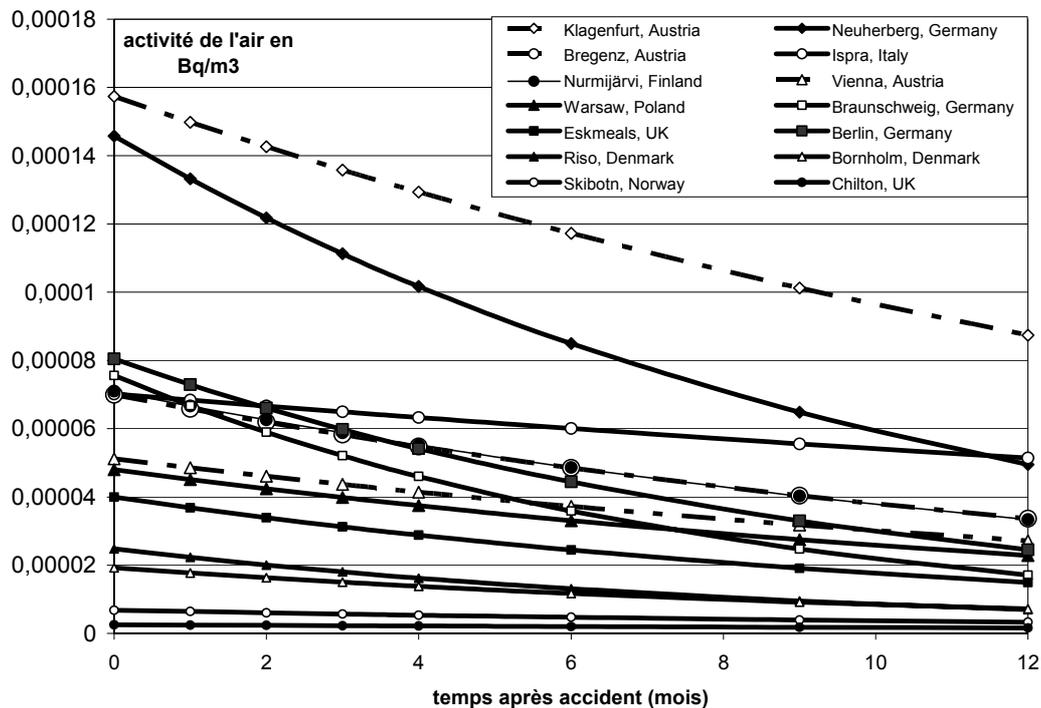


Figure IV-9 : Evolution de l'activité remise en suspension sur les 14 sites européens

La Figure IV-10 et la Figure IV-11 montrent la relation entre la remise en suspension et l'activité déposée au sol pour le coefficient A et une situation beaucoup moins claire en ce qui concerne le coefficient B.

La corrélation entre le coefficient A et le dépôt initial montre que, bien que la concentration du césium dans l'air augmente puis s'équilibre dans les jours qui suivent le dépôt, en fonction de l'activité initiale déposée, l'accroissement de la teneur de l'air n'est du tout proportionnel à l'activité déposée. L'explication retenue est que la remise en suspension conduit à une contamination de l'air sur des distances significatives. Il en résulte que l'air des régions à plus faible contamination est sous l'influence des apports des régions plus marquées, ce qui tend à augmenter "artificiellement" la remise en suspension des régions peu marquées. L'inverse est vrai pour les régions les plus radioactives. Des modélisations assez simples permettent de considérer cette explication comme la plus plausible.

L'évolution du coefficient B qui caractérise la décroissance de la remise en suspension en fonction du temps est à l'évidence sans corrélation avec l'activité déposée. On peut imaginer que des paramètres tels que la nature du sol, l'importance relative des terres labourées et des sols naturels, les conditions météorologiques (vent, pluies) jouent de façon prépondérante.

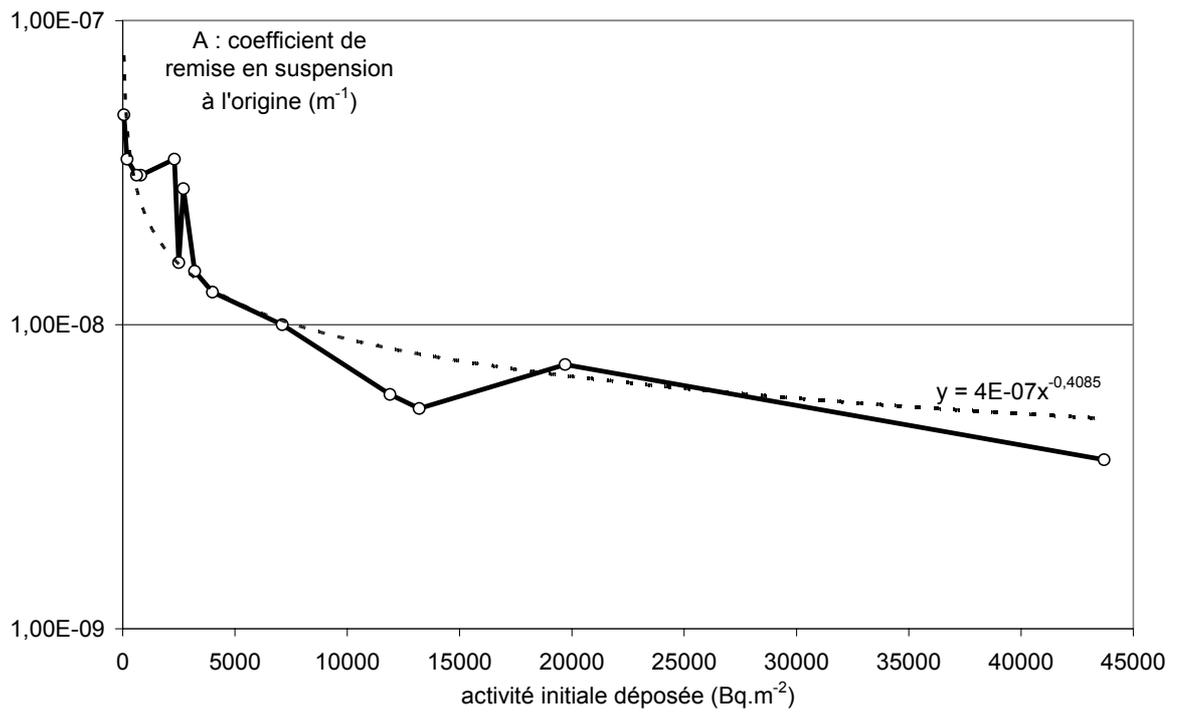


Figure IV-10 : Relation entre la remise en suspension et l'activité initiale déposée

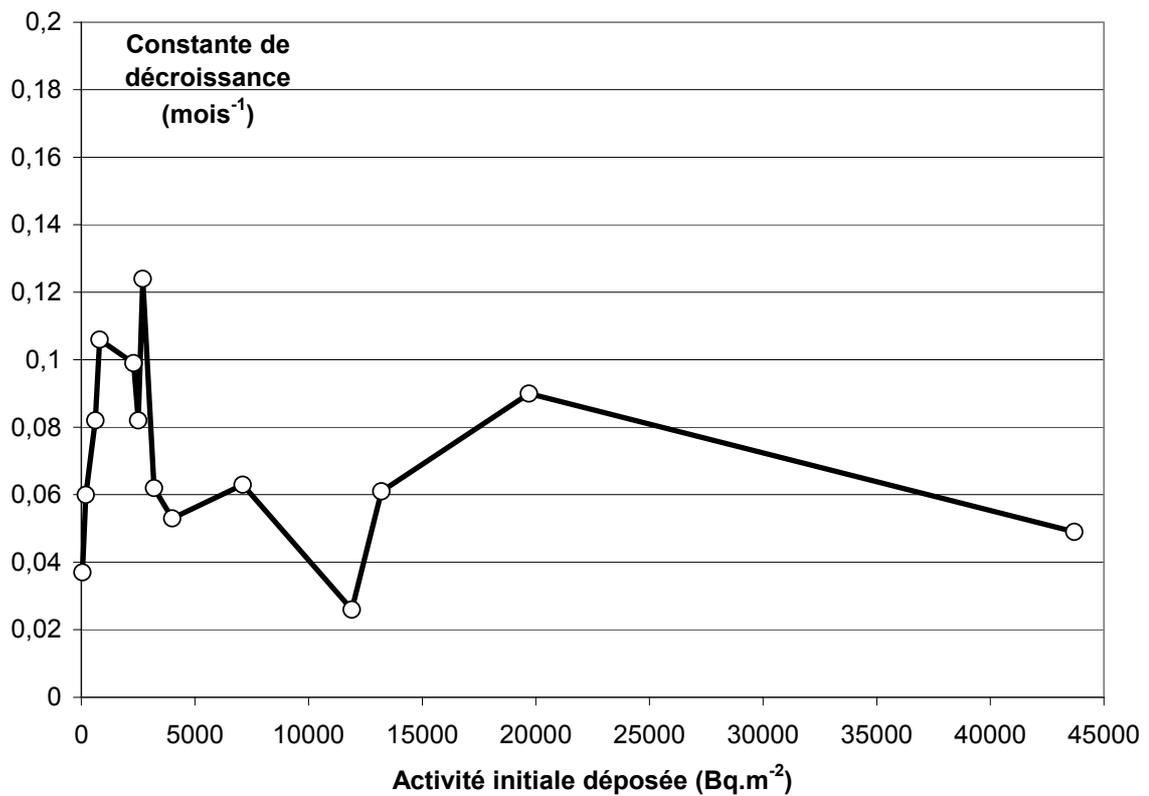


Figure IV-11 : Variations de la constante de décroissance en fonction de l'activité déposée

Nous noterons deux études européennes portant sur du plutonium, qui confirment qu'il n'y a pas à attendre de différences importantes entre radionucléides :

La remise en suspension a pu être observée à Palomarès en Espagne, en 1966 où deux armes nucléaires ont été détruites par le feu à la suite d'un accident aérien. Ceci a entraîné une contamination par du plutonium sur une surface de quelques kilomètres carré. Ultérieurement, des mesures ont été faites régulièrement dans l'air en quatre stations. En utilisant les estimations du niveau initial de dépôt et la concentration dans l'air, la moyenne du coefficient K se situe entre 0,2 et $2 \cdot 10^{-9} \text{ m}^{-1}$. Peu après l'accident, l'horizon supérieur du sol a été retiré sur les points les plus actifs et les autres surfaces ont été labourées [Garcia-Olivares, 1977].

Suite à l'accident de Tchernobyl, des mesures du facteur de remise en suspension ont été réalisées pour $^{239+240}\text{Pu}$ au cours du temps, en Allemagne. Elles ont fourni une valeur moyenne de $1,2 (\pm 0,03) \cdot 10^{-9}$ [Rosner, 1997].

Conclusions

La question de la remise en suspension, comme pouvant être une voie d'exposition significative, provient des observations effectuées historiquement dans des régions semi-désertiques. Sur les années 1974-1982, on note que les modèles ont évolué vers des valeurs de plus en plus faibles. L'ensemble des résultats obtenus après l'accident de Tchernobyl confirme, voire amplifie encore cette évolution.

Comme cela est montré dans [Garland, 1992], il en résulte que l'exposition par inhalation après dépôt constitue une fraction faible de l'exposition pendant le passage du nuage.

IV.3 TRANSFERT PAR VOIE EAU : RIVIERES, SOLS

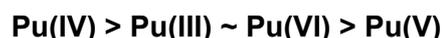
IV.3.1 CHIMIE ENVIRONNEMENTALE DU PLUTONIUM

Les conditions environnementales d'intérêt correspondent à des domaines potentiel redox (Eh) – pH tels que :

- 6 (eaux de surfaces) < pH < 9 (eaux profondes)
- -300 mV/ENH < Eh < 500 mV/ENH.

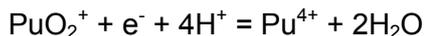
Le potentiel redox des eaux souterraines est contrôlé par des systèmes complexes basés sur les couples du fer et du soufre (goethite/pyrite, goethite/sidérite...) [Michard, 1989 ; Michard, 2002]. L'influence de bactéries réductrices est également à prendre en compte [Mincher, 2003 ; Seaborg, 1993].

On rappelle ici (voir le paragraphe II.3) que, dans les conditions environnementales, le plutonium existe principalement aux degrés redox +III à +VI, les ions aquo ou oxo correspondant étant Pu^{3+} , Pu^{4+} , PuO_2^+ , PuO_2^{2+} . L'ordre de réactivité de ces quatre principaux degrés redox du plutonium suit la séquence suivante :



La chimie environnementale du plutonium peut néanmoins se décrire par une prédominance du degré d'oxydation +IV, tant pour les espèces en solution que pour la formation de solide. Le degré d'oxydation +III peut thermodynamiquement être observé en conditions géochimiques et environnementales.

L'existence environnementale des degrés d'oxydation +V et +VI n'est pas à négliger, spécialement dans le cas d'une étude d'impact à court terme. Compte tenu de leur cinétique de réduction (de l'ordre du jour), les couples redox faisant intervenir les ions oxo $[\text{O}=\text{Pu}=\text{O}]^{+ou2+}$ sont connus pour être cinétiquement lents [Seaborg, 1993 ; Guillaumont, 1993], de par la rupture des liaisons oxygène / actinide (dans le cas d'une réduction vers Pu^{4+}) :



On peut ainsi observer du plutonium au degré d'oxydation +V et +VI dans l'environnement [Choppin, 1997 ; cf. Tableau IV-18].

Parmi les espèces complexantes rencontrées dans l'environnement, la complexation par la matière organique naturelle, telles que les substances humiques, est à considérer tout particulièrement. Ces substances humiques, qu'elles soient décrites comme des agrégats supramoléculaires [Plancque, 2001 ; Schnitzer, 1972] ou comme des polymères [Schulten, 2002] se comportent comme des colloïdes organiques complexants (principalement via des fonctions carboxyliques) et réducteurs (principalement via des fonctions de type hydroquinone) [Choppin, 2003]. Les colloïdes vont ainsi présenter deux spécificités majeures qui vont fortement impacter la mobilité de l'actinide : les associations colloïdales et la réactivité redox entre l'actinide et la matière organique.

Il ne faut pas non plus négliger le rôle de bactéries présentes dans l'environnement qui peuvent aussi contrôler l'état redox du plutonium (réduction ou oxydation) [Neu, 2005].

IV.3.1.1 Associations colloïdales

Les substances humiques se présentent comme des colloïdes organiques plus ou moins assemblés avec des colloïdes inorganiques (principalement de fer). Le plutonium, principalement au degré d'oxydation (IV) et fortement hydrolysable, est, lui aussi, spontanément sous forme colloïdale.

Même s'il n'y a pas de quantification thermodynamique, l'affinité entre ces deux espèces colloïdales est une explication avancée afin d'expliquer la très forte association entre le plutonium (ainsi que tous les autres actinides pouvant se trouver au degré d'oxydation +IV) et les matières organiques observées dans l'environnement [Choppin, 1997 ; Reiller, 2005].

IV.3.1.2 Réactivité des substances humiques

De nombreuses études mettent en évidence la réactivité redox des substances humiques vis-à-vis du plutonium, particulièrement la réduction des degrés redox (V) et (VI) en degrés (III) et (IV) [Choppin, 1997 ; André, 2000 ; Choppin, 2003 ; Fjeld, 2003 ; Marquardt, 2004].

Les études cinétiques menées sur des eaux synthétiques représentatives [Marquardt, 2004] montrent que les cinétiques de réduction ont un temps caractéristique de l'ordre de la minute et que le plutonium réduit est totalement associé à la matière organique.

Ce phénomène de stabilisation d'un degré redox par effet de complexation [Ringböm, 1967 ; Trémillon, 1993] est couramment observé dans le cas où l'une des deux formes redox (ici le plutonium (IV)) est fortement complexée. On peut citer comme exemple la stabilisation des actinides (IV) au sein des couples $\text{MO}_2^{2+}/\text{M}^{4+}$ en présence de complexants polyanions sélectifs des actinides (IV) [Bion, 1995], la stabilisation de Ag^+ dans Ag^+/Ag en présence de NH_3 [Trémillon, 1993] ou celle du cérium (IV) dans le couple $\text{Ce}^{4+}/\text{Ce}^{3+}$ en milieu carbonate [Martial-Riglet, 1998].

Ce phénomène thermodynamique s'explique par le fait que, dans les couples Pu(VI)/Pu(IV), Pu(V)/Pu(IV), Pu(IV)/Pu(III), le plutonium (IV) est le degré redox formant les complexes les plus forts, du fait de son rapport charge sur rayon ionique plus élevé. La formation de complexe plus fort pour Pu(IV), relativement à Pu(VI) et Pu(V), conduit à une stabilisation, donc une augmentation des potentiels redox apparent des couples Pu(VI)/Pu(IV) et Pu(V)/Pu(IV), Pu(IV)/Pu(III). Dans ce cas, on peut penser que c'est la matière organique elle-même qui va réduire le plutonium (VI, V) en plutonium (IV), via des groupements de type hydroquinone [Choppin, 1997 ; Choppin, 2003 ; André, 2000 ; Fjeld, 2003 ; Marquardt, 2004].

IV.3.1.3 Impact des colloïdes (organiques et inorganiques) sur le transport du plutonium

Il résulte de ceci deux comportements potentiellement opposés du plutonium suivant la présence ou non de colloïdes (organiques/inorganiques) :

- en absence de colloïdes, on peut penser à une précipitation quantitative. Cependant la présence de colloïdes inorganiques dans l'environnement peut conduire à une mobilité accrue du plutonium. Citons comme exemple le cas du site du Nevada (NTS) où il a été montré expérimentalement un transport colloïdal préférentiel du plutonium à plus d'un km de distance de la zone de tir des essais nucléaires [Kersting, 1999]. Dans ce cas, le plutonium est associé à des colloïdes de type argile ou de type minéraux secondaires présents dans la roche mère. Il ressort de cette étude que les modèles de transport ne prenant pas en compte cette association colloïdale sous-estiment le transport du Pu dans les conditions de ce site.
- citons également l'expérience menée au laboratoire souterrain du Grimsel⁸ [Mori, 2003] qui montre qu'une partie du plutonium injecté sous forme Pu(IV) migre en même temps que les colloïdes artificiels de bentonite injectés. En absence de colloïdes, il est noté une migration partielle du plutonium (IV) sous forme colloïdale.
- en présence de matière organique, le plutonium sera associé aux colloïdes organiques, ceci avec des cinétiques rapides [Reiller, 2005 ; Choppin, 2006]. Ceci a été illustré dans les paragraphes précédents. La Figure IV-12 montre la prédominance des différentes formes du plutonium en fonction du potentiel redox (E_H) : dans le domaine de E_H des eaux naturelles (-300 à 500 mV), les complexes organiques du plutonium (sous différents degrés redox) sont majoritaires.

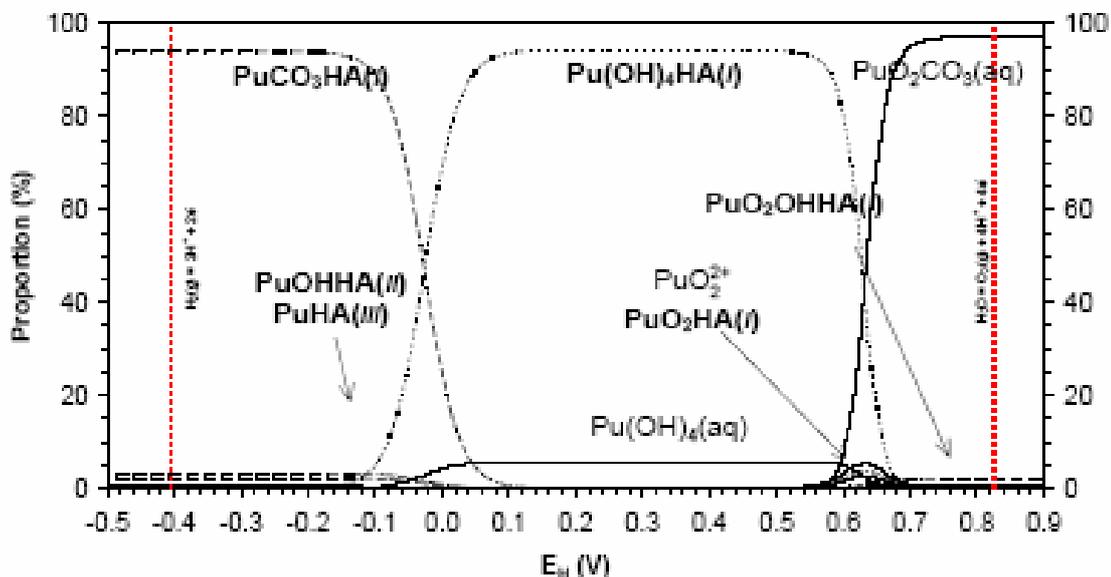


Figure IV-12 : Spéciation du plutonium (10^{-10} M) en fonction de E_H (V/ENH) - pH 7, force ionique 0.1 M, [Carbone Total Inorganique]=8,2 mM et [Acides humiques] = 100 mg/L

[Reiller, 2005] (En gras sont notés les complexes organiques du plutonium)

⁸ Laboratoire souterrain en formation granitique (Suisse) ; l'eau profonde présente les caractéristiques suivantes pH = 9,6, $E_H = -300$ mV.

IV.3.2 DONNEES OPERATIONNELLES ET PARAMETRES DE TRANSPORT

Avertissement :

Le coefficient de distribution (K_d) d'une entité E entre une phase liquide et une phase solide est défini comme étant le rapport de concentration de E dans la phase solide sur la concentration de E dans la phase liquide. En général, on donnera une valeur de K_d à l'équilibre, et cette valeur de K_d ne donne aucune indication quant aux mécanismes expliquant pourquoi l'entité M se trouve dans la phase solide. Cette valeur est usuellement exprimée en mL.g^{-1} ou L.kg^{-1} .

La littérature concernant la rétention des polluants parle souvent de " K_d ". Cette valeur correspond à une fraction immobilisée sur un solide et est donnée en L.kg^{-1} . Derrière cette grandeur se cachent en fait deux concepts différents qui expliquent la grande variété de valeurs de K_d que l'on peut rencontrer dans la littérature. En effet, on distinguera deux définitions du K_d :

1. Pour les sciences du sol, le K_d est considéré comme une grandeur effective correspondant à une expérimentation de terrain. Dans ce cas, on mesure la fraction du Pu globalement retenue sur un échantillon de sol :

$$K_d (\text{rétention}) = \frac{\text{fraction immobilisée à l'état solide}}{\text{fraction en solution}}$$

Cette fraction retenue correspond à la quantité de plutonium adsorbée, quantité à laquelle on additionne la quantité qui aura précipité sur les différents minéraux constituant l'échantillon solide. En d'autres termes, ce K_d intègre aussi le phénomène de précipitation et correspond à une fraction globale immobilisée. Il s'agit d'une valeur opérationnelle.

2. Pour les géochimistes et chimistes des solutions, le K_d correspond strictement à la fraction sorbée sur les surfaces minérales. Dans ce cas, le K_d n'intègre pas les éventuelles réactions de précipitation (qui sont traitées à part en tant qu'équilibres de dissolution / précipitation) :

$$K_d (\text{sorption}) = \frac{\text{fraction adsorbée à la surface}}{\text{fraction en solution}}$$

Cette valeur mécanistique se calcule à partir d'expérimentations faites en laboratoires.

Dans la suite de cette partie, nous différencierons ainsi de manière explicite $K_d(r)$ pour parler de la rétention et $K_d(s)$ pour la sorption.

IV.3.2.1 Paramètres obtenus via calculs et base de données thermodynamiques

Les données thermodynamiques, comme celles présentées dans le point II.3.3, permettent la constitution de bases de données thermodynamiques (BDT) [Bion, 2003 ; Guillaumont, 2003 ; Hummel, 2002 ; Powell, 2004 ; Vitorge, 2003].

Ces BDT sont alors utilisées afin d'effectuer la modélisation de la spéciation, qui peut se faire au moyen de calculs analytiques dans les cas les plus simples [Ringböm, 1967 ; Trémillon, 1993] ou à l'aide de codes de calculs comme PHREEQC [Parkhurst, 1999] ou JCHESS [van der Lee, 2000].

Dans les deux cas, ces calculs nécessitent la connaissance de la composition du milieu dans lequel va se retrouver l'élément (ici le plutonium) ainsi que les données thermodynamiques relatives aux équilibres faisant intervenir le plutonium et les espèces potentiellement réactives (voir Figure IV-13).

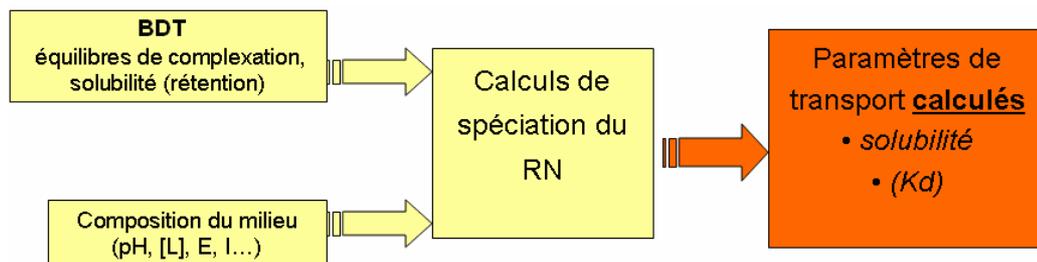


Figure IV-13 : Synoptique simplifié présentant le schéma de calcul des paramètres de transport utilisant une base de données thermodynamiques (BDT) et la composition du milieu. Dans le cas de la sorption, le calcul aboutit à des K_d (s).

Ce type de calcul est autant applicable à la détermination de solubilités qu'à celles de K_d (s). Néanmoins, compte tenu de l'état des connaissances thermodynamiques des systèmes solide/solution, cette approche a été essentiellement utilisée afin de calculer des solubilités du plutonium dans diverses conditions représentatives (cf. Tableau IV-11).

IV.3.2.2 Paramètres directement mesurés

Les données présentes dans les BDT ne permettent pas d'effectuer tous les calculs décrits ci-dessus, particulièrement pour les équilibres (systèmes ternaires de type élément radiotoxique / réactifs en solution / surface minérale).

Dans ce cas, nous n'avons pas retenu de données thermodynamiques et nous avons préféré retenir des valeurs expérimentales de K_d (s), issues de compilations [Ticknor, 1994 ; Ticknor, 1996 ; Caroll, 1999 ; Mincher, 2003] (cf. Tableau IV-12).

IV.3.2.3 Synthèse des résultats concernant les solubilités et les coefficients de rétention

A l'inverse des calculs de rétention, les données opérationnelles concernant les solubilités ont été obtenues via des calculs analytiques en utilisant les données thermodynamiques présentées dans le paragraphe précédent.

Les compositions type d'eaux naturelles qui ont été utilisées (Tableau IV-10) correspondent à :

- des eaux plus ou moins réductrices [CEA, 2003]
- des milieux représentatifs d'eaux de surface [Michard, 1989 ; Michard, 2002].

Les données opérationnelles concernant les solubilités sont présentées dans le Tableau IV-11.

| | Milieu fortement réducteur | Milieu faiblement réducteur | Milieu oxydant |
|------------------------|---------------------------------------|-----------------------------|---------------------|
| pH | 7.7 à 9.5 | 6 à 9 | 6 à 9 |
| E _H (mV) | -300 | -115 | 500 |
| CO ₃ | 50 µM – 0,2 mM | 0,3 µM – 0,5 mM | 1 mM |
| Na | 6,8 mM – 28 mM | 62 mM | 0,27 mM |
| K | 10 µM – 0,2 mM | 0,7 mM | 60 µM |
| Ca | 4 mM – 38 mM | 4,7 mM | 0,38 mM |
| Mg | 0,4 µM – 5 µM | 7,7 mM | 0,17 mM |
| Al | 0,1 µM – 1 µM | 0,05 µM | 10 ⁻²⁰ M |
| Cl | 1 mM – 30 mM | 43 mM | 0,22 mM |
| S | - | 9,5 mM | 0,12 mM |
| Si | 0,2 mM – 1 mM | 0,2 mM | - |
| pCO ₂ (atm) | 10 ⁻⁷ – 3 10 ⁻⁴ | | - |

Tableau IV-10 : Compositions d'eaux naturelles

Les données thermodynamiques concernant les équilibres de rétention des différents degrés redox du plutonium font l'objet de débats et dépendent des modèles de rétention choisis : aucune expertise fiable ne peut être proposée aujourd'hui afin de calculer des coefficients de distribution K_d(s). Des K_d(s) représentatifs, compilés et mesurés, sont ainsi proposés dans le paragraphe suivant.

Les données opérationnelles concernant les coefficients de rétention sont présentées dans le Tableau IV-12. Ces données correspondent à des eaux identiques à celles utilisées pour les calculs de solubilités. Les minéraux argileux ont été retenus de par leurs très grandes affinités pour la rétention des espèces métalliques et sont de type smectite et illite.

Les coefficients de rétention K_d(s) du plutonium (IV) ont été obtenus via des compilations [Ticknor, 1994 ; Ticknor, 1996].

Les K_d(s) concernant le plutonium (III) ont été obtenus à partir de calculs semi-empiriques effectués sur l'américium (III) utilisant l'analogie Am(III)/Pu(III).

Les K_d(s) concernant le plutonium (V) et (VI) ont été obtenus via des compilations [Ticknor, 1994 ; Ticknor, 1996] en utilisant respectivement les analogies Np(V)/Pu(V) et U(VI)/Pu(VI).

| Espèce du Pu | Analogie utilisé ⁽¹⁾ | Log S (S en mol/L) milieu fortement réducteur | Log S (S en mol/L) milieu faiblement réducteur | Log S (S en mol/L) milieu oxydant | Références utilisées |
|-----------------------------------|-----------------------------------|--|---|--------------------------------------|----------------------|
| <i>Pu(III)</i> | <i>Am(III)</i> | -10,5 à -8,0 | -10,5 à -4,5 | - | [CEA, 2003] |
| Pu(OH) ₃ (amorphe) | Am(OH) ₃ (amorphe) | -7,0 à -4,4 | - | - | [Bion, 2003] |
| Pu(OH) ₃ (cristallisé) | Am(OH) ₃ (cristallisé) | -8,8 à -6,2 | - | - | [Bion, 2003] |
| <i>Pu(IV)</i> | <i>aucun</i> | -10,0 à -7,0 | -10,0 à -7,0 | -10,0 à -7,0 | [CEA, 2003] |
| Pu(IV) | <i>U(IV)</i> | -11,5 à -8,5 | -11,5 à -7,8 | - | [CEA, 2003] |
| | <i>Np(IV)</i> | -11,5 à -8,5 | -11,5 à -7,8 | - | [Bion, 2003] |
| PuO ₂ (amorphe) | aucun | -8,75 à -8,60 | - | - | [Bion, 2003] |
| PuO ₂ (amorphe) | NpO ₂ (amorphe) | -8,3 à -8,1 | - | - | [Bion, 2003] |
| PuO ₂ (cristallisé) | aucun | -9,9 à -9,2 | - | - | [Bion, 2003] |
| PuO ₂ (cristallisé) | UO ₂ (cristallisé) | -9,7 à -9,5 | - | - | [Bion, 2003] |
| PuO ₂ (cristallisé) | NpO ₂ (cristallisé) | -9,3 à -9,1 | - | - | [Bion, 2003] |
| Pu(VI) | <i>U(VI)</i> | - | - | -7,4 à -5,5 | [CEA, 2003] |
| | <i>Np(V)</i> | - | - | -9,0 à -7,8 | [CEA, 2003] |

Tableau IV-11 : Paramètres de transport (S, solubilité) des différents degrés redox du Pu

- Les cellules non remplies correspondent à des degrés redox non stables dans ces conditions.
- Les valeurs indiquées correspondent à des calculs analytiques effectués au moyen de données thermodynamiques, à l'exception des *valeurs en italique et grisé* qui correspondent à des compilations de mesures.

(1) Les analogies entre même degrés redox des éléments actinides ne concernent que les réactions de coordination (complexation, hydrolyse, solubilité et sorption). Aucune analogie concernant les réactions redox n'est possible.

| Espèce du Pu | Analogie utilisé ⁽¹⁾ | Log Kd(s) (mL/g) milieu fortement réducteur | Log Kd(s) (mL/g) milieu faiblement réducteur | Log Kd(s) (mL/g) milieu oxydant | Références utilisées |
|-----------------------------|---------------------------------|--|---|------------------------------------|--------------------------------|
| <i>Pu(III)/mat argileux</i> | <i>Am(III)/mat argileux</i> | 4,3 à 5,9 | - | - | [CEA, 2003] |
| Pu (III)/illite | Am (III)/illite | 4 à 6 | - | - | [Bion, 2003] |
| Pu(III)/smectite | Am(III)/smectite | 3,8 à 7,5 | - | - | [Bion, 2003] |
| Pu(III)/hématite | Am(III)/hématite | 3,2 à 6,5 | - | - | [Bion, 2003 ; Cromières, 1998] |
| Pu(IV)/mat argileux | aucun | 6,0 à 8,0 ⁽²⁾ | 6,0 à 8,0 ⁽²⁾ | 6,0 à 8,0 ⁽²⁾ | [Bion, 2003] |
| Pu(IV)/hématite | Th(IV)/hématite | 4,9 à 6,0 | 4,9 à 6,0 | 4,9 à 6,0 | [Bion, 2003 ; Cromières, 1998] |
| <i>Pu(V)/mat argileux</i> | <i>Np(V)/mat argileux</i> | - | - | 2 à 3 | [CEA, 2003] |
| Pu(V)/hématite | Np(V)/hématite | | | 2,0 à 3,5 | [Bion, 2003 ; Cromières, 1998] |
| <i>Pu(VI)/mat argileux</i> | <i>U(VI)/mat argileux</i> | - | - | 2 à 3 | [CEA, 2003] |
| <i>Pu(VI)</i> | <i>U(VI) et Np(VI)</i> | - | - | 2 à 3 | [CEA, 2003] |
| Pu(VI)/hématite | U(VI)/hématite | | | 3,2 à 4,3 | [Bion, 2003 ; Cromières, 1998] |

Tableau IV-12 : Paramètres de transport (Kd(s)) des différents degrés redox du Pu

- Les cellules non remplies correspondent à des degrés redox non stables dans ces conditions.
- Les valeurs indiquées correspondent à des calculs analytiques effectués au moyen de données thermodynamiques, à l'exception des *valeurs en italique et grisé* qui correspondent à des compilations de mesures.

(1) Les analogies entre même degrés redox des éléments actinides ne concernent que les réactions de coordination (complexation, hydrolyse, solubilité et sorption). Aucune analogie concernant les réactions redox n'est possible.

(2) Des études effectuées sur Np^{IV} et U^{IV} (analogues de Pu^{IV}) indiquent un log Kd(s) de l'ordre de 3 pour ces deux actinides [Ticknor, 1994]. Néanmoins, compte tenu des difficultés expérimentales à maintenir ces formes redox de U et Np, nous préférons retenir l'intervalle mentionné dans ce tableau qui concerne directement le plutonium.

IV.3.3 COMPARAISONS AVEC LES DONNEES EXISTANTES MESUREES

La migration dans les sols du plutonium peut être mesurée de deux manières différentes :

- La première consiste à mesurer les concentrations à différentes profondeurs : il s'agit alors des profils de migration. L'étude de ces profils permet une approche post-contamination du comportement du plutonium dans le sol. Cette approche apporte une vue objective, mais ponctuelle, du devenir du plutonium dans les sols.
- La deuxième consiste à évaluer l'affinité de cet élément pour les sols : il s'agit d'une mesure de coefficient de distribution, ou $K_d(s)$. Ces valeurs de K_d sont utilisées pour les calculs de migration.

Deux phénomènes interviennent dans la migration des éléments dans le sol : d'une part, le transport dans la macroporosité du sol (fissures, macropores) lorsqu'elle est présente, et, d'autre part, le transport dans la porosité connectée du sol. Le transport dans la macroporosité du sol est un transport rapide alors que le transport dans la porosité connectée du sol est un transport plus lent.

IV.3.3.1 Données sur la rétention et les K_d

La rétention du plutonium dans les sols va dépendre d'un certain nombre de paramètres dont le pH, la nature des phases minérales et la présence de matières organiques et la composition de la solution. Selon le type de substrat (argile, oxydes, hydroxydes, oxyhydroxydes, aluminosilicates, matière organique), le plutonium se fixe avec des affinités faibles, soit des valeurs de K_d peu élevées (~10 mL/g), à très fortes soit des valeurs de K_d élevées (~300 000 mL/g) [EPA, 1999].

En l'absence de ligands complexants en solution, l'adsorption du plutonium augmente avec le pH. En présence de concentrations croissantes de ligands complexants (inorganiques ou organiques), l'adsorption du plutonium diminue.

D'autre part, en présence d'oxydes de fer, le plutonium sera présent préférentiellement sous forme réduite (Pu(IV)) à la surface du solide.

Estimation de K_d à partir de données mesurées

Une étude menée par EPA [EPA, 1999] a tenté de développer un modèle s'appuyant sur un ensemble de jeu de données sur l'adsorption du Pu(IV) sur un ensemble de sols bien caractérisés : il a alors été établi une corrélation entre la valeur de $K_d(s)$ et la teneur en argiles ainsi que la teneur en carbonates dissous. Le Tableau IV-13 présente les valeurs proposées dans EPA [EPA, 1999] pour effectuer une estimation de la valeur de $K_d(s)$ en fonction de ces paramètres. Le fait que cette estimation ne tienne pas compte de la teneur en matière organique est assez surprenant ; cependant, cela rejoint les observations faites par Sheppard [Sheppard, 1990].

La Figure IV-14 en est une autre illustration.

| | Teneur en argiles par rapport au poids sec (%) | | | | | | | | |
|---------|--|-------|-------|--|-------|-------|--|-------|-------|
| | 0 - 30 | | | 31 - 50 | | | 51 - 70 | | |
| | Carbonates solubles meq.L ⁻¹ | | | Carbonates solubles meq.L ⁻¹ | | | Carbonates solubles meq.L ⁻¹ | | |
| | 0,1 - 2 | 3 - 4 | 5 - 6 | 0,1 - 2 | 3 - 4 | 5 - 6 | 0,1 - 2 | 3 - 4 | 5 - 6 |
| Minimum | 5 | 80 | 130 | 5 | 80 | 130 | 5 | 80 | 130 |
| Maximum | 420 | 470 | 520 | 420 | 470 | 520 | 420 | 470 | 520 |

Tableau IV-13 : Estimation de la gamme de valeurs de Kd(s) en fonction des teneurs en argiles et en carbonates dissous

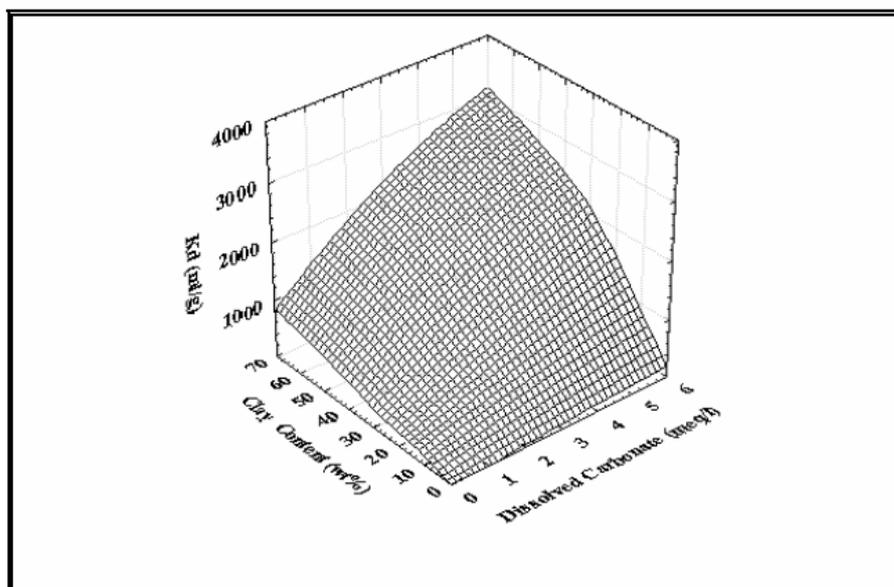


Figure IV-14 : Estimation de la gamme de valeurs de Kd(s) en fonction des teneurs en argiles et en carbonates dissous [EPA, 1999]

Compilation de Kd

Les valeurs de Kd qui sont utilisées dans les calculs de transfert et études d'impact sont principalement issues d'une compilation de l'AIEA [A.I.E.A, 1994].

Le Tableau IV-14 présente les valeurs de coefficient de rétention mesuré pour plusieurs sols de propriétés différentes. Le Tableau IV-15 donne une synthèse des valeurs de Kd(r) en fonction de la texture principale du sol. Dans les deux cas, les valeurs recommandées par l'AIEA sont rappelées.

| Sol | Kd(r) (L.kg ⁻¹) | | |
|----------------------------|---|---|-------------------|
| | [A.I.E.A, 1994] | [Sheppard, 1990] | [Van Dalen, 1975] |
| Sableux | 5,4.10 ² (18 - 1,6.10 ⁴) | 5,5.10 ² (27 - 3,6.10 ⁴) | 2.10 ² |
| Limoneux | 1,2.10 ³ (1,1.10 ² - 1,3.10 ⁴) | 1,2.10 ³ (1.10 ² - 5,9.10 ³) | |
| Argileux | 4,9.10 ³ (7,4.10 ¹ - 3,3.10 ⁵) | 5,1.10 ³ (3,2.10 ² - 1,9.10 ⁵) | 1.10 ⁴ |
| Riche en Matière organique | 1,8.10 ³ (10 - 3,3.10 ⁵) | 1,9.10 ² (60 - 6,2.10 ⁴) | |
| Grès | | | 2.10 ³ |
| Caprock | | | 5.10 ² |

Tableau IV-15 : Comparaison des coefficients de distribution, Kd(r) du plutonium pour différents types de sol ; les valeurs AIEA sont les valeurs de référence utilisées dans les bases de données des calculs d'impact

Il est difficile de comparer strictement les valeurs présentées (valeurs mesurées) dans le Tableau IV-14 et le Tableau IV-15, et les valeurs répertoriées dans le Tableau IV-12. En effet :

- le Tableau IV-12 correspond à des valeurs de Kd(s) mesurés sur une phase pure de composition chimique ou modélisés pour des systèmes de composition connue ;
- le Tableau IV-14 et le Tableau IV-15 présentent une forte variabilité en terme de composition (présence ou non de matière organique ou de carbonates qui vont alors entraîner une augmentation de la rétention) ;
- la nature des Kd n'est pas la même, à savoir Kd(s) et Kd(r) pour sorption et rétention (cf. paragraphe IV.3.2).

Lorsqu'une valeur de Kd est donnée, il s'avère donc important de bien associer à la valeur les commentaires quant à la nature exacte des phases solides concernées, à la nature du Kd (rétention ou sorption) ou encore aux conditions expérimentales d'acquisition. Ceci fait quelque peu défaut dans la compilation de l'AIEA [A.I.E.A., 1994] et de nombreuses confusions sont possibles quant à la nature exacte des Kd. Cette compilation est en cours de révision actuellement à l'AIEA via le programme EMRAS (Environmental Modelling for Radiation Safety) [A.I.E.A., 2007].

Si maintenant on considère que le plutonium se trouve présent au degré redox +IV dans les expérimentations du Tableau IV-14 et du Tableau IV-15, alors ces valeurs sont très inférieures aux valeurs données pour des systèmes maîtrisés ou aux valeurs calculées (Tableau IV-12). **De ce fait, si on utilise les valeurs de l'AIEA dans les calculs d'impact, on sous-estime la quantité de plutonium retenu sur le sol, et on surestime alors fortement la teneur de plutonium présent en solution.** Ceci est a priori pénalisant.

IV.3.3.2 Données sur les profils de migration

Les profils de migration représentent le mouvement des éléments dans les sols au cours du temps. Le Tableau IV-16 (page suivante) présente les résultats obtenus pour le plutonium.

| | Conditions | Profil/Migration | Référence |
|---------------------|---|---|---------------------|
| Mesures diverses | Migration du Pu dans les sols, Polygone d'essais du Nevada, USA. | 95% du Pu est concentré dans une couche superficielle de 5 cm. | [AEN, 1981] |
| | Mesure des profils de rétention dans le sol après un accident de dissémination de Pu à Rocky Flat entre 1958 et 1968. | 90% de l'activité de ²³⁹⁺²⁴⁰ Pu est retrouvée dans les 12 cm supérieurs. Migration probablement gouvernée par la faune souterraine et le flux d'eau. | [Litaor, 1994] |
| | Nevada Test Site, USA, mesure du Pu. | Traces (10–14 mol.L ⁻¹) retrouvées à 300 m de profondeur et 1,3 km de la zone de tir (fractures + eaux souterraines). | [Kersting, 1999] |
| | Mesure de concentration moyenne en plutonium dans un profil pour deux sols Pu issu d'un incendie d'usine nucléaire (USA) en 1969, sols échantillonnés en 1972-1974. | 47% du plutonium se trouve dans les 3 premiers centimètres, 78% dans les 12 premiers centimètres. L'activité est surtout présente associée à des particules inférieures à 75 µm. | [Little, 1978] |
| Profil de migration | Mesure de concentration en radionucléides (dont Pu) dans les dunes soumises aux embruns contaminés par les rejets de l'usine de retraitement de Sellafield dans la mer d'Irlande. | On observe une migration rapide des radionucléides, liée à la percolation rapide de l'eau entre les grains de sable et à la faible adsorption des radionucléides sur le sable. | [Copplestone, 2001] |
| | Mesure d'activité en plutonium dans deux profils de sols. Pu issu de l'usine de retraitement de déchets de Savannah River (USA). | La migration du plutonium est très lente avec la quasi-totalité du plutonium (>90%) en surface, 20 ans après le début de la contamination. Pas d'effet des pratiques culturales sur cette répartition. | [Horton, 1980] |
| | Mesure des profils de distribution du plutonium, limon-sableux. Profondeur en cm. | Pu issu des retombées. 52% 21% 8% 10% | [Harley, 1980] |

| | Conditions | Profil/Migration | Référence |
|----------------------|--|---|-----------------------|
| | Compilation de données bibliographiques sur les éléments transuraniens. <i>Calcul</i> de la diffusion dans le sol d'après le coefficient de diffusion apparent égal à $4,8 \cdot 10^{-12} \text{ cm}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ | <i>$1,73 \cdot 10^2 \text{ cm} \cdot \text{an}^{-1}$</i> | Angeletti, 1977a |
| | Mesure du taux de migration à partir de la couche superficielle du sol Présence de substances organiques et inorganiques | 0,1 à 1 cm par an augmente la solubilité | AEN, 1981 |
| Vitesse de migration | Compilation de données bibliographiques. Modélisation de vitesses de migration. PuO ₂ Pu(NO ₃) ₄ | 0,8 cm par an 0,8 cm par 100 ans | Nielsen, 1988 |
| | Mesure des profils et calcul des taux de migration du plutonium. Modèle I Modèle II | Le plutonium est principalement localisé dans les 10 premiers centimètres (80% du Pu total), montrant une faible migration. <i>0,21 à 1,56 cm par an</i> <i>0,65 à 0,94 cm par an</i> | Hölgge, 2000 |

Tableau IV-16 : Profil de migration dans les sols du plutonium. Données mesurées (police normale) ou données estimées (*en italique*)

IV.3.3.3 Retour d'expériences sur le comportement environnemental du plutonium dans les eaux ou sédiments

Une étude [Angeletti, 1977a] a mesuré les répartitions des formes physico-chimiques du plutonium et montre que, dans l'eau douce, la moitié du plutonium est présent sous forme liée aux particules (diamètre > 0,45 µm), l'autre moitié étant en solution, principalement sous forme cationique. Une autre étude de la même équipe [Emery, 1975], sur un étang de la même zone géographique, propose une valeur de 10^4 L.kg⁻¹ pour le Kd eau-sédiments. Le Tableau IV-17 donne quelques valeurs de Kd(r) eau-sédiments relevées dans la littérature.

| Conditions | Kd(r) (L.kg ⁻¹) | Référence |
|------------|--|-------------------|
| Eau douce | 10^2 à 10^7 | [Grauby, 1986] |
| Eau douce | 10^4 à 10^6 | [Matsunaga, 1998] |
| Eau douce | 10^4 | [Emery, 1975] |
| Eau de mer | 4 à $8 \cdot 10^4$ (valeur recommandée pour modélisation : 10^5) | [Caroll, 1999] |

Tableau IV-17: Valeurs de coefficient d'adsorption Kd(r) du plutonium pour des systèmes eau-sédiment

L'étude de El Mrabet [El Mrabet, 2001] sur le comportement du plutonium dans le milieu aquatique montre que, lors d'apport de plutonium en solution, il ne faut que quelques minutes pour que 30% du plutonium apporté soit adsorbé sur les particules en suspension, et 10 à 20 heures pour que 50% soit fixé.

Une autre étude [Matsunaga, 1998] montre que la distribution du plutonium dans les rivières proches de Tchernobyl varie en fonction des saisons. La proportion de plutonium lié aux particules varie de 8 à 74%, avec des valeurs plus importantes en fin d'année (64 à 74% lié aux particules) et une plus forte dissolution en début d'année (8 à 33% lié aux particules). Ce phénomène pourrait être dû à la plus importante concentration en matière organique des eaux douces en fin d'année, entraînant une plus forte complexation du plutonium.

Le Tableau IV-18 rassemble un ensemble de données sur l'analyse de la spéciation du plutonium (c'est-à-dire la répartition des formes physico-chimiques du plutonium entre formes en solution, formes colloïdales, ainsi que le degré redox) dans un certain nombre d'environnements (eaux de surface, eau de mer, eaux profondes).

Il ressort de ce tableau que **le plutonium présent dans les eaux naturelles est le plus souvent présent dans les fractions colloïdales** (de nature inorganique ou le plus souvent organique comme les substances humiques) **voire particulaires, et se trouve dans ce cas sous formes réduites Pu(III, IV).**

| Milieu | Etat d'oxydation et sous quelle forme | Référence |
|--|--|----------------------|
| Eau surfacique marine (Pacifique Nord Ouest) | Pu(IV) forme prédominante dans la fraction particulaire ; 10% du Pu sous forme particulaire | Hirose, 2002 |
| Eau surfacique marine (Golfe du Mexique, USA) | Pu sous forme Pu(IV, V) (après marquage de l'eau avec un traceur) Sous forme dissoute pour Pu(V) ^o et associé à la matière particulaire pour Pu(IV) | Choppin, 1990 |
| Eau souterraine du Nevada Test Site ⁹ (USA) (pH 8.4) | Plus de 99% du Pu dans la fraction colloïdale et particulaire (7 nm – 1 µm) Mise en évidence d'un transport sur 1,3 km du Pu sous forme colloïdale en 30 ans | Kersting, 1999 |
| Eaux souterraines (18 à 31 m) au voisinage du site de Hanford ¹⁰ de l'USDOE (pH des eaux ~7 à 8.3) | 7-29% du Pu associé à des colloïdes (1 nm - 0.2 µm) sous forme Pu(III,IV) Pas de mise en évidence d'un transport facilité par des colloïdes sur le site de Hanford | Dai, 2005 |
| Eau souterraine (6 à 28 m) au voisinage du site de Savannah River ¹¹ (Caroline du Sud, USA) – 4 < pH eaux < 7 | Pu majoritairement sous forme dissoute [moins de 4% du Pu sous forme colloïdale) Principalement présent sous forme Pu(V, VI) | Dai, 2002 |
| Sédiments du site de Savannah River | Pu associé principalement à la matière organique présente dans le sédiment | Loyland Asbury, 2001 |
| | Marquage des sédiments avec Pu : si Pu(III, IV) alors plus de 90% de Pu(IV) au bout de 10 ans ; si Pu(VI) alors réduction en Pu(IV) | Kaplan, 2006 |
| Eaux de surface au voisinage du site de Rocky Flats Environment Technology (RFETS) ¹² (Colorado, USA) | Majorité du Pu transporté sous forme particulaire (> 0.45 µm ; 40 – 90%) et colloïdale (~2 nm à 0.45 µm ; 10 – 60%) Confirmé par des expériences au laboratoire indiquant Pu sous forme Pu(IV) et majoritairement associé à des colloïdes de nature organique plutôt qu'inorganique | Santschi, 2002 |

⁹ Lieu des essais nucléaires souterrains réalisés entre 1956 et 1992

¹⁰ Site en cours de remédiation, site datant de 1943, première usine mondiale de production de Pu de production

¹¹ Bassins de décantation des effluents du site (33 ans d'utilisation depuis 1954)

¹² Sols contaminés au voisinage du site RFET dans les années 60 suite à une fuite de réservoirs

| Milieu | Etat d'oxydation et sous quelle forme | Référence |
|--|---|------------------|
| | Caractérisation des colloïdes riches en carbone organique (type substances humiques) validant ainsi la présence de Pu(IV) | Roberts, 2004 |
| Aquifère au voisinage du Site de Los Alamos National Laboratory (LANL) (USA) : pH eaux 6 à 10, Eh 200-300 mV | Pu associé aux colloïdes (25 – 450 nm) et observé à 3400 m de la source de rejets (LANL) | Penrose, 1990 |
| Eaux de surface au voisinage de Tchernobyl (pHeaux ~7 à 8.5) | 49-83% du Pu sous forme colloïdale (> 2-3 nm), principalement de la matière organique (substances humiques) | Matsunaga, 2004 |
| Sols pollués Russie | Pu associé à la matière organique présente dans les sols | Puhakainen, 2001 |
| Lac Karachai au voisinage du site de Mayak (Russie) : pH des eaux 6 à 8, Eh 50 mV à 500 mV | 70 à 90% du Pu associé aux colloïdes (1-15 nm) responsables de son transport à longue distance (>2,5 km) Pu sous forme d'hydroxydes/carbonates de Pu(IV) sorbés sur des oxydes de fer amorphes colloïdaux | Novikov, 2006 |
| Eau d'un lac artificiel (Royaume-Uni) (teneur en carbone organique dans l'eau : 2,5 à 3,3 mg/L) | Pu majoritairement présent dans la fraction colloïdale (5-100 nm) et particulaire (>0,45 µm) pour la partie oxygène du lac ; Pu présent essentiellement dans la partie particulaire (>0,45 µm) pour la part anoxique (plus profonde) du lac ; présence de Pu(IV, V) | Orlandini, 1990 |

Tableau IV-18 : Spéciation du plutonium mesurée dans différents types d'environnement

IV.4 TRANSFERT DANS LA CHAÎNE ALIMENTAIRE

IV.4.1 FACTEURS DE TRANSFERT A LA PLANTE

La contamination des parties consommables des végétaux par des radionucléides résulte des apports aériens, du prélèvement racinaire, puis de la redistribution des éléments.

Divers facteurs interviennent sur ces transferts :

- Les propriétés chimiques du sol (voir paragraphe IV.3.).
- Le prélèvement racinaire : influencé par l'architecture racinaire, l'espèce végétale étudiée, l'existence d'ions proches ayant une valeur nutritive. Ainsi, Bunzl [Bunzl, 1987] montre une très bonne corrélation entre les teneurs en fer et en plutonium dans les plantes, les modifications de la rhizosphère.
- La répartition entre racines et parties consommées : variable selon les espèces végétales, le caractère annuel ou pérenne des plantes.

Tous ces paramètres sont englobés dans le facteur de transfert lorsqu'il est exprimé par rapport aux parties consommées des plantes. Le facteur de transfert du plutonium à la plante est le ratio entre l'activité présente à l'équilibre dans le végétal et l'activité du sol sur lequel pousse le végétal. Il existe deux façons d'exprimer ce facteur, soit par rapport à la masse du végétal frais, soit par rapport à la masse du végétal sec. Le facteur exprimé en fonction de la matière sèche permet de s'affranchir des modifications de masse liées aux différents statuts hydriques des plantes (turgescence, fanaison etc.). Cependant, certains auteurs préfèrent utiliser le facteur de transfert en fonction de la masse fraîche, la consommation des végétaux se faisant en général à l'état frais [Carini, 2001a ; Carini, 2001b ; Carini, 2001c].

La liaison entre les deux valeurs est effectuée par le pourcentage de matière sèche de la plante (pour plus de détails, voir [A.I.E.A., 1994]). Le Tableau IV-19 et le Tableau IV-20 présentent les valeurs de la littérature pour des facteurs de transfert du plutonium entre le sol et les plantes. Ces facteurs sont exprimés respectivement en masse sèche (Tableau IV-19) et en masse fraîche (Tableau IV-20).

| Conditions | Facteur de transfert (Bq.kg ⁻¹ plante / Bq.kg ⁻¹ sol) matière sèche | | | Référence |
|---|--|--|--|-------------------|
| Compilation de données bibliographiques | 1.10 ⁻⁶ à 1.10 ⁻⁴ | | | Francis, 1973 |
| Graminées - Céréales | | | | |
| Compilation, plutonium en laboratoire Orge Végétaux non précisés | 9.10 ⁻⁴ 2.10 ⁻⁴ à 1 | | | Price, 1973 |
| En laboratoire, Pu (grains de blé) Sol alcalin Sol neutre Sol acide | Pu nitrate 3,8.10 ⁻⁶ 5,5.10 ⁻⁷ 1,1.10 ⁻⁷ | Pu chlorure 4,4.10 ⁻⁸ 7,8.10 ⁻⁷ 1,2.10 ⁻⁷ | | Schulz, 1976 |
| Compilation de données bibliographiques Pu Trèfle, plante entière Orge, pousses Orge, feuilles Orge, différents sols | 1.10 ⁻⁴ 5.10 ⁻⁵ - 1,3.10 ⁻⁴ 9.10 ⁻⁴ 4.10 ⁻⁴ - 2,2.10 ⁻⁴ | | | Angeletti, 1977b |
| ²³⁹ Pu, culture in situ Orge – grains Parties aériennes Plante entière Pois – graines Parties aériennes Plante entière | Oxyde 6.10 ⁻⁷ 3,1.10 ⁻⁴ 2.10 ⁻⁴ 1,5.10 ⁻⁵ 2,2.10 ⁻² 1.10 ⁻² | Nitrate 1,4.10 ⁻⁴ 6,4.10 ⁻³ 4,1.10 ⁻³ 2,8.10 ⁻⁴ 1,9.10 ⁻¹ 9.10 ⁻² | | Schreckhise, 1980 |
| ²³⁸ Pu pour le blé sur trois sols, en laboratoire | 4,2.10 ⁻⁵ | 1,8.10 ⁻⁵ | 3,1.10 ⁻⁵ | Nishita, 1981c |
| ²³⁸ Pu et ^{239,240} Pu, cultures en pot sous serre sur sol contaminé par rejet d'usine - 3 sols ¹³ . Activité Pu238 Bq/kg Activité Pu239 Bq/kg | Sol 1 196 1,8 | Sol 2 26 84 | Sol 3 1,8 4,8 | McLeod, 1981 |
| Soja – plante entière Soja – graines Blé – plante entière Blé - grains Maïs – épi Maïs – feuilles Trèfle | <u>6,8.10⁻⁴</u> 5,4.10⁻² <u>5,2.10⁻⁴</u> 3,9.10⁻² <u>2,5.10⁻⁴</u> 1,3.10⁻² <u>3,7.10⁻⁴</u> 2,9.10⁻² <u>2,1.10⁻⁴</u> 1,7.10⁻² <u>1,8.10⁻⁴</u> 1,4.10⁻² <u>4,2.10⁻⁴</u> 2.10⁻² | <u>3.10⁻³</u> 7,2.10⁻⁴ 2,4.10 ⁻³ 5,6.10⁻⁴ <u>6,8.10⁻⁴</u> 1,8.10⁻⁴ <u>1,8.10⁻³</u> 4,2.10⁻⁴ <u>6,8.10⁻⁴</u> 1,6.10⁻⁴ <u>7,5.10⁻⁴</u> 2,1.10⁻⁴ <u>6,1.10⁻⁴</u> 1,4.10⁻⁴ | <u>1,6.10⁻¹</u> 4,7.10⁻² <u>2,6.10⁻¹</u> 7,4.10⁻² <u>1,4.10⁻²</u> 4,1.10⁻³ <u>3,5.10⁻²</u> 1.10⁻² <u>3,6.10⁻²</u> 1.10⁻² <u>1,9.10⁻²</u> 6,1.10⁻³ <u>6,7.10⁻²</u> 1,9.10⁻² | McLeod, 1981 |

¹³ sol 1 : sol sablo-argileux (69% sable, 20% argile, pH 5,2) ; sol 2 : sol argilo-sableux (70% sable, 23% argile, pH 6,4) ; sol 3 : sol sablo-argileux (77% sable, 16% argile, pH 4,9)

| Conditions | Facteur de transfert (Bq.kg ⁻¹ plante / Bq.kg ⁻¹ sol) matière sèche | Référence |
|---|--|-----------------------------|
| Mesure de facteurs de transfert en fonction de la plante et des sols, lysimètre sous serre <u>Craie</u> , maïs Pomme de terre <u>Granit</u> , maïs Pomme de terre | 6.10 ⁻⁵ 1,6.10 ⁻⁴ 1,5.10 ⁻⁴ 1,2.10 ⁻⁴ | Pimpl, 1988 |
| Facteur de transfert sol-plante du ²³⁹ Pu et ²⁴⁰ Pu pour 3 plantes sur 3 sols, in situ <u>Terreau</u> , Chou Carotte <u>Tourbe</u> , Chou Carotte <u>Sable</u> , Chou Carotte | 4,6.10 ⁻⁵ 1,5.10 ⁻⁴ 4,3.10 ⁻⁶ 1,1.10 ⁻⁵ 3,6.10 ⁻⁵ 6,3.10 ⁻⁵ | Nisbet, 1994 |
| Compilation de nombreuses espèces végétales | | |
| Valeurs recommandées | Voir le tableau IV-21 | Ng, 1978 |
| Mesure de facteurs de transfert sur sol sableux | Voir le tableau IV-21 | Pimpl, 1988 |
| Facteurs de transfert issus de la base de données de l'IUR pour le Pu, sol non spécifié Herbe Céréales | 3,4.10 ⁻⁴ 8,6.10 ⁻⁶ | Van der Stricht, 2001 |
| Légumes verts (choux et végétaux verts divers) Légumes racine (racines diverses) | 5,7.10 ⁻⁵ 9,1.10 ⁻⁴ | cite IUR, 1989 |
| Compilation de données concernant le site de Savannah River (USA). | Voir le Tableau IV-21 | Cummins, 1994 |
| Valeurs recommandées, tous types de sol. | Voir le Tableau IV-21 | AIEA, 1994 Frissel, 1992 |
| Compilation de facteurs de transfert pour de nombreux radionucléides | Voir le Tableau IV-21 | Carini, 2001 |
| Champignons | | |
| Champignons in situ en Pologne et Ukraine ¹⁴ . Pologne Ceps "de bordeaux" <i>Boletus edulis</i> Bolet bai <i>Xerocomus badius</i> Lactaire velouté <i>Lactarius vellereus</i> Lépiote élevée <i>Macrolepiota procera</i> Armillaire couleur de miel <i>Armillariella mellea</i> Ukraine Bolet bai <i>Xerocomus badius</i> Nonnette voilée <i>Suillus luteus</i> Paxille enroulé <i>Paxillus involutus</i> Girolle <i>Cantharellus cibarius</i> | 1,86.10 ⁻³ 3,95.10 ⁻³ 8,5.10 ⁻³ 1,94.10 ⁻³ 6,64.10 ⁻⁴ 9,8.10 ⁻⁴ 1,1.10 ⁻³ 9,1.10 ⁻⁴ 1,8.10 ⁻² | Mietelski, 2002 |

¹⁴ Seuls les facteurs de transfert calculés en fonction de l'activité présente dans l'humus ont été retenus car l'humus constitue l'horizon de nutrition des mycéliums de champignons. L'activité dans l'humus est non précisée.

| Conditions | Facteur de transfert (Bq.kg ⁻¹ plante / Bq.kg ⁻¹ sol) matière sèche | | Référence |
|---|---|---------------------------|---------------------------|
| Milieus particuliers | | | |
| Facteur de transfert en milieu de dunes : en zone de dunes, le dépôt aérien dû aux embruns est très important <ul style="list-style-type: none"> • Oyat Zone proche de la mer Zone éloignée de la mer • Fétuque rouge Zone proche de la mer Zone éloignée de la mer | ²³⁸ Pu | ^{239,240} Pu | Coppelstone, 2001 |
| | 9,2.10 ⁻² | 5,2.10 ⁻² | |
| | 4,5.10 ⁻² | 3,8.10 ⁻² | |
| | 4,1.10 ⁻² | 3,3.10 ⁻² | |
| | 4,5.10 ⁻² | 3,4.10 ⁻² | |
| | | | |
| Exemple d'étude particulière pour décontamination avec application de DTPA | | | |
| Sol 1 ¹⁵ | Moutarde indienne | Tournesol | Lee, 2002b |
| | Citrate de ²³⁹ Pu (46,25 Bq.mL ⁻¹) | 7,5.10 ⁻² | |
| | Citrate de ²³⁹ Pu (231,3 Bq.mL ⁻¹) | 2,9.10 ⁻² | |
| | Nitrate de ²³⁹ Pu (44,4 Bq.mL ⁻¹) | 5,6.10 ⁻² | |
| Sol 2 | Nitrate de ²³⁹ Pu (222 Bq.mL ⁻¹) | 1,8.10 ⁻² | |
| | Citrate de ²³⁹ Pu (46,25 Bq.mL ⁻¹) | 4,6.10 ⁻² | |
| | Citrate de ²³⁹ Pu (231,3 Bq.mL ⁻¹) | 1.10 ⁻² | |
| | Nitrate de ²³⁹ Pu (44,4 Bq.mL ⁻¹) | 4.10 ⁻² | |
| | Nitrate de ²³⁹ Pu (222 Bq.mL ⁻¹) | 8,3.10 ⁻³ | |
| Facteur de transfert en hydroponie ¹⁶ du nitrate de ²³⁹ Pu avec deux activités de contamination. | | 17,76 Bq.mL ⁻¹ | 35,52 Bq.mL ⁻¹ |
| Moutarde indienne – parties aériennes | | 2,1 | 2,7 |
| Racines | | 483 | 698 |
| Tournesol – parties aériennes | | 2,6 | 1,9 |
| Racines | | 479 | 580 |
| | | | Lee, 2002a |

Tableau IV-19 : Facteurs de transfert sol/plante du plutonium, résultats exprimés en masse sèche du végétal. Données mesurées (police normale) ou données estimées (*en italique*)

¹⁵ Sol 1 : argilo-sableux (57% sable, 23% argile, pH 4,8, riche en oxy-hydroxydes de fer, pas de CaCO₃), Sol 2 : sablo-limoneux (68% sable, 26% limon, pH 7,5, pauvre en oxy-hydroxydes, CaCO₃ 2,45%)

¹⁶ L'hydroponie ou culture hydroponique est la culture de plantes réalisée sur substrat neutre et inerte (de type sable, pouzzolane, boulettes d'argile, mousse de polyuréthane, fibres, laine de roche, etc.).

| | fraction matière sèche | A.I.E.A. M.F. | Pimpl M.F. | Cummins M.F. | Ng 1978 M.F. | Ng 1982 M.F. | Müller M.F. | Brown M.F. | Rommens M.F. | C.E.C. M.F. | Carini M.F. | Valeur retenue |
|----------------|------------------------------|-------------------------|----------------------|------------------------|------------------------|------------------------|-----------------------|----------------------|------------------------|-----------------------|-----------------------|---------------------------|
| céréale | 0,86 | <u>7,4E-06</u> | <u>1,7E-04</u> | <u>1,7E-03</u> | <u>1,7E-03</u> | 1,8E-03 | 1,0E-04 | 2,0E-05 | 2,2E-05 | 1,0E-06 | | 1,0E-05 |
| maïs | 0,55 | | <u>1,1E-05</u> | <u>3,3E-05</u> | <u>1,1E-03</u> | 1,7E-03 | 2,0E-03 | 2,0E-05 | 2,2E-05 | | | 3,0E-05 |
| fourrage | 0,19 | <u>1,5E-04</u> | | | <u>1,9E-04</u> | | | | | | | 3,0E-04 |
| fourrage maïs | 0,31 | <u>2,3E-05</u> | | | <u>3,1E-04</u> | | | | | | | 3,0E-04 |
| herbe | 0,1 | <u>3,4E-05</u> | <u>9,0E-06</u> | | <u>1,0E-04</u> | 9,0E-04 | 2,0E-04 | 1,0E-04 | 1,0E-04 | 1,0E-04 | | 1,0E-04 |
| pois | 0,25 | | | | <u>3,8E-04</u> | | | | | | | 3,0E-04 |
| soja | 0,31 | | | <u>9,3E-04</u> | | | | | | | | |
| carotte | 0,16 | <u>7,0E-04</u> | <u>1,4E-05</u> | | | | | | | | | 5,0E-05 |
| radis | 0,09 | <u>6,9E-05</u> | <u>7,2E-05</u> | | | | | | | | | 5,0E-05 |
| pomme de terre | 0,21 | <u>3,2E-05</u> | <u>4,2E-04</u> | | <u>1,3E-03</u> | 1,2E-03 | 1,0E-04 | 5,0E-05 | | | | 5,0E-05 |
| chou | 0,12 | <u>4,9E-06</u> | <u>7,2E-06</u> | | <u>1,8E-04</u> | 1,2E-04 | | 1,0E-05 | | | | 1,0E-05 |
| concombre | 0,05 | <u>4,5E-06</u> | <u>1,0E-06</u> | | <u>7,5E-05</u> | | | | | | | 1,0E-05 |
| poireau | 0,11 | <u>7,0E-05</u> | <u>2,2E-05</u> | | | | | 1,0E-05 | | | | 3,0E-05 |
| oignon | 0,11 | <u>9,6E-06</u> | <u>6,6E-05</u> | | | | | | | | | 3,0E-05 |
| tomate | 0,06 | | <u>3,0E-06</u> | | <u>9,0E-05</u> | 9,0E-05 | | | | | | 1,0E-05 |
| pomme | 0,16 | | | | | | | | | | 2,34 à 9,2E-04 | 5,0E-04 |
| pêche | 0,11 | | | | | | | | | | 1,63E-04 | 1,0E-04 |
| fraise | 0,1 | | | | | | | | | | 0,3 à 7E-04 | 5,0E-04 |
| pastèque | 0,07 | | | | | | | | | | 1,11E-04 | 1,0E-04 |
| papaye | 0,08 | | | | | | | | | | 7,20E-07 | 5,0E-07 |
| arbre à pain | 0,21 | | | | | | | | | | 4,30E-06 | 5,0E-06 |
| noix de copra | 0,59 | | | | | | | | | | 2,60E-06 | 3,0E-06 |
| noix de coco | 0,2 | | | | | | | | | | 6,90E-06 | 5,0E-06 |
| légume feuille | 0,10 | <u>7,5E-06</u> | | | | | 1,0E-04 | | 5,8E-06 | 1,0E-04 | | 1,0E-05 |
| légume racine | 0,15 | <u>1,3E-04</u> | | | | | 1,0E-04 | 5,0E-05 | 4,5E-05 | 1,0E-03 | | 5,0E-05 |
| légume fruit | 0,06 | | | | <u>8,3E-05</u> | | 1,0E-04 | | 1,2E-05 | | | 1,0E-05 |
| fruit | 0,16 | | | | | | 1,0E-04 | | | | | 5,0E-05 |

Tableau IV-21 : Facteur de transfert sol/plante du plutonium, en Bq.kg⁻¹ de plante/ Bq.kg⁻¹ de sol, résultats exprimés en masse fraîche du végétal. Données de la bibliographie (police normale) ou données recalculées (soulignées) avec les taux de matière sèche des végétaux [A.I.E.A., 1994]

Discussion

Il ressort des différents documents plusieurs éléments :

Le premier point porte sur les difficultés d'expérimentations et correspond au fait que les résultats entre cultures de plein champ et cultures en serres, lysimètres ou pots divergent de façon importante. La raison en est que **le transfert racinaire est très faible** et, en conséquence, les résultats peuvent être notablement perturbés par l'existence d'autres voies de transfert, en particulier dans les années 70 par les apports des retombées, ou par la remise en suspension locale des dépôts antérieurs, qui se moyenne sur une surface sensiblement plus grande que la parcelle ou la serre d'expérimentation. Ceci peut en particulier expliquer l'absence totale parfois notée de relation entre l'activité du sol et l'activité des plantes [McLeod, 1981].

Le deuxième point concerne une éventuelle différence de comportement entre les isotopes 238 et 239, difficilement crédible a priori. Là encore, le phénomène précédent explique les distorsions de résultats, le rapport isotopique des retombées des essais en cours (ou antérieurs et remis en suspension) n'ayant aucune raison d'être dans le rapport isotopique du plutonium des sols de l'expérience, il s'ensuit que les facteurs de transfert divergent dans le rapport des activités du sol. Cette question s'est dissipée avec l'amélioration des protocoles expérimentaux d'une part et celle des moyens de mesure d'autre part.

En ce qui concerne l'influence de la nature chimique des apports de plutonium sur les transferts, la forme oxyde apparaît particulièrement peu transférable. Ceci se voit sur les valeurs peu élevées des facteurs obtenus avec des sols contaminés par du plutonium d'armes. Schreckhise [Schreckhise, 1980] a montré que les prélèvements en plutonium étaient plus importants, d'un facteur 10, lorsque les apports sont sous forme de nitrate que sous forme d'oxyde. D'autres informations existent relatives à l'oxalate, glycolate ou citrate. Il n'apparaît pas de tendance claire.

On retiendra que le transfert sol- plante du plutonium est très faible. En conséquence, ce n'est pas la voie de contamination interne des végétaux qui explique l'activité des végétaux mais la contamination externe par contact et adsorption de particules de sol. Une grande partie de la contamination des racines est extérieure et liée à l'adsorption du plutonium sur les parois cellulaires de l'épiderme racinaire qui sont chargées négativement. Une valeur de 10^{-5} peut être atteinte s'il y a 10 mg de sol dans un kilogramme de végétal. On notera une tendance dans les ouvrages de synthèse à utiliser des facteurs de transferts assez proches (10^{-5} à 10^{-4}) avec des valeurs un peu plus importantes pour les légumes racines et l'herbe.

En termes d'impact, ces valeurs conduisent à ce que **la voie d'atteinte correspondant à l'ingestion de végétaux contaminés à partir du dépôt au sol soit négligeable devant la voie "ingestion de la contamination foliaire par dépôt atmosphérique ou par irrigation"**.

Le cas particulier des champignons est abordé par Mietelski [Mietelski, 2002] qui propose trois voies d'apport du plutonium au carpophore¹⁷ : la contamination externe par les particules du sol lors du développement du carpophore, l'adsorption des ions en solution sur la surface du carpophore et le prélèvement des ions par le mycélium avec transfert différé vers le carpophore. Les facteurs de transfert varient de 10^{-5} à 10^{-4} kg.kg⁻¹ de poids frais, en raison de leur faible teneur en matière sèche. Ceci ne permet pas de les distinguer des légumes, qui sont consommés en plus grande quantité.

Les animaux consomment de la terre en pâturant. En évaluant entre 200 et 400 g.j⁻¹ la consommation de sol pour une ration de 70 kg d'herbe à 16% de matière sèche, le facteur équivalent de transfert pour l'herbe de pâtures serait par voie externe de $3 \cdot 10^{-3}$ à $5 \cdot 10^{-3}$ kg.kg frais⁻¹. On voit également ici que le transfert sol-herbe par voie interne est secondaire dans la voie "sol – ration – animal - lait et viande – homme".

¹⁷ Organe fructifère des champignons supérieurs

IV.4.2 FACTEURS DE TRANSLOCATION

Le facteur de translocation est la mesure de la capacité de transfert d'un élément depuis la feuille vers la zone comestible. Il existe très peu d'informations sur ce sujet sinon que les transferts depuis les feuilles vers les organes consommés, de type fruits ou racines ou tubercules sont non observés, inexistantes ou négligeables.

Les modélisateurs se contentent d'utiliser les valeurs présentées dans le Tableau IV-22.

| Végétal | Facteur de translocation | Référence |
|---|--------------------------|-----------|
| Maïs, Soja, Blé, Avoine, Orge, Sorgho, Seigle, Arachide | 1.10^{-2} | Ng, 1978 |
| Pêches, Pommes, Melon d'eau | 1.10^{-2} | |
| Pommes de terre douces, Chou, Concombres, Haricots, Pommes de terre | 1.10^{-2} | |

Tableau IV-22 : Translocation du plutonium dans les végétaux

IV.4.3 PERIODE BIOLOGIQUE DANS LES VEGETAUX

On reprendra ici également les informations très documentées du rapport IAEA/TECDOC 857 [Pröhl, 1996].

Après un dépôt sur les végétaux, des processus de transfert ou d'élimination environnementaux vont s'ajouter à la décroissance radioactive pour conduire à une décroissance de l'activité présente sur et dans le végétal.

En admettant en première approximation que les mécanismes soient purement exponentiels décroissants et ne concernent qu'un seul compartiment, on caractérise habituellement ce phénomène de perte par une période dite "biologique", temps au bout duquel la moitié de l'activité initiale a été réduite de moitié. Il existe deux manières d'exprimer mathématiquement cette période de décroissance.

- La première est de l'exprimer en concentration, grandeur directement obtenue à l'analyse en divisant par la masse de l'échantillon.
- La deuxième est de considérer l'activité sur une surface unitaire de sol. Cette deuxième approche nécessite de mesurer simultanément le rendement du végétal étudié. Elle a l'avantage de permettre la séparation entre les mécanismes d'élimination ou transfert proprement dits et le mécanisme de croissance végétale qui conduit, par simple augmentation de la masse avec le temps, à une dilution de l'activité déposée. Il serait souhaitable de distinguer la période biologique traditionnelle (incluant la croissance) et la période environnementale ne concernant que les facteurs externes.

La période biologique est influencée par plusieurs mécanismes pour lesquels il est difficile de faire la part des choses. Il s'agit de l'élimination par le vent d'aérosols déposés, du lessivage par la pluie, de la perte de feuilles ou de renouvellement des téguments. Ces mécanismes ne sont en fait pas exponentiels et n'agissent principalement que pendant les premiers jours. Leur efficacité reste par ailleurs assez mesurée. Miller [Miller, 1983] donne une valeur moyenne de 20 jours pour des aérosols (la valeur indiquée varie de 19 à 24 jours).

La décroissance de la concentration liée à la croissance végétale est par contre plus proche d'un mécanisme suivant une loi de type exponentiel tout au moins pendant la phase de croissance de l'appareil végétatif aérien (feuilles et tige). Cette période est de l'ordre de la quinzaine de jours en

pleine période de croissance (mai juin) et plus généralement de l'ordre de 20 à 30 jours. La période biologique est alors entre 9 et 19 jours d'après [Miller, 1983].

Witherspoon [Witherspoon, 1971] a étudié la rétention sur diverses plantes de particules de diamètres importants : quatre périodes apparaissent, ce qui signifie que la décroissance n'est pas exponentielle. En pratique, on ne voit guère de différence entre les deux granulométries, peu de différences entre espèces. En négligeant la première période dont l'intégrale est petite, et en moyennant sur les deux périodes suivantes, on retrouve les ordres de grandeur précédemment cités. La dernière période n'a que peu de réalité. Les résultats sont reportés dans le Tableau IV-23 et sur la Figure IV-15.

| Période après dépôt | Demi-vie biologique (jours) | | | | | |
|--------------------------------|-----------------------------|--------|------|--------|-----------|-------------|
| | jour | Squash | Soja | Sorgho | Cacahuète | Lespedeza |
| <i>Particules de 44-88 µm</i> | | | | | | |
| 0-1,5 | 2,5 | 2,1 | 2,8 | 5,1 | 1,4 | 2,8+/-0,71 |
| 1,5-14 | 7,2 | 7,3 | 6,6 | 8,4 | 8,4 | 7,6+/- 0,35 |
| 14-28 | 42 | 18 | 35 | 18 | 18 | 26+/- 4,7 |
| 28-56 | 39 | 45 | 270 | 32 | 33 | 84+/-46 |
| <i>Particules de 88-176 µm</i> | | | | | | |
| 0-1,5 | 1,6 | 1,5 | 4,1 | 1,3 | 2,9 | 2,3+/-0,53 |
| 1,5-14 | 7,4 | 7,2 | 7,4 | 16 | | 9,1+/-1,6 |
| 14-28 | 15 | 16 | 19 | 16 | 14 | 16+/-1,0 |
| 28-56 | 57 | 35 | 38 | 29 | 38 | 39+/-5,2 |

Tableau IV-23 : Demi-vie biologique pour diverses plantes et pour différentes granulométries de particules

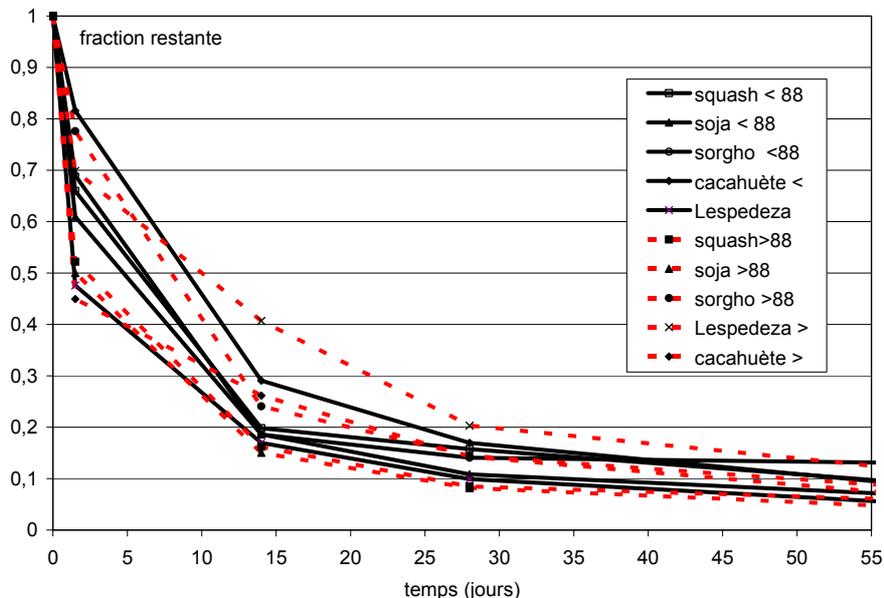


Figure IV-15 : Evolution de la fraction restante sur les végétaux

Pour des radionucléides liés à des particules, la demi-vie biologique incluant le terme de croissance est de 12 jours en moyenne avec une plage de variation de 9 à 19 jours. La demi-vie environnementale (hors croissance et définie par unité de surface) est de 20 jours en moyenne.

Les phénomènes participant aux pertes biologiques sont classiquement représentés par des fonctions exponentielles décroissantes. En réalité, ce n'est pas le cas et les pertes sont plus significatives dans les premiers jours. Cependant, elles portent sur 20 à 50% de l'activité, ce qui est dans les incertitudes non maîtrisables. Des particules de 44 à 177 μm ne semblent pas se distinguer de particules plus petites, en ce qui concernent la période biologique.

IV.4.4 FACTEURS DE TRANSFERT VERS LA VIANDE ET LES ŒUFS

Le facteur de transfert vers la viande et les œufs est mesuré par le rapport entre la concentration du radionucléide dans le produit animal consommé et la quantité de radionucléide consommée quotidiennement par l'animal. Il est exprimé en j.kg^{-1} .

La notion de facteur de transfert se base sur l'existence d'un état d'équilibre entre les concentrations dans l'alimentation des animaux et dans la viande. L'animal consommant chaque jour une activité constante arrive, lorsqu'il y a un terme d'élimination significatif, au bout d'un certain temps à une activité constante dans sa chair. Cependant, les études concernant la dynamique de transfert du plutonium dans l'animal, rapportées en particulier dans le travail de synthèse de Coughtrey [Coughtrey 1990], montrent que les périodes biologiques du plutonium dans ces tissus sont considérablement plus longues que la durée de vie de l'animal. On peut donc considérer que la viande et le foie de l'animal ne sont jamais à l'équilibre, ce qui invalide en pratique l'utilisation du facteur de transfert traditionnel, exprimé en $(\text{Bq/kg})/(\text{Bq/j})$, qui correspond précisément à un état d'équilibre.

L'utilisation du facteur de transfert est donc inappropriée pour les radioéléments dont la période biologique est longue. Il faut toutefois noter que l'utilisation du facteur de transfert à l'équilibre maximalise la contamination de la viande, et ne fait donc pas encourir de risque de sous estimation du danger pour les populations [Beresford, 1998]. La voie d'exposition "consommation des produits d'origine animale" étant une voie mineure (cf. paragraphe VI), cette approche reste fréquente dans les modèles utilisés en routine pour les études d'impact des installations.

En toutes rigueurs, le raisonnement qui doit être suivi pour cet élément doit donc être différent et peut être effectué sur la base d'un bilan.

Cas de la viande

En considérant :

- un dépôt initial de 1 Bq.m^{-2} d'herbe,
- une décroissance biologique de ce dépôt ayant une période de 30 jours,
- une durée totale de pâture de 3 mois, soit 120 jours, temps au bout duquel les animaux ont effectué une rotation complète sur les pâturages et reviennent donc sur des parcelles déjà broutées,
- une consommation de 70 kg d'herbe par jour par un animal,
- un rendement de l'herbe de $0,5 \text{ kg.m}^{-2}$,

la consommation de l'animal est alors de 5681 Bq au total. Après quoi, les apports par les pâtures suivantes sont relativement mineurs.

En considérant également :

- un passage intestinal chez la vache de 10^{-5} , correspondant à du plutonium sous forme oxyde PuO_2 ,
- une vache de 700 kg (dont 90% de tissus mous et 2% de foie),
- que 5% de l'activité ayant passé la barrière intestinale se retrouve dans la viande et que 45% se retrouve dans le foie,
- et en négligeant toute perte ultérieure,

on obtient une activité de $4,5 \cdot 10^{-6}$ Bq par kg de viande et de $1,8 \cdot 10^{-3}$ Bq par kg de foie.

Si l'on cherche maintenant à exprimer, par calcul inverse, ce transfert dans le même système d'unité que pour les éléments régulés (ayant une élimination biologique), en considérant une consommation moyenne sur la période de 120 jours, soit 47 Bq par jour, les facteurs de transfert équivalents qui conduiraient à la même valeur d'activité de la viande et du foie seraient respectivement de 10^{-7} et $4 \cdot 10^{-5} \text{ j.kg}^{-1}$ à 120 jours.

Dans le cas où l'on considère une contamination constante des pâturages sur toute la durée de vie de l'animal, la viande et le foie n'étant consommés qu'à la mort de l'animal, pour une durée de vie de 10 ans pour une vache (laitière ou viande), l'animal consomme alors 140 Bq par jour, soit au total 511 000 Bq. En reprenant les mêmes hypothèses d'assimilation et de répartition de l'activité que précédemment, on obtient, en fin de vie, des activités de la viande et du foie respectivement de $4 \cdot 10^{-4}$ et $0,16 \text{ Bq.kg}^{-1}$. Traduites en facteur de transfert, on obtient donc une valeur de $8,6 \cdot 10^{-6} \text{ j.kg}^{-1}$ pour la viande, et de $3,5 \cdot 10^{-3} \text{ j.kg}^{-1}$ pour le foie.

On voit donc ici que le facteur de transfert augmente avec la durée de consommation de l'animal, et que cette représentation mathématique est assez hasardeuse. Le même calcul peut être réalisé avec différents animaux en s'adaptant à leurs caractéristiques de consommation et de vie. Pour le blé consommé par la volaille, on considère un rendement de $0,8 \text{ kg.m}^{-2}$. Les autres animaux sont supposés consommer de l'herbe. Le Tableau IV-24 ci-dessous présente les facteurs de transfert évalués pour ces différents animaux. Le Tableau IV-25 suivant compare les résultats ainsi obtenus avec des valeurs de la littérature.

| | vache | boeuf de boucherie | veau | ovins | poulets |
|--|---------------------|-----------------------|---------------------|---------------------|---------------------|
| Consommation (kg/j) | 70 | 45 | 9,35 | 7,37 | 0,12 |
| Activité ingérée quotidiennement (Bq/j) | 140 | 90 | 18,7 | 14,7 | 0,15 |
| durée de vie (ans) | 10 | 3 | 1 | 1 | 0,33 |
| Activité totale ingérée après un accident (Bq) | 568 | 3 652 | 759 | 598 | 18 |
| poids total (kg) | 700 | 300 | 110 | 60 | 2 |
| masse de viande (kg/animal) | 630 | 270 | 99 | 54 | 1,8 |
| masse de foie (kg) | 14 | 6 | 2,2 | 1,2 | 0,04 |
| | | | | | |
| Activité de la viande (Bq/kg) | 4,51E-06 | 6,76E-06 | 3,83E-06 | 5,54E-06 | 5,00E-06 |
| Activité du foie (Bq/kg) | 1,83E-03 | 2,74E-03 | 1,55E-03 | 2,24E-03 | 2,03E-03 |
| Facteur de transfert (FT) accident (en j/kg) | | | | | |
| Viande | 9,5E-08 | 2,2E-07 | 6,1E-07 | 1,1E-06 | 3,3E-05 |
| Foie | 3,9E-05 | 9,00E-05 | 2,5E-04 | 4,5E-04 | 1,4E-02 |
| Facteur de transfert (FT) rejet continu (en j/kg) | | | | | |
| Activité totale; rejet continu (Bq ingéré) | 511000 | 98550 | 6826 | 5378 | 18 |
| Viande | $2,9 \cdot 10^{-6}$ | $2,0 \cdot 10^{-6}$ | $1,8 \cdot 10^{-6}$ | $3,4 \cdot 10^{-6}$ | $3,3 \cdot 10^{-5}$ |
| Foie | $1,2 \cdot 10^{-3}$ | $8,2 \cdot 10^{-4}$ | $7,5 \cdot 10^{-4}$ | $1,4 \cdot 10^{-3}$ | $1,4 \cdot 10^{-2}$ |
| Rapport des FT en mode normal/accident | 89,96 | 26,99 | 9,00 | 9,00 | 1,00 |

Tableau IV-24 : Données permettant le calcul des facteurs de transfert, en j.kg^{-1} , du plutonium vers la viande et valeurs calculées en fonction des circonstances.

| | Calculs précédents | Coughtrey accident à 100 j | CEC accident à 100 j | SSK conditions d'équilibre | USSR |
|------------------|--------------------|----------------------------------|----------------------------|----------------------------------|---------------------|
| viande de bœuf | $2 \cdot 10^{-7}$ | $1,8 \cdot 10^{-5}$ | 10^{-5} | $2 \cdot 10^{-6}$ | 10^{-6} |
| foie de bœuf | $9 \cdot 10^{-5}$ | $9,4 \cdot 10^{-3}$ | $7 \cdot 10^{-3}$ | | |
| veau (1 an) | $6 \cdot 10^{-7}$ | $9,6 \cdot 10^{-4}$ | | | |
| foie de veau | $3 \cdot 10^{-4}$ | $3,1 \cdot 10^{-2}$ | | | |
| chèvre et mouton | 10^{-6} | $9,4 \cdot 10^{-5}$ | 10^{-4} | 10^{-4} | |
| foie de mouton | $5 \cdot 10^{-4}$ | $3,6 \cdot 10^{-2}$ | $5 \cdot 10^{-2}$ | | |
| agneau | | $1,1 \cdot 10^{-3}$ | | | |
| foie d'agneau | | $4 \cdot 10^{-2}$ | | | |
| porc | | $8,8 \cdot 10^{-4}$ | $5 \cdot 10^{-5}$ | $2 \cdot 10^{-5}$ | $3 \cdot 10^{-6}$ |
| foie de porc | | $3 \cdot 10^{-2}$ | 3,8 | $4 \cdot 10^{-2}$ | |
| poulet | $3 \cdot 10^{-5}$ | $1,4 \cdot 10^{-2}$ | $3 \cdot 10^{-3}$ | $1,6 \cdot 10^{-4}$ | $2 \cdot 10^{-5}$ |
| foie de poulet | 10^{-2} | $7 \cdot 10^{-1}$ | | | |
| oeufs | | | $8 \cdot 10^{-3}$ | $8 \cdot 10^{-3}$ | $3,3 \cdot 10^{-3}$ |
| lait | | $1,1 \cdot 10^{-6}$ | $3 \cdot 10^{-7}$ | 10^{-7} | $2 \cdot 10^{-6}$ |
| lait de chèvre | | $9,4 \cdot 10^{-6}$ | | | |

Tableau IV-25 : Facteurs de transfert, en j.kg^{-1} , du plutonium vers la viande. Données calculées et données calculées ou citées dans [Coughtrey, 1990]

Le Tableau IV-26 fournit une comparaison entre les valeurs présentées dans [Coughtrey, 1990] et les valeurs calculées ici pour une consommation constante sur la durée de vie des animaux.

| Facteur de passage | PuO_2 (ce calcul) 10^{-5} | Nitrate 10^{-4} | Forme soluble 10^{-3} | Coughtrey |
|--------------------|---|----------------------|----------------------------|----------------------|
| Viande de bœuf | $2,90 \cdot 10^{-6}$ | $2,90 \cdot 10^{-5}$ | $2,90 \cdot 10^{-4}$ | $1,90 \cdot 10^{-3}$ |
| Foie de bœuf | $1,17 \cdot 10^{-3}$ | $1,17 \cdot 10^{-2}$ | $1,17 \cdot 10^{-1}$ | $1,00 \cdot 10^0$ |
| Veau (1 an) | $1,84 \cdot 10^{-6}$ | $1,84 \cdot 10^{-5}$ | $1,84 \cdot 10^{-4}$ | $1,10 \cdot 10^{-1}$ |
| Foie de veau | $7,47 \cdot 10^{-4}$ | $7,47 \cdot 10^{-3}$ | $7,47 \cdot 10^{-2}$ | $6,80 \cdot 10^0$ |
| Chèvre et mouton | $3,38 \cdot 10^{-6}$ | $3,38 \cdot 10^{-5}$ | $3,38 \cdot 10^{-4}$ | $9,80 \cdot 10^{-3}$ |
| Foie de mouton | $1,37 \cdot 10^{-3}$ | $1,37 \cdot 10^{-2}$ | $1,37 \cdot 10^{-1}$ | $3,80 \cdot 10^0$ |
| Agneau | | | | $3,90 \cdot 10^{-1}$ |
| Foie d'agneau | | | | $2,00 \cdot 10^1$ |
| Porc | | | | $8,40 \cdot 10^{-3}$ |
| Foie de porc | | | | $3,80 \cdot 10^0$ |
| Poulet | $3,35 \cdot 10^{-5}$ | $3,35 \cdot 10^{-4}$ | $3,35 \cdot 10^{-3}$ | $2,90 \cdot 10^{-1}$ |
| Foie de poulet | $1,36 \cdot 10^{-2}$ | $1,36 \cdot 10^{-1}$ | $1,36 \cdot 10^0$ | $1,40 \cdot 10^{+1}$ |
| Oeufs | | | | $8,00 \cdot 10^{-3}$ |
| Lait | | | | $1,20 \cdot 10^{-4}$ |
| Lait de chèvre | | | | $1,00 \cdot 10^{-3}$ |

Tableau IV-26 : Facteurs de transfert, en j.kg^{-1} , du plutonium vers la viande. Données calculées et données calculées ou citées dans [Coughtrey 1990]

Les valeurs rassemblées dans le Tableau IV-27 correspondent pour la plupart à un calcul à l'état d'équilibre.

Elles illustrent bien la variabilité des résultats, variabilité résultant très vraisemblablement de la durée des expérimentations ou/et de la méthode de calcul.

| Conditions | Facteur de transfert (j.kg^{-1}) | Référence |
|---|---|-----------------------------------|
| Mesure du transfert après administration orale Pu citrate Pu dioxyde | 1.10^{-7} $2,7.10^{-9}$ | Ng, 1977 cite Stanley, 1974 |
| Facteur de transfert utilisé dans RESRAD Estimation des FT pour le Pu | <i>1.10^{-4}</i> | DOE, 1997b |
| Coefficient de transfert à la viande Citrate de plutonium Bœuf Porc Poulet | <i>1.10^{-6} $3,4.10^{-6}$ 2.10^{-5}</i> | Boone, 1981 cite Ng, 1979a |
| Compilation de données mesurées. Calcul des facteurs de transfert à partir de traceurs actifs, données expérimentales, citrate de Pu (sauf poulet) Bœuf Poulet (PuO_2) Porc Mouton | $1,0.10^{-6}$ $2,0.10^{-5}$ <i>$3,4.10^{-6}$</i> <i>$6,7.10^{-6}$</i> | Ng, 1982 |
| Valeurs recommandées Bœuf Veau Mouton adulte Agneau Porc Poule | <i>1.10^{-5} 1.10^{-3} $9,4.10^{-5}$ $3,1.10^{-3}$ 8.10^{-5} 3.10^{-3}</i> | AIEA, 1994 |
| Valeurs recommandées par Radiation Protection <u>Bœuf</u>, muscle foie <u>Mouton</u>, muscle foie <u>Porc</u>, muscle <u>Poulet</u>, muscle <u>Chèvre</u>, muscle | <i>1.10^{-4} 2.10^{-2} 4.10^{-4} 3.10^{-2} 8.10^{-5} 2.10^{-4} 1.10^{-4}</i> | Simmonds, 1995 |

Tableau IV-27 : Facteurs de transfert, en j.kg^{-1} , du plutonium vers la viande. Données mesurées (police normale) ou données estimées (*en italique*)

En pratique, il conviendrait de ne pas utiliser ce type de facteur de transfert, mais plutôt d'utiliser un facteur d'intégration entre l'activité ingérée et l'activité de l'organe considéré.

Selon les suggestions de Coughtrey, le rapport qui serait pratiquement stable est le rapport entre la concentration de l'organe et l'activité ingérée sur la vie de l'animal : l'unité est alors en kg^{-1} , soit encore en $(\text{Bq} \cdot \text{kg}^{-1})/\text{Bq}$. L'expression prend alors la forme suivante :

$$F = \frac{C(t)}{A_{ing}(t)} = F_{intestinal} \cdot \frac{F_{org}}{M_{org}}$$

avec : $F_{intestinal}$: facteur de passage de la barrière intestinale,

F_{org} : fraction qui passe dans l'organe considéré,

M_{org} : masse de l'organe.

Dans ces conditions, la discussion développée dans le rapport [Coughtrey, 1990] prend tout son intérêt.

Le passage de la barrière intestinale dépend de la nature chimique des molécules concernées. Il ne semble pas y avoir pour ce paramètre de discrimination significative entre les grands mammifères (homme, vache, cochon, mouton...). En règle générale, la forme chimique que l'on attend dans l'environnement est de l'oxyde de plutonium de très faible solubilité. C'est pourquoi nous recommandons par défaut l'utilisation d'un facteur de passage de 10^{-5} . La valeur de 10^{-4} est recommandée pour les nitrates et la valeur de 10^{-3} pour des formes solubles.

Le passage aux tissus mous est de 5%, celui au foie de 45%, 5% sont rapidement éliminés dans les urines et les 45% restant étant bloqués dans les os.

Enfin, la contamination par inhalation des animaux semble avoir peu d'effet sur le transfert à l'homme car, d'une part, la quantité de plutonium inhalé est faible par rapport aux 2 à 10% du plutonium inhalé qui passe des poumons vers la circulation sanguine, et d'autre part 80% de ce dernier est fixé sur les os des animaux [Langham, 1966, cité par Romney, 1970]. On peut vérifier par le calcul que cette voie d'exposition est au moins dix fois moins importante que la voie ingestion en considérant une vitesse de dépôt au sol de $10^{-2} \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$, un débit respiratoire d'une vache de l'ordre de $2 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$ et les paramètres précédemment indiqués pour la consommation.

Cas des œufs

| Conditions | Facteur de transfert ($\text{j} \cdot \text{kg}^{-1}$) | Référence |
|---|--|--------------------------------------|
| Compilation de données mesurées. Calcul des facteurs de transfert à partir de traceurs actifs, données expérimentales Œufs (contenu) Œufs (entier) | <i>$2,9 \cdot 10^{-5}$</i> <i>$3,3 \cdot 10^{-5}$</i> | Ng, 1982 |
| Facteurs utilisés dans ECOSYS-87 Œufs | <i>$7 \cdot 10^{-3}$</i> | Müller, 1993 |
| Valeurs recommandées Œufs | <i>$5 \cdot 10^{-4}$</i> | AIEA, 1994 |
| Valeurs recommandées dans Radiation Protection Œuf (contenu) | <i>$8 \cdot 10^{-3}$</i> | Simmonds, 1995 |
| Compilation de données Œufs (contenu), Pu-dioxyde Pu-citrate | $3,7 \cdot 10^{-5}$ $8,1 \cdot 10^{-3}$ | Calmon, 2001 cite Ikenberry, 1982 |

Tableau IV-28 : Facteurs de transfert, en $\text{j} \cdot \text{kg}^{-1}$, du plutonium vers les œufs. Données mesurées (police normale) ou données estimées (*en italique*)

IV.4.5 FACTEURS DE TRANSFERT VERS LE LAIT

La concentration du lait se déduit de la concentration dans la viande en considérant un rapport de concentration entre le lait et les tissus mous que Coughtrey estime égal à 0,08 [Coughtrey, 1990]. Comme pour la viande, le temps d'élimination du plutonium dans le lait est beaucoup plus long que la durée de vie de l'animal. En considérant une vache dont les tissus mous représenteraient une masse de 450 kg, un rapport de passage intestinal de 10^{-5} pour de l'oxyde et un rapport de concentration entre lait et viande de 0,08, on obtient un facteur de $5 \cdot 10^{-6} \text{ j.L}^{-1}$ en intégrant sur 10 ans, durée de vie raisonnable d'une vache laitière. Contrairement à la viande qui se charge pendant la période d'ingestion mais ne délivrera pas d'exposition tant que l'animal n'est pas abattu et consommé, le lait a une concentration qui augmente rapidement de façon proportionnelle à l'activité ingérée d'environ $2 \cdot 10^{-9} \text{ Bq.L}^{-1}$ pour un Bq ingéré (soit en L^{-1}) et reste pratiquement constante après arrêt de l'ingestion, ceci pouvant durer 10 ans.

Coughtrey propose un facteur de transfert à l'équilibre de $1,2 \cdot 10^{-4} \text{ j.L}^{-1}$ pour un facteur de passage intestinal de 10^{-3} et un facteur de transfert à 100 jours, à utiliser en situation accidentelle, de $1,1 \cdot 10^{-6} \text{ j.L}^{-1}$ [Coughtrey, 1990].

On proposera d'utiliser la valeur de $2 \cdot 10^{-6} \text{ j.L}^{-1}$ pour l'oxyde, $2 \cdot 10^{-5}$ pour le nitrate et $2 \cdot 10^{-4}$ pour les formes solubles pour une consommation continue de plutonium sur la vie de l'animal.

En situation accidentelle, il conviendrait de retenir le calcul de l'activité totale ingérée par l'animal, multipliée par le facteur $2 \cdot 10^{-9}$, ce qui fournit la concentration du lait à la fin de la pâture contaminée (après environ 3 mois). La consommation annuelle de lait à ce niveau d'activité multipliée par le coefficient de dose par ingestion permet de calculer l'exposition par cette voie d'atteinte. En pratique, cette voie est d'importance mineure en situation accidentelle. Ceci correspond à un facteur de transfert à 120 jours de $2,4 \cdot 10^{-7} \text{ j.L}^{-1}$.

L'activité du lait atteint environ 1 Bq.L^{-1} pour un dépôt initial d'oxyde sur végétaux de 10^5 Bq.m^{-2} ou encore $2 \cdot 10^5 \text{ Bq.kg}^{-1}$.

Les valeurs indiquées dans le Tableau IV-29 correspondent à l'état d'équilibre. Elles sont données à titre d'exhaustivité. Il est cependant intéressant de noter que l'on retrouve une valeur de $3 \cdot 10^{-9}$ pour une dose unique de traceur de dioxyde de Pu.

Les facteurs de transfert au lait de chèvre et de brebis sont supérieurs à ceux du lait de vache (voir Tableau IV-29), mais, compte tenu des différences de quantités d'herbe consommée, la concentration des laits devrait rester très voisine. On en tiendra compte en tant que de besoin.

La contamination par inhalation des animaux semble avoir peu d'effet sur le transfert à l'homme car la quantité inhalée est faible par rapport à la quantité ingérée [Romney, 1970].

| Conditions | Facteur de transfert (j.L ⁻¹) | Référence |
|--|---|----------------|
| Facteur de transfert utilisé dans RESRAD, code de calcul de l'impact des "safety shot" Estimation des FT pour le Pu | <i>1.10⁻⁶</i> | DOE, 1997b |
| Compilation de données bibliographiques Données de traceur Pu citrate Pu dioxyde | 1.10 ⁻⁷ 2,7.10 ⁻⁹ | Ng, 1979 |
| Compilation de données mesurées du facteur de transfert au lait. Coefficient de transfert élémentaire, Valeur recommandée | 1.10 ⁻⁷ | Ng, 1982 |
| Recommandations AIEA Lait de vache Lait de brebis Lait de chèvre | 1,1.10 ⁻⁶ (3.10 ⁻⁹ – 3.10 ⁻⁶) 9,4.10 ⁻⁶ 9,4.10 ⁻⁶ | AIEA, 1994 |
| Valeurs recommandées dans Radiation Protection Lait de vache Lait de brebis Lait de chèvre | 1.10 ⁻⁶ 5.10 ⁻⁶ 3.10 ⁻⁶ | Simmonds, 1995 |

Tableau IV-29 : Facteurs de transfert, en j.L⁻¹, du plutonium vers le lait. Données mesurées (police normale) ou données estimées (*en italique*)

IV.4.6 FACTEURS DE TRANSFERT EN MILIEU AQUATIQUE

Le facteur de transfert vers les poissons est calculé par le rapport entre la concentration dans le poisson et la concentration dans l'eau. Il est exprimé en $L.kg^{-1}$.

Les valeurs rassemblées dans le Tableau IV-30 correspondent à l'état d'équilibre.

| Conditions | Facteur de transfert ($L.kg^{-1}$) | Référence |
|---|--------------------------------------|------------------|
| Compilation de données eau douce / eau de mer | | |
| Compilation de données bibliographiques Pu issu des retombées atmosphériques | | |
| Poissons herbivores | 25 | Angeletti, 1977a |
| Poissons carnivores | 4 | |
| <u>Eau salée</u> | | |
| Poissons pélagiques ¹⁸ | 1 à 10 | |
| Poissons benthiques ¹⁹ | 20 à 80 | |
| Facteurs de transfert ^{239 240} Pu eau douce / eau de mer Poissons | 9.10^2 à 1.10^5 4 à 40 | Santschi, 1989 |
| Compilation de données | | |
| Algues sp | $1,9.10^8$ | Grauby, 1986 |
| Algues filamenteuses | $3,6.10^3$ | |
| Phytoplancton | $2,4.10^3$ à 1.10^4 | |
| Zooplancton | $3,5$ à $6,3.10^2$ | |
| Jonc | $1,1.10^5$ | |
| Roseau | $0,8$ à 7.10^6 | |
| Macrophytes | $0,23$ à 9.10^3 | |
| Végétaux d'eau douce : valeur recommandée | $2,4.10^4$ | |
| Moules (chair) | 8.10^2 | |
| Mollusques (chair) : valeur recommandée | 2.10^3 | |
| Perche | 9,5 à 24 | |
| Truite | 4 | |
| Poissons.: valeur recommandée | 31 | |
| Valeurs représentatives des facteurs de transfert | | |
| Eau douce, poisson | 10 | AIEA, 1981 |
| Eau de mer, poisson | 3 | |
| Eau de mer, coquillages | 300 | |

¹⁸ se dit des organismes marins vivant en pleine eau ou en surface

¹⁹ se dit des organismes vivants ayant un lien avec le fond marin

| Conditions | Facteur de transfert (L.kg ⁻¹) | Référence |
|--|--|------------------|
| Eau de mer | | |
| Mesures de facteurs de transfert à proximité de La Hague | | |
| Algues (fucus) | 1700 – 10400 | Germain, 2000 |
| Mollusques (patelles) | 400 – 1800 | |
| Facteurs de transfert mesurés chez des poissons de la mer Baltique de consommation courante, et de la répartition du plutonium dans les différents organes | | |
| Flet – entier | 250 | Skwarzec, 2001 |
| Muscle | 50 | |
| Squelette | 200 | |
| Intestins | 2 050 | |
| Oùies | 1 500 | |
| Hareng – entier | 600 | |
| Muscle | 50 | |
| Squelette | 300 | |
| Intestins | 1 200 | |
| Oùies | 10 000 | |
| Morue – entière | 650 | |
| Muscle | 100 | |
| Squelette | 200 | |
| Intestins | 20 150 | |
| Oùies | 1 800 | |
| Harenguet – entier | 100 | |
| Muscle | 50 | |
| Squelette | 250 | |
| Généralités | | |
| Crustacés | 2 700 | |
| Bivalves | 3 200 | |
| Plantes | 3 500 | |
| Compilation de données bibliographiques | | |
| Moûle (<i>Mytilus californianus</i>) tissus mous | 190 à 230 | Angeletti, 1977b |
| Poisson (<i>Sarda lineolata</i>) muscle | 3 | |
| Moûle (<i>M. edulis</i>) tissus mous | 286 | |
| Poissons (<i>Pomatomus saltatrix</i>) muscle | 5 | |
| Moûle commune corps / Moûle brune | 340 / 440 | |
| Carrelet et Limande | 30 | |
| Saumon | 10 | |
| Moûle et Bigorneau | 2000 | |

| Conditions | Facteur de transfert (L.kg ⁻¹) | | Référence |
|---|--|------------------------|---------------|
| Eau douce | | | |
| Etude d'un lac proche de Rocky Flat (USA), facteur de transfert pour ²³⁸ Pu et ^{239, 240} Pu | ²³⁸ Pu | ^{239, 240} Pu | Emery, 1975 |
| Algues filamenteuses | 2.10 ³ | 2.10 ³ | |
| Algues non filamenteuses | 7.10 ³ | 8.10 ³ | |
| Macrophytes émergées | 5.10 ² | 6.10 ² | |
| Macrophytes immergées | 5.10 ³ | 5.10 ³ | |
| Arthropodes (insectes exclus) | 4.10 ² | 6.10 ² | |
| Insectes larves | 2.10 ⁴ | 2.10 ⁴ | |
| Insectes aquatiques imago | 3.10 ² | 3.10 ² | |
| Insectes non aquatiques imago | 3.10 ² | 3.10 ² | |
| Escargot | 3.10 ⁴ | 3.10 ⁴ | |
| Poisson rouge | 6.10 ² | 6.10 ² | |
| Compilation de données concernant le Savannah River Site, comparaison avec les valeurs de la littérature (<i>en bleu</i>) | | | |
| ²³⁸ Pu | | | Cummins, 1994 |
| Muscle de poissons piscivores (maximum) | 2,6.10 ³ | | |
| Muscle de poissons carnivores (maximum) | 1,2.10 ⁴ | | |
| Recommandations NRC, poissons piscivores | 3,5 | | |
| ²³⁹ Pu | | | |
| Muscle de poissons piscivores (maximum) | 5,6.10 ³ | | |
| Recommandations NRC, poissons piscivores | 3,5 | | |
| Valeurs recommandées, intervalle | | | AIEA, 1994 |
| Parties comestibles des poissons d'eau douce | 30 (4 – 300) | | |

Tableau IV-30 : Facteurs de transfert, en L.kg⁻¹, du plutonium en milieu aquatique. Données mesurées (police normale) ou données estimées (*en italique*)

Dans l'ensemble, les poissons ont un facteur de transfert inférieur à celui des mollusques. De même, les poissons herbivores ont un transfert supérieur à celui des poissons carnivores. En règle générale, quand le niveau trophique augmente, le facteur de transfert diminue (végétaux ≥ mollusques ≥ poissons). La concentration en plutonium est, en général, plus importante chez les poissons benthiques que chez les poissons pélagiques [Skwarzec, 2001]. Ceci est certainement lié au fait que, comme les proies consommées dans la zone benthique vivent souvent dans les sédiments, les poissons ingurgitent des quantités importantes de sédiments lors de la chasse.

On peut également supposer que le facteur de transfert est fonction du temps de contact avec les sédiments, qui ont une affinité très importante pour le plutonium.

Chez les poissons marins, la majorité du plutonium se rencontre dans les intestins (6 à 67%), le squelette (10 à 25%), puis dans les ouïes (8 à 48%) qui ne sont pas des parties consommées, sauf sous forme de fritures. Les muscles contiennent entre 5 et 6% du plutonium total [Skwarzec, 2001].

Ces observations sont confirmées par Emery [Emery, 1975] pour les poissons d'eau douce, avec 75 à 78% du plutonium dans le système digestif et 13% dans les œufs.

Les consommations de mollusques étant le plus souvent peu importantes dans les rations alimentaires, il n'apparaît pas fondamental de dissocier les mollusques des poissons. La valeur de 30 L.kg^{-1} recommandée par l'AIEA [A.I.E.A., 1994] est représentative du transfert aux poissons ; par contre, elle sous-estime le facteur de transfert aux mollusques. Si les habitudes de consommation de coquillages devenaient prépondérantes, ou si la consommation d'algues alimentaires se généralisait, il faudrait envisager la prise en compte de facteurs de transfert plus élevés d'un facteur au moins égal à 10.

IV.4.7 FACTEUR DE DECONTAMINATION PAR LES PRATIQUES ALIMENTAIRES

La préparation et la transformation des aliments avant consommation entraînent l'élimination d'une partie de la radioactivité présente. La fraction de l'activité résiduelle est exprimée par le rapport entre la concentration dans la nourriture au moment de la consommation et la concentration dans l'aliment avant transformation. Le Tableau IV-31 présente l'effet de ces transformations pour différents aliments dans le cas du plutonium.

| Conditions | Facteur de transfert | Référence |
|---|--|--------------------------------------|
| Facteur de transfert du plutonium sur fruits non préparés et sur fruits préparés | | |
| Pomme | $2,34 \cdot 10^{-4}$ à $9,2 \cdot 10^{-4}$ | Carini, 2001 |
| Pomme sans trognon | $3,6 \cdot 10^{-3}$ à $2,1 \cdot 10^{-2}$ | |
| Pomme lavée sans trognon | $1,3 \cdot 10^{-6}$ à $2,8 \cdot 10^{-5}$ | |
| Prune de Damas en compote | $1,6 \cdot 10^{-3}$ à $3 \cdot 10^{-2}$ | |
| ----- | | |
| Groseille à maquereau lavée | $6,4 \cdot 10^{-5}$ | |
| Cassis lavé | $2,7 \cdot 10^{-4}$ | |
| Fraise | $2,7 \cdot 10^{-5}$ à $7 \cdot 10^{-4}$ | |
| Fraise lavée | $6,8 \cdot 10^{-5}$ à $1,6 \cdot 10^{-4}$ | |
| Rhubarbe lavée | $3,6 \cdot 10^{-5}$ | |
| | | Fraction de radioactivité résiduelle |
| Fraction de l'activité résiduelle dans la pomme de terre après épluchage | $1,6 \cdot 10^{-2}$ | Grauby, 1986 |
| Fraction de l'activité résiduelle après préparation des aliments (lavage, épluchage...) | | |
| ----- | | |
| Blé | 0,25 | Ng, 1978 |
| Arachide | 1 | |
| ----- | | |
| Pêches, Pommes | 0,5 | |
| Melons d'eau | 0,8 | |
| ----- | | |
| Pommes de terre douces, Tomates | 0,8 | |
| Choux, Concombres, Haricots | 0,5 | |
| ----- | | |
| Bœuf, Porc, Poulet | 0,9 | |
| Œufs (contenu), Lait | 1 | |

Tableau IV-31 : Effet de la préparation et des transformations des aliments avant consommation sur le contenu en plutonium

Pour le plutonium, les facteurs de décontamination des pratiques alimentaires sont très faibles pour les denrées animales (viande, œufs) et certains végétaux (melon). Par contre, pour certains fruits et légumes, la décontamination peut conduire à diminuer par 2 la valeur initiale (comme les choux ou les pêches), voire par 60 (pommes de terre).

IV.5 CONCLUSION

La sûreté des installations mettant en œuvre du plutonium repose essentiellement sur la maîtrise de la génération d'aérosols et l'efficacité des techniques de confinement. La forme physico-chimique du plutonium (métal massif, poudre, pastille ou liquide) joue un rôle prépondérant dans la génération d'aérosols.

A température ambiante, le plutonium métal s'oxyde lentement et génère des particules essentiellement inhalables. Il peut s'enflammer à l'air spontanément selon la configuration entre 300°C et 500°C et de façon sûre à 500°C. Au point de fusion, à 639,4°C, son oxydation génère de grosses particules. Entre l'ébullition et 3300°C, la fraction inhalable passe de $2,5 \cdot 10^{-4}$ à 0,5.

Sous forme de poudre, les mécanismes élémentaires étudiés sont l'entraînement par l'air des particules déposées au sol, le souffle de vent sur tas de poudre, la mise en suspension par chute de poudre sur une surface, ou, à l'inverse, la chute de charge sur de la poudre, et l'incendie. Les fractions émises sont extrêmement variables en fonction de l'évènement et il est souhaitable dans les analyses de sûreté d'utiliser les données expérimentales les plus proches des situations rencontrées sur l'installation lorsque celles-ci sont bien connues.

Sous forme liquide, les émissions sont assez faibles sauf à atteindre l'assèchement, ou l'incorporation turbulente dans un incendie d'hydrocarbure.

La vitesse de dépôt des aérosols de l'air au sol varie de façon importante en fonction du diamètre aérodynamique des particules. En raison de la forte densité du plutonium, on comprend aisément que la granulométrie des particules déposées au sol lors des essais atmosphériques ait évolué entre 1 mm à l'échelle locale jusqu'à moins d'un micron à longue distance. Pour la fraction mise en suspension et qui est inhalable, c'est-à-dire de diamètre aérodynamique inférieur à 10 µm, il est d'usage de retenir une vitesse de dépôt de $5 \cdot 10^{-3} \text{ m.s}^{-1}$. La prise en compte d'une fraction non inhalable implique de considérer une distribution des diamètres de particules et les vitesses de dépôt correspondantes lorsqu'elles sont connues.

La remise en suspension a été considérée un temps comme une voie d'exposition significative. Ceci provient des observations effectuées historiquement dans des régions semi-désertiques. On constate que les modèles ont évolué ultérieurement vers des valeurs de plus en plus faibles. L'ensemble des résultats obtenu après l'accident de Tchernobyl confirme et amplifie encore cette évolution. Il en résulte que l'exposition par inhalation après dépôt constitue une fraction faible de l'exposition pendant le passage du nuage.

Pour l'interception des aérosols sur les végétaux, on retiendra que les particules inhalables (<10 µm en diamètre aérodynamique) ont des rapports d'interception importants dès lors que la surface des feuilles est abondante (50 à 100%). Les particules de diamètre aérodynamique compris entre 100 et 200 µm ont des rapports d'interception sensiblement plus faibles, allant de quelques pour-cents à 20 ou 30% suivant les rendements. Il semble qu'il ne soit pas utile de s'intéresser à des particules de diamètres aérodynamiques supérieurs.

Pour l'interception d'un dépôt par la pluie, ni l'intensité de la pluie, ni la taille des aérosols (< 40 µm) n'ont une influence significative sur l'interception. Par contre, la hauteur de pluie peut jouer d'un facteur 10 entre une rétention pratiquement totale pour une pluie de 1 mm à quelques pourcents pour une pluie de 15 mm. L'indice foliaire joue également un rôle significatif puisque l'interception peut varier d'un facteur 5 entre un indice de 1 (surface de feuilles égale à la surface du sol) et un indice de 7, valeur correspondant à un blé à pleine maturité.

La demi-vie biologique sur les végétaux, pour des radionucléides liés à des particules fines, est de 12 jours en moyenne avec une plage de variation de 9 à 19 jours, c'est-à-dire que la concentration diminue de moitié tous les 12 jours. En réalité, les pertes ne sont pas proportionnelles à l'activité déposée et sont plus significatives dans les premiers jours, cependant elles portent sur 20 à 50% de l'activité, ce qui est dans les incertitudes non maîtrisables. Des particules de 44 à 177 μm ne semblent pas se distinguer de particules plus petites en ce qui concerne la demi-vie biologique.

En ce qui concerne les transferts du sol à la chaîne alimentaire (végétaux et animaux), les apports de plutonium sous la forme oxyde apparaissent particulièrement peu transférables. Le transfert sol-plante du plutonium est très faible. En conséquence, ce n'est pas la voie de contamination interne des végétaux qui explique l'activité des végétaux mais la contamination externe par contact et adsorption de particules de sol. En pratique, la voie d'atteinte correspondant à l'ingestion de végétaux contaminés à partir du dépôt au sol est négligeable devant la voie "ingestion de la contamination foliaire par dépôt atmosphérique ou par irrigation".

En raison d'une très faible élimination du plutonium incorporé par les animaux, la concentration de la viande et autres organes n'atteint pas un état d'équilibre lorsqu'il y a une incorporation quotidienne constante. Il apparaît donc inapproprié d'utiliser un facteur de transfert ration-viande calculé à l'infini. On peut définir cependant des facteurs de transfert en considérant une durée limitée d'incorporation, soit sur une centaine de jours en situation accidentelle, soit sur la durée de vie de l'animal. Les facteurs de transfert dans ce dernier cas sont très supérieurs même s'ils restent faibles. La concentration augmente de façon proportionnelle à l'activité ingérée d'environ $8 \cdot 10^{-10}$ Bq/L pour un Bq ingéré sous forme d'oxyde. Par ailleurs, il existe de grosses variations selon la forme chimique du plutonium, très peu assimilé. Les transferts seraient 10 fois plus importants pour la forme nitrate et 100 fois plus pour les formes solubles que sous la forme oxyde.

L'ingestion de viande n'est pas une voie d'exposition importante. Le foie est l'organe le plus susceptible d'être contaminé. Sa concentration devrait être 400 fois celle de la viande. L'élimination naturelle étant très faible, un animal contaminé le restera jusqu'à sa mort, sans décroissance significative.

Contrairement à la viande qui se charge pendant la période d'ingestion mais ne délivre pas d'exposition tant que l'animal n'est pas abattu et consommé, le lait est produit chaque jour et sa concentration augmente de façon proportionnelle à l'activité ingérée d'environ $2 \cdot 10^{-9}$ Bq.L⁻¹ pour un Bq ingéré (soit en L⁻¹) et reste pratiquement constante après arrêt de l'ingestion.

Les facteurs de transfert au lait de chèvre et de brebis sont supérieurs d'un facteur 10 à ceux du lait de vache. Comme ces animaux consomment dix fois moins de végétaux que les bovins, la concentration du lait devrait être approximativement la même, quelle que soit l'espèce.

Pour ces deux types de produits animaux (viande, lait), l'utilisation de facteurs de transfert calculés sur la base de l'existence d'un état d'équilibre entre les concentrations dans l'alimentation des animaux et dans la viande, pour la forme chimique la plus pénalisante, peut conduire à des surestimations considérables de la dose par ingestion, en particulier en cas de consommation importante de foie. En pratique cependant, la voie ingestion de ces produits reste mineure, et l'on peut utiliser, en situation accidentelle, un facteur de transfert à 100 jours comme indiqué par Coughtrey [Coughtrey, 1990] et repris par l'AIEA [A.I.E.A., 1994].

Pour les poissons, la valeur de $30 \text{ L} \cdot \text{kg}^{-1}$ est recommandée par l'AIEA [A.I.E.A., 1994]. En eau douce, ce facteur est suffisamment faible pour que la consommation de poissons ait un impact mineur comparé à l'eau de boisson.

Dans les milieux naturels terrestres et aquatiques, on peut noter que le plutonium est souvent au degré d'oxydation +IV même si l'existence environnementale des degrés redox des formes oxydées (V, VI) n'est pas à négliger.

La rétention du plutonium dans les sols dépend d'un certain nombre de paramètres dont le pH, la nature des phases minérales, la présence de matières organiques et la composition de la phase liquide.

Parmi les entités rencontrées dans l'environnement, la matière organique naturelle telle que les substances humiques est à considérer tout particulièrement : associations colloïdales, réactions de complexation, réactivité redox. Des études menées sur un certain nombre d'eaux marquées de façon anthropique avec du plutonium, il ressort que celui-ci est le plus souvent présent dans les fractions colloïdales (le plus souvent organique comme les substances humiques), voire particulaires, et se trouve dans ce cas sous formes réduites Pu(III, IV) [Lac Karachai/Russie, Tchernobyl/Ukraine, différents sites américains (Los Alamos, Rocky Flats, Nevada Test Site). Dans ce cas, cela peut conduire à des mobilités plus élevées du plutonium (exemple : le cas du Nevada Test Site) dans l'environnement. En absence de particules ou colloïdes (d'origine inorganique ou organique), le plutonium est peu mobile compte tenu de sa prédominance à la valence IV dans l'environnement, qui conduit à une précipitation de PuO₂ peu soluble. Dans les sols agricoles, les dépôts en surface migrent toujours très lentement à l'échelle de la vie humaine.

IV.6 REFERENCES

- [A.E.N., 1981] Comportement mésologique et biologique du plutonium et de certains autres éléments transuraniens, Ed. A.E.N. O.C.D.E. Paris. pp. 124, 1981.
- [A.I.E.A., 1981] Estimation of environmental transfer of plutonium and the dose to man. Rapport IAEA-TECDOC-255: pp. 44, 1981.
- [A.I.E.A., 1994] Handbook of parameter values for the prediction of radionuclide transfer in temperate environments. Technical Report Series TRS 364, 1974.
- [A.I.E.A., 1999] TRANSSAC IV, 4^o meeting of the retransport safety standards advisory committee. Rapport TC 983, 1999.
- [A.I.E.A., 2007] site internet du programme EMRAS : <http://www-ns.iaea.org/projects/emras/emras-trs364-wg.htm>, 2007
- [Alloul-Marmor, 2002] Alloul-Marmor L. Réentraînement par écoulement d'air d'une contamination particulière déposée sur une surface – Application au cas d'un "tas" de poudre. Thèse de l'université Paris XII, Rapport IRSN-2002/28-FR, 11 avril 2002.
- [André, 2000] André C., Choppin G.R. Reduction of Pu(V) by humic acid. Radiochimica Acta 88, 613-616, 2000.
- [Angeletti, 1977a] Angeletti, L. Les transuraniens, propriétés physico-chimiques et comportement dans l'environnement. Comportement dans les sols, les eaux et les sédiments. Transferts à la biomasse aquatique et aux végétaux. Rapport CEA-R-4987, 1977.
- [Angeletti, 1977b] Angeletti L., Levi E. Etude du dépôt humide et de la rétention foliaire de l'iode et du strontium sur le ray-grass et le trèfle. Rapport CEA-R-4897, 1977.
- [Angeletti, 1980] Angeletti L. La contamination des pâturages par l'iode-131. Rapport CEA-R- 5056 (1980).
- [Anspaugh, 1975] Anspaugh L.R., Shinn J.H., Phelps P.L., Kennedy N.C. - Resuspension and redistribution of plutonium in soils. Health Physics, 29: 571-582, 1975.
- [Arimoto, 2005] Arimoto R., Webb J.L., Conley M. Radioactive contamination of atmospheric dust over Southeastern New Mexico, Atmospheric Environment, Vol 39, n 26, 4745-4754, 2005
- [Arnold, 2000] Arnold D., Wershofen A. Plutonium isotopes in ground-level air in Northern Germany since 1990, J. of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, Vol 243, n°2, p409-413, 2000

- [Ayer, 1988] Ayer J.E., Clark A.T., Loysen P., Ballinger M.Y., Mishima J., Owczarski P.C., Gregory W.S., Nichols B.D. Nuclear fuel cycle facility accident analysis handbook. Rapport NUREG-1320, May 1988.
- [Bagnold, 1966] Bagnold R.A. An approach to the sediment transport problem from general physics. Prof. Paper 422-I, U.S. Geological Survey, 1966 (Also published in Thorne et al., 1988.)
- [Ballinger, 1987] Ballinger M.Y., Sutter S.L., Hodgson W.H. New data for aerosols generated by releases of pressurized powders and solutions in static air., Pacific Northwest Laboratories, Richland, WA, NUREG/CR-4779, PNL-6065, 25 pages, May 1987.
- [Beresford, 1998] Beresford N.A., Crout N.M.J., Mayes R. W., Howard B. J, Lamb C.S. Dynamic distribution of radioisotopes of cerium, ruthenium and silver in sheep tissues. *Journal of Environmental Radioactivity* 38(3): 317-338, 1998.
- [Bion, 1995]. Bion L. Etude de la stabilisation de l'uranium (IV), par formation d'un complexe avec un ligand hétéropolyanion, en vue de son analyse différée dans le temps. Rapport CEA-R-5711, 1995.
- [Bion, 2003]. Bion L. BASSIST: an applied thermodynamic database for radionuclide chemistry. *Radiochimica Acta* 91 633-637, 2003.
- [Boone, 1981] Boone F.W., Ng Y.C., Palms J.M. Terrestrial pathways of radionuclide particulates. *Health Physics*, 41(5): 735-747, 1981.
- [Bunzl, 1987] Bunzl K., Kracke W. Soil to plant transfer of $^{239+240}\text{Pu}$, ^{238}Pu , ^{241}Am , ^{137}Cs and ^{90}Sr from global fallout in flour and bran from wheat, rye, barley and oats, as obtained by field measurements. *The Science of the Total Environment*, 63: 111-124, 1987.
- [Carini, 2001a] Carini F., Coughtrey P.J., Kinnersley R.P. Radionuclide transfer to fruits: A critical review - Introduction. *Journal of Environmental Radioactivity* 52 (issues 2-3): 123-129, 2001.
- [Carini, 2001b] Carini F., Bengtsson G. Radionuclide transfer to fruits: A critical review. Post-deposition transport of radionuclides in fruit. *Journal of Environmental Radioactivity* 52 (issues 2-3): 215-236, 2001.
- [Carini, 2001c] Carini F. Radionuclide transfer to fruits: A critical review - Radionuclide transfer from soil to fruit. *Journal of Environmental Radioactivity* 52 (issues 2-3): 237-279, 2001.
- [Carroll, 1999]. Carroll J., Boisson F., Teysse J. -L., King S. E., Krosshavn M., Carroll M. L., Fowler S. W., Povinec P. P, Baxter M. S. Distribution coefficients (Kd's) for use in risk assessment models of the Kara Sea. *Applied Radiation and Isotopes* 51, 121-129, 1999.
- [CEA, 2003] Base de données sur les radionucléides à vie longue (RNVL) : Rapport du Groupe de Travail CEA, Rapport CEA-R-6026, 2003.
- [Chadwick, 1970] Chadwick R.C., Chamberlain A.C. Field loss of radionuclides from grass. *Atmos. Environ.* 4, 41-56, 1970.
- [Chamberlain, 1970] Chamberlain A.C. Interception and retention of radioactive aerosols by vegetation. *Atmos. Environ.* 4, 57-58, 1970.
- [Chamberlain, 1991] Chamberlain A.C. *Radioactive aerosols*, ed. Cambridge environmental chemistry series, ISBN 0-521-40121-6, 1991.
- [Choppin, 1990] Choppin G.R., Kobashi A. Distribution of Pu(V) and Pu(VI) in seawater. *Marine Chemistry* 30, 241-247, 1990.
- [Choppin, 1997] Choppin G.R., Bond A.H., Hromadka P.M. Redox speciation of plutonium. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 219, 203-210, 1997.
- [Choppin, 2003] Choppin G.R. Actinide speciation in the environment. *Radiochimica Acta* 91, 645-650, 2003.
- [Choppin, 2006] Choppin G.R. Actinide speciation in aquatic systems. *Marine Chemistry* 99: 83-92, 2006.
- [Copplesstone, 2001] Copplesstone D. Johnsons M. S, Jones S.R. Behaviour and transport of radionuclides in soil and vegetation of a sand dune ecosystem. *Journal of Environmental Radioactivity* 55, 93-108, 2001.
- [Coughtrey 1990] *Radioactivity transfer to animal products*, EUR 12608, ISBN 92-826-1213-9
- [Craig, 1974] Craig D.K., Klepper B.L., Buschbom R.L. Deposition of various plutonium-compound aerosols onto plant foliage at very low wind velocities. *Atmosphere - surface exchange of particulate and gaseous pollutants symposium*. Richland, Washington, USA, 1974.

- [Cromières, 1998] Cromières. L., Sorption d'éléments lourds (U(VI), Np(V), Th(IV), Am(III), Co(II), Cs(I), I(-I) sur des colloïdes d'hématite. Proposition de mécanismes réactionnels. Thèse de Doctorat de l'Université Paris XI – Orsay, 1998.
- [CSLU, 1975] Commission de sûreté des laboratoires et usines du 17/11/1975 - P.V. n°35 SC/NA/CSLU/75/463. Méthode rapide pour estimer les quantités de transuraniens admissibles dans un bâtiment, 1975.
- [Cummins, 1994] Cummins C., Radiological bioconcentration factors for aquatic, terrestrial and wetland ecosystems at the Savannah River Site. Rapport WSRC-TR-94-0391, 1994.
- [Dai, 2002] Dai M., Kelley J., Buesseler K. Sources and migration of plutonium in groundwater at the Savannah River Site. Environ. Sci. Technol. 36, 3690-3699, 2002.
- [Dai, 2005] Dai M., Buesseler K., Pike S. Plutonium in groundwater at the 100K-area of the US DOE Hanford Site. Journal of Contam. Hydrology 76, 167-189, 2005.
- [DOE, 1994] Airborne release fractions/rates and respirable fractions for nonreactor nuclear facilities. Rapport DOE-HDBK-3010-94. Volume I – Analysis of Experimental Data. DOE-HDBK-3010-94, U. S. Department of Energy, Washington, D. C. 20585, December 1994.
- [DOE, 1997b] Methodology for calculating guideline concentrations for safety shot sites. Nevada environmental restoration project. Rapport DOE/NV-481. UC700, 1997.
- [Doury, 1981] Doury A. Le vademecum des transferts atmosphériques. Rapport DSN n°440, 1981.
- [El Mrabet, 2001] El Mrabet R., Abril J. M., Manjon G., Tenorio R.G. Experimental and modelling study of plutonium uptake by suspended matter in aquatic environments from southern Spain. Water Research 35, 4184-4190, 2001.
- [Emery, 1975] Emery R. M., Klopfer D.C., Garland T.R., Weimer W.C. The ecological behaviour of plutonium and americium in a freshwater pond. BNWL-SA-346, 1975.
- [EPA, 1999] US Environmental Protection Agency. Understanding variation in partition coefficient, Kd, values. Volume II: Review of geochemistry and available Kd values for Cd, Cs, Cr, Pb, Pu, Rn, Sr, Th, tritium and U. EPA 402-R-99-004B, 1999.
- [Eriksson, 1977] Eriksson A. Direct uptake by vegetation of deposited materials. Agricultural College of Sweden, Uppsala, Report SLU-IRB-42 (1977).
- [Fernandez Y., 1994] Fernandez Y. Etude expérimentale de l'émission d'aérosols radioactifs lors de la dégradation thermique de matériaux organiques contaminés présents dans les installations nucléaires. Thèse de doctorat, Université de Savoie. Rapport CEA-R-5663, 1994.
- [Fjeld, 2003] Fjeld R. A., Serkiz S. M., McGinnis P. L., Elci A., Kaplan D. Evaluation of a conceptual model for the subsurface transport of plutonium involving surface mediated reduction of Pu(V) to Pu(IV). Journal of Contaminant Hydrology 67, 79-94, 2003.
- [Fogh 1999] Fogh C.L., Roed J., Andersson K.G., Radionuclide resuspension and mixed deposition at different heights, Journal of Environmental Radioactivity, Volume 46, Number 1, pp. 67-75(9), October 1999
- [Francis, 1973] Francis C.W. Plutonium mobility in soil and uptake in plants: a review. Journal of Environmental Quality, 2(1): pp 67-70, 1973.
- [Franke, 1967] Franke, W. Mechanisms of foliar penetration of solutions. A. Rev. Plant Physiol. 18, 281-300, 1967.
- [Frissel, 1992] Frissel M.J. An update of the recommended soil-to-plant transfer factors of Sr-90, Cs-137 and transuranics. 8th report of the working group on soil-to-plant transfer factors, Balen, I.U.R.
- [Fromentin, 1989] Fromentin A. Particle resuspension from a multi-layer deposit by turbulent flow. Ph. D., Paul Scherrer Institut. PSI-Bericht Nr. 38, September 1989.
- [Garcia-Olivares, 1997] Garcia-Olivares A. Resuspension and transport of plutonium in the Palomares area. Journal of Environmental Radioactivity 37(1): 101-114, 1997.
- [Garger, 1997a] Garger E.K., Hoffman F.O., Thiessen K.M. Uncertainty of the long-term resuspension factor, Atmospheric Environment, vol 31, pp 1647-1656, 1997

- [Garland, 1979] Garland J.A. Resuspension of particulate material from grass and soil. AERE-R9452, HMSO, London.
- [Garland, 1982] Garland J.A. Resuspension of particulate material from grass and soil. Experimental program. 1979-1980. AERE-R10106, HMSO, London.
- [Garland, 1992] Garland J.A., N.J. Fallenden, K. Plavford Modelling of resuspension, seasonality and losses during food processing – First report of the VAMP Terrestrial Working Group IAEA –TECDOC 647.
- [Germain, 2000] Germain P., Leclerc G., Le Cavelier S., Solier L., Baron Y. Evolution spatio-temporelle des concentrations, des rapports isotopiques et des facteurs de concentration du plutonium dans une espèce d'algue et deux espèces de mollusques de la Manche. Radioprotection, 35(2) : 175-200, 2000.
- [Grauby, 1986] Grauby A., Foulquier L., Colle C., Baudin-Jalant Y., Saas A., Morello M. Cycle des actinides dans l'environnement terrestre et dulcaquicole. Journal of the Less-Common Metals 122, 499-514, 1986.
- [Guétat, 2006] Guétat Ph., Monfort M., Armand P., Alloul-Marmor L. Le Plutonium. Mise en suspension d'aérosols dans les installations nucléaires. Synthèse bibliographique. Rapport CEA-R- 6126, 2006
- [Guillaumont, 1993] Guillaumont R., Adloff J-P. Fundamentals of radiochemistry. Ed. CRC Press, 1993.
- [Guillaumont, 2003] Guillaumont R., Fanghanel T., Fuger J., Grenthe I., Neck V., Palmer D.A., Rand M. H. Update on the Chemical Thermodynamics of Uranium, Neptunium, Plutonium, Americium and Technetium, Elsevier Ed, 2003.
- [Harley, 1980] Harley J.H. Plutonium in the environment: a review. Journal of Radiation Research, 21: 83-104, 1980.
- [Healy, 1958] Healy J.W., Fuquay J.J. Wind pickup of radioactive particles from the ground, Waste Treatment and Environmental Aspects of Atomic Energy. Vol 18, pp 291-295, 1958.
- [Hirose, 2002] Hirose K, Aoyama M. Chemical speciation of plutonium in seawater. Anal. Bioanal. Chem. 372, 418-420, 2002.
- [Hirose, 2004a] Hirose K., Honda T., Yagishita S., Igarashi Y., Aoyama M., Deposition behaviors of ²¹⁰Pb, ⁷Be and thorium isotopes observed in Tsukuba and Nagasaki, Japan, Atmospheric Environment, vol 38, p 6601-6608, 2004
- [Hirose, 2004b] Hirose K, Kim C.K., Kim C.S., Chang B.W., Igarashi Y., Aoyama M., Wet and dry deposition patterns of plutonium in Daejeon, Korea, Science of Total Environment, vol 332, pp 243-252
- [Hoffman, 1989] Hoffman P.O, Frank M.L., Blaylock B.C., Von Bernuth R.P., Deming E.J., Graham R.V., Mohrbacher D.A., Waters A.E., Pasture grass interception and retention of ¹³¹I, ⁷Be and insoluble microspheres deposited in rain, Oak Ridge National Laboratory Report ORNL-6542 (1989).
- [Hoffman, 1995] Hoffman P.O, Thiessen K.M., Rael R.M. Comparison of interception and initial retention of wet-deposited contaminants on leaves of different vegetation types. Atmospheric Environment 29, 1771-1775, 1995.
- [Hoffman, 1992] Hoffman P.O, Thiessen K.M., Frank M.L., Blaylock B.G., Quantification of the interception and initial retention of radioactive contaminants deposited on pasture grass by simulated rain. Atmospheric Environment 26A, 3313-3321, 1992.
- [Hölgge, 2000] Hölgge, Z. and Maly M. Sources, vertical distribution and migration rates of ^{239,240}Pu, ²³⁸Pu and ¹³⁷Cs in grassland soil on three localities of central Bohemia. Journal of Environmental Radioactivity 47, 135-147, 2000.
- [Hollander, 1994] Hollander W., Resuspension Factors of ¹³⁷Cs in Hannover after the Chernobyl Accident. Journal of Aerosol Science, 25,789-792, 1994.
- [Horton, 1980] Horton, J.H., Corey, J.C. Distribution of surface-deposited plutonium in soil after cultivation, Health Physics, 38: pp 697-699, 1980.
- [Hossner, 1998] Hossner L.R., Loeppert R.H. Literature review: Phytoaccumulation of chromium, uranium, and plutonium in plant systems. Department of energy (DOE): 51, 1998.
- [Hummel, 2002] Hummel W., Berner U., Curti E., Pearson F.J, Thoenen T. Nagra/PSI chemical thermodynamic Data Base 01/01. Editeur : Universal Publishers, 2002.

- [Ikenberry, 1982] Ikenberry T.A. Compilation of poultry and egg parameters for the PATHWAYS code. Master of science Colorado State University Fort Collins, Colorado, USA, Août 1982.
- [IUR., 1982] Report on a workshop on the measurement of soils to plant transfer factors for radionuclides. Part I. Rapport, 1982.
- [Johnson, 1988] Johnson J.E., Ward G.M., Ennis M.E. Jr, Boamah K.N. Transfer coefficient of selected radionuclides to animal products. I. Comparison of milk and meat from dairy cows and goats. *Health physics*, 54 (2): 161-166, 1988.
- [Jordan, 1983] Jordan S, Lindner W. The behavior of burning kerosine, aerosol formation and consequences. Proceedings of the CSNI Specialist Meeting on Interaction of fire and explosion with ventilation systems, LA-9911-C Volumes I and II (CSNI Report n° 83), Los Alamos National Laboratory, Los Alamos, NM, 1983.
- [Kaplan D., 2006] Kaplan D., Demirkanli D., Gumapas L. Powell B., Fjeld R., Molz F., Serkiz S. Eleven-year study of Pu migration from Pu III, IV and VI sources. *Environ. Sci. Technol.* 40, 443-448, 2006.
- [Kasparov, 2000] Kasparov V.A., Lundin S.M., Kadygrib, A.M., Protsak V.P., Levtschuk S.E., Yoschenko V.I., Kashpur V.A., Talerko N.M. Forest fires in the territory contaminated as a result of the Chernobyl accident: radioactive aerosol resuspension and exposure of fire-fighters. *Journal of Environmental Radioactivity* 51, pp. 281–298, 2000.
- [Kersting, 1999] Kersting A.B., Eford D.W., Finnegan D.L., Rokop D.J., Smith D.K., Thompson J.L. Migration of plutonium in ground water at the Nevada Test Site. *Nature* 397, 56-59, 1999.
- [Langer, 1987] Langer G. Simulated seismic event release fraction data progress report, Rockwell International, Golden, Colorado. RFP-4161/DOE/TIC-4500 (rev. 73). DE 88 006978, 1987.
- [Lee, 2002a] Lee J.H., Hossner L.R., Attrep M. Jr., Kung K.S. Uptake and translocation of plutonium in two plant species using hydroponics. *Environmental Pollution* 117: 61-68, 2002.
- [Lee, 2002b] Lee J.H., Hossner L.R., Attrep M. Jr., Kung K.S. Comparative uptake of plutonium from soils by *Brassica juncea* and *Helianthus annuus*. *Environmental Pollution* 120: 173-182, 2002.
- [Litaor, 1994] Litaor I. M., Thompson M. L., Barth G.R., Molzer P.C. Plutonium-239+240 and Am-241 in soils east of Rocky Flats, Colorado. *Journal of Environmental Quality* 23, 1231-1239, 1994.
- [Little, 1978] Little C.A., Whicker F.W. Plutonium distribution in Rocky Flats soil, *Health Physics*, 34: pp 451-457, 1978.
- [Loyland Asbury, 2001] Loyland Asbury S., Lamont S., Clark S. Plutonium partitioning to colloidal and particulate matter in an acidic sandy sediment: implications for remediation alternatives and plutonium migration. *Environ. Sci. Technol.* 35, 2295-2300, 2001.
- [Mahara, 2001] Mahara Y., Kudo A. Plutonium mobility and its fate in soil and sediment environments. *Plutonium in Environment*. Ed A. Kudo, Vol. 1, 347-362, 2001.
- [Marquardt, 2004]. Marquardt C. M., Seibert A., Artinger R., Denecke M. A., Kuczewski B., Schild D., Fanghänel T.. The redox behaviour of plutonium in humic rich groundwater. *Radiochimica Acta* 92, pp 617-623, 2004.
- [Martial-Riglet, 1998] Martial-Riglet C., Vitorge P., Calmon V. Electrochemical Characterisation of the Ce(IV) limiting carbonate complex. *Radiochim. Acta* 82, pp 69-76, 1998.
- [Martin, 1965] Martin W.E., Interception and retention of fallout by desert shrubs. *Health Phys.* 11 1341-1354, 1965.
- [Matsunaga, 1998] Matsunaga T, Ueno T, Amano H, Tkatchenko Y, Kovalyov A, Watanabe M, Onuma Y Characteristics of Chernobyl-derived radionuclides in particulate form in surface waters in the exclusion zone around the Chernobyl nuclear power plant. *Journal of Contaminant Hydrology*. 35, 101-113, 1998.
- [Matsunaga, 2004] Matsunaga T., Nagao S., Ueno T., Takeda S., Amano H., Tkachenko Y. Association of dissolved radionuclides released by the Chernobyl accident with colloidal materials in surface water. *Applied Geochem.* 19, 1581-1599, 2004.
- [McLeod, 1981] McLeod K.W., Adriano D.C., Uptake of plutonium from soils contaminated by a nuclear fuel chemical separations facility. *Soil Science* 132(1) 89-98, 1981.

- [Michard, 1989] Michard G. Equilibres chimiques dans les eaux naturelles. Ed. Publisud, Paris, 1989.
- [Michard, 2002] Michard G. Chimie des eaux naturelles - principes de géochimie des eaux. Ed. Publisud, Paris, 2002.
- [Mietelski, 2002] Mietelski J.W., Baeza A.S., Plutonium and other alpha emitters in mushrooms from Poland, Spain and Ukraine. Applied radiation and isotopes 56: 717-729, 2002.
- [Miller, 1966] Miller C.F. The retention by foliage of silicate particles from the volcano Iruzu in Costa Rica; In Proc: International Symposium on Radiological Concentration Processes; Stockholm, April 1966.
- [Miller, 1983], C.W., Hoffmann, P.O., An examination of the environmental half-time for radionuclides deposited on vegetation, Health Phys. 45 731-744, 1983.
- [Mincher, 2003] Mincher B. J., Fox R. V., Cooper D. G., Groenewold G. S. Neptunium and plutonium sorption to Snake River Plain, Idaho soil - Radiochimica Acta 91, 397-402, 2003.
- [Mishima, 1966] Mishima J. Plutonium release studies II. Release from the ignited, bulk metallic pieces. Pacific Northwest Laboratories, Richland, WA, BNWL-375, November 1966.
- [Mishima, 1968a] Mishima J., Schwendiman L.C., Radasch C.A. Plutonium release studies III. Release from heated plutonium bearing powders. Pacific Northwest Laboratories, Richland, WA, BNWL-786, 50 pages, July 1968.
- [Mishima, 1968b] Mishima J., Schwendiman L.C., Radasch C.A. Plutonium release studies IV. Release from heated plutonium nitrate solutions in a flow air stream. Pacific Northwest Laboratories, Richland, WA, BNWL-931, November 1968.
- [Mishima, 1973] Mishima J., Schwendiman L.C. Some experimental measurements of airborne uranium (representing plutonium) in transportation accidents. Pacific Northwest Laboratories, Richland, WA, BNWL-1732, August 1973.
- [Mori, 2003] Mori A., Alexander W., Geckeis H., Hauser W., Schäfer T., Eikenberg J., Fierz Th., Degueldre C., Missana T. The colloid and radionuclide retardation experiment at the Grimsel test Site: influence of bentonite colloids on radionuclide migration in a fractured rock. Colloids and Surfaces A: Physicochem. Eng. Aspects 217, 33-47, 2003.
- [Müller, 1993] Müller H., Pröhl G. ECOSYS-87: a dynamic model for assessing radiological consequences of nuclear accidents. Health Physics, 64(3), 232-252, 1993.
- [Nair, 1997] Nair S.K., Miller C.W., Thiessen K.M., Garger E.K., Hossman F.O. Modeling the resuspension of radionuclides in Ukrainian regions impacted by Chernobyl fallout. Health Physics 72, 77-85, 1997.
- [Neu, 2005] Neu M., Icopini G., Boukhalfa H. Plutonium speciation affected by environmental bacteria. Radiochim. Acta 93, 705-714, 2005.
- [Newman, 1974] Newman J.E, Abel M.D., Harrison P.R., Yost K.J. Wind as Related to Critical Flushing speed versus reflation speed by high-volume sampler particulate loading, Atmosphere-Surface Exchange of Particulate and Gaseous Pollutants, ERDA Symposium Series 38, 1974.
- [Ng, 1977] Ng Y.C., Colsher C.S., Quinn D.J., Thompson, S.E. Transfer coefficients for the prediction of the dose to man via the forage-cow-milk pathway from radionuclides released to the biosphere. Rapport UCRL-51939, 1977.
- [Ng, 1978] Ng Y.C., Phillips W.A., Ricker Y.E., Tandy R.K., Thompson S.E. Methodology for assessing dose commitment to individuals and to the population from ingestion of terrestrial food contaminated by emissions from a nuclear fuel reprocessing plant at the Savannah River Plant. Rapport UCID-17743, 1978.
- [Ng, 1979] Ng Y.C., Colsher C.S., Thompson, S.E. Transfer factors for assessing the dose from radionuclides in agricultural products. International symposium on biological implications of radionuclides released from nuclear industries. Vienne, Autriche, 1979.
- [Ng, 1982] Ng Y.C. A review of transfer factors for assessing the dose from radionuclides in agricultural products. Nuclear Safety, 23(1): 57-71, 1982.
- [Nicholson, 1988] Nicholson K.W. Review article: a review of particle resuspension. Atmospheric environment, 22(2): 2639-2651, 1988.

- [Nielsen, 1988] Nielsen B., Strandberg M. A literature study of the behavior of cesium, strontium and plutonium in the soil plant ecosystem. Part I: Cesium. Part II: Strontium. Part III: Plutonium. Rapport NEI-DK-107, 1988.
- [Nisbet, 1994] Nisbet A.F., Shaw S. Summary of 5-year lysimeter study on the time-dependant transfer of Cs-137, Sr-90, Pu-239-240 and Am-241 to crops from three contrasting soil types: 1- transfer to edible portion. Journal of Environmental Radioactivity, 23: pp 1-17, 1994.
- [Nishita, 1981a] Nishita H, Wallace A, Romney E.M., Schulz R.K. Effect of soil type on the extractability of ²³⁷Np, ²³⁹Pu, ²⁴¹Am, and ²⁴⁴Cm as a function of pH. Soil Science 132, 25-34, 1981.
- [Nishita, 1981c] Nishita H. Relative adsorption and plant uptake of ²³⁸Pu and ²³⁹Pu in soils. Soil Science 132(1): 66-70, 1981c.
- [Novikov, 2006] Novikov A.P., Kalmykov S.N., Utsunomiya S., Ewing R.C., Horreard F., Merkulov A., Clark S.B., Tkachev V.V., Myasoedov B.F. Colloid transport of plutonium in the far-field of the Mayak Production Association, Russia. Science 314, 638-641, 2006.
- [Orlandini, 1990] Orlandini K., Penrose, W., Harvey B., Lovett M., Findlay M. Colloidal behavior of actinides in an oligotrophic lake. Environ. Sci. Technol. 24, 706-712, 1990.
- [Papastefanou, 2001] Papastefanou C., Manolopoulou M., Stoulos S., Ioannidou A., Gerasopoulos E. Coloured rain dust from Sahara Desert is still radioactive, Journal of Environmental Radioactivity, vol 55, pp 109-112, 2001
- [Parkhurst, 1999] Parkhurst D.L., Appelo C.A.J. User's guide to PHREEQC (version 2) A computer program for speciation, batch-reaction, one-dimensional transport, and inverse geochemical calculations: U.S. Geological Survey Water-Resources Investigations Report 99-4259, 312 p, 1999.
- [Penrose, 1990] Penrose W.R., Polzer W.L., Essington E.H., Nelson D.M., Orlandini K.A. Mobility of plutonium and americium through a shallow aquifer in a semiarid region. Environ. Sci. Technol. 24, 228-234, 1990.
- [Peters, 1972] Peters L.N., Witherspoon J.P., Retention of 44-88 μ simulated fallout particles by grasses. Health Phys. 22, 261-266, 1972.
- [Pimpl, 1988] Pimpl M., Schmidt W. Soil-to-plant transfer studies of neptunium, plutonium, americium and curium. in IV Symposium international de radioécologie de Cadarache. Impact des accidents d'origine nucléaire sur l'environnement, p. D-134 à D-141, 1988.
- [Pinder, 1981] Pinder J., Adriano D., McLeod K. The relative distributions of resuspended and direct deposited Pu in a corn canopy are quantified. Annual report of ecological research at the Savannah River ecology laboratory, pp 78-81, 1981.
- [Pinder, 1988] Pinder J., Ciravolo T.G., Bowling J.W. The interrelationships among plant biomass, plant surface area and the interception of panicle deposition on grasses. Health Phys. 55, 51-58, 705-712, 1988.
- [Pinder, 1991] Pinder J. The accuracy of single-layered and multi-layered dynamic filtration models for particulate interception and retention in plant canopies. J. Environ. Radioactivity 14, 37-53, 1991.
- [Plancque, 2001] Plancque G., Amekraz B., Moulin V., Toulhoat P., Moulin C. Molecular structure of fulvic acids by electrospray with quadrupole time-of-flight mass spectrometry. Mass Spectrometry 15, 827-835, 2001.
- [Powell, 2004] Powell K.J. IUPAC Stability Constants Database - Academic Software, 2004.
- [Price, 1973] Price K.R. A review of transuranic elements in soils, plants, and animals, Journal of Environmental Quality, 2(1): pp 62-66, 1973.
- [Pröhl, 1996] Pröhl G., Hoffman P.O. Modelling of radionuclide interception and loss processes in vegetation and of transfer in semi-natural ecosystems Second report of the VAMP Terrestrial Working Group (1992) IAEA –TECDOC 857.
- [Puhakainen M.] Puhakainen M, Riekkinen I., Heikkinen T., Jaakkola T., Steinnes E., Rissanen K., Suimela M., Thorring H. Effect of chemical pollution on forms of ¹³⁷Cs, ⁹⁰Sr and ^{239,240}Pu in arctic soils studied by sequential extraction. J. Environ. Radioact. 52, 17-29, 2001.
- [Reiller, 2005] Reiller P. Prognosticating the humic complexation for redox sensitive actinides through analogy, using the charge neutralisation model. Radiochimica Acta. 93, 43-55, 2005.

- [Renoux, 1998] Renoux A., Boulaud D. Les aérosols, Physique et Métrologie. TECDOC, éditions Lavoisier. Paris, 1998.
- [Ringböm, 1967] Ringböm A. Les complexes en chimie analytique, Ed. Dunod, Paris, 1967.
- [Roberts, 2004] Roberts K., Santschi P., Leppard G., West M. Characterization of organic rich colloids from surface and ground waters at the actinide contaminated Rocky Flats Environmental technology Site (RFETS), Colorado, USA. Colloids and Surfaces A: Physicochem. Eng. Aspects 244, 105-111, 2004.
- [Romney, 1970] Romney E.M., Mork H.M., Larson K.H. Persistence of plutonium in soil, plants and small mammals. Health Physics, 19: 487-491, 1970.
- [Romney 1963] Romney E.M., Lindberg R.G., Hawthorne H.A., Bystrom B.G., Larson K.H. Contamination of plant foliage with radioactive fallout. Ecology 44(1963) 343-349.
- [Rosner, 1997] Rosner G., Hötzl H., Winkler R. Long-term behavior of plutonium in air and deposition and the role of resuspension in a semi-rural environment in Germany. The Science of the Total Environment, 196: 255-261, 1997.
- [Rosner, 2001a] Rosner G., Winkler R., Long-term variation (1986-1998) of post-Chernobyl ^{90}Sr , ^{137}Cs , ^{238}Pu and $^{239,240}\text{Pu}$ concentrations in air, depositions to ground, resuspension factors and resuspension rates in South Germany, The Science of the Total Environment, vol 273, p11-25, 2001.
- [Rosner, 2001b] Rosner G., Winkler R. Nuclide-dependent local and collector surface effects in sampling radioactive deposition to ground, Applied Radiation and Isotopes, vol 55, p 823-829, 2001
- [Royster, 1967] Royster G.W., Fish B.R. Techniques for assessing removable surface contamination, Surface contamination. Ed., Pergamon Press, New York, 201-207.
- [Russell, 1965] Russell R.S., Possingham J.V. Physical characteristics of fallout and its retention on herbage. Progress in Nuclear Energy 3 (1961) 2-26.
- [Russell, 1966] Russell R.S., Entry of radioactive materials into plants. In Radioactivity and Human Diet (ed., R.S. Russell), Pergamon, Oxford (1966).
- [Santschi, 1989] Santschi P.H., Honeyman B.D. Radionuclide in aquatic environment. Radiation Physics Chemistry, 34(2): pp 213-240, 1989.
- [Santschi, 2002] Santschi P., Roberts K., Guo L. Organic nature of colloidal actinides transported in surface water environments. Envir. Sci. Technol 36, 3711-3719, 2002.
- [Schaefer, 1990] Schaefer D.A., Reiners W.A. Throughfall chemistry and canopy processing mechanisms. In Acidic Precipitation: Vol. 3 Sources, Deposition and Canopy Interactions. Ed. S.E. Lindberg A.L. Page and S.A. Norton), Springer, New York 242-284, 1990.
- [Schnitzer et al., 1972] Schnitzer M., Khan S.U. (1972). Humic substances in the Environment. Ed. Marcel Dekker. New York, 1972.
- [Schönherr, 1977] Schönherr J., Plant cuticles are polyelectrolytes with isoelectric points around them. Plant Physiol. 59, 145-150, 1977.
- [Schreckhise, 1980] Schreckhise R.G., Cline J.F. Comparative uptake and distribution of plutonium, americium, curium and neptunium in four plant species. Health Physics 38: 817-824, 1980.
- [Schulten, 2002] Schulten H.R. New Approaches to the Molecular Structure and Properties of Soil Organic Matter: Humic-, Xenobiotic-, Biological-, and Mineral-Bonds. In: Soil Mineral-Organic Matter-Microorganism Interactions and Ecosystem Health. Developments in Soil Science. Ed. Elsevier, Amsterdam, Vol. 28A, 351-381, 2002.
- [Schulz, 1976] Schulz R.K., Tompkins. A., Babcock. K.L. Uptake of plutonium and americium by plants from soils: uptake by wheat from various soils and effects of oxidation state of plutonium added to soil. In: Transuranium nuclides in the environment, San Francisco, 17-21 November 1975, Vienne, IAEA, pp 303/310, 1976.
- [Seaborg, 1993] Seaborg G.T. Overview of the actinide and lanthanide elements, Radiochimica Acta 61, 115-122, 1993.
- [Seehars, 1983] Seehars H. D. Release of Pu-containing materials during a kerozene fire. J. Aerosol Sci., 14, 446-451, 1983.

- [Sehmel, 1980a] Sehmel G.A. Particle and gas dry deposition: a review. *Atmospheric environment*, 14: pp 983-1011, 1980.
- [Sehmel, 1980b] Sehmel, G.A. Particle resuspension: a review. *Environment International*, 4: pp 107-127, 1980.
- [Sheppard, 1990] Sheppard M.I., Thibault F.H. Default soil solid/liquid partition coefficients, K_d s, for four major soil types: a compendium. *Health Physics* 59, 471-482, 1990.
- [Shinn, 1997] Shinn J.H., Patton S.E., Gouveia F.J. Seasonal Variations and Frequency Distributions of Plutonium Resuspension at Tonopah, Nevada, UCRL-JC-126286, Lawrence Livermore National Laboratory, April 1997.
- [Simmonds, 1995] Simmonds J.R., Lawson G., Mayall A. Radiation Protection 72. Methodology for assessing the radiological consequences of routine releases of radionuclides in the environment. Rapport EUR-15760 EN, 1995.
- [Skwarzec, 2001] Skwarzec B., Struminska D. I. Bioaccumulation and distribution of plutonium in fish from Gdansk Bay. *Journal of Environmental Radioactivity* 2001: 167-178, 2001.
- [Steindler, 1980] Steindler M.J., Seefeldt W.B. A method for estimating the challenge to an air cleaning system resulting from an accidental explosive event. Actes du 16th DOE Nuclear Air Cleaning Conference, 1165-1174, 1980.
- [Stephens, 1995] Stephens D.R. Source terms for plutonium aerosolization from nuclear weapon accidents. Lawrence Livermore national Laboratory, UCRL-ID-119303, 1995
- [Stewart, 1963] Stewart K. The particulate material formed by the oxidation of plutonium, in *Technology, engineering and safety*, Vol. 5 Ed. C.M. Nicholls, Pergamon Press: pp 535-569; 1963.
- [Stewart, 1967] Stewart K. The resuspension of particulate material from surfaces. 63-74p Oxford: Pergamon Press, 1967
- [Sutter, 1983] Sutter S.L., Ballinger M.Y. Accident-generated radioactive particle source term development for consequence assessment of nuclear fuel cycle facilities. PNL-SA-11243, 1983.
- [Ticknor, 1994] Ticknor K.V., Vandergraaf T.T. Rassemblement et évaluation de coefficients de sorption incorporés au modèle de géosphère de SYVAC pour l'analyse de 1990 de l'aire de recherches de Whiteshell. Rapport AECL 10546, 1994.
- [Ticknor, 1996] Ticknor K.V., Vandergraaf T.T. Compilation révisée des coefficients de sorption à utiliser dans les modèles de la géosphère pour l'évaluation de la tenue d'une installation de stockage permanent du combustible irradié creusé dans un milieu granitique. Rapport AECL 11343, 1996.
- [Trémillon, 1993] Trémillon B. *Electrochimie analytique et réactions en solution*, Ed. Masson, Paris, 1993.
- [Van Dalen, 1975] Van Dalen A., De Witte F, Wijkstra J. Distribution coefficients for some radionuclides between saline-water and clays, sandstones and other samples from the Duch-sub-soil. In *Symposium on the Management of Radioactive Waste*, Rapport RCN-75-109, Mol, Belgique, 1975.
- [Van der Lee, 2000] Van Der Lee J. De Windt L. CHESST Tutorial and Cookbook. User's Guide - Nr. LHM/RD/99/05, CIG-École des Mines de Paris, Fontainebleau, France, 2000.
- [Van Der Stricht, 2001] Van Der Stricht E., Kirchmann R. *Radioecology: radioactivity and ecosystems*, ed. E. Van der Stricht, R. Kirchmann, 2001 .
- [Vashi, 1980] Vashi V.D., Kotrappa P., Soman S.D. Resuspension of plutonium from contaminated soils. in 5^o International congress on the international radiation protection association. Jerusalem, Israel, p. 85-88, 1980.
- [Vitorge, 2003] Vitorge P., Capdevila H. Thermodynamic data for modelling actinide speciation in environmental waters. *Radiochimica Acta* 91, 623-631, 2003.
- [Wildung, 1974] Wildung R.E., Garland T.R. Influence of soil plutonium concentration uptake and distribution in shoots and roots of barley. *J. Agr. Food Chemistry*. 22, 836, pp 836-838, 1974.
- [Witherspoon, 1971] Witherspoon J.P., Taylor Jr. F.G. Retention of 1-44 μ simulated fallout particles by soybean and sorghum plants, *Health Phys.* 21 (1971) 673.

V TRANSFERT ET COMPORTEMENT CHEZ L'HOMME

Cette section décrit le comportement du plutonium lors d'une incorporation accidentelle dans l'organisme humain ou animal. Elle détaille les organes cibles des isotopes du plutonium ainsi que les modèles biocinétiques associés les plus récents, remettant en cause certains paramètres de la CIPR.

Les données disponibles sont essentiellement des données expérimentales acquises sur des rongeurs. Peu de données humaines sont disponibles.

La toxicité du plutonium est, quant à elle, décrite au Chapitre VII de ce document.

V.1 EFFETS RADIOBIOLOGIQUES DU PLUTONIUM

La toxicité du plutonium est essentiellement d'origine radiologique.

Les isotopes principalement produits, ^{238}Pu , ^{239}Pu et ^{240}Pu , émettent des rayonnements alpha (l'isotope ^{241}Pu émettant un rayonnement bêta) et des neutrons.

Les rayonnements alpha sont très peu pénétrants²⁰, ils sont arrêtés par quelques centimètres d'air et leur parcours moyen est de 30 à 50 μm dans les tissus biologiques. Le plutonium n'entraîne donc pas d'exposition externe significative ni à partir de source externe, ni à partir de source déposée sur la peau saine. Ils sont arrêtés par la couche de cellules mortes présente à la surface de l'épiderme (couche cornée).

L'irradiation par les rayonnements alpha est une irradiation locale, à l'échelle cellulaire (quelques dizaines de micromètres). Les effets biologiques d'une irradiation par un émetteur alpha ne sont observés qu'après **contamination interne** (pulmonaire [CIPR 66, 1994], digestive [CIPR 100, 2007], transfert cutané, plaie [NCRP 156, 2007]).

La plupart des données biologiques ont été obtenues après exposition à du ^{239}Pu , essentiellement sous forme oxyde ou nitrate.

V.2 BIOCINETIQUE DU PLUTONIUM

V.2.1 VOIES D'ENTREE ET BIODISPONIBILITE

Le plutonium est un élément peu transférable. Chez l'homme, les voies prépondérantes susceptibles d'entraîner des effets sur la santé sont l'inhalation et la contamination par blessure. Les transferts digestif ou au travers de la peau saine du plutonium sont très faibles (de l'ordre de 10^{-4} à 10^{-5} pour le transfert digestif) pour les formes physico-chimiques qui ont été étudiées (essentiellement oxydes et nitrates). Une réflexion est actuellement menée sur les études à conduire en liaison avec les systèmes nucléaires du futur [Métivier, 2007].

Le comportement biologique du plutonium varie selon :

- la voie d'entrée,
- la taille des particules qui influence les modalités et la localisation du dépôt (poumon),
- la forme physico-chimique (oxyde, nitrate...) du composé qui influence la vitesse de transfert vers le sang.

²⁰ Les rayonnements alpha peuvent être arrêtés par 3 à 5 centimètres d'air ou par une feuille de papier.

Quels que soient l'organe de dépôt et les caractéristiques du composé, la partie transférée dans le sang se distribue dans les organes de rétention (foie, squelette). La toxicité dans ces organes dépend de la distribution du plutonium dans les différents types cellulaires et des caractéristiques radioactives de l'isotope.

Les voies d'entrée potentielles sont l'inhalation et l'ingestion, auxquelles il faut ajouter, chez les travailleurs, la blessure ou l'absorption cutanée.

V.2.1.1 Contamination par inhalation

En milieu industriel, l'inhalation d'aérosols constitue l'une des principales voies de contamination par le plutonium. Ils peuvent être présents sous forme soluble (nitrate) ou très peu soluble (oxyde de plutonium, oxydes mixtes d'uranium et de plutonium).

Dans le cas d'inhalation, les différents composés du plutonium présents dans le cycle du combustible ont des comportements biocinétiques très variés, liés à leur spéciation. De nombreuses études ont été publiées sur ces composés et un certain nombre de propriétés physico-chimiques influençant la biocinétique ou le calcul de dose ont été mises en évidence (cf. Figure V-2 et Tableau V-2).

Parmi celles-ci notons :

- le diamètre aérodynamique médian en activité (DAMA), mesuré dans de nombreuses installations et dont le résultat moyenné dans l'industrie nucléaire est de 4,4 μm [Dorrian, 1995], valeur proche de 5 μm , la valeur par défaut recommandée par la publication 66 de la CIPR,
- la surface spécifique, qui est liée au procédé d'obtention du composé et dont l'influence a été mise en évidence [Chazel, 1998] sur des composés de l'uranium : son augmentation entraîne de façon significative in vitro l'augmentation du taux de dissolution et in vivo celui des paramètres d'absorption au sang,
- la présence d'impuretés très fréquente dans l'industrie, qui modifie complètement le comportement biocinétique de ces composés,
- l'influence du taux d'hydratation [Mewhinney, 1987] ou du vieillissement dans certains cas comme par exemple pour PuO_2 qui peut modifier les propriétés de solubilité [Haschke, 2000 ; Madic, 2000].

i) Influence de la taille des particules :

La taille des particules (DAMA) conditionne la répartition initiale de l'aérosol inhalé dans le tractus respiratoire. La durée du séjour et le devenir des particules dépendent de leur dissolution et de leur transport [CIPR 66, 1994 ; CIPR guidance 3, 2002] (Figure V-1).

L'inhalation de plutonium conduit au dépôt de particules dans les bronches et la partie profonde des poumons (alvéoles). Le dépôt des particules d'un aérosol de plutonium au niveau des différents étages de l'arbre respiratoire est fonction de leur diamètre, seules les plus petites pouvant atteindre le poumon profond. On considère en première approximation que la totalité des particules de plus de 10 μm se déposent transitoirement dans les voies aériennes supérieures avant d'être éliminées par voie digestive. La quasi-totalité des particules de 5 à 10 μm se déposent dans les voies aériennes supérieures puis remontent par voie muco-ciliaire vers le carrefour digestif. Environ 5% des particules de 5 μm et environ 30% des particules de 1 μm se déposent dans le parenchyme respiratoire et sont alors, soit transférées par voie sanguine, soit transférées vers le système lymphatique.

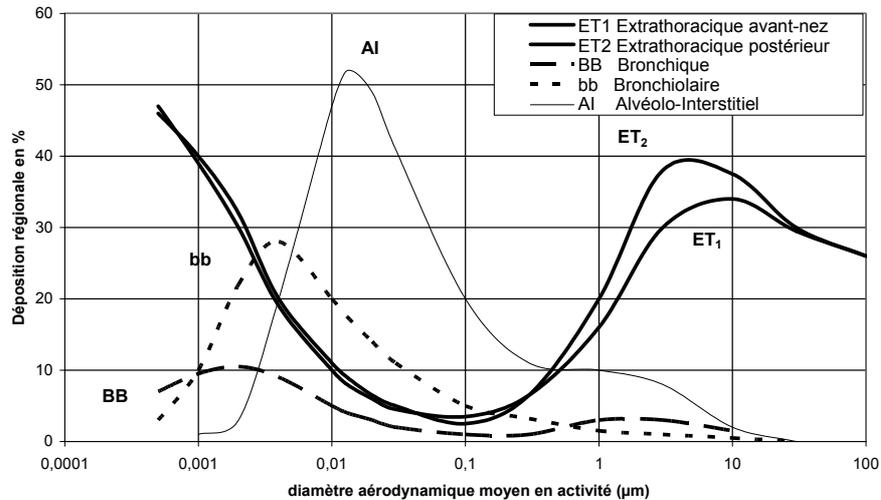


Figure V-1 : Dépôt des aérosols dans l'appareil respiratoire

La plupart des particules, de taille supérieure à quelques micromètres, migrent donc rapidement des voies aériennes vers l'appareil digestif et suivent alors le devenir du plutonium ingéré.

Les particules plus petites peuvent rester plusieurs mois dans le poumon (agglomération de plusieurs particules) avant d'être, à leur tour, éliminées par voie digestive, être transportées vers les ganglions lymphatiques ou se dissoudre (Pu sous forme soluble) ; l'élément est alors transféré dans le sang.

A partir du dépôt, la diminution de la charge présente dans le tractus respiratoire s'effectue selon trois mécanismes compétitifs :

- élimination à l'extérieur (mouchage),
- transport de particules soit vers le tractus intestinal, soit vers les ganglions lymphatiques,
- transfert vers le sang après dissolution.

La CIPR estime que pour les formes particulières, le dépôt, pour les différentes régions du tractus respiratoire, chez un sujet donné (fonction de l'âge et établi pour un équilibre d'activités impliquant des rythmes respiratoires différents), dépend essentiellement des propriétés physiques de l'aérosol comme la distribution de taille des particules.

Comme le montre le Tableau V-1, la taille des particules inhalées influence également le volume du poumon irradié. Par exemple, pour une activité de 600 Bq d'oxyde de ^{239}Pu , la fraction du poumon irradiée variera de 0,03% à 30% si la taille des particules varie de 1 µm à 0,1 µm.

| Diamètre des particules (µm) | Nombre de particules | Activité par particule (mBq) | Cellules irradiées | Fraction du poumon irradiée |
|------------------------------|----------------------|------------------------------|--------------------|-----------------------------|
| 0,1 | $5,4 \cdot 10^7$ | 0,01 | $3 \cdot 10^7$ | 30 |
| 0,3 | $2,0 \cdot 10^6$ | 0,4 | $1,3 \cdot 10^6$ | 1 |
| 0,7 | $1,8 \cdot 10^5$ | 3 | $1,2 \cdot 10^5$ | 0,1 |
| 1,0 | $5,4 \cdot 10^4$ | 11 | $3,6 \cdot 10^4$ | 0,03 |

Tableau V-1: Effet de la taille sur le pourcentage de tissu pulmonaire irradié pour un même dépôt pulmonaire (activité) après inhalation de $^{239}\text{PuO}_2$ (aérosol monodispersé) [Métivier, 1997]

ii) Transférabilité des composés :

Le modèle pulmonaire de la Publication 66 de la CIPR [CIPR 66, 1994] décrit les mécanismes mis en jeu, dont principalement le dépôt et l'élimination, et propose des coefficients d'absorption spécifiques du poumon au sang, qui sont respectivement la fraction rapide transférée f_r (%) et des taux de transfert (j^{-1}) rapide s_r et lent s_s (Figure V-2) traduisant la cinétique d'absorption [Bailey, 1998]. Des coefficients par défaut sont proposés par la CIPR, mais des coefficients spécifiques (Tableau V-2) ont été obtenus expérimentalement pour chacun des composés manipulés dans l'industrie.

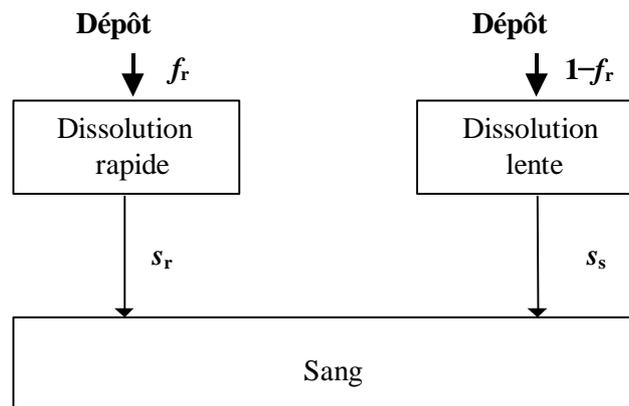


Figure V-2 : Diagramme des facteurs d'absorption au sang en fonction de la cinétique de dissolution

| Forme chimique | Isotope | Mode | Espèce | Paramètres d'absorption | | | Type | Références |
|---|-------------|-----------------|--------|-----------------------------|------|--|------|---|
| | | | | fr | sr | ss | | |
| | | | | 0,1 | 100 | $5,0 \cdot 10^{-3}$ | M | [CIPR 66, 1994] |
| | | | | 0,001 | 100 | $1,0 \cdot 10^{-4}$ | S | [CIPR 66, 1994] |
| Pu-Nitrate | | | | | | | | |
| | 239 | IT | rat | 0,55 | 49* | $5,6 \cdot 10^{-3}$ | M | # [Bailey 2000 ; 2003 ; 2008] |
| | 239 | INH | rat | 0,23 | 49* | $5,710^{-3}$ | M | [Hodgson, 2003] |
| | 239 | INH | homme | 0,21 | 0,25 | $2,5 \cdot 10^{-3}$ | M | [Stradling, 2003] |
| | 237 | INH | rat | 0,09 | 20 | $5,5 \cdot 10^{-3}$ | M | [Etherington, 2002] |
| | 237 | IT | rat | 0,68 | 18 | $2,2 \cdot 10^{-3}$ | M | [Moody, 1994] |
| Oxyde PuO₂ | | | | | | | | |
| | 239 | INH | rat | 0,0022 | 0,24 | $6,0 \cdot 10^{-4}$ | S | # [Matton, 2004] |
| | 239 | INH/IT | rat | $8 \cdot 10^{-4}$ - 0,47 | | | | # [Bailey 2000 ; 2003 ; 2008] [Stradling, 2003] |
| | 238 | INH | homme | | | $2,6 \cdot 10^{-4}$ | S | [Carbaugh, 2003] |
| | 238 | INH | rat | | | $< 5 \cdot 10^{-5}$ | S | [Ramounet, 2000 ; 2003a] |
| | 238 | INH | rat | 0,007 | 0,77 | $3,0 \cdot 10^{-5}$ | S | [Sato, 1999] |
| Pu 850°C | 239 | <i>In vitro</i> | | | | $3,5 \cdot 10^{-5}$ | S | [Lataillade, 1995] |
| | 238 | <i>In vitro</i> | | 0,003 | 0,7 | $8,2 \cdot 10^{-6}$ | S | [Eidson, 1983] |
| | 239 | INH? | rat | | | $7,0 \cdot 10^{-5}$ | S | [Métivier, 1980] |
| Pu 1000°C | 239 | INH? | rat | | | $2,0 \cdot 10^{-5}$ | S | [Stather, 1975] |
| MOx | | | | | | | | |
| (U,Pu)O ₂ | 20% Pu | INH | rat | 0,015 | | | | # [Matton, 2004] |
| (U,Pu)O ₂ | 20% Pu | INH | rat | 0,014 | 0,96 | $1,1 \cdot 10^{-3}$ | | # [Bailey 2000 ; 2003 ; 2008] [Stradling, 2003] |
| UO ₂ +PuO ₂ | 4,2 % Pu | INH | rat | | | $6,0 \cdot 10^{-5}$ | | [Ramounet, 2000 ; 2003a] |
| (U,Pu)O ₂ | 4,0% Pu | INH | rat | | | $3,0 \cdot 10^{-4}$ | | [Stanley, 1984] |
| UO ₂ +PuO ₂ | 5% Pu | INH | rat | 0,002 | 0,07 | $3,2 \cdot 10^{-5}$ | S | [Eidson, 1983] |
| (U,Pu)O ₂ | 5% Pu | INH | rat | 0,001 | 7,9 | $1,3 \cdot 10^{-4}$ | S | [James, 1978] |
| UO ₂ +PuO ₂ 750°C | | <i>In vitro</i> | | 0,004 | 0,35 | $4,6 \cdot 10^{-5}$ | S | |
| UO ₂ +PuO ₂ 850°C | | <i>In vitro</i> | | 0,001 | 0,58 | $3,3 \cdot 10^{-5}$ | S | |
| (U,Pu)O ₂ 1750°C | 238 | <i>In vitro</i> | | 0,046 | 0,31 | $2,4 \cdot 10^{-5}$ | S | |
| UO ₂ +PuO ₂ | 238 | <i>In vitro</i> | | 0,049 | 0,26 | $1,6 \cdot 10^{-4}$ | S | |
| (U,Pu)O ₂ | 238 | <i>In vitro</i> | | 0,058 | 0,12 | $4,5 \cdot 10^{-5}$ | S | |
| Pu (Résidus) | | | | | | | | |
| | 239-241 | IT | rat | 0,19 | 49* | $1,5 \cdot 10^{-3}$ | M | # [Bailey, 2000 ; 2003 ; 2008] |
| | 239-241 | IT | rat | 0,03 | 49* | $1,1 \cdot 10^{-3}$ | M | [Stradling, 2003] [Moody, 1991 ; 1994] |
| Pu-TBP | | | | | | | | |
| | 238 | INH | rat | 0,4 | | | M | # [Bailey, 2000 ; 2003 ; 2008] [Stradling, 2003] [Métivier, 1983] |
| Pu (sols) | | | | | | | | |
| Palomares | 239 | IT | rat | 0,15 - 0,0043 | 100* | $2,0 \cdot 10^{-4}$ - $3,1 \cdot 10^{-4}$ | S | # [Bailey, 2003 ; 2008] [Espinosa, 1998] [Iranzo, 1997] |
| Maralinga | 239-240 | IT | rat | | | 310^{-5} - 910^{-4} | | # [Bailey, 2000 ; 2003 ; 2008] [Stradling, 1992] |
| Pu (Mélanges) | | | | | | | | |
| Accident BAG | 239-241 | INH | homme | 0,0001 | 10 | $4,0 \cdot 10^{-5}$ | S | # [Bailey, 2000 ; 2003 ; 2008] |
| Accident BAG | 239 | INH? | | | | $5,0 \cdot 10^{-4}$ | | [James, 2003] |
| Retraitement | α Pu | IT | rat | | | $2 - 3 \cdot 10^{-4}$ | | [Marsh, 1996] |
| Rejet réacteur | 238-239 | IT | rat | | | $1,1 \cdot 10^{-3}$ | | [Stradling, 1995] |

* Valeur par défaut

Valeur recalculée par [Bailey, 2003 ; 2008]

Tableau V-2 : Revue bibliographique des paramètres d'absorption au sang pour différents composés du Pu par inhalation (INH), instillation (IT) ou in vitro

Composés transférables :

Les composés de plutonium inhalés transférés dans le sang se répartissent dans l'organisme, et sont soit éliminés (urines, fèces), soit déposés pour la majeure partie dans le foie et le squelette, qui constituent les principaux organes de rétention.

Le plutonium, sous forme de nitrates, est relativement transférable (près de 10% de la quantité déposée dans les poumons est rapidement transféré vers le sang). Le taux quotidien de dissolution du plutonium est ensuite d'environ 0,5% j⁻¹.

Après 10-15 ans, la quasi-totalité du plutonium des poumons qui n'a pas été éliminée par voie digestive a été transférée soit vers les ganglions lymphatiques, soit vers le sang et les organes de rétention.

Composés très peu transférables :

Dans le cas de formes très peu transférables, le tractus respiratoire est le principal organe de rétention, et l'essentiel du plutonium retenu dans l'organisme après plusieurs années demeure dans l'ensemble poumons et ganglions lymphatiques correspondants sous forme de particules. La dose locale délivrée aux tissus est étroitement liée au devenir des particules. Les particules des composés peu transférables migrent lentement des poumons vers le système lymphatique et sanguin.

L'oxyde de plutonium (²³⁹PuO₂) est très peu transférable. Il est éliminé en partie du poumon après remontée par le carrefour aéro-digestif et élimination dans les fèces. Une autre partie migre également sous forme particulaire vers les ganglions thoraciques. A l'inverse, une très faible fraction du plutonium inhalé sous forme d'oxyde (~0.5 %) s'élimine lentement du poumon (période biologique d'environ 500 à 1 000 jours) après dissolution locale par transport sanguin vers les autres organes : 90% de cette fraction solubilisée se dépose dans le foie et le squelette, 10% sera éliminée par voie urinaire et fécale.

Pour illustrer les transferts, si le PuO₂ est considéré initialement comme réparti dans les poumons (concentration de référence), après 10 ans, le Pu s'est concentré majoritairement dans les ganglions thoraciques (avec un facteur de concentration de 1400 par rapport à la concentration pulmonaire initiale), tandis que, après transfert par le sang, la concentration dans le foie est de 0,5 et dans le squelette de 0,06.

Ces résultats ont été obtenus lors d'expérimentations animales chez le chien ou chez le babouin et semblent être confirmés chez l'homme sur la base du suivi de travailleurs contaminés.

iii) Mécanismes de transfert :

L'absorption vers les fluides corporels s'effectue après dissociation des particules et captation des substances solubles et de fragments issus des particules. Elle peut être plus ou moins rapide et le taux est évalué par la valeur du taux d'absorption.

L'absorption est, en règle générale, plus importante chez le jeune enfant. La CIPR 66 distingue trois classes de composés pour le Pu en fonction de la durée sur laquelle se fait le transfert sanguin :

- absorption rapide (ordre de grandeur la semaine) (type F : fast),
- absorption modérée (ordre de grandeur le mois) (type M : moderate),
- absorption lente (ordre de grandeur l'année) (type S : slow).

Parmi les formes chimiques recensées dans le milieu professionnel, la CIPR 71 distingue celles considérées comme :

- **des formes M : nitrate de Pu, tributyl-phosphate de Pu mais aussi des oxydes mixtes de Pu avec du sodium, potassium, calcium ou magnésium**
- **des formes S : oxyde de Pu, oxydes mixtes de Pu et U.**

La CIPR propose la forme M par défaut dans le cas du plutonium pour les membres du public et la forme S pour les travailleurs.

V.2.1.2 Contamination par ingestion

L'absorption gastro-intestinale du plutonium apparaît généralement très faible. Cette faible fraction absorbée après ingestion, mesurée par le facteur de transfert digestif (f_1 ou f_A depuis la publication 100 de la CIPR [CIPR 100, 2007]), est dépendante de la forme chimique ingérée :

- formes solubles : $5 \cdot 10^{-4}$
- formes insolubles : 10^{-5}

Le transfert gastro-intestinal des formes solubles est en moyenne 10 fois plus élevé chez le nourrisson ($5 \cdot 10^{-3}$), plus particulièrement pendant les premières semaines de la vie. Cependant, dès l'âge de 1 an, les valeurs sont voisines de celles de l'adulte ($5 \cdot 10^{-4}$).

Une fois absorbé, le plutonium se retrouve dans le compartiment sanguin. Compte tenu du faible taux d'absorption intestinale, la majorité du plutonium ingéré est éliminé par voie digestive dans les fèces.

V.2.1.3 Contamination par blessure ou sur une peau saine

En cas de blessure, les particules sont directement implantées dans le tissu sous-cutané ou le muscle. Les fragments contenant du plutonium peuvent rester dans la plaie et se dissoudre lentement pour gagner le sang. Cependant, le fragment peut s'entourer rapidement d'une coque fibreuse qui limite cette dissolution.

En cas de contamination d'une peau saine, le dépôt cutané n'entraîne pas d'exposition au-delà de la couche cornée. Toutefois, il semble que, pour certaines formes chimiques, le transfert percutané soit envisageable mais les rares observations n'ont pas permis de déterminer les critères conditionnant le transfert.

V.2.2 DISTRIBUTION ET RETENTION

La forme physico-chimique joue un rôle prépondérant au niveau de la porte d'entrée. C'est là que se feront les transformations qui permettront le transfert du plutonium vers le sang.

Une fois transféré dans le sang, le plutonium tétravalent (IV) forme des complexes stables principalement (> 95%) avec une protéine sérique, la transferrine (protéine de transport du fer dans le sang), et de façon plus mineure avec les citrates (<5%), présents naturellement dans le sang, [Ansoborlo, 2006 ; Duffield, 2001]. Véhiculé sous forme de complexe Pu-transferrine, le transfert et dépôt vers les organes de rétention (foie, squelette...) sont donc indépendants de la forme physico-chimique contaminante.

La fraction de plutonium ayant été transférée dans le sang est ensuite assez rapidement (0,75 jours selon la CIPR 67 [CIPR 67, 1993]) distribuée dans les organes de dépôt, squelette et foie, alors exposés au rayonnement ou excrétée.

Le plutonium se fixe principalement sur les surfaces osseuses et dans le foie. Avec le temps, le remodelage osseux contribue, soit par résorption au retour vers le sang du plutonium soluble, soit à sa migration dans le volume osseux. Ce dernier phénomène apparaît quantitativement beaucoup moins important que pour l'uranium.

La répartition quantitative du plutonium dans les différents compartiments, telle que modélisée par la CIPR et des études récentes [Leggett, 2003], sera détaillée dans le paragraphe V.3.

V.2.3 EXCRETION

Quand le plutonium est dans le compartiment sanguin, l'excrétion urinaire est faible, soit environ 5 à 10% de la charge sanguine. Une faible fraction de plutonium circulant est également éliminée par voie biliaire et fécale.

La quasi-totalité du plutonium ingéré est rejeté directement (sans transfert vers le sang) par voie digestive, *via* les fèces.

V.2.4 TRANSFERT MATERNO-FŒTAL

Le transfert materno-fœtal est faible pour tous les transplutoniens.

Pour l'homme, la CIPR considère que le modèle biocinétique du plutonium chez le fœtus est identique à celui de l'enfant de 3 mois. Les principaux organes de rétention sont le squelette et le foie (cf. Tableau V-3). Le pourcentage de plutonium retenu dans les surfaces osseuses chez le fœtus est plus important que chez l'adulte ; en revanche, le turn-over y est plus rapide.

| | Squelette | Foie | Autres |
|--------------|-----------|------|--------|
| Distribution | 80% | 15% | 5% |

Tableau V-3 : Distribution du plutonium chez le fœtus [CIPR 88, 2002]

La dose à l'embryon, de la conception à 8 semaines (56 jours), est assimilée à celle calculée pour la paroi utérine. Au cours de la période fœtale (9^{ème} à 38^{ème} semaine), caractérisée par une croissance et un développement des différents organes, la dose au fœtus dépend des concentrations incorporées après transfert placentaire.

Pour estimer l'exposition et la dose reçue par le fœtus du fait d'une contamination maternelle avant ou pendant la grossesse, on utilise les concentrations moyennées pour l'ensemble du corps maternel (CM) et fœtal (CF). La comparaison des concentrations fœtales et maternelles est exprimée par le rapport CF/CM. Pour le plutonium, le rapport CF/CM dépend du moment de la grossesse où a lieu la contamination comme le montre le Tableau V-4.

| | Contamination maternelle avant la grossesse | Contamination maternelle pendant la grossesse | | |
|-------|---|---|---|---------|
| | | 1 ^{er} trimestre (90 jours) | Fin 2 nd trimestre (180 jours) | A terme |
| CF/CM | 0,03 | 0,1 | 0,3 | 1 |

Tableau V-4 : Rapport des concentrations totales de plutonium pour le fœtus et la mère [CIPR 88, 2002]

Selon la CIPR, les résultats diffèrent grandement d'une espèce animale à une autre, mais ne font jamais apparaître de concentrations plus élevées dans les tissus fœtaux par rapport aux tissus maternels.

V.2.5 PASSAGE DANS LE LAIT

Le taux de passage de différents radionucléides ostéotropes dont le ^{239}Pu (après injection intraveineuse) du plasma dans le lait a été étudié chez la brebis [McClellan, 1962]. Les auteurs ont défini 3 groupes de radionucléides en fonction de la valeur du rapport des concentrations de radionucléide dans le lait par rapport au plasma. Pour le ^{239}Pu , le rapport est compris entre 0,02 et 0,15, alors qu'il est de 10 à 40 pour le ^{45}Ca et de 2 à 5 pour le ^{244}Cm et le ^{241}Am .

Au total, la contamination du fœtus ou du nourrisson est plus faible que celle de sa mère du fait d'un faible passage materno-fœtal et d'un faible transfert dans le lait maternel.

V.3 MODELE BIOCINETIQUE

Dans la plupart des documents, la biocinétique est estimée sur la base des recommandations de la CIPR (recommandations n°56 et 67). Des analyses récentes [Leggett, 2003 ; Leggett, 2005] proposent des modifications qui confèrent une plus grande cohérence à l'ensemble des observations disponibles. Ces modifications portent sur la répartition entre compartiments, les facteurs de transfert et les périodes biologiques. Les données issues de la CIPR (cf. paragraphe V.3.1), suivies de l'analyse des données de Leggett (cf. paragraphe V.3.2) sont détaillées dans les paragraphes suivants.

V.3.1 PARAMETRES DU MODELE DE LA CIPR

Les paramètres de la CIPR sont basés sur les données obtenues chez l'homme et chez l'animal (notamment chez le chien beagle).

V.3.1.1 Modélisation

Pour le plutonium, la CIPR propose un modèle systémique (cf. Figure V-3) qu'elle qualifie de "recyclant", puisqu'une fois distribué du sang vers les organes de rétention, la répartition du plutonium entre la fraction sanguine et la fraction retenue dans les organes n'est pas statique mais résulte d'un recyclage permanent avec en parallèle une fraction éliminée (urine, fèces). Le modèle "recyclant" prend ainsi en compte les échanges continus entre le sang et les tissus d'une part, et entre les différents tissus d'autre part. Il considère de nombreux compartiments en distinguant différents territoires au sein d'un même tissu en fonction des échanges.

Dans le cas du plutonium, les compartiments sont individualisés sur la base des données cinétiques, le plus souvent expérimentales. Ceci ne signifie pas que chaque compartiment correspond à un type cellulaire ou un tissu particulier identifié. Il n'est pas associé une fonction physiologique précise à chaque compartiment.

C'est le cas par exemple du foie²¹ (compartiments 1 et 2) et de tissus mous à durée de rétention moyenne (de l'ordre de l'année) (cf. Figure V-3). Pour les tissus mous, trois compartiments ont été arbitrairement définis, ST0²² (renouvellement rapide), ST1 (renouvellement moyen) et ST2 (renouvellement lent).

La structure du modèle permet d'estimer, à chaque instant, la quantité d'éléments excrétée ou retenue dans les différents compartiments.

²¹ Le foie est supposé comprendre deux compartiments présentant des périodes d'élimination du plutonium très différentes, une faible fraction étant éliminée dans la bile.

²² ST = Soft Tissues

Circulation :

Le plutonium circulant est représenté par le plutonium sanguin et le plutonium retenu dans les tissus mous à renouvellement rapide ST0 (incluant les fluides extracellulaires et recevant 30% de l'apport initial en plutonium) (cf. Figure V-3).

La période biologique du plutonium est de 0,75 jours dans le sang et de 1 jour dans le compartiment ST0, quel que soit l'âge de l'individu.

Une fois transféré dans le sang, le plutonium se répartit assez rapidement dans les différents organes et tissus de rétention selon les valeurs indiquées dans le Tableau V-5.

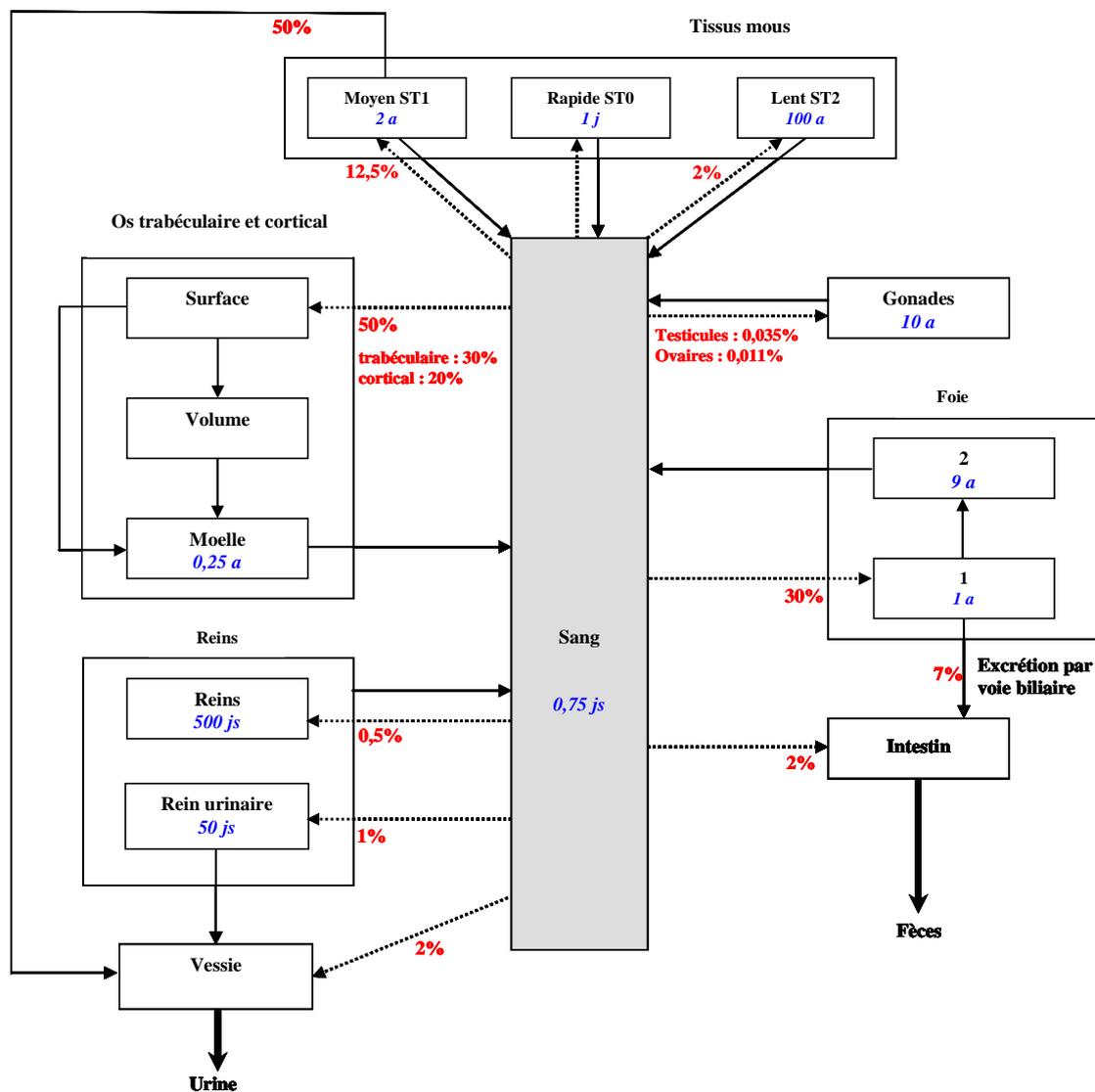


Figure V-3 : Modèle biocinétique du plutonium [CIPR 67, 1993]

Les valeurs de distribution (en rouge) sont données en pourcentage de la quantité circulant dans le sang

| Age | Distribution (%) | | |
|--------|------------------|------|----------|
| | Squelette | Foie | Gonades* |
| 3 mois | 70 | 10 | 0,002 |
| 1 an | 70 | 10 | 0,002 |
| 5 ans | 60 | 20 | 0,002 |
| 10 ans | 60 | 20 | 0,002 |
| 15 ans | 60 | 20 | 0,002 |
| Adulte | 50 | 30 | 0,001 |

Tableau V-5 : Paramètres biocinétiques du plutonium [CIPR 67, 1993]

* Distribution du plutonium dans les gonades exprimée en% par gramme de tissu

Squelette et foie :

Les deux principaux organes de rétention sont le squelette et le foie ; ils correspondent chez l'adulte à 80% de la charge sanguine avec une répartition initiale squelette/foie de l'ordre de 5/3 chez l'adulte (7/1 chez le nourrisson et l'enfant de 1 an et 6/2 pour les classes d'âge allant de 5 à 15 ans).

Foie :

Le foie est divisé en deux compartiments : foie 1 et 2, afin de prendre en compte l'excrétion du plutonium par voie biliaire. Ainsi :

- Le compartiment foie 1 reçoit 30% du plutonium sanguin ;
- Avec une période biologique de 1 an, 93% du plutonium retenu dans le compartiment 1 est transféré au compartiment 2 ;
- Les 7% restants sont excrétés par voie biliaire et transférés vers l'intestin d'où ils seront éliminés via les fèces ;
- Le plutonium retenu dans le compartiment 2, avec une période biologique de 9 ans, retourne dans le sang.

La période totale de rétention du plutonium dans le foie est de l'ordre de 10 ans²³.

Squelette :

Le remodelage osseux contribue au retour du plutonium dans le sang. Ainsi le squelette est divisé en trois compartiments : surfaces osseuses, volume osseux et moelle osseuse.

Selon la CIPR, 50% du plutonium sanguin se dépose sur les surfaces osseuses, dont 60% dans l'os trabéculaire (os spongieux) et 40% dans l'os cortical (os compact) chez l'adulte. Chez les autres classes d'âge, la répartition entre l'os cortical et l'os trabéculaire est équivalente.

- La "translocation" du plutonium s'effectue depuis les surfaces osseuses vers le volume osseux (suite à la formation du tissu osseux) et vers la moelle osseuse (suite à la résorption du tissu osseux).
- Le plutonium présent dans le volume osseux est également transféré vers la moelle osseuse.

Le plutonium retenu dans le squelette retourne dans le sang à partir de la moelle osseuse après une période de 0,25 ans (soit environ 90 jours).

²³ La période biologique du plutonium dans le foie a été reconsidérée plusieurs fois ; ainsi, elle était estimée à 40 ans dans la CIPR 30 (1979) et à 20 ans dans la CIPR 56 (1989).

La période de rétention du plutonium dans le squelette est globalement calculée comme étant de l'ordre de plusieurs dizaines d'années, 50 ans dans la CIPR 56

Gonades :

- La distribution du plutonium sanguin au niveau des gonades est de 0,001% par gramme de tissu chez l'adulte de référence.
- Elle est de 0,002% par gramme de tissu chez toutes les autres classes d'âge définies par la CIPR.
- Le poids de gonades varie au cours de la croissance et la fraction de plutonium retenue par gramme de tissu varie également avec l'âge.
- La masse de plutonium retenu dans les gonades dépend de l'âge de l'individu.
- Chez l'adulte de référence, la masse de plutonium distribuée aux gonades est de 0,035 % dans les testicules et de 0,011 % dans les ovaires.

Dans la CIPR 67 [CIPR 67, 1993], la période de rétention du plutonium dans les gonades est évaluée à 10 ans, quel que soit l'âge auquel a lieu la contamination.

Tissus mous à renouvellement moyen et lent : ST1 et ST2 (cf. Figure V-3)

Les paramètres concernant ces deux compartiments sont indépendants de l'âge de l'individu :

- ST1 reçoit 12,5% du plutonium sanguin,
- ST2 reçoit 2% du plutonium sanguin.

La période biologique du plutonium est de 2 ans dans le compartiment ST1 et de 100 ans dans ST2.

Reins et excrétion urinaire :

Les paramètres concernant la rétention dans le rein et l'excrétion urinaire sont indépendants de l'âge de l'individu. La CIPR estime que :

- 2% du plutonium sanguin est éliminé par voie urinaire ;
- 1% du plutonium sanguin est indirectement éliminé par voie urinaire après avoir été retenu 50 jours dans les tubules rénaux.

Pour expliquer l'augmentation relative de l'élimination urinaire du plutonium en fonction du temps, la CIPR ajoute une voie d'élimination non argumentée physiologiquement. Ainsi, la vessie reçoit 50% du plutonium retenu dans les tissus mous à renouvellement moyen (ST1).

0,5% du plutonium sanguin est transféré aux autres tissus rénaux avant de retourner dans le sang avec une période biologique de 500 jours.

Excrétion fécale :

Les valeurs relatives à l'excrétion fécale du plutonium sont indépendantes de l'âge de l'individu.

Le plutonium éliminé par excrétion fécale représente 2% du plutonium sanguin et 7% du plutonium retenu dans le compartiment 1 du foie (excrétion par voie biliaire).

L'excrétion par voie biliaire représente près de 50% de l'excrétion totale du plutonium *via* les fèces chez l'adulte.

V.3.2 REVISIONS DES PARAMETRES DE LA CIPR [LEGGETT, 2003]

Des études récentes [Leggett, 2003 ; Leggett, 2005] ont permis la révision des paramètres biocinétiques du plutonium proposés par la CIPR. Les données proviennent d'études effectuées sur 17 volontaires sains après injection de ^{237}Pu et/ou de ^{244}Pu , et du suivi des travailleurs de l'industrie et la recherche nucléaires.

V.3.2.1 Modélisation

Circulation :

Comme pour le modèle de la CIPR, le plutonium circulant est représenté par le plutonium sanguin et par le plutonium retenu dans les tissus mous à renouvellement rapide ST0.

Le compartiment sanguin est ici divisé en deux compartiments : sang 1 et sang 2, afin de modéliser la différence de cinétique entre le plutonium de l'apport initial et le plutonium "recyclé". Ainsi :

- Le plutonium incorporé est rapidement transféré vers sang 1 (70%) et ST0 (30%) ;
- La période biologique du plutonium est de 0,9 jours dans sang 1 et de 7 jours dans ST0.

Une fois transféré dans le sang, le plutonium se répartit et est retenu dans les différents organes et tissus selon les valeurs indiquées dans le Tableau V-6.

| | Sang 1 | Sang 2 | Squelette | Foie | Gonades | |
|--------------------|--------|--------|-----------|---------|------------|---------|
| | | | | | Testicules | Ovaires |
| Distribution (%) | - | - | 30% | 60% | 0,035% | 0,011% |
| Période biologique | 0,9 j | 10 min | - | ~16 ans | 5 ans | |

Tableau V-6 : Paramètres biocinétiques du plutonium – révision des paramètres de la CIPR [Leggett, 2005]

Ces paramètres sont valables pour un adulte d'âge moyen.

Le compartiment sang 2 reçoit le plutonium "recyclé" provenant des différents organes de rétention (sauf ST0). Comme indiqué sur la Figure V-4 et la Figure V-5 :

- 67,5% du plutonium recyclé est ensuite rapidement (10 minutes) transféré au compartiment sanguin 1 ;
- Le reste du plutonium "recyclé" est transféré à ST0 (29%) et éliminé par voie urinaire par transfert direct à la vessie (3,5%). Ce transfert direct sang-vessie permet de modéliser l'excrétion urinaire du plutonium "recyclé", plus importante que celle du plutonium de l'apport initial (2%) ;
- Le plutonium "recyclé" qui n'est pas éliminé directement par voie urinaire se redistribue dans l'organisme selon le même schéma que l'apport initial.

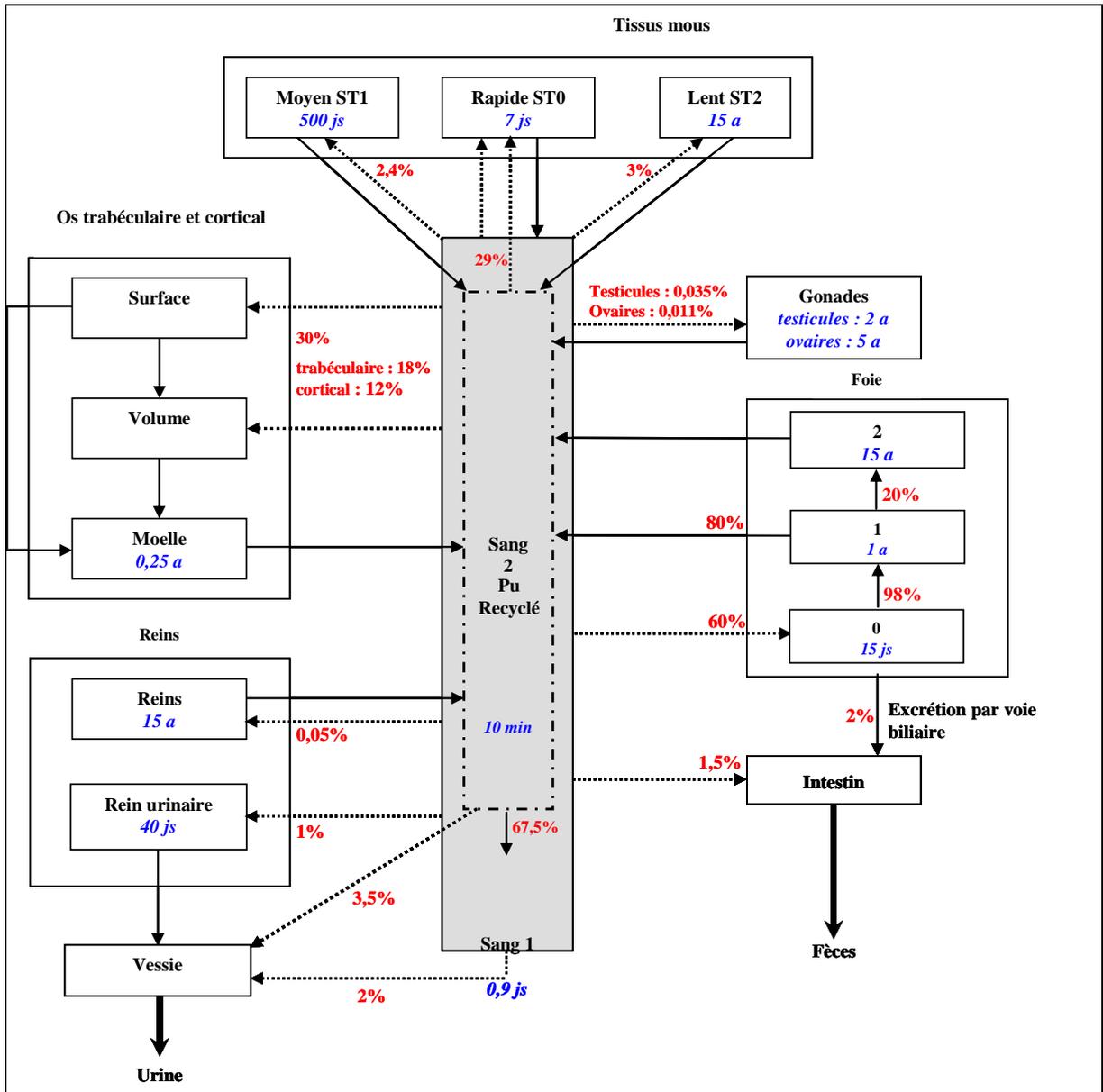


Figure V-4 : Nouveau modèle proposé pour le plutonium [Leggett, 2003]

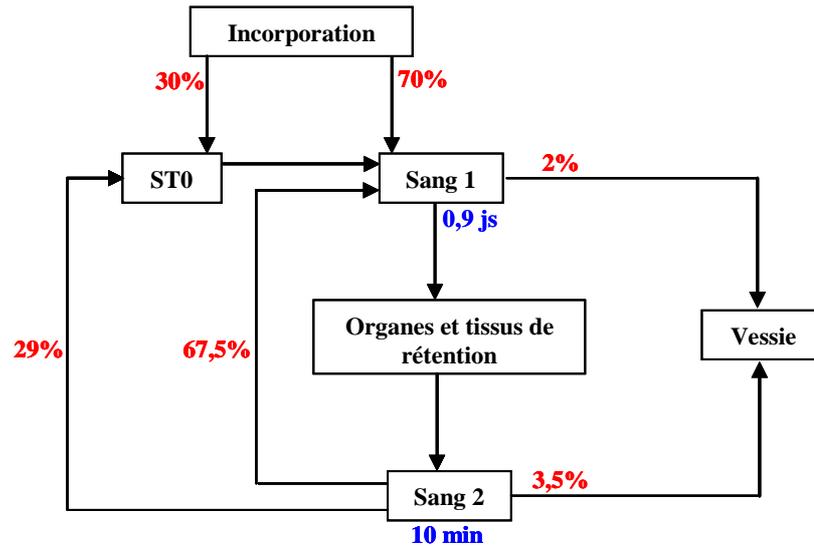


Figure V-5 : Modélisation de la cinétique des formes circulantes du plutonium : initialement (lors du 1^{er} passage sanguin : sang 1) et lors des recyclages (après recyclage : sang 2) [Leggett, 2003]

Foie :

Les nouvelles données indiquent que la rétention du plutonium dans le foie est plus importante que ce qu'il était préjugé. Ainsi, le foie constitue le principal organe de rétention du plutonium à court terme.

Le foie est divisé en 3 compartiments :

- 60% du plutonium sanguin (sang 1) est transféré au compartiment 0 du foie. Il s'agit d'un compartiment à taux de renouvellement rapide (période biologique de 15 jours) à partir duquel le plutonium est excrété par voie biliaire (2%) ou transféré au compartiment 1 du foie.
- La période biologique du plutonium dans "foie 1" est de 1 an ; le plutonium retourne à 80% dans le sang pour être recyclé (sang 2). Ce compartiment rend compte du déplacement progressif du plutonium, du foie vers le squelette.
- Les 20% restants sont transférés au 3^{ème} compartiment hépatique (foie 2) avant de retourner dans le sang 2 après une période biologique de 15 ans.

Squelette :

Comme décrit dans la CIPR, le remodelage osseux contribue au retour du plutonium dans le sang lors de la formation et de la résorption du tissu osseux.

- Seuls 30% du plutonium circulant se déposent dans le squelette dont 18% dans l'os trabéculaire et 12% dans l'os cortical ;
- Le plutonium distribué au squelette se dépose initialement sur les surfaces mais également dans le volume osseux : selon un rapport de 90%-10% dans l'os trabéculaire et 95%-5% dans l'os cortical ;
- Le transfert du plutonium de la surface et du volume osseux vers la moelle osseuse est respectivement de 3% et de 18% par an pour l'os cortical et l'os trabéculaire ; ces valeurs correspondent au taux de référence de remodelage osseux ;
- Le "burial rate" (taux d'enfouissement) du plutonium dans les surfaces osseuses est de 0,75% par an dans l'os cortical et de 4,5% par an dans l'os trabéculaire ;
- La période biologique du plutonium dans la moelle osseuse est de 90 jours ;

La période de rétention du plutonium dans le squelette est calculée comme étant d'une dizaine à plusieurs dizaines d'années.

Gonades :

La répartition du plutonium dans les gonades est la même que celle décrite par la CIPR, seule la période de rétention change. Elle est estimée à 5 ans.

Reins et excrétion urinaire :

La modélisation de l'élimination urinaire du plutonium a été modifiée pour plus de réalisme d'un point de vue physiologique. Ainsi, dans le modèle proposé, un transfert direct sang 2/vessie permet de modéliser l'élimination du plutonium "recyclé" provenant de n'importe quel tissu ou organe de rétention (excepté ST0).

- 2% du plutonium circulant dans le compartiment sang 1 est directement éliminé par voie urinaire ;
- 1% du plutonium sanguin (sang 1) est distribué aux tubules rénaux avant d'être transféré à la vessie avec une période biologique de 40 jours ;
- Seul 0,05% du plutonium circulant dans sang 1 est distribué aux autres tissus rénaux ayant une période de rétention plus longue (15 ans) ;

L'excrétion urinaire par transfert direct du plutonium vers la vessie est plus importante pour le plutonium "recyclé" (3,5%) que pour le plutonium de l'apport initial (2%). Le plutonium recyclé est également transféré à la vessie "indirectement" après retour dans le compartiment sang 1.

Autres tissus mous : ST1 et ST2

Le plutonium n'ayant pas été réparti entre les différents organes ou tissus de rétention se dépose dans les tissus mous à renouvellement moyen ; ainsi ST1 reçoit 2,4% du plutonium circulant où il sera retenu avec une période biologique de 500 jours.

Les tissus mous à renouvellement lent reçoivent 3% du plutonium circulant. La période biologique du plutonium dans ces tissus est de 15 ans.

Excrétion fécale :

Les valeurs relatives à l'excrétion fécale du plutonium sont indépendantes de l'âge de l'individu.

Le plutonium éliminé par excrétion fécale représente 1.5% du plutonium sanguin et 2% du plutonium retenu dans le compartiment 1 du foie (excrétion par voie biliaire).

L'excrétion par voie biliaire représente près de 50% de l'excrétion totale du plutonium *via* les fèces chez l'adulte.

V.3.2.2 Discussion

Le modèle biocinétique proposé par les auteurs décrit un changement continu de la distribution systémique du plutonium en fonction du temps, correspondant au recyclage du plutonium.

Ainsi, comparé au modèle initial, on conclut que :

- La fraction du plutonium sanguin distribué au foie diminue de 60% à environ 35% en plusieurs années, alors que l'activité retenue dans le squelette augmente de 30% à environ 55%. Une partie du dépôt osseux se fait au niveau du volume osseux.
- Compte tenu de cette cinétique globale :
 - La dose au squelette est inférieure à celle estimée à partir du modèle de la CIPR.
 - La dose au foie est supérieure à celle précédemment estimée, à court et moyen terme.

- En revanche, la dose annuelle du foie estimée à partir des deux modèles devient similaire à long terme après incorporation.

- Cependant, le calcul de la dose engagée sur 50 ans « lisse » les variations de dose décrites ci-dessus. En pratique, les variations dues au comportement biologique du plutonium n'ont pratiquement pas d'influence sur le calcul de la dose engagée sur 50 ans.

D'après les données obtenues chez l'homme, il semble que la biocinétique du plutonium varie en fonction de plusieurs facteurs comme le sexe, l'âge ou encore l'état de santé.

Ainsi, les données obtenues après autopsies de travailleurs du nucléaire [Khokhryakov, 1994 ; Khokhryakov, 2000] indiquent de fortes perturbations dans la biocinétique du plutonium en cas de pathologies hépatiques.

Les auteurs ont ainsi divisé les sujets en 3 groupes en fonction de la cause du décès et de l'état fonctionnel du foie avant le décès.

- *Groupe 1* : décès brutal, non lié à une pathologie préalable.
- *Groupe 2* : décès lié à des maladies cardiovasculaires chroniques ou à des tumeurs malignes d'organes autres que le foie. Pas de métastases multiples au niveau du foie. Chez ces travailleurs, on note une dégénérescence graisseuse modérée des cellules hépatiques.
- *Groupe 3* : décès dû à une cirrhose ou toute autre pathologie ayant entraîné de sérieux dommages au niveau du foie. Les sujets présentent des changements morphologiques au niveau du foie, caractérisés par une dégénérescence graisseuse très marquée des tissus hépatiques.

Les autopsies réalisées, ainsi que le recueil des urines effectué sur des années avant le décès des sujets, ont permis de mesurer le taux d'excrétion urinaire du plutonium ainsi que les concentrations respectives dans le foie et le squelette.

Comme indiqué dans le Tableau V-7, l'excrétion urinaire est moins importante chez les sujets ayant une fonction hépatique normale. En revanche, le rapport des concentrations foie/squelette diminue en fonction de la gravité de la pathologie hépatique.

| Groupes | Elimination urinaire (en% de la charge corporelle) | Foie/squelette (rapport des concentrations) |
|-----------------------------------|---|--|
| Fonction hépatique normale | 0,0015 | 4,2 |
| Dégénérescence graisseuse modérée | 0,0022 | 2,7 |
| Forte dégénérescence graisseuse | 0,0031 | 0,85 |

Tableau V-7 : Taux d'excrétion urinaire et rapports des concentrations en plutonium dans le foie et le squelette pour différents groupes de travailleurs de Mayak en fonction de leur état de santé au niveau hépatique [Leggett, 2005]

Les différences de biocinétique observées dans les groupes sont donc fonction de la gravité des pathologies hépatiques et résultent :

- D'une diminution de l'irrigation sanguine du foie entraînant un transfert du plutonium moins important entre le sang et le foie ;
- D'une diminution d'activité du système réticuloendothélial entraînant une diminution de la rétention du plutonium dans le foie à long terme ; le transfert foie 1 vers foie 2 diminue alors que le transfert foie 2 vers le sang augmente.

V.4 COEFFICIENTS DE DOSE OU DOSES PAR UNITE D'INCORPORATION (DPUI)

Pour la voie interne, les coefficients de dose couramment utilisés dans les calculs sont ceux répertoriés dans les CIPR (CIPR 68 pour les travailleurs [CIPR 68, 1994] et CIPR 71 et 72 [CIPR 71, 1996 ; CIPR 72, 1996] pour les membres du public). Ils sont présentés au chapitre XI (Annexe 3 : Coefficients de dose).

NB. Les facteurs de dose par inhalation et ingestion prennent en compte la durée de l'exposition pendant l'élimination biologique et radiologique du radionucléide. Après une incorporation unique (ou momentanée), dans le cas des isotopes du plutonium à vie longue et en raison de leur très faible mobilité, l'exposition interne des différents organes concernés est longue. Elle nécessite effectivement les durées d'intégration de 50 ans pour les adultes et de 70 ans pour les enfants.

V.5 INCERTITUDES SUR LES EXPOSITIONS, LES CONTAMINATIONS ET LES DOSES PAR UNITE D'INCORPORATION

Les différentes valeurs rapportées dans ce chapitre sont généralement fournies sans incertitudes associées. Cependant, qu'il s'agisse de valeurs mesurables ou de valeurs calculées, les incertitudes autour d'une valeur chiffrée sont nécessaires pour interpréter et comparer des données de différentes origines. Ces dernières années, différentes études contribuent à une meilleure évaluation des incertitudes sur les expositions, les contaminations et sur les doses. Les résultats obtenus concernent principalement les travailleurs.

Cette partie détaille les incertitudes sur les niveaux de contamination, les doses équivalentes, les DPUI et le risque d'apparition de cancer après inhalation d'aérosols renfermant du plutonium en se focalisant sur des composés très peu solubles (PuO_2).

Il faut souligner ici que les incertitudes présentées dans ce chapitre ne concernent pas les DPUI rapportées dans la CIPR qui constituent des valeurs réglementaires utilisées pour fixer des limites d'exposition. Elles sont applicables aux DPUI calculées après des expositions individuelles ou collectives afin, d'une part, d'aider au suivi radiologique à partir de données biologiques recueillies après contamination individuelle, et d'autre part, de préciser la distribution de dose au sein d'une population exposée à des radiocontaminants.

V.5.1 IDENTIFICATION DES SOURCES D'INCERTITUDES

V.5.1.1 Calcul et expression des incertitudes

La variabilité de la valeur des paramètres introduits dans les différents modèles utilisés pour le calcul de doses peut être décrite par différentes fonctions de densité de probabilité : uniformes, triangulaires, normales, log normales... A partir de ces fonctions, des simulations sont réitérées à de nombreuses reprises en attribuant des valeurs équiprobables à chacun des paramètres pour permettre une approche de type Monte Carlo (choix aléatoire entre des valeurs équiprobables). Par exemple, après inhalation, chaque simulation correspond à un aérosol donné et à un individu ayant

une anatomie et une physiologie spécifique. L'analyse de la distribution des résultats obtenus (dépôt des aérosols, biocinétique du plutonium, doses...) permet de définir des incertitudes qui sont le plus souvent exprimées sous la forme d'intervalle de confiance à 95%. Dans le cas d'une distribution normale, la valeur 97,5% est égale à la moyenne plus 2 écarts types (σ) et la valeur 2,5% à la moyenne moins 2 σ . Ainsi, 4 σ , exprimé en valeur relative par rapport à la moyenne, correspond au rapport entre ces 2 valeurs. En revanche, dans le cas d'une distribution log normale, ce rapport est égal à l'écart type géométrique (σ_g) à la puissance 4, la valeur 97,5% étant égale à la valeur médiane multipliée par σ_g au carré.

Dans la pratique, les distributions sont caractérisées, après au moins 1000 simulations, par une analyse graphique effectuée selon la méthode de Henry. Cette dernière permet de représenter toute loi normale ou log normale sous forme de droite, et donc le choix de la distribution s'effectue en fonction de la valeur du coefficient linéaire de corrélation. Les distributions sont caractérisées comme normale ou log normale lorsque la valeur de ce coefficient est supérieure à 0,98 [Fritsch, 2004].

Les résultats précédents sont obtenus en faisant varier simultanément la valeur des différents paramètres des modèles. Il est également possible d'évaluer l'impact de la variation de chacun des paramètres, ce qui constitue une étude de sensibilité. Cette approche permet d'identifier les paramètres dont la valeur doit être précisée afin de limiter de manière significative les incertitudes.

Dans cette partie du document sont résumées les principales données de la littérature et les résultats obtenus dans le cadre de recherche en cours sur les incertitudes après inhalation d'aérosols renfermant du plutonium après application des recommandations de la CIPR 66 [CIPR 66, 1994].

V.5.1.2 Incertitudes sur le dépôt des aérosols

i) Estimation des niveaux de contamination

Après inhalation, le dépôt des aérosols au sein du tractus respiratoire peut être estimé de manière directe ou indirecte. Dans le premier cas, les dépôts au sein du tractus respiratoire sont calculés à partir de l'activité des aérosols en utilisant le modèle de la CIPR 66 [CIPR 66, 1994]. Ce modèle qui est appliqué ici de manière descendante suppose que chaque individu est exposé à un aérosol renfermant un très grand nombre de particules. Dans le dernier cas, le dépôt pulmonaire peut être évalué par des données biologiques recueillies après contamination accidentelle (anthroporadiométrie, mesure de l'activité dans les selles...) l'activité de l'aérosol et les dépôts initiaux au sein du tractus respiratoire pouvant être estimés par une application ascendante du modèle de dépôt et de l'épuration par transport et dissolution des particules [CIPR 66, 1994].

ii) Modèle de dépôt des aérosols et incertitudes associées

Le modèle du dépôt des aérosols de la CIPR 66 [CIPR 66, 1994] considère 5 principales régions : le nez antérieur (ET1) et les autres régions extra thoraciques (ET2), l'arbre trachéo-bronchique (BB), les bronchioles (bb) et les alvéoles (AI). Des sous régions sont également définies : les régions séquestrées, où les particules sont localisées dans les macrophages de l'interstitium (ETseq, BBseq et bbseq), les dépôts à la surface du mucus ou dans le mucus, qui sont rapidement épurés (BB1 et bb1), et les dépôts entre le mucus et la surface cellulaire, qui sont épurés plus lentement (BB2 et bb2). Par ailleurs, selon la vitesse de l'épuration mécanique, AI est divisé en 3 sous régions (AI1, AI2 et AI3). Le modèle de la CIPR assimile les principales régions du tractus respiratoire à des filtres successifs, durant l'inhalation et l'exhalation des aérosols.

De très nombreux paramètres sont introduits dans ce modèle, et leur variabilité a été évaluée en ce qui concerne :

- Les propriétés physiques des aérosols, tels, le DAMA, le σ_g , la densité et la forme des particules [Harvey, 2001],

- Leur inhalabilité et l'efficacité de leurs dépôts aéro et thermodynamiques au sein des principales régions du tractus respiratoire [CIPR 66, 1994],
- L'anatomie, la physiologie et l'activité des individus [Bolch, 2001 ; Layton, 1993],
- La répartition des dépôts parmi les différentes régions du tractus respiratoire [Bolch, 2003] (voir Figure V-6).

Les études sur les incertitudes sont effectuées en faisant varier, pour chaque simulation, l'ensemble des paramètres pris en compte.

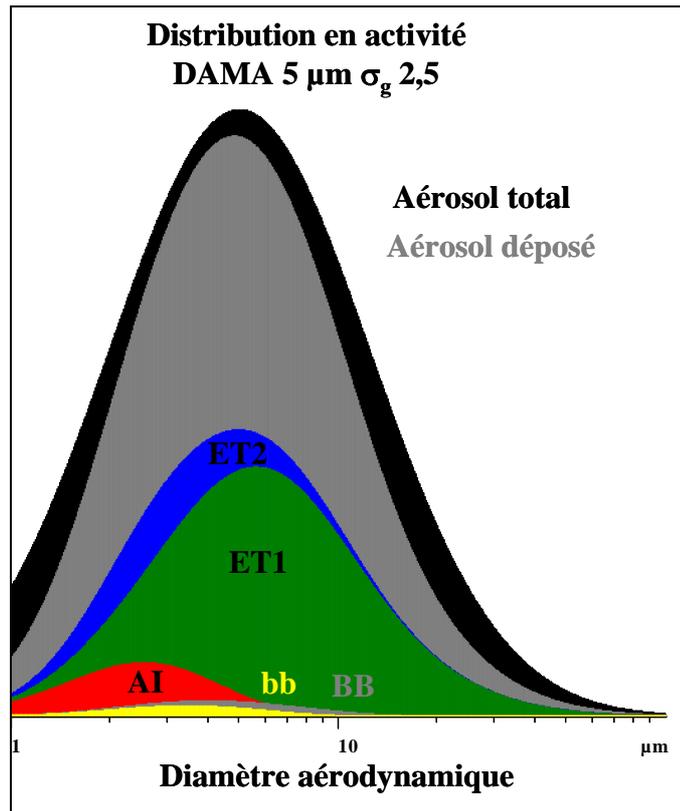


Figure V-6 : Distribution des dépôts au sein du tractus respiratoire calculés avec le modèle de la CIPR 66 en tenant compte des paramètres par défaut pour le travailleur

Les études d'incertitudes peuvent être biaisées par le choix de la variabilité des paramètres, et par leur interdépendance. Pour le dépôt des aérosols mono ou polydispersés, une étude récente [Fritsch, 2006a] a repris les variations précédemment décrites [Bolch, 2001]. La seule modification concerne la variation de la fréquence respiratoire, et non du volume courant, car elle permet de faire varier cette fréquence selon l'activité des individus. Des incertitudes similaires à celles précédemment rapportées pour des aérosols monodispersés ont été obtenues. Les incertitudes sur le dépôt d'aérosols polydispersés s'avèrent beaucoup plus faibles. Dans une gamme de DAMA entre 0,1 à 50 µm, la médiane des dépôts est égale aux valeurs de la CIPR [CIPR 66, 1994]. Jusqu'à 1 µm, le σ_g des dépôts au sein des différentes régions est voisin de 1,5. Il augmente ensuite graduellement en atteignant, pour un DAMA de 50 µm, une valeur de 2,3 dans AI, 2,9 dans bb, et 2,0 dans BB. En revanche, il diminue au sein des régions extra thoraciques (plateau à 1,2). Ce type de résultat s'explique du fait, qu'au delà d'un diamètre aérodynamique de 30-40 µm, il n'y a plus d'incertitudes sur les dépôts profonds, car ils sont nuls. La Figure V-7 compare les incertitudes sur le dépôt d'aérosols mono et polydispersés au sein des différentes régions du tractus respiratoire dans une gamme de DAMA allant de 0,01 à 50 µm.

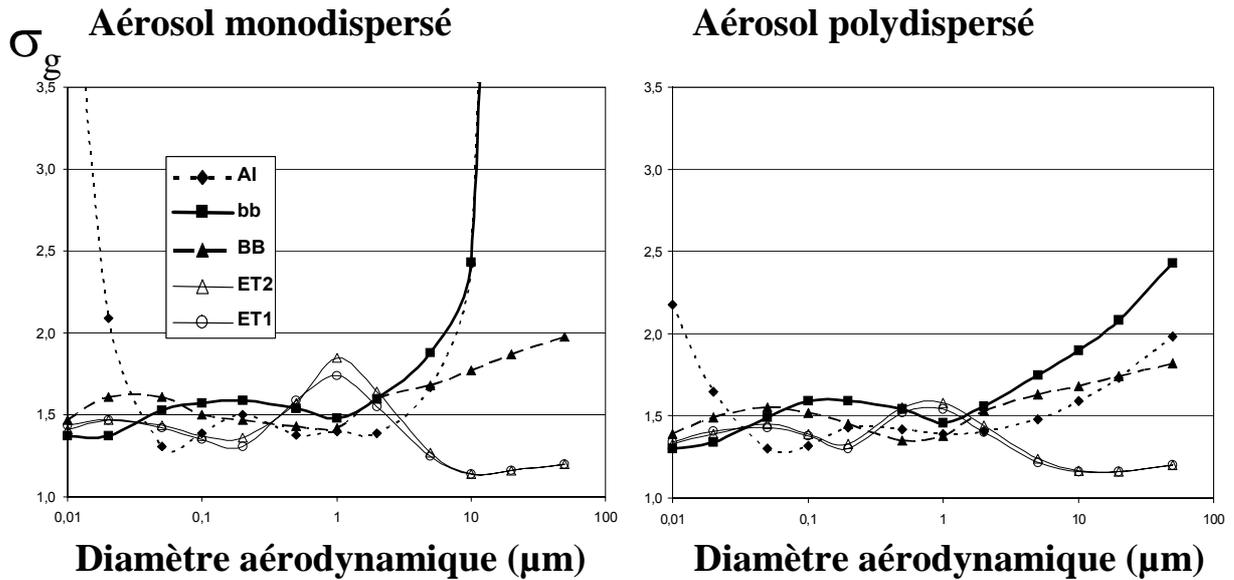


Figure V-7 : Comparaison des incertitudes sur le dépôt des aérosols mono et polydispersés de différentes tailles. Al : alvéoles, bb : bronchioles, BB : bronches, ET1 (nez antérieur) et ET2 (autres parties extra thoraciques).
 (Le σ_g à la puissance 4 donne l'intervalle de confiance à 95%).

iii) Résultats obtenus

Après une application descendante, pour des aérosols monodispersés (particules de même taille), les incertitudes augmentent considérablement dans les régions les plus profondes (Al et bb) avec la taille des aérosols, lorsqu'elle devient supérieure à 1 μm [Bolch, 2001]. Par exemple, pour un diamètre aérodynamique de 5 μm , le σ_g des dépôts dans les zones Al et bb est respectivement de 1,7 et 1,9, alors que pour un diamètre de 10 μm , ces σ_g sont voisins de 2,5.

iv) Etude de sensibilité

La nature des paramètres contribuant aux incertitudes varie selon la taille des aérosols. Pour des aérosols ayant un DAMA supérieur à 1 μm , par ordre décroissant, l'efficacité des dépôts aérodynamique, l'ensemble des paramètres physiologiques, le diamètre de la trachée et le volume mort alvéolaire sont les principales sources d'incertitudes. En revanche, pour des DAMA inférieurs à 0,1 μm , la densité des aérosols contribue à l'essentiel des incertitudes [Fritsch, 2006a].

v) Influence du nombre de particules

Dans le cas d'aérosols renfermant des actinides de forte activité spécifique et/ou de DAMA élevé, le nombre de particules présentes peut être limité. Par exemple, en utilisant les paramètres recommandés par défaut, une exposition à un aérosol de PuO_2 industriel ayant une activité spécifique de $10^{10} \text{ Bq} \cdot \sigma_g^{-1}$ (activité 5 fois supérieure au $^{239}\text{PuO}_2$), correspond à environ 2 kBq, l'aérosol renfermant en moyenne $2 \cdot 10^5$ particules ; cette exposition conduirait à une dose engagée de 20 mSv (correspondant aux anciennes LAI : limite annuelle d'incorporation). Afin d'évaluer le nombre de particules déposées au sein des différentes régions source de l'irradiation du tractus respiratoire, une application stochastique du modèle de dépôt à été développée. Cette approche est basée sur l'exposition à un aérosol simulé dont les particules, de différentes tailles, ont la même probabilité d'être inhalées. Pour chacune de ces particules, la fraction déposée le long du tractus calculée selon le modèle de la CIPR 66 [CIPR 66, 1994] est considérée comme une probabilité de dépôt [Fritsch, 2004].

Le Tableau V-8 compare les dépôts en termes de nombre de particules, avec les incertitudes associées (σ), pour une exposition correspondant à la moitié de la limite annuelle ou le 1/20^e de la limite annuelle.

| Exposition à un aérosol de DAMA 5 μm , σ_g 2,5, densité 3 g.cm^{-3} | | 5.10 ⁵ particules 1/2 LAI | | 5.10 ⁴ particules 1/20 LAI | |
|---|-------------------|---|--------|--|--------|
| Région du tractus respiratoire | ET ₁ | 6,4.10 ³ | ± 1% | 6,4.10 ² | + 4% |
| | ET ₂ | 7,5.10 ³ | ± 1% | 7,5.10 ² | + 4% |
| | ET _{seq} | 3,7 | ± 51% | 0,35 | NA |
| | BB ₁ | 3,6.10 ² | ± 6% | 3,6.10 ¹ | ± 17% |
| | BB ₂ | 3,6.10 ² | ± 6% | 3,6.10 ¹ | ± 17% |
| | BB _{seq} | 5,0 | ± 44% | 0,5 | ± 107% |
| | bb ₁ | 1,4.10 ³ | ± 3% | 1,4.10 ² | ± 9% |
| | bb ₂ | 1,4.10 ³ | ± 3% | 1,4.10 ² | ± 9% |
| | bb _{seq} | 2,0.10 ¹ | ± 23% | 2 | ± 70% |
| | AI | 1,4.10 ⁴ | ± 0,8% | 1,4.10 ³ | ± 3% |

Tableau V-8 : Nombre moyen de particules de ²³⁹PuO₂ déposées dans les différentes régions du tractus respiratoire et écart type relatif pour des expositions pour un travailleur standard [Fritsch, 2006b]

Les incertitudes sur le nombre de particules déposées augmentent lorsque le niveau d'exposition diminue. Les incertitudes les plus élevées concernent les compartiments séquestrés dans lesquels le dépôt exprimé en activité ou en nombre de particules est le plus faible.

V.5.1.3 Incertitudes sur les doses après inhalation

i) estimation des doses

Le calcul de doses est effectué en différentes étapes. Tout d'abord, il faut calculer le nombre de désintégrations cumulées au sein des différentes régions source et cible de l'organisme. Ce calcul implique l'application de modèles biocinétiques spécifiques ou non à l'élément considéré durant 50 ans chez les travailleurs et jusqu'à l'âge de 70 ans pour un enfant de la population.

La fraction de l'énergie issue des régions sources qui est délivrée au sein des régions cibles est décrite par différents modèles dosimétriques spécifiques aux différents tissus de l'organisme. On obtient alors pour chacune des régions cibles une dose physique (Gy) qui est pondérée pour tenir compte de la qualité des rayonnements émis (W_T) en termes d'effets biologiques.

On obtient ensuite les doses équivalentes (Sv). Enfin, ces dernières sont pondérées par la radiosensibilité des différents tissus cibles afin d'assimiler une dose répartie de manière homogène dans l'organisme à une dose homogène. On obtient alors la dose efficace qui est également exprimée en Sv.

ii) modèles dosimétriques et incertitudes associées

La connaissance du devenir biologique des radionucléides est à la base du calcul de dose. Différents modèles sont utilisés pour évaluer la biocinétique des radiocontaminants après inhalation qui décrivent :

- L'épuration des particules par transport et dissolution [CIPR 66, 1994],
- L'absorption digestive et le transit des radionucléides ingérés [CIPR 30, 1979],
- Le devenir du radiocontaminant soluble transféré dans le sang (Pu) [CIPR 67, 1993].

La variabilité de certains paramètres du modèle d'épuration mécanique a été évaluée dans la CIPR 66 [CIPR 66, 1994]. Plus récemment, cette variabilité a été estimée pour l'ensemble des paramètres sous la forme de distributions log normales [Bolch, 2003]. Pour un composé donné, la variabilité des paramètres de dissolution apparaît relativement faible (écart-type de 25%), [Ramounet, 2003b]. Pour le devenir systémique du plutonium décrit dans le modèle recyclant de la CIPR 67 [CIPR 67, 1993], l'application d'une loi log normale, ayant un σ_g de 1,75, aux différentes constantes de temps décrivant le transfert d'un compartiment vers un autre, a été rapportée pour décrire la variabilité de l'excrétion urinaire du plutonium [Luciani, 2003]. Cette variabilité a été utilisée pour le calcul des incertitudes qui sont présentées ainsi qu'un écart type de 25% pour les paramètres de dissolution.

Différents modèles dosimétriques sont utilisés pour le calcul des doses équivalentes. Dans le cas du tractus respiratoire, ils sont basés sur les caractéristiques cytologiques de l'épithélium des voies aériennes supérieures, des bronches et des bronchioles. Deux régions cibles sont considérées, le matériel présent à la surface de l'épithélium, et une couche de macrophages, sous l'épithélium qui correspond à la région séquestrée. La fraction de l'énergie totale émise, délivrée aux régions cibles (cellules basales, cellules de Clara) est calculée en tenant compte du parcours des rayonnements alpha dans l'air et au sein des tissus. Une évaluation des incertitudes sur les doses a été effectuée après inhalation d' $^{238}\text{UO}_2$ ou de $^{239}\text{PuO}_2$ en faisant varier la valeur des paramètres du modèle (épaisseur du mucus, de différentes couches épithéliales...). Dans la gamme des valeurs retenues par la CIPR, les résultats obtenus [Farfan, 2003] montrent que les incertitudes sont très proches de celles calculées sans tenir compte de la variabilité des paramètres des modèles dosimétriques. Les incertitudes ne sont pas additives et la contribution des paramètres dosimétriques apparaît donc négligeable devant celle des paramètres anatomiques et physiologiques. De ce fait, les différents résultats qui sont rapportés plus loin ne tiennent pas compte des incertitudes liées à l'application des modèles dosimétriques.

iii) résultats sur les incertitudes

1- Application déterministe des modèles de la CIPR (pour un nombre infini de particules dans l'aérosol)

La Figure V-8 compare les incertitudes sur l'évolution de la rétention pulmonaire du Pu après inhalation de $^{239}\text{PuO}_2$, et sur l'excrétion urinaire et fécale chez le travailleur standard, lorsque la rétention est évaluée à partir de l'activité des aérosols ou à partir de la mesure de la rétention thoracique précoce (j+1). Dans ce dernier cas, on attribue un écart type de 10% à la mesure thoracique.

Les résultats obtenus montrent que la mesure de la rétention pulmonaire permet de limiter de manière significative les incertitudes sur la rétention pulmonaire des actinides durant les 3 premières années suivant la contamination et sur l'excrétion fécale à partir du dixième jour. En revanche, connaissant ou non le dépôt précoce, les incertitudes sur l'excrétion urinaire sont similaires (σ_g de l'ordre de 2). Cependant, pour différents cas réels de contamination, la valeur de certains paramètres qui permettent un bon ajustement des simulations avec les données biologiques apparaît être en dehors de l'intervalle de confiance qui a été considéré ici. Ce phénomène apparaît lié à une forte inhibition de l'épuration pulmonaire tardive par transport des particules et leur très faible taux de dissolution qui contribuent, au delà de 5 ans, à une rétention pulmonaire au moins 2 fois supérieure à celle attendue [Fritsch, 2006b]. Ce résultat souligne l'intérêt d'un suivi biologique prolongé pour une évaluation précise du devenir biologique des radiocontaminants.

La Figure V-9 compare les incertitudes sur les doses équivalentes qui contribuent à l'essentiel de la dose efficace et sur les DPUI lorsque le dépôt pulmonaire précoce est ou non mesurable.

La mesure du dépôt pulmonaire précoce permet de diminuer d'un facteur 3 les incertitudes sur les doses équivalentes thoraciques et sur les DPUI.

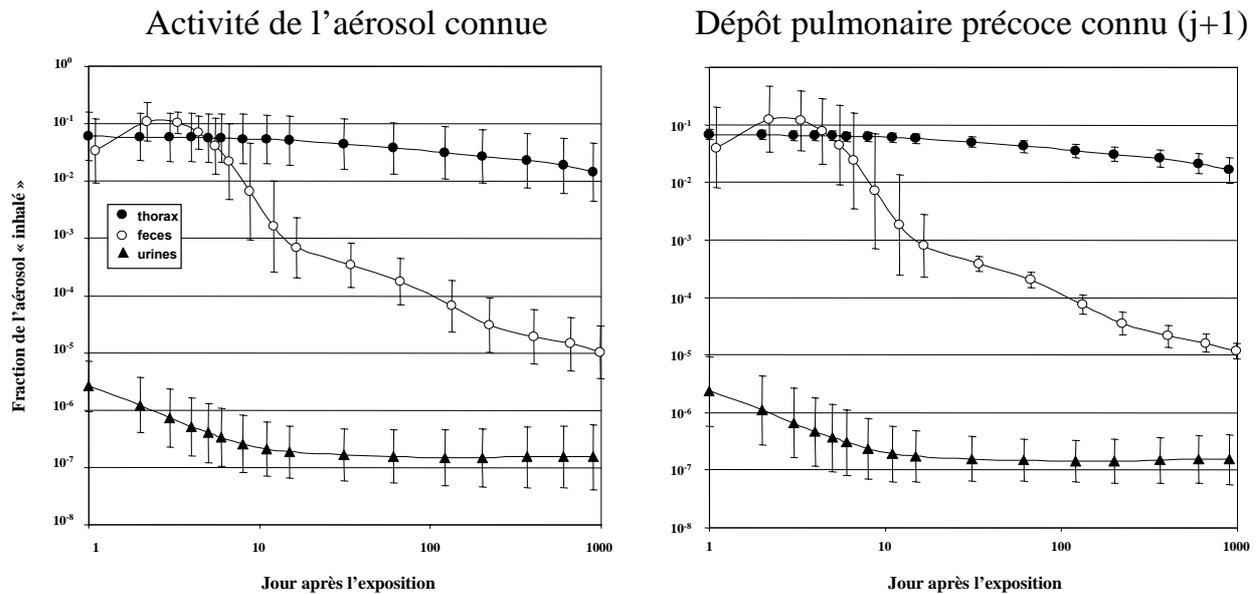


Figure V-8 : Evolution de la rétention pulmonaire du Pu et de son excrétion urinaire et fécale après inhalation de PuO_2 . Barres : intervalles de confiance à 95% [Fritsch, 2006b ; Fritsch, 2006c]

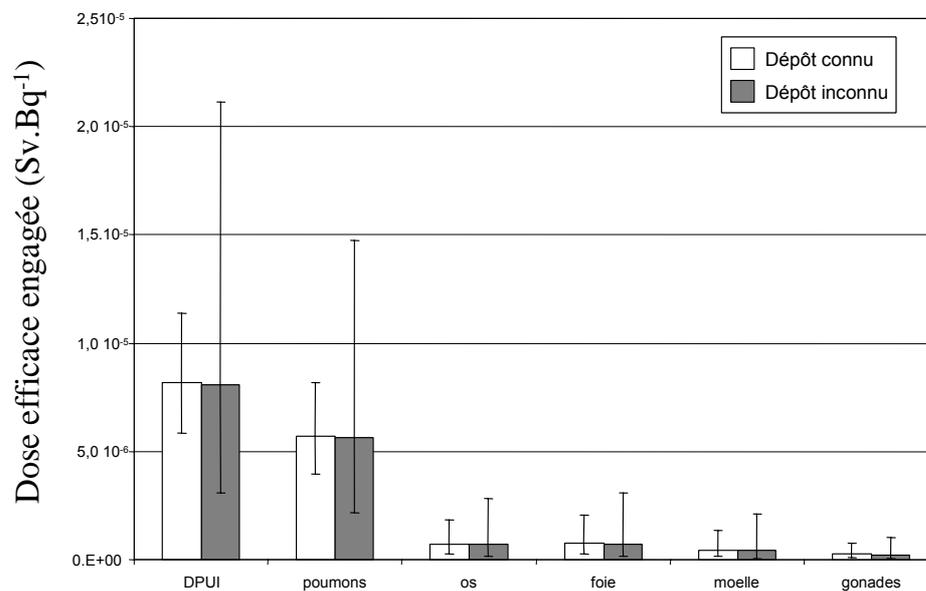


Figure V-9 : Comparaison des incertitudes sur les doses équivalentes engagées et les DPUI lorsque le dépôt des aérosols peut être ou non mesurable. Aérosol de $^{239}\text{PuO}_2$ en prenant les valeurs par défaut recommandées par la CIPR pour les travailleurs. Les barres représentent l'intervalle de confiance 95% [Fritsch, 2006b]

2- Application stochastique des modèles de la CIPR (pour un nombre fini de particules dans l'aérosol)

Les incertitudes sur les doses ont été estimées pour le $^{239}\text{PuO}_2$ en fonction du nombre de particules de l'aérosol, après une application stochastique des modèles de la CIPR 66 [Fritsch, 2004]. Les principaux résultats obtenus sont présentés dans la Figure V-10.

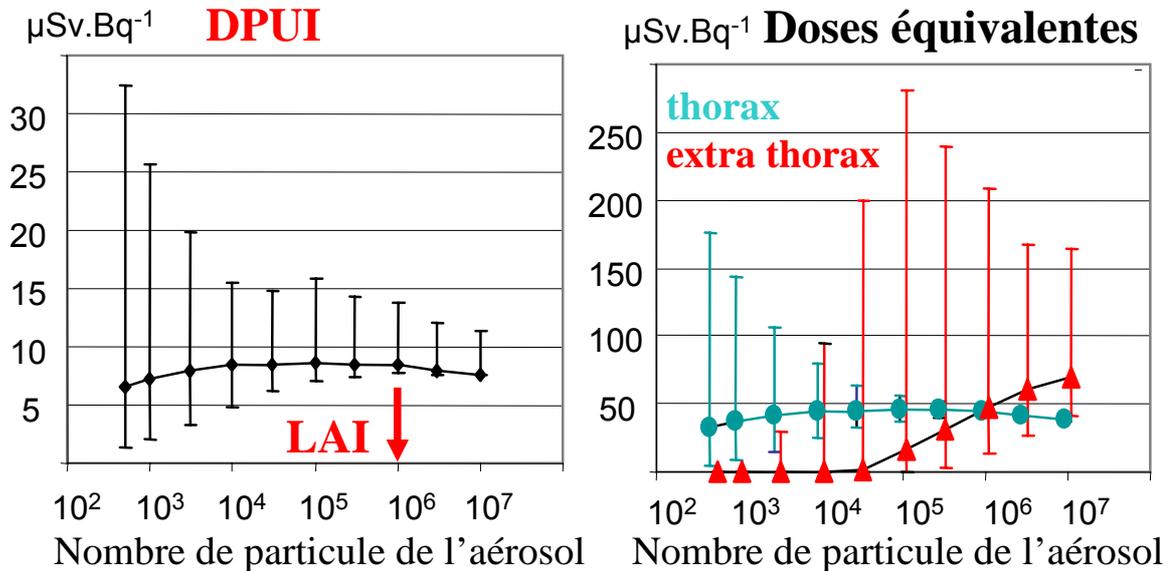


Figure V-10 : influence du nombre de particules d'un aérosol de $^{239}\text{PuO}_2$ sur les doses équivalentes thoraciques et extra thoraciques et sur les DPUI. LAI nombre de particules pour lequel la dose efficace engagée atteint la limite annuelle d'exposition (20 mSv). Les barres représentent l'intervalle de confiance à 90% [Fritsch, 2004]

Pour les doses équivalentes thoraciques des incertitudes significatives apparaissent lorsque l'aérosol est constitué de moins de 1.10^4 particules et augmentent graduellement avec la diminution du nombre de particules de l'aérosol. En revanche, dans la gamme entre 10^4 et 10^7 particules, les incertitudes sur les doses extra thoraciques sont considérables, en relation avec un très faible nombre de particules localisées sous l'épithélium. En dessous de 10^4 les incertitudes deviennent pratiquement nulles du fait de la très faible probabilité qu'une particule soit localisée sous l'épithélium. Les incertitudes sur les DPUI augmentent graduellement avec la diminution du nombre de particules et apparaissent significatives, même pour des expositions supérieures à 10 fois la limite de dose annuelle. Ces incertitudes élevées sont associées à une modification du mode de calcul des DPUI lorsque la dose équivalente maximale est délivrée à un membre des tissus ou organes constituant le "remainder" tel l'épithélium des voies aériennes extra thoraciques excluant le nez antérieur [CIPR 66, 1994].

Pour de faibles niveaux d'exposition à des aérosols de $^{239}\text{PuO}_2$, la principale source d'incertitudes est constituée par le nombre de particules de l'aérosol. Pour une même activité, ce phénomène est accentué lorsque l'activité spécifique des composés augmente (présence de ^{238}Pu , ^{241}Am , ^{244}Cm ...). Ceci peut rendre difficile l'interprétation des données biologiques en utilisant le concept de la DPUI [Fritsch, 2007b].

V.5.1.4 Incertitudes sur les risques de cancer après inhalation

Elaboration des doses pour refléter les risques

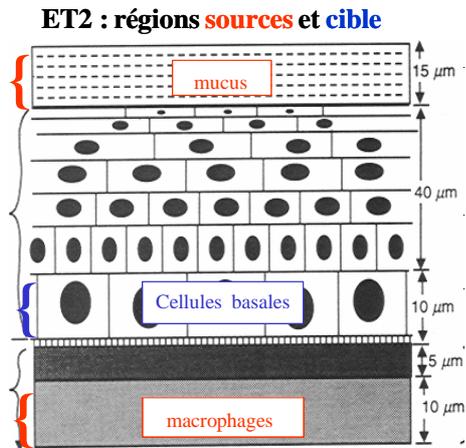
Les limites annuelles d'exposition ont été fixées sur la base d'une dose efficace de 20 mSv (100 mSv sur 5 ans) pour les travailleurs et de 1 mSv pour la population générale. Elles ont été recommandées par la CIPR 60 [CIPR 60, 1990], qui s'est essentiellement fondée sur l'excès de tumeurs malignes et d'effets transmissibles à la descendance, considérés comme des phénomènes aléatoires, dont la survenue obéirait à une relation dose effet linéaire sans seuil. Ainsi, une dose efficace de 1 Sv contribuerait à une augmentation de 5% de l'incidence de cancers mortels. Ces estimations ont été principalement déduites des enquêtes épidémiologiques sur les survivants d'Hiroshima-Nagasaki, qui ont été soumis à une irradiation externe aiguë et "homogène". Pour rendre compte du moindre risque aux faibles débits de dose de rayonnements de faible transfert d'énergie linéique (TEL), une réduction d'un facteur 2 a été appliquée aux estimations précédentes.

Dans le cas des actinides, émetteurs de rayonnements à haut TEL (alpha), la validité des hypothèses sur l'influence du débit de dose et la forme des relations dose effet reste controversée puisque diverses expérimentations démontrent un effet inverse du débit de dose sur la cancérogenèse pulmonaire induite par le radon [Monchaux, 1994] et que des enquêtes épidémiologiques mettent en évidence une dose seuil pour l'induction de tumeurs osseuses chez des travailleurs exposés au radium [Rowland, 1983].

Les doses équivalentes calculées selon les recommandations de la CIPR sont des doses moyennes absorbées par les organes ou tissus cibles. Un tel mode d'expression ne rend donc pas compte de la distribution spatiale de la dose qui peut être très hétérogène et moduler le risque de cancer. Cette modulation a été mise en évidence dès les années 1970 [Lafuma 1974]. Dans le cas de contaminations respiratoires par des émetteurs alpha, les données expérimentales montrent pourtant une variation importante de l'incidence de cancers qui diminue lorsque cette hétérogénéité augmente [Fritsch, 2003]. Fait notable, dans certains cas de contamination, l'hétérogénéité de dose peut s'accroître au fil du temps, du fait de l'agrégation progressive des particules ($^{239}\text{PuO}_2$) dans les poumons, expliquant l'apparition de foyers de fibrose mis en évidence chez le rat [Sanders, 1993] ou chez le primate [Poncy, 1998 ; Hahn, 2003]. **Les mécanismes de cette modulation du risque par la répartition de la dose sont encore mal connus**, même si des études *in vitro* indiquent une diminution du taux de transformation par unité de dose (Gy) lorsque les cellules reçoivent plus d'un impact alpha [Kugel, 2002].

La taille des aérosols et l'activité spécifique des radiocontaminants pourraient ainsi moduler le risque de cancer. Différents paramètres ont été proposés pour décrire l'hétérogénéité de dose alpha dans les poumons, notamment le volume pulmonaire irradié, en estimant le nombre de particules et le parcours médian des rayonnements alpha dans le parenchyme alvéolaire [Lundgren, 1997], ou encore la distribution du nombre d'impacts alpha par cellule cible, au niveau des différentes régions du poumon, évaluée par simulation à l'aide des modèles microdosimétriques de la CIPR 66 [CIPR 66, 1994]. La Figure V-11 montre la démarche qui a été entreprise afin d'évaluer la distribution du nombre d'impacts alpha par cellule cible pour les régions extra thoraciques autres que le nez antérieur.

Modèle cytologique de la CIPR 66



Evaluation du nombre d'impact α par cellule cible et par jour

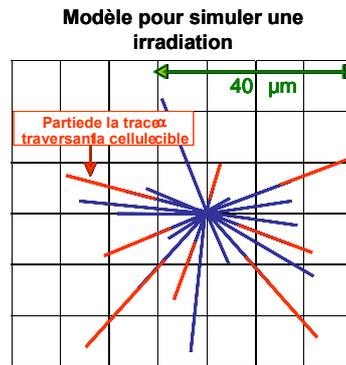


Figure V-11 : Modèle cytologique de la CIPR 66 pour calculer la dose moyenne aux cellules basales de la région thoracique (nez antérieur exclu) et modèle stochastique utilisé pour évaluer le nombre d'impacts σ par cellule cible. Le parcours des traces alpha pour le ^{239}Pu est de 37 μm . Ainsi, seuls les macrophages contribuent à l'irradiation des cellules basales [Fritsch, 2007b].

En considérant une particule ayant la taille du DAMA proposé par défaut, le résultat des simulations effectuées pour la région cible du tractus respiratoire montrent que les doses délivrées aux cellules cibles, à proximité de la particule sont considérables [Fritsch, 2007a]. Sachant qu'un impact alpha correspond en moyenne à une dose de 0,3 Gy, l'essentiel de la dose n'est délivrée qu'à quelques cellules (40 traces par jour correspond à 12 Gy soit 240 Sv). Ce phénomène serait accentué avec une augmentation de l'activité spécifique alpha des composés (présence d' ^{241}Am , de ^{238}Pu ou de ^{244}Cm).

Dans ce cas, la limite de dose annuelle (20 mSv) pourrait être atteinte après inhalation d'un aérosol renfermant moins de 1000 particules. Pour un si faible nombre de particules, l'application déterministe du modèle de dépôt de la CIPR 66 n'a plus de sens, et la notion de DPUI ne peut plus être utilisée à l'échelle de l'individu [Fritsch, 2007a]. De plus, pour des composés de forte activité spécifique alpha, la modification du mode de calcul de la dose efficace lorsque la dose équivalente maximale est délivrée à ET2 n'apparaît pas justifiée.

La CIPR souligne que ses recommandations pour l'estimation du risque de cancer ne s'appliquent que dans la gamme des faibles doses, où aucun effet déterministe majeur (inflammation aiguë ou chronique, fibrose...) n'est observé [CIPR 60, 1990]. Les données expérimentales et les données humaines recueillies chez les travailleurs de Mayak montrent, après inhalation d'oxydes d'actinides de forte activité spécifique alpha, que la présence de points chaud est systématiquement associée à l'apparition de foyers de fibrose [Hahn, 2003]. Il en est de même localement après blessure. La présence de fibrose contribue à l'enkystement des radionucléides, ce qui diminue les doses délivrées aux cellules cibles de la cancérogenèse. Ainsi, dans le cas de composés peu solubles de forte activité spécifique, les doses équivalentes pulmonaires ou locales (plaie) calculées selon les recommandations de la CIPR seraient fortement surévaluées si elles ont pour objet de refléter le risque de cancer.

V.5.2 INTERET DE LA CONNAISSANCE DES INCERTITUDES

Cette synthèse sur les incertitudes concernant les expositions, les contaminations et les doses après inhalation d'aérosols renfermant du plutonium apporte de nouveaux éléments afin de mieux interpréter les différentes données présentées dans ce rapport.

Pour des aérosols renfermant du plutonium qui est le plus souvent très peu soluble, les incertitudes sont principalement liées à l'exposition (taille des aérosols et nombre de particules).

Dans le cadre d'exposition conduisant à des niveaux voisins de la limite de dose annuelle pour la population (1 mSv), le suivi des individus potentiellement contaminés s'avère très difficile. Pour un aérosol de $^{239}\text{PuO}_2$ (DAMA 5 μm , comportement de type S), il renferme environ 50000 particules correspondant à une activité totale d'environ 100 Bq. Seuls 5 Bq sont déposés au sein du poumon profond. Compte tenu des limites de détection (2 kBq pour les comptages X externe, et 0,2-0,5 mBq après radiochimie pour les mesures des excréments urinaires et fécales), un suivi individuel n'est pas envisageable. En revanche, il convient de suivre les niveaux d'exposition par des prélèvements atmosphériques afin de caractériser la taille des aérosols et le nombre de particules présentes. Une application descendante des modèles de la CIPR utilisant les propriétés spécifiques à l'aérosol permet alors une évaluation réaliste de la dose à l'échelle de la population, sachant qu'à l'échelle individuelle, chez l'adulte, l'intervalle de confiance à 95% est de l'ordre d'un facteur 10. Le résultat d'une étude préliminaire suggère que cet intervalle augmente lorsque l'âge des individus diminue. La poursuite de telles études s'avère donc nécessaire pour préciser les incertitudes pour différentes tranches d'âge.

En revanche, dans le cadre d'exposition conduisant à des niveaux voisins de la limite de dose pour le travailleur (20 mSv), le suivi de la contamination est généralement possible. En effet, le plutonium est très souvent associé à de ^{241}Am qui constitue 10-20% de l'activité σ totale. Le seuil de détection de cet isotope par comptage externe est beaucoup plus faible (de l'ordre de 10 Bq) car c'est également un émetteur gamma. L'application ascendante des modèles de la CIPR permet alors un calcul de dose avec un intervalle de confiance à 95% de l'ordre de 2. Néanmoins, chez certains individus, la dose efficace apparaîtra au delà de cet intervalle. Il serait donc utile d'identifier cette sous population à risque.

V.6 CONCLUSION

Lors d'expositions humaines, quelle que soit la voie d'incorporation, le plutonium est peu à très peu soluble. L'absorption digestive est mineure ($\ll 1\%$). Les organes à risque sont ceux dans lesquels le plutonium sera retenu : il s'agit donc en premier lieu de l'organe de dépôt (poumon après inhalation, tissu sous-cutané lors de plaie), qui sont les deux principales voies d'exposition, et des deux organes dans lesquels le Pu se fixe après passage dans le sang (squelette et foie). Il est également important de noter qu'en cas de contamination maternelle, le passage chez le fœtus ou par le lait maternel est faible.

Les incertitudes sur les doses efficaces délivrées à une population sont relativement faibles. En revanche, elles sont beaucoup plus élevées à l'échelle individuelle lorsque les niveaux d'exposition demeurent limités. Par ailleurs, pour les radionucléides émetteurs alpha, il faut être prudent quant à l'assimilation de la dose efficace réglementaire à un risque cancer qui est effectuée dans le cadre de la radioprotection. En effet, la forte activité spécifique des aérosols renfermant du plutonium entraîne une irradiation pulmonaire très hétérogène qui contribue à diminuer le risque de cancer [Fritsch, 2003]. En fait, les incertitudes sur le risque de cancer apparaissent plus élevées que celles sur les doses efficaces. La variabilité de ce risque en fonction de l'activité spécifique des composés et de la taille des aérosols doit donc être précisée afin de rendre plus réaliste l'application pratique du concept de la DPUI.

V.7 REFERENCES

- [Aden, 2003] Aden J., Scott BR. Modelling variability and uncertainty associated with inhaled weapons-grade PuO₂. Health Phys 84, 726-736; 2003.
- [Ansoborlo, 2002] Ansoborlo E., Chazel V., Hengé-Napoli M.H., Pihet P., Rannou A., Bailey M.R., Stradling N. Determination of the physical and chemical properties, biokinetics, and dose coefficients of uranium compounds handled during nuclear fuel fabrication in France. Health Phys 82, 279-289; 2002.
- [Ansoborlo, 2006] Ansoborlo E., Prat O., Moisy P., Den Auwer C., Guilbaud P., Carière M., Gouget B., Duffield J., Doizi D., Vercoüter T., Moulin C., Moulin V. Actinide speciation in relation to biological processes. Biochimie 88, 1605-1618, 2006
- [Bailey, 2000] Bailey M.R., Ansoborlo E., Kreyling W., Newton D. Poncy J.L. Stradling G.N., Taylor D. Radionuclide Biokinetics Database. Radiat. Prot. Dosim, 95, 215-218, 2000
- [Bailey, 2003] Bailey, M.R.; Ansoborlo, E.; Camner, P.; Chazel, V.; Fritsch, P.; Hodgson, A.; Kreyling, W. G.; Le Gall, B.; Newton, D.; Paquet, F.; Stradling, N. and Taylor, D. M. RBDATA-EULEP, Providing information to improve internal dosimetry. Radiation Protection Dosimetry, 105, 633-636, 2003
- [Bailey, 2008] Bailey M.R., Ansoborlo E., Guilmette R.A., Paquet F. Updating the ICRP Human respiratory tract model. Radiat. Prot. Dosim, à paraître 2008.
- [Bolch, 2001] Bolch W.E., Farfan E.B., Huh C.H., Huston T.E., Bolch W.E. Influences of parameter uncertainties within the ICRP-66 respiratory tract model: Particle deposition. Health Phys 81, 378-394; 2001.
- [Bolch, 2003] Bolch W.E., Farfan E.B., Huh C.H., Huston T.E., Bolch W.E. Influences of parameter uncertainties within the ICRP-66 respiratory tract model: Particle clearance. Health Phys 84, 421-435; 2003.
- [Carbaugh, 2003] Carbaugh, E. H. and La Bone, T. R., Two case studies of highly insoluble plutonium inhalation with implications for bioassay. Radiation Protection Dosimetry, 105, 4, 133-138, 2003
- [CIPR 100, 2007] ICRP Publication 100. Human alimentary tract model for radiological protection, Elsevier, 2007
- [CIPR 23, 1975] ICRP Publication 23. Report of the task group on reference man. Pergamon Press, Oxford, 1975.
- [CIPR 30, 1979] ICRP Publication 30. Limits for intakes of radionuclides by workers. Part 1, Pergamon Press, Oxford, Annals of the ICRP 3/4, 1979.
- [CIPR 56, 1989] ICRP Publication 56. Age-dependent doses to members of the public from intakes of radionuclides: Part 1, Pergamon Press, Oxford, 1989.
- [CIPR 60, 1990] ICRP Publication 60. 1990 recommendations 1990 of the International Commission of Radiological Protection. Pergamon Press, Oxford, 1990.
- [CIPR 66, 1994] ICRP Publication 66. Human respiratory tract model for radiological protection. Pergamon Press, Oxford, 1994.
- [CIPR 67, 1993] ICRP Publication 67. Age-dependent doses to members of the public from intake of radionuclides: Part 2 Ingestion dose coefficients. Pergamon Press, Oxford, 1993.
- [CIPR 68, 1994] ICRP Publication 68. Dose coefficients for intake of radionuclides by workers. Pergamon Press, Oxford, 1994.
- [CIPR 71, 1996] ICRP Publication 71. Age-dependent doses to members of the public from intake of radionuclides: Part 4 inhalation dose coefficients, Pergamon Press, Oxford, 1996.
- [CIPR 72, 1996] ICRP Publication 72. Age-dependent doses to members of the public from intake of radionuclides: Part 5 Compilation of ingestion and inhalation dose coefficients, Pergamon Press, Oxford, 1996.
- [CIPR 88, 2002] ICRP Publication 88. Doses to the embryo and the foetus from intakes of radionuclides by the mother. Pergamon Press, Oxford. 2002.

- [CIPR, supporting guidance 3, 2002] CIPR, supporting guidance 3, Guide for the practical Application of the ICRP Human Respiratory Tract Model. Ann; ICRP, 32 (1-2), Oxford , Pergamon Press, 2002.
- [Dorrian, 1995] Dorrian M.D., Bailey M.R. Particle size distributions of radioactive aerosols measured in the workplaces. Radiat Prot Dosim 60, 119-133; 1995.
- [Eidson, 1983] Eidson, A. F. and Mewhinney, J. A. In vitro dissolution of respirable aerosols of industrial uranium and plutonium mixed-oxide nuclear fuel. Health Physics, 45, 1023-1037, 1983
- [Espinosa, 1998] Espinosa, A.; Aragon, A. Stradling, N.; Hodgson, A.; Birchall, A. Assessment of doses to adult members of the public in Palomares from inhalation of plutonium and americium. Radiat. Prot. Dosim. 79, 161-164, 1998.
- [Etherington, 2002] Etherington, G. Shutt, A.L., Stradling, G.N. A study of the human biokinetics of inhaled plutonium nitrate; Ann. Occup. Hyg. 46, 650-352, 2002.
- [Farfan, 2003] Farfan E.B., Huston T.E., Bolch W.E., Vernetson W.G., Bolch W.E. Influences of parameter uncertainties within the ICRP-66 respiratory tract model: Regional tissue doses for $^{239}\text{PuO}_2$ and $^{238}\text{UO}_2/^{238}\text{U}_3\text{O}_8$. Health Phys 84, 436-450; 2003.
- [Fritsch, 2002] Fritsch P., Guillet K. Granulometry of aerosols containing transuranium elements at the work place: an estimate using autoradiographic analysis. Ann Occup Hyg 46, sup1, 292-295; 2002.
- [Fritsch, 2003] Fritsch P., Dudoignon N., Guillet K., Oghiso Y., Morlier J.P., Monchaux G. Does DPUI calculated for inhaled actinide oxides actually reflect the risk of malignant lung tumour induction? Radiat Prot Dosim 105, 149-152; 2003.
- [Fritsch, 2004] Fritsch P. Uncertainties in doses due to the number of aerosol particles: study on $^{239}\text{PuO}_2$ using default parameters for workers. Health Phys 87, 416-422; 2004.
- [Fritsch, 2006a] Fritsch P. Uncertainties in aerosol deposition within the respiratory tract calculated according to ICRP recommendations: a study in adults. Health Phys 90, 114-126; 2006.
- [Fritsch, 2006b] Fritsch P., Raynaud P., Blanchin N., Miele Incertitudes sur les expositions, les niveaux de contamination et les doses après inhalation d'actinides. Radioprotection 41, 287-308, 2006.
- [Fritsch, 2006c] Fritsch P. Uncertainties in doses calculated according to ICRP recommendations after inhalation of $^{239}\text{PuO}_2$ and early chest monitoring. Radiat Prot Dosim. Advance Access published January 12, 2007.
- [Fritsch, 2007a] Fritsch P., Raynaud P., Blanchin N., Miele A. Limits of DPUI application associated with the number of particles within actinide aerosols. Radiat. Prot. Dosim. Advance Access published September 6, 2007.
- [Fritsch, 2007b] Fritsch P. The distribution of the number of alpha hits per target cell: a new parameter to improve risk assessment for cancer induction using ICRP models. Submitted. Radiat Prot Dosim
- [Hahn, 2003] Hahn F.F., Romanov S.A., Guilmette R.A., Nifatov A.P., Zaytseva Y.U., Diel J.H., Allen S.W., Lyovkina Y.V. Distribution of plutonium particles in the lungs of Mayak workers. Radiation Protection Dosimetry 105, 81-84; 2003.
- [Harvey, 2001] Harvey R.P., Hamby D.M. Uncertainty in particulate deposition for $1\mu\text{m}$ AMAD particles in an adult lung model. Radiat Prot Dosim 95, 239-247; 2001.
- [Hodgson, 2003] Hodgson A., Shutt A.L., Etherington G. Comparison of predicted with observed biokinetics of inhaled plutonium nitrate and gadolinium oxide in humans. Radiat. Prot. Dosim. 105, 91-94, 2003
- [Iranzo, 1997] Iranzo C. E., Rivas P., Espinosa A., Aragon A., Iranzo E. Biokinetics of Plutonium 239 and Americium 241 in the rat after the pulmonary deposition of contaminated dust obtained from soil Samples at Palomares: Implications for Human exposure. NRPB-M444, 1-33, 1997
- [James, 1978] James, A. C. Lung clearance and translocation in rats and hamsters of inhaled dust containing mixed actinide oxide from a fuel fabrication plants. NRPB/R&D2, 57-64, 1978.
- [James, 2003] James, A. C., Filipy R. E., Russell, J. J., McNroy, J. F. USTUR Case 0259 whole body donation: a comprehensive test of the current ICRP models for the behavior of inhaled $^{238}\text{PuO}_2$ ceramic particles. Health Phy. 84(1), 2-33, 2003.

- [Khokhryakov, 1994] Khokhryakov V.F., Menshikh Z.S., Suslova K.G., Kudryavtseva T.I., Tokarskaya Z.B., Romanov S.A. Plutonium excretion model for the healthy man. *Radiat Protec Dosim* 53, 235–239, 1994.
- [Khokhryakov, 2000] Khokhryakov V., Suslova K., Aladova E., Vasilenko E., Miller S.C., Slaughter D.M., Krahenbuhl M.P. Development of an improved dosimetry system for the workers at the Mayak Production Association. *Health Phys* 79, 72–76, 2000.
- [Kugel, 2002] Kugel C., Bailly I., Tourdes F., Poncy J.L. In vitro radiation-induced effects on rat tracheal epithelial cells. I) Different radiosensitivity of cell inactivation after alpha and gamma irradiations. *J Radiat Res (Tokyo)*, 43(1), p. 27-34, 2002.
- [Kutkov, 1998] Kutkov V.A. Application of human respiratory tract models for reconstruction of the size of aerosol particles through the investigation of radionuclide behaviour in the human body. *Radiat Prot Dosim* 79, 265-268, 1998.
- [Lafuma, 1974] Lafuma J., Nénot J.C., Morin M., Masse R., Métivier H., Nolibé D., Skupinski W. Respiratory carcinogenesis in rats after inhalation of radioactive aerosols of actinides and lanthanides in various chemical forms. "Experimental lung cancer", E.Karbe and J.F.Park Eds, Spinger Verlag, Vol 1, New York, 1974, 443-453.
- [Lataillade, 1995] Lataillade, G. Verry, M. Rateau, G. Translocation of Pu from rat and monkey lung after inhalation of industrial plutonium oxide and mixed U and Pu oxide. *International Journal of Radiation Biology*, 67, 373-380, 1995
- [Layton, 1993] Layton D.W. Metabolically consistent breathing rates for use in dose assessments. *Health Phys* 64, 23-36; 1993.
- [Leggett, 2003] Leggett R.W. Reliability of ICRP's dose coefficients for members of the public. III: Plutonium as a case study of uncertainties in the systemic biokinetics of radionuclides. *Radiat Prot Dosim*, 106. p.103-120, 2003
- [Leggett, 2005] Leggett R.W., Eckerman K.F., Khokhryakov V.F., Suslova K.G., Krahenbuhl M.P., Miller S.C. Mayak worker study: An improved biokinetic model for reconstructing doses from internally deposited plutonium. *Radiation Research* 164. p. 111-122, 2005.
- [Lehtinen, 1988] Lehtinen S., Luokkawn S., Raunemaa R., Soani H. Hot particles of Chernobyl in Finland. In Proc. Int. Workshop. Theuern, 28/29 Oct. 1987. *Schriftenreihe der bergbau und industrimuseum, Ostbayern Theuern* 16, 77-82, 1988.
- [Luciani, 2003] Luciani A., Doerfel H., Polig E. Uncertainty analysis of the urinary excretion of plutonium. *Radiat Prot Dosim* 105, 383-386, 2003.
- [Lundgren, 1997] Lundgren D.L., Hahn F.F., Carlton W.W., Griffith W.C., Guilmette R.A., Gillett N.A. Dose responses from inhaled monodisperse aerosols of $^{244}\text{Cm}_2\text{O}_3$ in the lung, liver and skeleton of F344 rats and comparison with $^{239}\text{PuO}_2$. *Radiat Res*, 147(5), p. 598-612, 1997.
- [Marsh, 1996] Marsh, J. W., Birchall, A. Intake assessment of a Am/Pu inhalation in Switzerland on 24 May 1983. *NRPB-M732*, 1996
- [Matton, 2004] Matton S., Ansoborlo E., Le Gall B., Hodgson A. Comparative absorption parameters of Pu and Am from different MOX aerosols compounds measured in vitro and in vivo after inhalation in rats. *Int. J. Radiat. Biol.* 80, 10, 775-785, 2004
- [McClellan, 1962] McClellan R.O., Casey H.W., Bustad L.K. Transfer of some transuranic elements to milk. *Health Physics*, vol 8. 689-694, 1962
- [Métivier H., 1997] Le plutonium. in « Toxiques nucléaires ». P.Galle Editeur Masson, Paris , 1997, 225-245
- [Métivier, 1980] Metivier H., Masse R., Rateau G., Lafuma J. Experimental study of respiratory contamination by a mixed oxide aerosol formed from the combustion of a Pu magnesium alloy. *Health Phys* 38, 5, 769-776, 1980
- [Métivier, 1983] Metivier, H., Masse, R. and Lafuma, J. Metabolism of plutonium introduced as tri-N-butyl phosphate complex in the rat and removal attempts by DTPA. *Health Phys.* 44, 623-634, 1983
- [Métivier, 2007] Métivier H., Guillaumont R., Mieux connaître le devenir biologique des futurs matériaux nucléaires, une nécessité pour maintenir un bon niveau de radioprotection *Radioprotection*, Vol 42, N°3, 315-335, 2007

- [Monchaux, 1994] Monchaux G., Morlier J.P., Morin M., Chameaud J., Lafuma J., Masse R. Carcinogenic and co-carcinogenic effects of radon and radon daughters in rats. *Environ. Health Perspect.*, 102, 64-73, 1994.
- [Moody, 1991] Moody J.C., Stradling N.G., Gray S.A. Biokinetics of $4^{239}\text{Pu}/^{241}\text{Am}$ dioxide bearing dusts in the rat after inhalation: implications for human exposure. *J. Aerosol Science*. 22, 805-808, 1991
- [Moody, 1994] Moody J.C., Stradling N.G., Gray S.A. Biokinetics of 3 plutonium nitrate bearing materials: implications for human exposure. *Radiat. Prot. Dosim.* 53, 169-172, 1994.
- [NCRP N°156, 2007] Development of a biokinetic model for radionuclide-contaminated wounds and procedures for their assessment, dosimetry and treatment. NCRP report N° 156, 2007
- [Poncy, 1998] Poncy J.L., Massiot P., Rateau G., Guezingar F., L'Huillier I., Grillon G., Dudoignon N., Frot C., Fritsch P. Long-term pulmonary retention of inhaled actinides oxides in non-human primates. *Radiation Protection Dosimetry* 79, p 259-263, 1998
- [Ramounet, 2000] Ramounet, B., Matton, S.; Guezingar-Liebard, F.; Abram, M.-C.; Rateau, G.; Grillon, G.; Fritsch, P. Comparative biokinetics of plutonium and americium after inhalation of PuO_2 and mixed oxides (U, Pu) O_2 in rat. *International Journal of Radiation Biology*, 76, n°2, 215-222, 2000.
- [Ramounet, 2002] Ramounet-Le Gall B., Fritsch P., Abram M.C., Rateau G., Grillon G., Guillet K., Baude S., Bérard P., Ansoborlo E., Delforge J. Mesure de paramètres spécifiques pour le calcul de dose après inhalation d'aérosols renfermant des éléments transuraniens. *Can J Physiol Pharmacol* 80, 727-732, 2002.
- [Ramounet, 2003a] Ramounet – Le Gall, B., Rateau, G., Abram, M.-C., Grillon, G., Ansoborlo, E., Berard, P., Delforge, J., Fritsch, P. In vivo measurement of Pu dissolution parameters of MOX aerosols and related uncertainties in the values of the dose per unit of intake. *Radiat Prot Dosim*, 105, 1-4, 153-156, 2003.
- [Ramounet, 2003b] Ramounet-Le Gall B., Rateau G., Abram M.C., Grillon G., Ansoborlo E., Bérard P., Delforge J., Fritsch P. In vivo measurement of Pu dissolution parameters of MOX aerosols and related uncertainties on DPUI values. *Radiat Prot Dosim* 105, 153-156, 2003.
- [Rowland, 1983] Rowland R.E., Stehney A.F., Lucas H.F. Dose-response relationships for radium-induced bone sarcomas. *Health Phys.* 44 Suppl 1, 15-31, 1983
- [Rudhard, 1992] Rudhard J., Schell B., Lindner G. Size distribution of hot particles in the Chernobyl fallout. In *Proc. Symp. Radio-ecology chemical speciation. Hot particles*, Znojmo, Czech. Republic, Sept. 1992 (CEC) p. 6; 1992.
- [Sanders, 1993] Sanders C.L., Lauhala K.E., McDonald K.E. Lifespan studies in rats exposed to $^{239}\text{PuO}_2$ aerosol. III. Survival and lung tumours. *Int J Radiat Biol.* 64(4), p.417-430, 1993.
- [Sato, 1999] Sato, H., Yamada, Y. Retention, excretion and translocation of ^{239}Pu in rats following inhalation of $^{239}\text{PuO}_2$ calcined at 1150°C and 400°C . *Journal of Radiation Research*, 40, 197-204, 1999.
- [Smith, 1977] Smith, H., Stradling, G. N. The in vivo solubility of plutonium-239 dioxide in the rat lung. *Health Physics*, 33, 539-551, 1977
- [Stanley, 1984] Stanley, J. A.; Eidson, A; F. and Mewhinney, J. A. Distribution, retention and dosimetry of plutonium and americium in the rat, dog and monkey after inhalation of an industrial-mixed uranium and plutonium oxide aerosol. *Health Physics*, 43, 521-530; 1984.
- [Stather, 1975] Stather, J.W., Howden, S. and Carter, R.F. A method for investigating the metabolism of the transportable fraction of plutonium aerosols. *Phys. Med. Biol.* 20, 106, 1975
- [Stradling, 1992] Stradling G. N., Stather J. W., Gray S. A., Moody J. C., Ellender M., Pearce M. J., Collier C. G. Radiological Implications of Inhaled ^{239}Pu and ^{241}Am in Dusts at the Former Nuclear Test Site in Maralinga. *Health Physics*, 63, 641-650, 1992
- [Stradling, 1995] Stradling G. N., and Moody J. C. Use of animal studies for assessing intakes of inhaled actinide bearing dusts, 1995.
- [Stradling, 2003] Stradling N., Hodgson A., Fell T., Ansoborlo E., Bérard P., Etherington G., Le Guen B. Plutonium compounds : Exposure limits and assessment of intake and dose after inhalation. NRPB – W52, 2003
- [Vapirev, 1990] Vapirev E.J., Kamenova T.S., Mandjoukov I.G., Mandjoukova B. Visualisation, identification and spectrometry of a hot particle. *Radiat Prot Dosim* 30, 121-124, 1990.

VI IMPACT DOSIMETRIQUE

Ce chapitre présente les conséquences de rejets hypothétiques, d'une part de manière élémentaire pour chacun des isotopes, d'autre part en considérant des compositions types. Ceci permet d'identifier, quantifier et hiérarchiser les voies de transfert principales du plutonium et de mesurer l'incidence des différents paramètres.

Dans la suite de ce chapitre, on s'intéressera essentiellement aux isotopes émetteurs alpha à vie relativement longue et au couple $^{241}\text{Pu} / ^{241}\text{Am}$.

La CIPR ne fournit pas de coefficients de dose par incorporation pour le ^{232}Pu et le ^{233}Pu en raison de leur période radioactive très courte. De ce fait, ces isotopes ne seront pas pris en compte dans la suite des calculs.

VI.1 HYPOTHESES DE CALCUL ET DONNEES UTILISEES

La plate-forme CERES [Monfort, 2006] a été utilisée pour effectuer ces calculs.

Trois conditions météorologiques sont considérées dans un premier temps. On se limitera ensuite à une seule.

Les conditions météorologiques se caractérisent par :

- la vitesse du vent,
- le caractère stable ou instable de l'atmosphère qui, selon le modèle de Doury [Doury, 1981], correspond à une diffusion faible (DF) ou normale (DN) des radionucléides,
- la présence ou l'absence de pluie au cours du transport.

Le rejet traité est ponctuel dans l'espace, à débit et direction constants sur une heure. On ne prend pas en compte les fluctuations de direction de vent sur cette période ("facteur de battement de vent" égal à 1). Le rejet est supposé se produire au niveau du sol.

Dans le cas de calcul de l'impact de particules de 1 μm , la vitesse de dépôt considérée est de $5 \cdot 10^{-3} \text{ m.s}^{-1}$. Dans le cas de particules de 5 μm , la vitesse de dépôt, calculée à l'aide de la formule de Florin [Renoux, 1998], est de 10^{-2} m.s^{-1} .

Pour les coefficients de dose :

Pour l'**inhalation**, les deux classes de solubilité sont utilisées :

- la classe "M" (pour "moderate"), type d'absorption par défaut recommandé par la CIPR 71 [CIPR 71, 1996], et repris dans l'arrêté du 01/09/2003 [BO, 2003a] pour les aérosols lorsqu'aucune information spécifique n'est disponible,
- la classe "S" (pour "slow") correspond aux oxydes insolubles, d'après la CIPR 68 [CIPR 68, 1994], pour les isotopes du plutonium.

Pour la voie **ingestion**, les coefficients de dose proviennent de la CIPR 72 [CIPR 72, 1996] repris dans l'arrêté du 1^{er} septembre 2003 [BO, 2003a].

Pour la voie "**irradiation externe** par le panache et les dépôts", les coefficients de dose proviennent du rapport Federal Guidance 12 [Eckerman, 1993].

Les autres données environnementales (ration alimentaire, débits respiratoires et caractéristiques de la biosphère) sont indiquées au paragraphe XIII, page 244.

VI.2 IMPACT DOSIMETRIQUE POUR UN REJET UNITAIRE A 1 KM DU POINT D'EMISSION

Il est intéressant d'établir une correspondance entre activité rejetée et exposition à une distance assez courte mais à laquelle l'influence de la hauteur de rejet et les perturbations liées aux bâtiments se sont généralement très atténuées.

Le Tableau VI-1 présente l'impact dosimétrique d'un rejet d'un **GigaBecquerel** (1 GBq) de chaque isotope du plutonium, exprimé en dose efficace pour un adulte après 1 an, à 1 km dans l'axe du panache, pour 3 conditions météorologiques, toutes voies d'exposition incluses. Le diamètre aérodynamique des aérosols est supposé être de 1 μm .

| Isotope | Masse de Pu correspondante (g) | Période radioactive (an) | Dose Efficace Adulte (mSv) | | |
|-------------------|--------------------------------|--------------------------|----------------------------|---------------------|---------------------|
| | | | DN5* | DN5 pluie** | DF2*** |
| ^{236}Pu | $5,2 \cdot 10^{-5}$ | 2,85 | 0,2 | 0,2 | 0,6 |
| ^{238}Pu | 0,0016 | 87,8 | 0,6 | 0,6 | 1,4 |
| ^{239}Pu | 0,43 | $2,4 \cdot 10^4$ | 0,6 | 0,6 | 1,6 |
| ^{240}Pu | 0,12 | $6,5 \cdot 10^3$ | 0,6 | 0,6 | 1,5 |
| ^{242}Pu | 6,8 | $3,8 \cdot 10^5$ | 0,6 | 0,6 | 1,5 |
| ^{244}Pu | 1500 | $8,2 \cdot 10^7$ | 0,6 | 0,6 | 1,5 |
| ^{241}Pu | $2,6 \cdot 10^{-4}$ | 14,4 | 0,011 | 0,011 | 0,029 |
| ^{241}Am | 0,0079 | 431 | 0,5 | 0,5 | 1,3 |
| ^{243}Pu | $1,0 \cdot 10^{-8}$ | $5,7 \cdot 10^{-4}$ | $1,1 \cdot 10^{-6}$ | $1,2 \cdot 10^{-6}$ | $2,8 \cdot 10^{-6}$ |
| ^{245}Pu | $2,2 \cdot 10^{-8}$ | 0,0013 | $1,0 \cdot 10^{-5}$ | $1,5 \cdot 10^{-5}$ | $2,7 \cdot 10^{-5}$ |
| ^{246}Pu | $5,6 \cdot 10^{-7}$ | 0,03 | $3,7 \cdot 10^{-4}$ | $6,6 \cdot 10^{-4}$ | $9,4 \cdot 10^{-4}$ |
| ^{234}Pu | $1,8 \cdot 10^{-8}$ | 0,001 | $2,5 \cdot 10^{-4}$ | $2,5 \cdot 10^{-4}$ | $6,4 \cdot 10^{-4}$ |
| ^{235}Pu | $8,5 \cdot 10^{-10}$ | $4,9 \cdot 10^{-5}$ | $1,7 \cdot 10^{-7}$ | $2,1 \cdot 10^{-7}$ | $3,8 \cdot 10^{-7}$ |
| ^{237}Pu | $2,2 \cdot 10^{-6}$ | 0,12 | $5,5 \cdot 10^{-5}$ | $1,2 \cdot 10^{-4}$ | $1,4 \cdot 10^{-4}$ |

Tableau VI-1 : Dose efficace (mSv) après 1 an, à 1 km pour un terme source comprenant 1 GBq d'un seul isotope en fonction des différentes conditions météorologiques pour un adulte du public – rejet au niveau du sol – solubilité "M" (moderate)

Dans les tableaux de résultats, les cellules à fond jaune correspondent aux émetteurs β et γ

*DN5 : diffusion normale, vent de 5 m.s^{-1} ,

**DN5 pluie : diffusion normale, vent de 5 m.s^{-1} , pluviométrie de 5 mm.h^{-1} ,

***DF2 : diffusion faible, vent de 2 m.s^{-1} .

On constate que **tous les isotopes majeurs émetteurs alpha à vie assez longue conduisent à des expositions très voisines pour une même activité rejetée.**

Les émetteurs β conduisent à des expositions beaucoup plus faibles, d'une part en raison de l'énergie libérée par désintégration qui est plus faible et au pouvoir ionisant des particules α , d'autre part en raison de leurs périodes beaucoup plus courtes, induisant une durée d'intégration moindre. L'exception notable est le plutonium 241 ayant le plus grand coefficient de conversion des émetteurs β , en raison de sa période radioactive et de son fils l' ^{241}Am (émetteur α à période longue).

Un rejet de 1 GBq de plutonium conduit au plus à une exposition de l'ordre de 1 mSv à une distance de 1 km. La condition météorologique "Diffusion Faible, vent de 2 m/s" est essentiellement

nocturne et le débit respiratoire des personnes endormies est normalement beaucoup plus faible que le débit respiratoire en activité légère habituellement retenu (voir paragraphe XIII).

Une pluie modérée n'a pratiquement pas d'influence sur l'impact global et l'on verra pourquoi dans le paragraphe ci-dessous.

Les proportions relatives des différentes voies d'exposition sont identiques quelle que soit la condition météorologique (diffusion faible ou normale et vitesse du vent).

On ne conservera ultérieurement que la situation météo DN5 pour faciliter la présentation.

VI.3 IMPORTANCE RELATIVE DES VOIES D'ATTEINTE POUR UN REJET ATMOSPHERIQUE

L'analyse détaillée de l'exposition en fonction des voies d'atteinte permet de préciser les interventions pertinentes en cas d'accident.

Les graphes de la Figure VI-1 présentent, pour les principaux isotopes du plutonium, l'importance relative des voies d'atteinte pour un adulte du public. Seules les voies d'exposition supérieures à 1% sont présentées sur les figures suivantes.

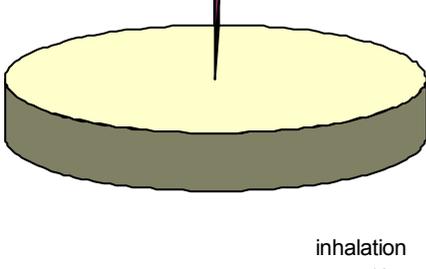
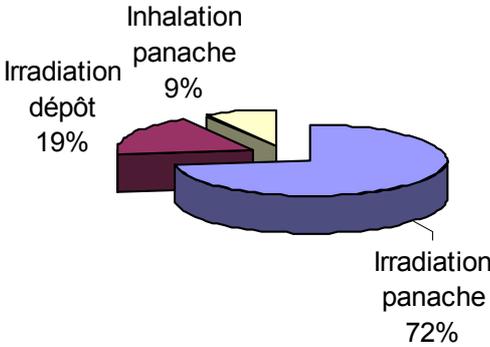
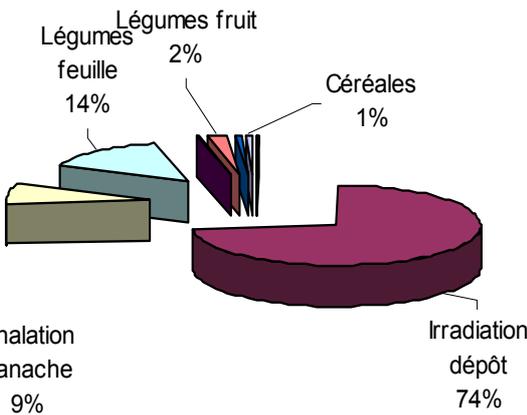
On verra ensuite l'influence d'autres paramètres tels que l'âge des individus ou la taille des aérosols.

Pour les **isotopes émetteurs α** , la voie d'atteinte est très nettement la voie "inhalation".

Pour les **isotopes $\beta\gamma$** : ^{235}Pu , ^{237}Pu et ^{246}Pu , la voie prédominante est une voie d'irradiation externe, soit par le panache pour les radionucléides à vie très courte (cas du ^{235}Pu), soit par le dépôt pour au sol pour des nucléides à vie un peu plus longue (cas du ^{237}Pu et du ^{246}Pu).

L'importance de la voie inhalation pour les émetteurs α explique que l'effet d'une pluie est négligeable. En effet, à courte distance, la pluie appauvrit assez peu la concentration du nuage et a donc peu d'effet sur la voie inhalation. Par contre, elle peut augmenter significativement les dépôts au sol, mais ceux-ci ont une contribution négligeable pour ces isotopes.

On voit que la contribution relative des voies d'exposition due au ^{241}Pu est comparable à celle des émetteurs alpha à vie assez longue ou longue (cf. Figure VI-1). Le ratio entre la dose due à 1 Bq de ^{239}Pu et la dose due à 1 Bq de ^{241}Pu est approximativement d'un facteur 50 (cf. Tableau VI-1). Compte tenu de ces similitudes, il est possible d'ajouter les activités des isotopes 238 à 242 en pondérant celle du ^{241}Pu par un facteur 2%.

| Isotope | Importance relative des voies d'atteinte | Voies d'atteinte majeures |
|-------------------|---|--|
| ^{234}Pu |  <p style="text-align: center;">inhalation</p> | Inhalation |
| ^{235}Pu |  | Irradiation externe (panache et dépôt) Inhalation |
| ^{237}Pu |  | Dépôt Consommation légumes Inhalation |

| Isotope | Importance relative des voies d'atteinte | Voies d'atteinte majeures | | | | | | | | | | |
|--|---|---------------------------|-------------|--------------------|-----|-----------------|----|---------------|----|----------|----|--|
| ^{236}Pu ^{238}Pu ^{239}Pu ^{240}Pu ^{242}Pu ^{244}Pu | <p>Detailed description: A 3D pie chart showing the relative importance of exposure pathways for Pu isotopes. The largest slice is 'Inhalation panache' at 95%. Other slices include 'Légumes feuille' (3%), 'Légumes fruit' (1%), and 'Céréales' (1%).</p> <table border="1"> <thead> <tr> <th>Voie d'atteinte</th> <th>Pourcentage</th> </tr> </thead> <tbody> <tr> <td>Inhalation panache</td> <td>95%</td> </tr> <tr> <td>Légumes feuille</td> <td>3%</td> </tr> <tr> <td>Légumes fruit</td> <td>1%</td> </tr> <tr> <td>Céréales</td> <td>1%</td> </tr> </tbody> </table> | Voie d'atteinte | Pourcentage | Inhalation panache | 95% | Légumes feuille | 3% | Légumes fruit | 1% | Céréales | 1% | Inhalation Consommation légumes feuille |
| Voie d'atteinte | Pourcentage | | | | | | | | | | | |
| Inhalation panache | 95% | | | | | | | | | | | |
| Légumes feuille | 3% | | | | | | | | | | | |
| Légumes fruit | 1% | | | | | | | | | | | |
| Céréales | 1% | | | | | | | | | | | |
| ^{241}Am | <p>Detailed description: A 3D pie chart showing the relative importance of exposure pathways for Am-241. The largest slice is 'Inhalation panache' at 95%. Other slices include 'Légumes feuille' (3%), 'Légumes fruit' (1%), and 'Céréales' (1%).</p> <table border="1"> <thead> <tr> <th>Voie d'atteinte</th> <th>Pourcentage</th> </tr> </thead> <tbody> <tr> <td>Inhalation panache</td> <td>95%</td> </tr> <tr> <td>Légumes feuille</td> <td>3%</td> </tr> <tr> <td>Légumes fruit</td> <td>1%</td> </tr> <tr> <td>Céréales</td> <td>1%</td> </tr> </tbody> </table> | Voie d'atteinte | Pourcentage | Inhalation panache | 95% | Légumes feuille | 3% | Légumes fruit | 1% | Céréales | 1% | Inhalation Consommation légumes feuille |
| Voie d'atteinte | Pourcentage | | | | | | | | | | | |
| Inhalation panache | 95% | | | | | | | | | | | |
| Légumes feuille | 3% | | | | | | | | | | | |
| Légumes fruit | 1% | | | | | | | | | | | |
| Céréales | 1% | | | | | | | | | | | |
| ^{241}Pu | <p>Detailed description: A 3D pie chart showing the relative importance of exposure pathways for Pu-241. The largest slice is 'Inhalation panache' at 94%. Other slices include 'Légumes feuille' (4%), 'Légumes fruit' (1%), and 'Céréales' (1%).</p> <table border="1"> <thead> <tr> <th>Voie d'atteinte</th> <th>Pourcentage</th> </tr> </thead> <tbody> <tr> <td>Inhalation panache</td> <td>94%</td> </tr> <tr> <td>Légumes feuille</td> <td>4%</td> </tr> <tr> <td>Légumes fruit</td> <td>1%</td> </tr> <tr> <td>Céréales</td> <td>1%</td> </tr> </tbody> </table> | Voie d'atteinte | Pourcentage | Inhalation panache | 94% | Légumes feuille | 4% | Légumes fruit | 1% | Céréales | 1% | Inhalation Consommation légumes feuille |
| Voie d'atteinte | Pourcentage | | | | | | | | | | | |
| Inhalation panache | 94% | | | | | | | | | | | |
| Légumes feuille | 4% | | | | | | | | | | | |
| Légumes fruit | 1% | | | | | | | | | | | |
| Céréales | 1% | | | | | | | | | | | |

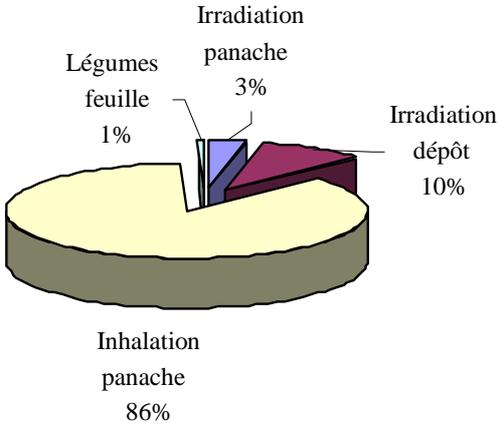
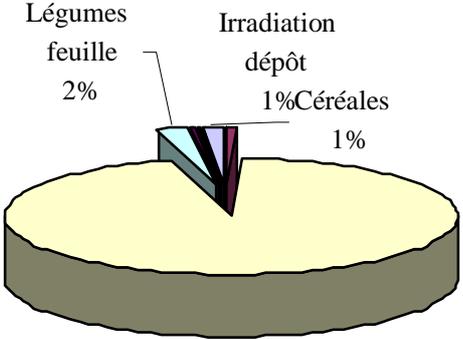
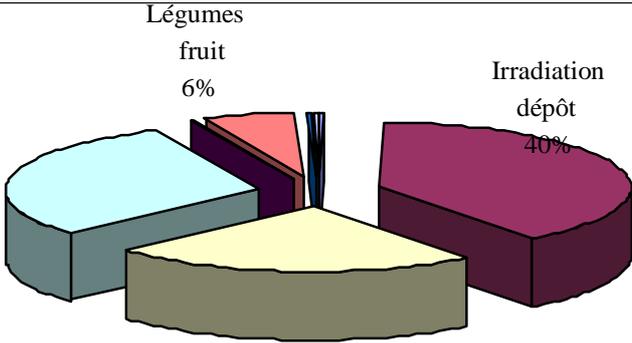
| Isotope | Importance relative des voies d'atteinte | Voies d'atteinte majeures |
|-------------------|---|--|
| ^{243}Pu |  <p> Irradiation panache 3% Irradiation dépôt 10% Légumes feuille 1% Inhalation panache 86% </p> | Inhalation Irradiation dépôt et panache |
| ^{245}Pu |  <p> Irradiation dépôt 1% Céréales 1% Légumes feuille 2% Inhalation panache 96% </p> | Inhalation Consommation légumes feuille |
| ^{246}Pu |  <p> Irradiation dépôt 40% Légumes fruit 6% Légumes feuille 23% </p> | Irradiation par les dépôts Consommation légumes feuille Inhalation |

Figure VI-1 : Importance relative des voies d'atteinte pour chaque isotope, à 1 km du point d'émission, pour un terme source mono-isotopique de plutonium (Bilan sur 1 an après l'accident)

VI.4 INFLUENCE DE L'AGE DES INDIVIDUS SUR LE NIVEAU D'EXPOSITION

Le Tableau VI-2 présente la comparaison, pour les différents isotopes du plutonium, de l'exposition de l'adulte et celle d'enfants pour les deux classes de solubilité.

*

| | Solubilité M | | | | Solubilité S | | | |
|-------------------|----------------|-------------------|---------------------|--------|----------------|-------------------|---------------------|--------|
| | Bébé 3 mois | Enfant de 1 an | Enfant de 10 ans | Adulte | Bébé 3 mois | Enfant de 1 an | Enfant de 10 ans | Adulte |
| ²³⁶ Pu | 40% | 63% | 88% | 100% | 60% | 90% | 117% | 100% |
| ²³⁸ Pu | 28% | 47% | 80% | | 47% | 73% | 99% | |
| ²³⁹ Pu | 27% | 45% | 80% | | 45% | 71% | 99% | |
| ²⁴⁰ Pu | 27% | 45% | 80% | | 45% | 71% | 99% | |
| ²⁴¹ Pu | 17% | 31% | 77% | | 22% | 39% | 83% | |
| ²⁴¹ Am | 29% | 48% | 79% | | 48% | 73% | 99% | |
| ²⁴² Pu | 26% | 44% | 78% | | 44% | 70% | 94% | |
| ²⁴⁴ Pu | 26% | 45% | 80% | | 43% | 68% | 94% | |
| ²⁴³ Pu | 112% | 137% | 131% | | 116% | 139% | 136% | |
| ²⁴⁵ Pu | 150% | 182% | 167% | | 147% | 176% | 165% | |
| ²⁴⁶ Pu | 79% | 102% | 124% | | 79% | 102% | 125% | |
| ²³⁴ Pu | 62% | 82% | 111% | | 60% | 80% | 108% | |
| ²³⁵ Pu | 155% | 208% | 173% | | 144% | 194% | 167% | |
| ²³⁷ Pu | 90% | 117% | 129% | | 85% | 112% | 126% | |

Tableau VI-2 : Ratio des expositions par inhalation entre adulte et enfants en fonction de la nature chimique du rejet

Pour les isotopes émetteurs α et le ²⁴¹Pu, la dose reçue par inhalation (et donc la dose totale) est toujours plus élevée pour un adulte que pour un enfant. Pour les isotopes émetteurs $\beta\gamma$, la dose reçue par inhalation par un enfant peut être supérieure à celle d'un adulte. Cependant, on a vu précédemment que l'exposition principale est alors l'irradiation externe, qui est identique entre adulte et enfants. On en conclura que **l'exposition des enfants est au plus égale à celle de l'adulte et qu'aucune mesure particulière n'est à envisager pour les enfants.**

VI.5 INFLUENCE DE LA CATEGORIE D'ADULTES

La CIPR distingue adultes du public et travailleurs. Un rapide examen des coefficients de dose montre que, toute conditions égales par ailleurs, **l'exposition d'un adulte du public est très légèrement supérieure et en moyenne de 10% supérieure à celle d'un travailleur**, ceci résultant probablement d'une plus grande hétérogénéité des populations.

VI.6 INFLUENCE DE LA TAILLE DES PARTICULES SUR LE NIVEAU D'EXPOSITION

La Figure VI-2 ci-dessous montre l'influence de la taille des particules sur les DPUI selon la CIPR, pour le ²³⁹Pu, le ²⁴¹Pu et le ²⁴¹Am. Les courbes sont données pour plusieurs âges pour le ²³⁹Pu et pour les deux formes M et S.

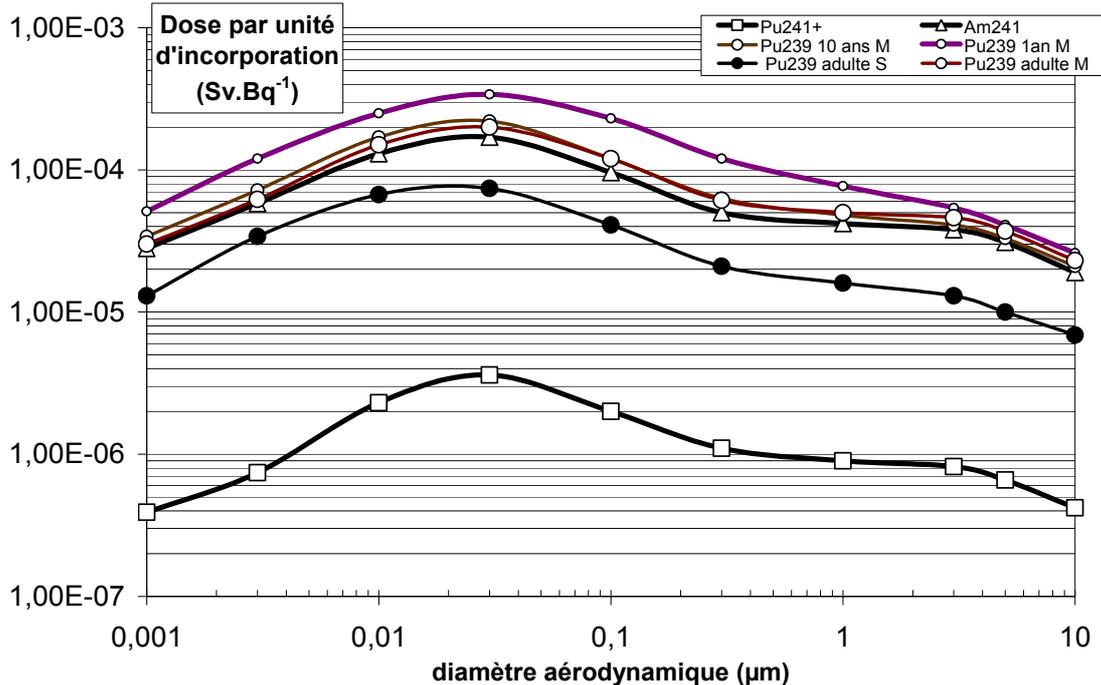


Figure VI-2 : Dose par unité d'incorporation par inhalation en fonction de la taille des particules

Par rapport au diamètre de référence de 1 μm , on constate que les DPUI diminuent rapidement pour les diamètres supérieurs, et sont très faibles pour les particules non inhalables (au-delà de 100 μm). Inversement, pour des diamètres plus petits, entre 0,01 et 0,1 μm , les DPUI seraient environ 4 fois supérieures. On notera cependant que l'obtention de granulométrie aussi fine est loin d'être fréquente.

VI.7 INFLUENCE DE LA GRANULOMETRIE D'UN REJET SUR L'IMPACT AUX POPULATIONS

Lorsqu'elle est connue, la granulométrie des particules présentes dans le terme source intervient trois fois dans le calcul d'impact :

- la première fois lorsqu'on évalue la fraction d'inventaire émise hors de l'installation,
- la deuxième fois lorsqu'on considère l'appauvrissement du nuage par dépôt au sol,
- la troisième fois lorsqu'on calcule l'exposition par inhalation.

Pour illustrer ces phénomènes, on présente ici le cas d'un rejet dont la distribution des diamètres aérodynamiques est indiqué à la Figure II-8, qui correspond à de la poudre de grosse granulométrie, impliquant un accident avec rupture totale de confinement et une mise en suspension énergétique. On illustrera l'effet de sédimentation dans le cas d'une diffusion normale et une vitesse de vent de 1 m.s^{-1} , soit 3,6 km.h^{-1} . Ce lent déplacement de l'air a l'intérêt de laisser du temps aux particules pour se déposer et de permettre une meilleure visualisation des phénomènes. Les calculs suivants présentent différentes conditions caractérisées par la diffusion (normale ou faible) et la vitesse de vent en m.s^{-1} , avec un rejet à la hauteur de 12 m.

La Figure VI-3 montre que les aérosols de plus de 100 μm se déposent en pratique dans les deux premiers kilomètres. Alors que les aérosols inhalables représentent environ 15% à l'origine, ce n'est cependant qu'à 30 km qu'ils dépassent 60% de la masse d'aérosols dans l'air. L'évolution de la

granulométrie apparaît donc assez lente puisqu'il faut plus de 8 heures pour parcourir cette distance.

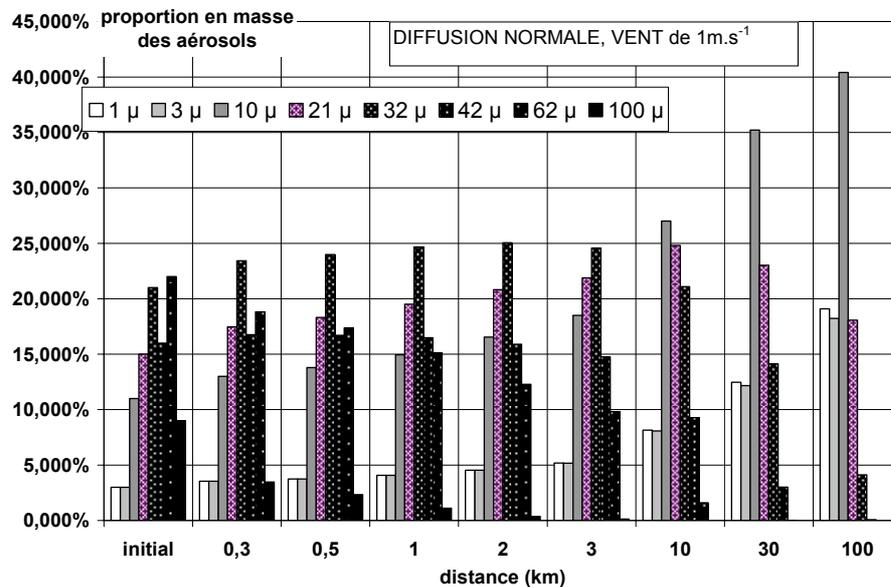


Figure VI-3 : Evolution des distributions granulométriques des aérosols avec la distance, (scénario atmosphérique DN1)

La Figure VI-4 présente l'évolution de l'exposition par inhalation en fonction de la distance, en considérant le calcul standard "1 μ m" et la distribution détaillée précédemment indiquée.

On constate une surestimation significative de l'exposition dans toutes les situations météorologiques de l'ordre d'un facteur 5. On note également qu'à très courte distance, l'effet de protection de la cheminée est sensiblement amoindri du fait de la chute des grosses particules.

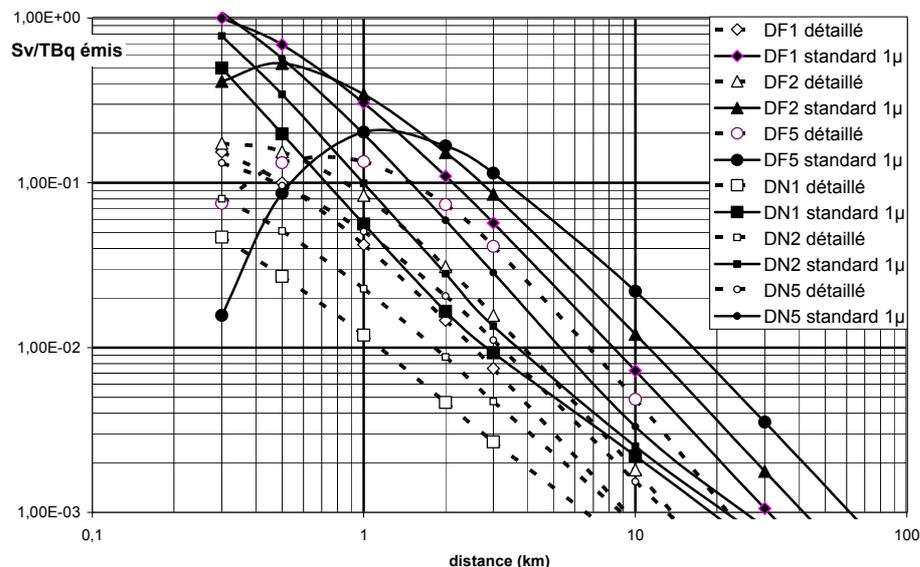


Figure VI-4 : Exposition en fonction de la distance

La Figure VI-5 montre l'évolution du coefficient de dose moyen avec la distance en tenant compte de l'évolution de la granulométrie. On constate qu'il augmente avec la distance puisque les particules sont de plus en plus fines. On retrouve ici l'ordre du facteur 5 indiqué précédemment. En diffusion normale, la turbulence de l'air conduit à ramener les particules fines plus rapidement vers

le sol que dans les cas de diffusion faible. Dans ces derniers cas, la vitesse de vent conduit à un tri visible des aérosols avec la distance. Dans le cas DF5, il n'y a guère, à courte distance, que des particules non inhalables.

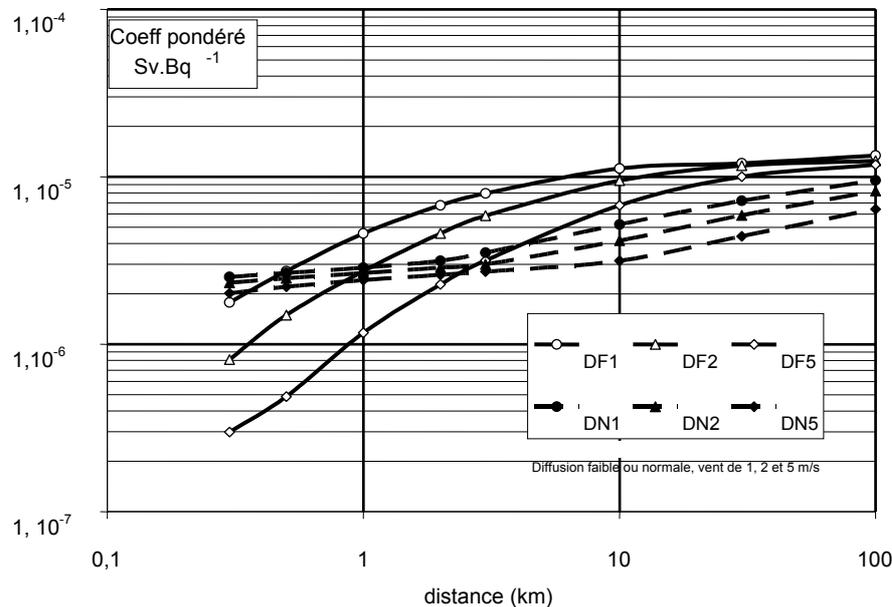


Figure VI-5 : Evolution du coefficient de dose par Bq inhalé avec la distance

VI.8 TERMES SOURCES POUR DIFFERENTS CRITERES RADIOLOGIQUES OU DE COMMERCIALISATION

Il est intéressant d'évaluer les "termes sources environnement" qui conduisent à des interventions. En effet, la connaissance de l'inventaire potentiel ou réel permet de situer rapidement la gravité de l'accident, trois types de critères sont ici utilisés :

- la dose efficace à 48 heures (critère 1).

Ce critère permet de situer les accidents qui nécessitent des interventions à court terme (confinement et évacuation).

- les doses efficaces de 48 heures à 1 an après l'accident (critère 2).

Ce critère permet de situer les accidents conduisant à des interventions post-accidentelles. Ces interventions concernent ici essentiellement les productions agricoles contaminées et la voie ingestion.

- les limites de commercialisation du lait (20 Bq/L) et de produits végétaux (80 Bq/kg pour les isotopes transplutoniens émetteurs α) (critère 3). Ces limites sont données de façon globale, sur la base de calculs relatifs au plutonium 239. Elles ne sont pas applicables aux isotopes du plutonium émetteurs $\beta\gamma$ et n'ont donc de sens que pour les isotopes ayant des caractéristiques voisines. C'est le cas pour les émetteurs alpha qui sont de loin les plus importants (^{238}Pu , ^{239}Pu , ^{240}Pu , ^{242}Pu).

Le Tableau VI-3 présente les évaluations du terme source environnement nécessitant la mise en œuvre de mesures de protection des populations à court terme, en considérant les conditions explicitées en introduction. La solubilité considérée est "M". Les voies d'exposition prises en compte sont l'irradiation externe par le panache, l'irradiation externe par le dépôt, intégrée sur 2 jours, et l'inhalation.

Dans ce tableau, **seul l'ordre de grandeur est conservé.**

| Isotope | Terme source (en mg) pouvant conduire à une dose de : | | Terme-source conduisant à une limite de commercialisation |
|--------------------|---|---------------|---|
| | 10 mSv à 2 jours | 50 mSv à 1 an | Après le rejet |
| ²³⁶ Pu | 2 mg | 10 mg | 0,13 mg / 2,5 GBq |
| ²³⁸ Pu | 25 mg | 125 mg | 4,2 mg / 2,6 GBq |
| ²³⁹⁺ Pu | 7,2 g | 36 g | 1,2 g / 2,8 GBq |
| ²⁴⁰ Pu | 2 g | 10 g | 0,31 g / 2,6 GBq |
| ²⁴¹⁺ Pu | 0,24 g | 1,2 g | 11 mg / 42 GBq |
| ²⁴¹ Am | 0,150 g | 0,75 g | 21 mg / 2,7 GBq |
| ²⁴² Pu | 120 g | 6 kg | 18 g / 2,7 GBq |
| ²⁴⁴⁺ Pu | 25 kg | 130 kg | 4 kg / 2,5 GBq |
| ²⁴³ Pu | 90 mg | 0,45 g | 4,5 µg |
| ²⁴⁵⁺ Pu | 20 mg | 110 mg | 4,6 µg |
| ²⁴⁶⁺ Pu | 45 mg | 0,22 g | 6 µg |
| ²³⁴ Pu | 0,7 mg | 3,5 mg | 4,4 µg |
| ²³⁵ Pu | 50 mg | 0,25 g | 4,7 µg |
| ²³⁷ Pu | 4 g | 20 g | 130 µg |

Tableau VI-3 : Activité rejetée pouvant conduire à des interventions (confinement, évacuation et interdiction de commercialisation de productions locales à distance de 1 km du point d'émission – DN5

On a vu précédemment que l'adulte est le plus exposé et que les particules considérées ici sont des particules fines. Enfin, dans le calcul de dose, on considère que le plutonium est sous une forme assez soluble M. Toutes ces hypothèses conduisent très probablement à une surévaluation des expositions. Cela permet cependant de situer les niveaux d'intervention à mettre en jeu lors d'un accident sur la base d'un terme source connu.

A titre d'exemple :

- **un rejet de 5 g de plutonium 239 seul** ne devrait pas conduire à des interventions de type confinement et *a fortiori* évacuation (critère n°1).
- **un rejet de 5g de plutonium contenant 25 mg de plutonium 238 ou 0,2 g de plutonium 241 conduira très probablement à un confinement local.**
- les quantités de ²⁴²Pu et de ²⁴⁴Pu à mettre en œuvre qui conduiraient à une intervention n'ont pas de réalité. Ces isotopes ne peuvent avoir qu'un rôle très mineur.

Les normes de commercialisation sont atteintes plus rapidement que les critères de dose pour le confinement (protection contre l'inhalation). On constate en effet un facteur 30 environ entre les 2 niveaux de rejets. Ceci signifie qu'il **existerait une zone "d'interdiction de commercialisation" d'extension sensiblement plus grande que la zone de confinement**. La justification n'est pas de nature dosimétrique, l'exposition par ingestion étant pour un rejet donné très sensiblement plus faible que celle par inhalation (quelques pourcents).

On ne s'intéressera pas outre mesure aux isotopes à vie courte (notamment le ²⁴⁶Pu, émetteur β), dont les masses conduisant à des concentrations égales au seuil de 1250 Bq.kg⁻¹ à 2 jours sont très faibles, mais ces quantités n'ont pas de réalité à ce jour.

La contamination strictement racinaire des végétaux conduit à des activités de l'ordre de 10^5 fois plus faibles que la contamination foliaire pour les principaux isotopes à vie longue. Même en considérant une part de contamination sol-plante par voie externe, cela montre que la question de la contamination des végétaux ne concerne que la végétation en place au moment de l'accident et est donc limitée dans le temps.

VI.9 IMPACT D'UN REJET DE PLUTONIUM DE COMPOSITION ISOTOPIQUE PREDEFINIE

L'utilisation de la masse est fréquente pour quantifier les opérations, et par voie de conséquence les rejets de type accidentels. Compte tenu des différences importantes d'activité spécifique des différents isotopes, il convient d'être très prudent, les impacts dépendant de l'activité et non de la masse. On se propose d'illustrer ce propos dans ce paragraphe en comparant 3 types de combustibles présentés au chapitre III.1.

Le Tableau VI-4 indique l'activité d'un gramme de métal lourd, sachant que celui-ci est constitué d'oxydes d'uranium, de plutonium, voire d'américium.

Dans les exemples retenus, la masse de plutonium dans une tonne de métal irradié est de 1,2% pour l'oxyde d'uranium, 11,6% dans du MOx à l'origine, et évoluant à 8% après irradiation, enfin le plutonium représente 22,3% à 21,5% du combustible GFR. On voit donc qu'il peut y avoir plus d'un ordre de grandeur dans la proportion du plutonium dans le métal lourd.

Il convient donc de ne pas confondre gramme de métal et gramme de plutonium. Il convient de la même manière de ne pas confondre gramme de plutonium et gramme d'oxyde de plutonium.

| Bq/g de métal Lourd | UOx 4,95% | MOx 11,6% | | | GFR Plaques Pu 22,3% & Am 5,1% | | |
|---------------------|--------------|-----------|--------------|---------|--------------------------------|--------------|---------|
| | 60 000 MWj/t | Initial | 60 000 MWj/t | | Initial | 10 000 MWj/t | |
| | | | 90 j | 5ans | | 90 j | 5ans |
| | | | | | | | |
| ²³⁶ Pu | 6,8E+04 | 0 | 1,5E+04 | 4,9E+03 | 0 | 4,2E+05 | 1,3E+05 |
| ²³⁷ Pu | 3,8E+04 | 0 | 2,9E+05 | 8,2E-07 | 0 | 1,6E+06 | 5,7E-06 |
| ²³⁸ Pu | 2,8E+08 | 2,7E+09 | 2,5E+09 | 2,5E+09 | 5,1E+09 | 9,9E+09 | 9,9E+09 |
| ²³⁹ Pu | 1,5E+07 | 1,4E+08 | 6,5E+07 | 6,5E+07 | 2,6E+08 | 2,2E+08 | 2,2E+08 |
| ²⁴⁰ Pu | 2,6E+07 | 2,4E+08 | 2,1E+08 | 2,1E+08 | 6,0E+08 | 6,0E+08 | 6,0E+08 |
| ²⁴¹ Pu | 7,3E+09 | 5,0E+10 | 5,0E+10 | 4,0E+10 | 2,7E+10 | 3,6E+10 | 2,9E+10 |
| ²⁴² Pu | 1,5E+05 | 1,4E+06 | 1,6E+06 | 1,6E+06 | 3,3E+06 | 3,0E+06 | 3,0E+06 |
| ²⁴⁴ Pu | 7,7E-02 | 0,0E+00 | 6,3E-01 | 6,3E-01 | 0,0E+00 | 4,5E-01 | 4,5E-01 |
| ²⁴¹ Am | 1,1E+07 | 1,7E+08 | 2,1E+08 | 5,5E+08 | 4,6E+09 | 2,4E+09 | 2,6E+09 |

Tableau VI-4 : Activité (Bq) correspondant à 1 gramme de métal lourd

La météorologie retenue est une météo courante en journée avec des conditions de diffusion normale et un vent de 5 m.s^{-1} (de l'ordre de 20 km.h^{-1}).

Le Tableau VI-5 présente les doses efficaces pour l'ensemble des voies d'exposition sur une année, pour un rejet unitaire de 1 GBq de chaque radionucléide à une distance de 1 km dans l'axe du vent.

| Isotopes | Masse de Pu correspondante (g) | mSv/GBq | | | |
|--------------------|--------------------------------|---------------------|---------------------|---------------------|-------------------------|
| | | Adulte 1 μ m M | Adulte 1 μ m S | Adulte 5 μ m S | Travailleur 5 μ m S |
| ^{236}Pu | $5,2 \cdot 10^{-5}$ | $2,5 \cdot 10^{-1}$ | $1,3 \cdot 10^{-1}$ | $1,1 \cdot 10^{-1}$ | $9,6 \cdot 10^{-2}$ |
| ^{237}Pu | $2,2 \cdot 10^{-6}$ | $5,5 \cdot 10^{-5}$ | $7,7 \cdot 10^{-5}$ | $7,5 \cdot 10^{-5}$ | $7,5 \cdot 10^{-5}$ |
| ^{238}Pu | $1,6 \cdot 10^{-3}$ | $5,7 \cdot 10^{-1}$ | $2,2 \cdot 10^{-1}$ | $1,4 \cdot 10^{-1}$ | $1,5 \cdot 10^{-1}$ |
| ^{239+}Pu | $4,3 \cdot 10^{-1}$ | $6,1 \cdot 10^{-1}$ | $2,3 \cdot 10^{-1}$ | $1,5 \cdot 10^{-1}$ | $1,2 \cdot 10^{-1}$ |
| ^{240}Pu | $1,2 \cdot 10^8$ | $6,2 \cdot 10^{-1}$ | $2,2 \cdot 10^{-1}$ | $1,4 \cdot 10^{-1}$ | $1,2 \cdot 10^{-1}$ |
| ^{241+}Pu | $2,6 \cdot 10^{-4}$ | $1,1 \cdot 10^{-2}$ | $2,8 \cdot 10^{-3}$ | $1,7 \cdot 10^{-3}$ | $1,4 \cdot 10^{-3}$ |
| ^{242}Pu | 6,8 | $5,9 \cdot 10^{-1}$ | $2,1 \cdot 10^{-1}$ | $1,3 \cdot 10^{-1}$ | $1,1 \cdot 10^{-1}$ |
| ^{243}Pu | $1,0 \cdot 10^{-8}$ | $1,1 \cdot 10^{-6}$ | $1,2 \cdot 10^{-6}$ | $1,6 \cdot 10^{-6}$ | $1,5 \cdot 10^{-6}$ |
| ^{244}Pu | $1,5 \cdot 10^3$ | $5,9 \cdot 10^{-1}$ | $2,2 \cdot 10^{-1}$ | $1,3 \cdot 10^{-1}$ | $1,1 \cdot 10^{-1}$ |
| ^{241}Am | $7,9 \cdot 10^{-3}$ | $5,2 \cdot 10^{-1}$ | $6,1 \cdot 10^{-1}$ | $3,9 \cdot 10^{-1}$ | $3,4 \cdot 10^{-1}$ |

Tableau VI-5 : Dose efficace (mSv) pour un rejet de 1 GBq de chaque isotope

L'impact d'un rejet de 1 gramme de métal lourd est présenté dans le Tableau VI-6. Le calcul pour l'UOx est effectué pour les deux granulométries d'aérosols de référence (1 μ m et 5 μ m). Les autres sont uniquement étudiés pour la granulométrie de 5 μ m. Ces valeurs peuvent être considérées comme pessimistes car les aérosols issus des installations de fabrication ont une granulométrie de l'ordre de 10 μ m.

NB. On rappellera qu'un rejet d'aérosols de combustibles irradiés conduirait à l'émission simultanée de produits de fission, qui seraient nettement prédominants dans l'impact à court comme à long terme.

| Isotopes | UOx 4,95% | | MOx 11,6% | | | GFR Plaques Pu 22,3% & Am 5,1% | | |
|--------------------|-------------|-------------|------------|-------------|------------|--------------------------------|-------------|-------------|
| | 60000 MWj/t | | Initial | 60000 MWj/t | | Initial | 10000 MWj/t | |
| | 1 μ m | 5 μ m | | +90 j* | +5 ans* | | + 90 j | + 5 ans |
| Total (mSv) | 0,10 | 0,06 | 0,6 | 0,5 | 0,7 | 2,7 | 2,5 | 2,52 |
| ^{238}Pu | 63% | | 64% | 62% | 52% | 26% | 55% | 53% |
| ^{239+}Pu | 3% | | 4% | 2% | 1% | 1% | 1% | 1% |
| ^{240}Pu | 6% | | 6% | 5% | 5% | 3% | 3% | 3% |
| ^{241+}Pu | 21% | | 15% | 15% | 10% | 2% | 2% | 2% |
| ^{241}Am | 7% | | 11% | 15% | 32% | 67% | 38% | 40% |

* Temps entre production et recyclage.

Tableau VI-6 : Impacts radiologiques (mSv) d'un rejet de 1 gramme de métal lourd de différents combustibles.

On constate que l'augmentation de la teneur initiale du métal en plutonium, en particulier avec des isotopes à vies relativement courtes conduit à une "radiotoxicité" par gramme de métal qui augmente significativement.

Ceci est notamment vrai dans des laboratoires de recherches qui pourraient, tout en conservant des critères de masse stable, augmenter leur niveau d'impact en cas d'accident.

Une autre approche consiste à considérer l'impact d'un gramme de plutonium et d'évaluer l'incidence de la composition isotopique. Les impacts dosimétriques d'un rejet de 1 gramme de plutonium de types MOx 33 GWj/t et 45 GWj/t sont évalués ci-dessous.

Les activités qui seraient émises à l'environnement seraient les suivantes :

| Isotope | Activité (Bq) | |
|--------------------|----------------|----------------|
| | MOx 33 GWj/t | MOx 45 GWj/t |
| ²³⁸ Pu | $1,25.10^{10}$ | $2,44.10^{10}$ |
| ²³⁹⁺ Pu | $1,01.10^9$ | $8,86.10^8$ |
| ²⁴⁰ Pu | $2,60.10^9$ | $2,73.10^9$ |
| ²⁴¹⁺ Pu | $4,92.10^{11}$ | $4,61.10^{11}$ |
| ²⁴² Pu | $1,32.10^7$ | $1,73.10^7$ |
| ²⁴¹ Am | $1,65.10^9$ | $1,54.10^9$ |

Tableau VI-7 : Terme source environnement (Bq) correspondant à 1 milligramme d'un mélange de plutonium

Les résultats obtenus pour un adulte présent à 1 km dans l'axe du vent pendant le rejet sont présentés dans le Tableau VI-8 et le Tableau VI-9, respectivement pour la solubilité "M", proposée par défaut par l'arrêté du 1er septembre 2003 [BO, 2003a] lorsqu'aucune information n'est disponible et la solubilité "S", associée aux oxydes.

| MOx 33 GWj/t (mSv) | Irradiation panache | Irradiation dépôt | Inhalation efficace | Dose efficace totale |
|--------------------|----------------------------------|---------------------------------|----------------------------------|----------------------------------|
| ²⁴¹ Am | $4,9.10^{-11}$ | $1,4.10^{-9}$ | $8,4.10^{-4}$ | $8,4.10^{-4}$ |
| ²³⁸ Pu | $2,2.10^{-12}$ | $3,2.10^{-10}$ | $6,9.10^{-3}$ | $6,9.10^{-3}$ |
| ²³⁹⁺ Pu | $1,6.10^{-13}$ | $1,2.10^{-11}$ | $6,1.10^{-4}$ | $6,1.10^{-4}$ |
| ²⁴⁰ Pu | $4,5.10^{-13}$ | $6,5.10^{-11}$ | $1,6.10^{-3}$ | $1,6.10^{-3}$ |
| ²⁴¹⁺ Pu | $3,9.10^{-12}$ | $7,9.10^{-11}$ | $5,4.10^{-3}$ | $5,4.10^{-3}$ |
| ²⁴² Pu | $1,9.10^{-15}$ | $2,7.10^{-13}$ | $7,7.10^{-6}$ | $7,7.10^{-6}$ |
| Total (mSv) | $5,6.10^{-11}$ | $1,9.10^{-9}$ | $1,5.10^{-2}$ | $1,5.10^{-2}$ |
| MOx 45 GWj/t (mSv) | Irradiation panache | Irradiation dépôt | Inhalation efficace | Dose efficace totale |
| ²⁴¹ Am | $4,6.10^{-11}$ | $1,3.10^{-9}$ | $7,80.10^{-4}$ | $7,80.10^{-4}$ |
| ²³⁸ Pu | $4,3.10^{-12}$ | $6,3.10^{-10}$ | $1,35.10^{-2}$ | $1,35.10^{-2}$ |
| ²³⁹⁺ Pu | $1,4.10^{-13}$ | $1,0.10^{-11}$ | $5,34.10^{-4}$ | $5,34.10^{-4}$ |
| ²⁴⁰ Pu | $4,7.10^{-13}$ | $6,8.10^{-11}$ | $1,64.10^{-3}$ | $1,64.10^{-3}$ |
| ²⁴¹⁺ Pu | $3,7.10^{-12}$ | $7,4.10^{-11}$ | $5,00.10^{-3}$ | $5,00.10^{-3}$ |
| ²⁴² Pu | $2,5.10^{-15}$ | $3,6.10^{-13}$ | $1,00.10^{-5}$ | $1,00.10^{-5}$ |
| Total (mSv) | $5,4.10^{-11}$ | $2,1.10^{-9}$ | $2,15.10^{-2}$ | $2,15.10^{-2}$ |

Tableau VI-8 : Dose efficace (mSv) à court terme, à 1 km dans l'axe du vent – solubilité "M" pour les isotopes du plutonium

| MOx 33 GWj/t (mSv) | Irradiation panache | Irradiation dépôt | Inhalation efficace | Dose efficace totale |
|--------------------|--|---------------------------------------|---------------------------------------|---------------------------------------|
| ²⁴¹ Am | $4,9 \cdot 10^{-11}$ | $1,4 \cdot 10^{-9}$ | $8,4 \cdot 10^{-4}$ | $8,4 \cdot 10^{-4}$ |
| ²³⁸ Pu | $2,2 \cdot 10^{-12}$ | $3,2 \cdot 10^{-10}$ | $2,4 \cdot 10^{-3}$ | $2,4 \cdot 10^{-3}$ |
| ²³⁹⁺ Pu | $1,6 \cdot 10^{-13}$ | $1,2 \cdot 10^{-11}$ | $1,9 \cdot 10^{-4}$ | $1,9 \cdot 10^{-4}$ |
| ²⁴⁰ Pu | $4,5 \cdot 10^{-13}$ | $6,5 \cdot 10^{-11}$ | $5,0 \cdot 10^{-4}$ | $5,0 \cdot 10^{-4}$ |
| ²⁴¹⁺ Pu | $3,9 \cdot 10^{-12}$ | $7,9 \cdot 10^{-11}$ | $1,0 \cdot 10^{-3}$ | $1,0 \cdot 10^{-3}$ |
| ²⁴² Pu | $1,9 \cdot 10^{-15}$ | $2,7 \cdot 10^{-13}$ | $2,4 \cdot 10^{-6}$ | $2,4 \cdot 10^{-6}$ |
| Total | $5,6 \cdot 10^{-11}$ | $1,9 \cdot 10^{-9}$ | $4,9 \cdot 10^{-3}$ | $4,9 \cdot 10^{-3}$ |
| MOx 45 GWj/t (mSv) | Irradiation panache | Irradiation dépôt | Inhalation efficace | Dose efficace totale |
| ²⁴¹ Am | $4,6 \cdot 10^{-11}$ | $1,3 \cdot 10^{-9}$ | $7,8 \cdot 10^{-4}$ | $7,8 \cdot 10^{-4}$ |
| ²³⁸ Pu | $4,3 \cdot 10^{-12}$ | $6,3 \cdot 10^{-10}$ | $4,7 \cdot 10^{-3}$ | $4,7 \cdot 10^{-3}$ |
| ²³⁹⁺ Pu | $1,4 \cdot 10^{-13}$ | $1,0 \cdot 10^{-11}$ | $1,7 \cdot 10^{-4}$ | $1,7 \cdot 10^{-4}$ |
| ²⁴⁰ Pu | $4,7 \cdot 10^{-13}$ | $6,8 \cdot 10^{-11}$ | $5,3 \cdot 10^{-4}$ | $5,3 \cdot 10^{-4}$ |
| ²⁴¹⁺ Pu | $3,7 \cdot 10^{-12}$ | $7,4 \cdot 10^{-11}$ | $9,4 \cdot 10^{-4}$ | $9,4 \cdot 10^{-4}$ |
| ²⁴² Pu | $2,5 \cdot 10^{-15}$ | $3,6 \cdot 10^{-13}$ | $3,1 \cdot 10^{-6}$ | $3,1 \cdot 10^{-6}$ |
| Total | $5,4 \cdot 10^{-11}$ | $2,1 \cdot 10^{-9}$ | $7,1 \cdot 10^{-3}$ | $7,1 \cdot 10^{-3}$ |

Tableau VI-9 : Dose efficace (mSv) à court terme, à 1 km dans l'axe du vent – solubilité "S" pour les isotopes du plutonium

La Figure VI-6 et la Figure VI-7 présentent les contributions de chaque isotope à la dose efficace, respectivement dans le cas de la solubilité "M" et de la solubilité "S" pour les isotopes du plutonium pour les deux types de combustibles MOx.

Quelle que soit l'hypothèse retenue concernant la solubilité des isotopes du plutonium, la voie d'exposition prépondérante est la voie "inhalation". La dose efficace est essentiellement due au plutonium 238 et au plutonium 241.

L'évolution entre les deux catégories de MOx n'est pas très importante du point de vue de l'évaluation d'un impact de rejet accidentel. On voit par contre que la prise en compte de la nature chimique du plutonium est sensible, puisqu'il y aurait intervention dans le premier cas et non intervention pour des particules d'oxydes.

On constate que, pour du plutonium de composition isotopique réaliste, le rejet d'un gramme de plutonium correspond en première approximation à un niveau justifiant d'une intervention locale.

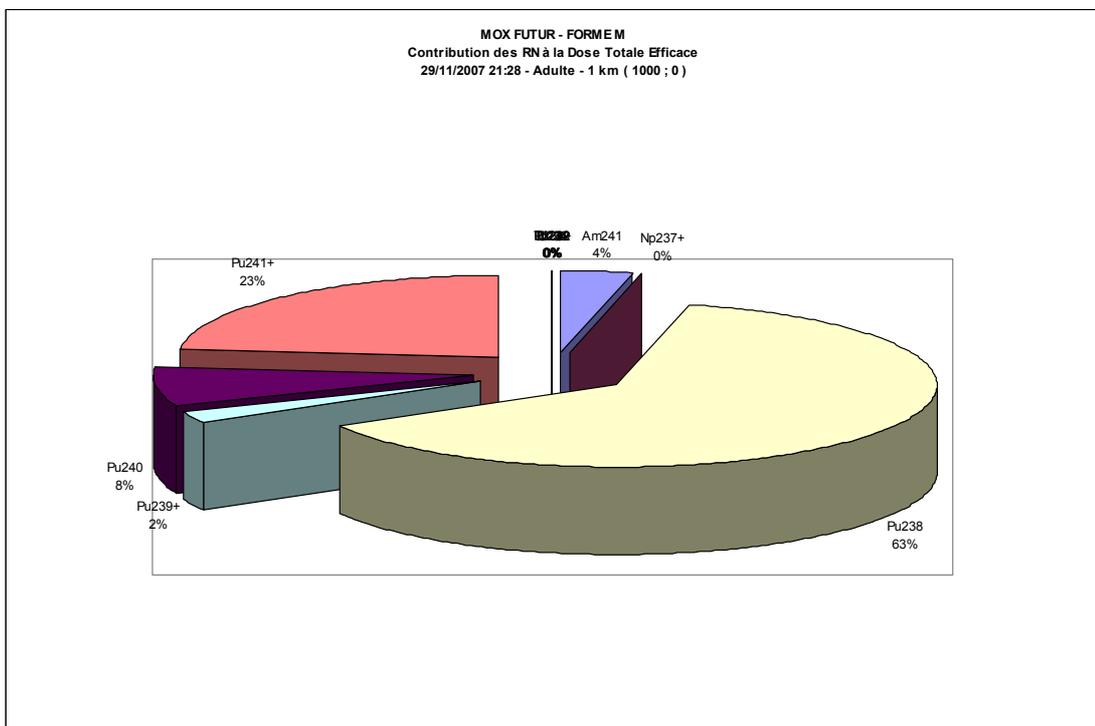
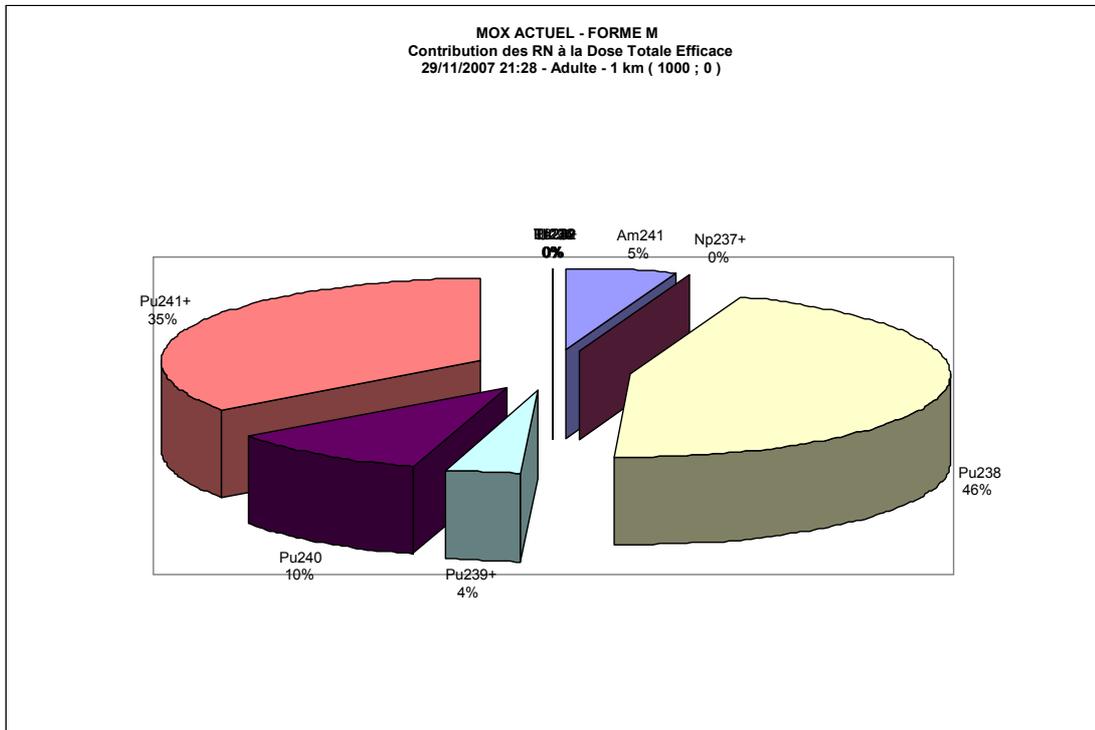


Figure VI-6 : Contribution des isotopes à la dose efficace – solubilité "M" pour les isotopes du plutonium pour les deux types de combustibles MOx

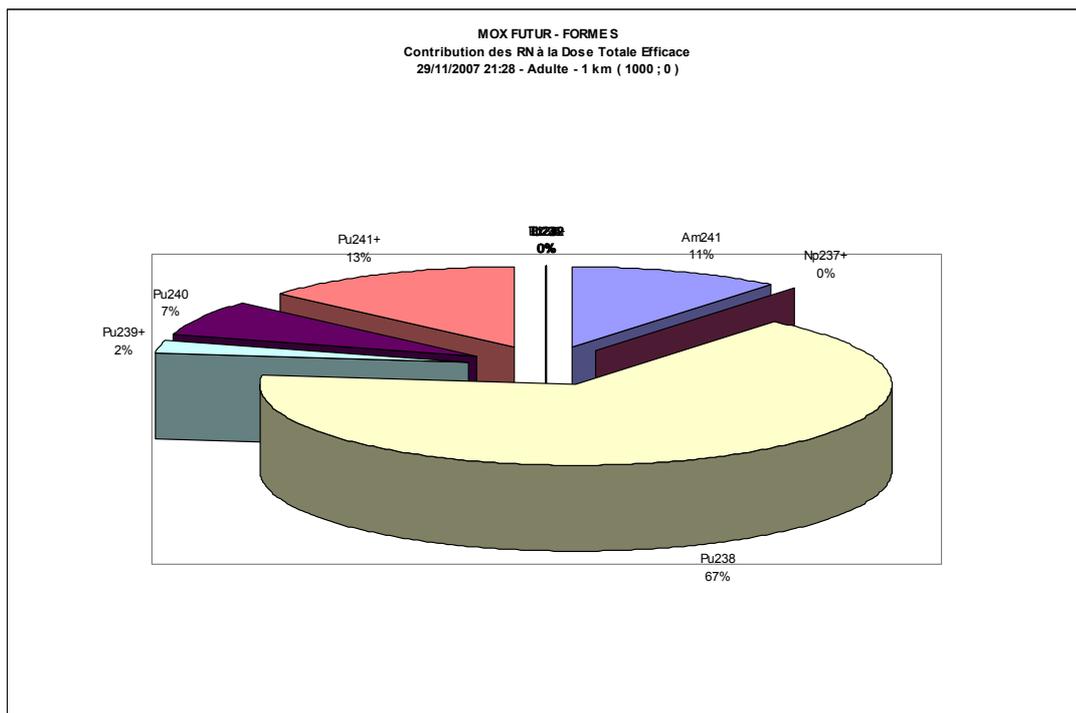
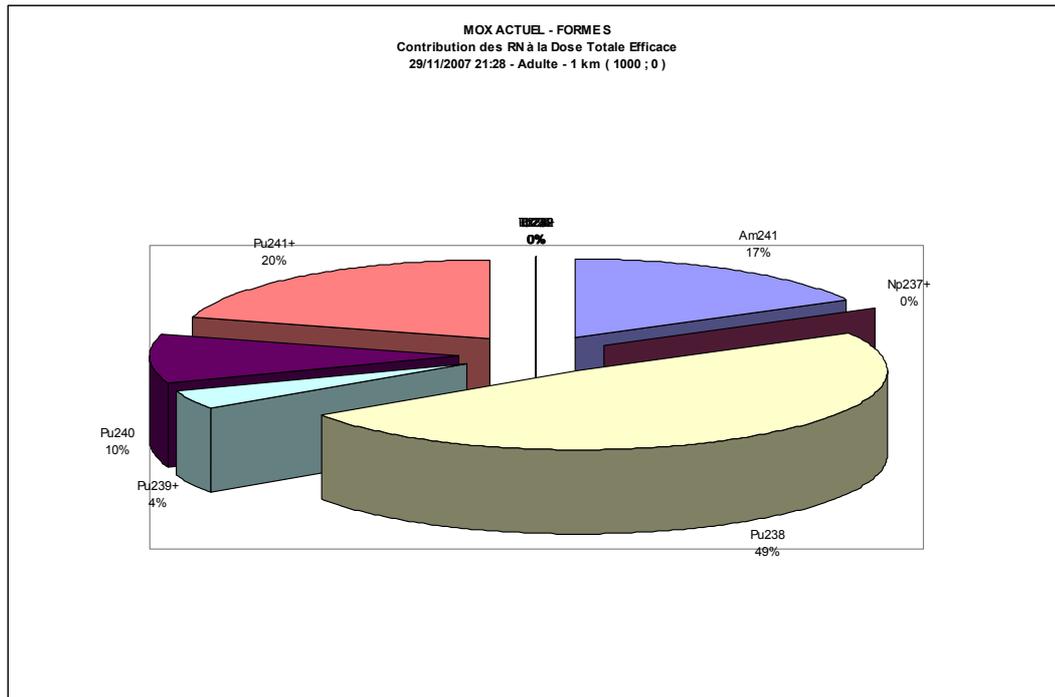


Figure VI-7 : Contribution des isotopes à la dose efficace – solubilité "S" pour les isotopes du plutonium pour les deux types de combustibles MOx

VI.10 IMPACT DU RELACHEMENT DE PLUTONIUM ISSU D'UN STOCKAGE GEOLOGIQUE

Dans les sols et en conditions normales, le plutonium sous forme PuO_2 (forme la plus fréquente) est très peu soluble et très peu mobile [Beaugelin-Seillier, 2004].

Dans le cadre du projet européen **NFPro** [Alonso, 2006], dévolu à l'étude des processus fondamentaux pilotant le transfert de polluants dans le champ proche des stockages géologiques, le plutonium a été étudié autour de cinq concepts de stockage.

Il ressort des analyses de sensibilité sur les transferts de polluants en champ proche des stockages géologiques que le plutonium n'apparaît pas comme un élément important d'un point de vue impact pour les concepts en formation argileuse. Pour les concepts de stockage dans le granite, où la barrière ouvragée (BO) est faible (peu d'argile), les actinides peuvent être contributeurs à l'impact. Cela s'explique d'une part grâce à une solubilisation accrue de ces éléments liée à une circulation importante de l'eau dans des conditions redox favorables et d'autre part à la non rétention de ces éléments dans le granite. Il est difficile aujourd'hui d'estimer leur contribution réelle tant les résultats obtenus dans le projet NFPro sont disparates.

Dans le cadre de l'évaluation de la faisabilité d'un **stockage géologique** de déchets de haute activité et à vie longue **en formation argileuse** [ANDRA, 2005a], l'ANDRA a réalisé des études d'impact de relâchement de radionucléides, dont les actinides.

Ainsi, les calculs [ANDRA, 2005b] des débits molaires pour un scénario d'évolution normal dans le Callovo-Oxfordien à 7 mètres des alvéoles de stockage, réalisés pour ces quatre chaînes d'actinides confirment leur très forte atténuation. Seuls les ^{242}Pu , ^{239}Pu , ^{237}Np , ^{238}U , ^{235}U , ^{233}U , ^{236}U , et ^{229}Th en équilibre séculaire avec ses ascendants présentent un débit molaire supérieur à 10^{-12} mol/an (cf. Figure VI-8), pour une alvéole de 3 colis. Même pour ces isotopes, les débits sont néanmoins faibles. A titre d'exemple, seulement 11 grammes de ^{237}Np , 2,3 grammes de ^{238}U et 0,0005 grammes de ^{239}Pu par alvéole ont parcouru plus de 7 mètres d'argilites sur la durée totale de l'analyse (1 million d'années).

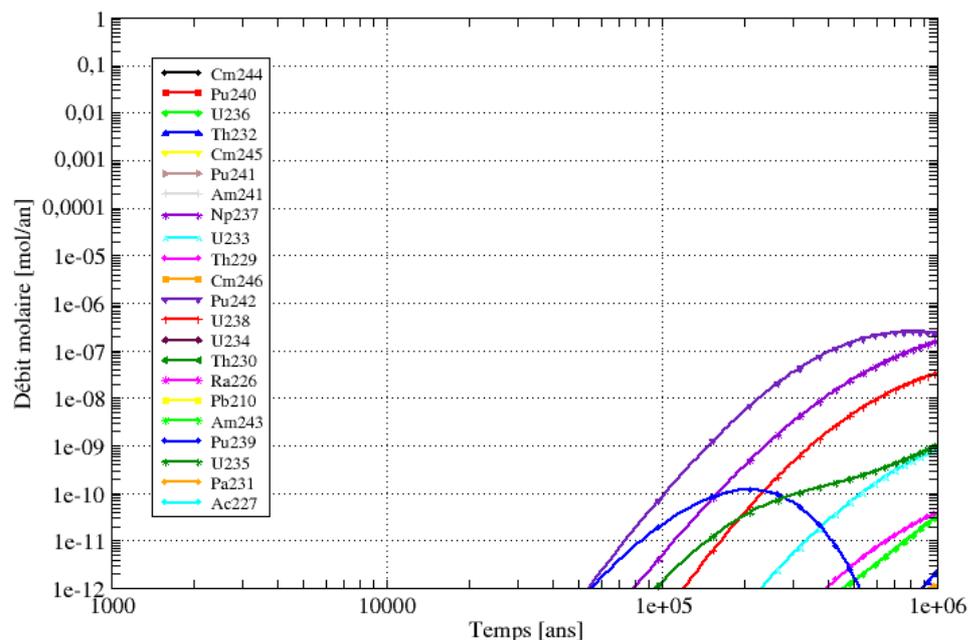


Figure VI-8 : Historiques de débits molaires sortant du stockage à 7 mètres des alvéoles - Colis type CU1 UOx3

En sortie de Callovo-Oxfordien, l'atténuation des débits molaires des actinides est totale (cf. Figure VI-9). La très forte rétention des actinides conduit en effet à des temps de transport de plusieurs centaines de millions à milliards d'années, comme l'indiquent les temps caractéristiques théoriques²⁴ de migration par diffusion, calculés pour une épaisseur de 60 mètres de transport dans le Callovo-Oxfordien :

- T_D (neptunium, plutonium) = $9,5 \cdot 10^8$ ans
- T_D (protactinium) = $1,0 \cdot 10^9$ ans
- T_D (thorium, uranium) = $8,4 \cdot 10^9$ ans
- T_D (actinium, américium, curium) = $5,3 \cdot 10^{10}$ ans

Avec de tels temps de transfert, la quantité d'actinides sortant du Callovo-Oxfordien sur 1 million d'années est nulle.

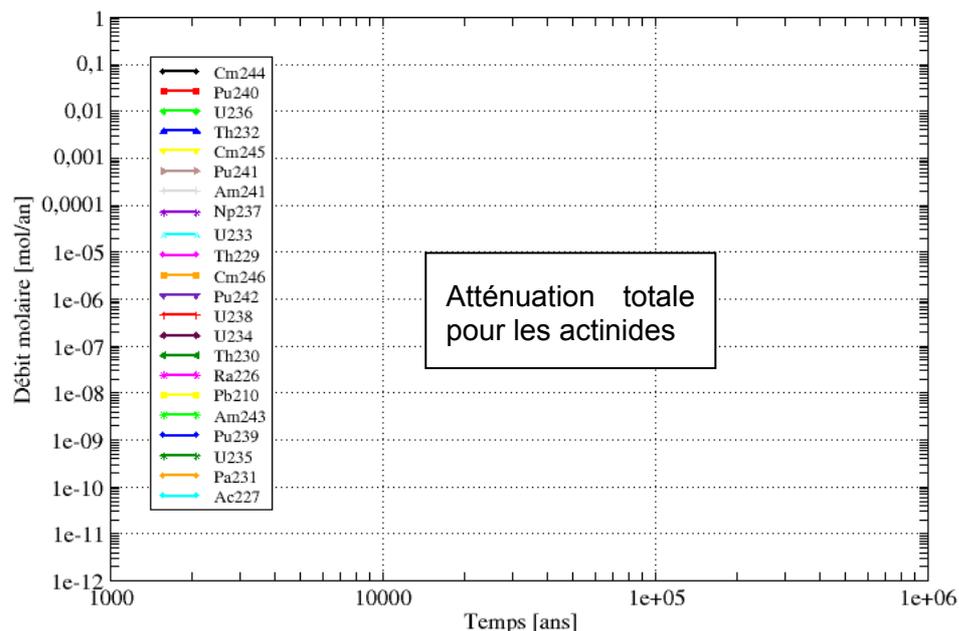


Figure VI-9 : Historiques de débits molaires sortant du Callovo-Oxfordien - Colis type CU1 UOx3

Ainsi, dans le cas d'un stockage géologique profond dans l'argile (cas de Bure [ANDRA, 2005]) et pour un scénario d'évolution normale, les doses à l'exutoire dans le cas de combustibles usés sont dues aux produits de fission et d'activation : ^{129}I , ^{36}Cl et ^{79}Se , tout en respectant de plusieurs ordres de grandeur la limite RFS ($< 0,25$ mSv/an) (cf. Figure VI-10). Les actinides présents dont le plutonium (cf. ci-dessus) ne sont pas mobiles dans les conditions de Bure, milieu argileux réducteur (avec la diffusion comme phénomène majoritaire) ne favorisant pas la mobilité des actinides compte tenu de leur solubilité dans ce type de milieu.

A l'inverse, dans le cas du site de Yucca Mountain (USA), les actinides apparaissent à l'exutoire en raison des conditions physico-chimiques du milieu : milieu oxydant (et plutôt fracturé) [Wigeland, 2006] (cf. Figure VI-11). Dans ce cas, les actinides seront présents majoritairement aux degrés d'oxydation élevés, conduisant donc à des solubilités élevées [Poinssot, 2006].

²⁴ C'est-à-dire en l'absence de décroissance radioactive

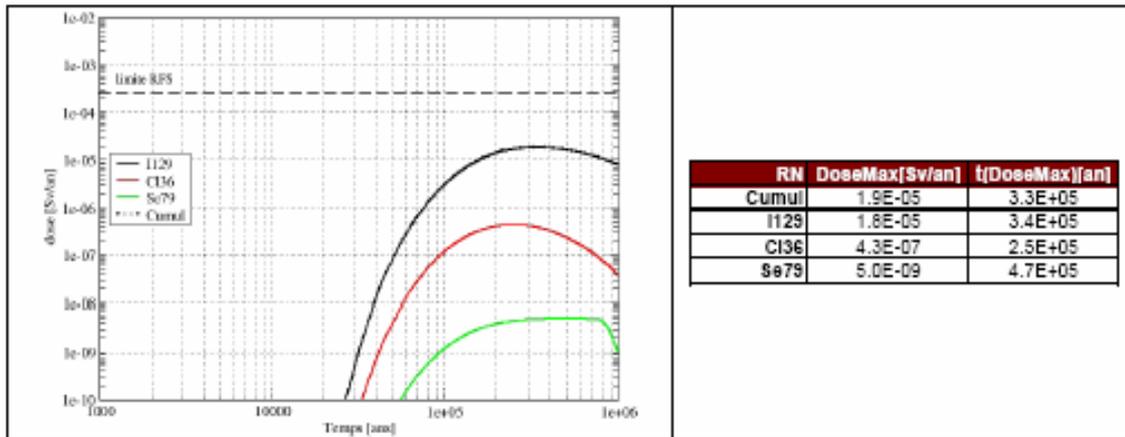


Figure 5.4-15 SEN – Calcul de référence– modèle à 1 million d'années - Doses à l'exutoire Saulx de l'Oxfordien – Colis type CU1

Figure VI-10 : Evolution à long terme d'un stockage géologique (site de Bure) dans le cas de combustibles usés – Scénario d'évolution normale [ANDRA, 2005]

Direct Disposal of Spent PWR Fuel

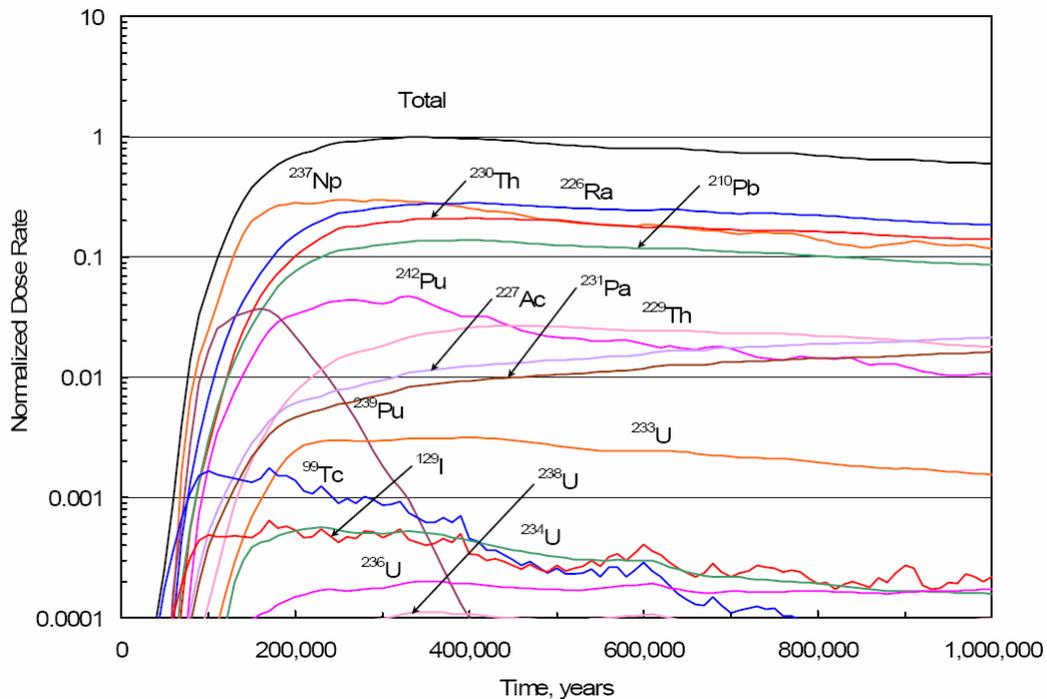


Figure VI-11 : Evolution à long terme d'un stockage géologique (site de Yucca Mountain) dans le cas de combustibles usés – Scénario d'évolution normale [Wigeland, 2006]

Le projet Européen **RedImpact** a pour objectif de comparer cinq scénarii de gestion du combustible usé, en termes de performances et de contraintes associées au stockage géologique en formation argileuse de ces déchets.

Le rapport final du projet [RedImpact, 2007] conclut, dans le cas de ces cinq scénarii, à un impact limité car dû essentiellement aux produits mobiles d'activation et de fission à vie longue. Les doses

à très long terme (plusieurs millions d'années) sont essentiellement dues aux actinides, principalement le ^{237}Np , ^{233}U et ^{229}Th . En effet il s'agit là des éléments les moins sorbés, et ayant une période radioactive compatible avec les durées de calculs envisagées. Le plutonium n'apparaît pas ici comme un élément susceptible de conduire à un impact sensible.

VI.11 CONCLUSION

Un rejet de **1 GBq** de plutonium conduit **au plus** à une exposition de l'ordre de **1 mSv** à une distance de 1 km.

Pour les isotopes principaux (émetteurs α à vie assez longue), la voie d'atteinte est très nettement la voie **"inhalation"**. Tous les isotopes majeurs émetteurs alpha à vie assez longue conduisent à des expositions très voisines pour une même activité rejetée. Le ^{241}Pu est très comparable en termes d'impacts relatifs des voies d'exposition aux isotopes émetteurs alpha, mais, à activité égale, la dose est 50 fois plus faible.

Compte tenu de ces similitudes, il est possible d'additionner les activités des isotopes 238 à 242 en pondérant celle du ^{241}Pu par un facteur 2%.

Pour les isotopes émetteurs α et le ^{241}Pu , la **dose** reçue par inhalation (et donc la dose totale) est **toujours plus élevée pour un adulte que pour un enfant**. Aucune mesure particulière n'est donc à envisager pour les enfants.

Le **diamètre des particules a une incidence significative sur l'exposition**. Par rapport au diamètre de référence de 1 μm , on constate que les DPUI (Dose par unité incorporée) diminuent rapidement pour les diamètres supérieurs, et deviennent très faibles pour les particules non inhalables (au-delà de 100 μm). Inversement, pour des diamètres plus petits, entre 0,01 et 0,1 μm , les DPUI seraient environ 4 fois supérieurs. On notera cependant que l'obtention de granulométrie aussi fine est loin d'être fréquente.

Un rejet de 5 g de plutonium 239 seul ne devrait pas conduire à des interventions de type confinement et a fortiori évacuation. Un rejet de 5 g de plutonium contenant 25 mg de plutonium 238 ou 0,2 g de plutonium 241 conduira très probablement à un confinement local.

Les normes de commercialisation sont atteintes plus rapidement que les critères de dose pour le confinement (protection contre l'inhalation). **Il existerait donc une zone "d'interdiction de commercialisation" d'extension sensiblement plus grande que la zone de confinement**. La justification n'est pas de nature dosimétrique, l'exposition par ingestion étant pour un rejet donné très sensiblement plus faible que celle par inhalation.

La **contamination des végétaux** ne concerne que la végétation en place au moment de l'accident et est donc **limitée dans le temps à quelques semaines**.

L'**impact d'un rejet d'un gramme de métal (UOx ou MOx) peut être très variable** en fonction de la composition isotopique du plutonium.

Le ^{238}Pu et le ^{241}Pu sont généralement responsables d'une grande partie de l'exposition.

Pour du plutonium de MOx de composition isotopique réaliste, le rejet accidentel d'**un gramme de plutonium** peut correspondre en première approximation à un niveau justifiant d'une **intervention très locale**.

Le projet Européen **RedImpact**, qui a pour objectif de comparer des scénarii de gestion du combustible usé, en termes de performances et de contraintes associées au stockage géologique en formation argileuse de ces déchets conclut que le plutonium n'apparaît pas comme un élément susceptible de conduire à un impact sensible.

VI.12- RÉFÉRENCES

- [Alonso, 2006] Alonso J., Cormenzana J.L., Nordman H., Serres Ch., Norris S., King S., Vokál A., Vopálka D., Johnson L., Sensitivity analyses for radionuclide release from the near field, NF-Pro Work Package 5, October 2006
- [ANDRA, 2005a] Dossier 2005 Argile – Évaluation de la faisabilité du stockage géologique en formation argileuse – Document de Synthèse. ANDRA, collection les rapports, décembre 2005.
- [ANDRA, 2005b] Dossier 2005 Argile – Rapport de synthèse des calculs de sûreté du dossier argile 2005 – Scénario d'Evolution Normale (SEN) – Calculs de référence et de sensibilité – Schémas de calculs, hypothèses, données et résultats. Note C.RP.ACSS.05.0005. ANDRA, juin 2005.
- [Beaugelin-Seiller, 2004] Beaugelin-Seiller K., Boust D., Germain P., Roussel-Debet S., Fiche radionucléide – Plutonium et environnement, site internet IRSN, 2004.
- [BO, 2003a] Arrêté du 1er septembre 2003 définissant les modalités de calcul des doses efficaces et des doses équivalentes résultant de l'exposition des personnes aux rayonnements ionisants. Bulletin officiel 2003-46, novembre 2003.
- [BO, 2003b] Arrêté du 13 octobre 2003 relatif aux niveaux d'intervention en situation d'urgence radiologique.
- [CIPR 68, 1994] ICRP Publication 68. Dose coefficients for intake of radionuclides by workers. Pergamon Press, Oxford, 1994.
- [CIPR 71, 1996] ICRP Publication 71: The ICRP database of dose coefficients. Age-dependant doses to the members of the public from intake of radionuclides. Part 4: inhalation dose coefficients. Pergamon Press, Oxford, 1996
- [CIPR 72, 1996] ICRP Publication 72: The ICRP database of dose coefficients. Age-dependant doses to the members of the public from intake of radionuclides. Part 5: Compilation of ingestion and inhalation coefficients. Pergamon Press, Oxford, 1996.
- [Doury, 1981] Doury, A. Le vademecum des transferts atmosphériques. Rapport DSN n°440, 1981.
- [Eckerman, 1993] K.F. Eckerman, J.C. Ryman - External exposure to radionuclides in air, water and soil. Federal guidance report 12-EPA 402-R-93-081, 1993.
- [Monfort, 2006] Présentation de la plate-forme CERES destinée à l'évaluation des conséquences des rejets de radionucléides dans l'atmosphère, Journée SFRP, Les Codes de Calcul en Radioprotection, Radiophysique et Dosimétrie, Novembre 2006, site internet SFRP.
- [Poinssot, 2006] Poinssot C., Tevissen E., Reiller P., Vitorge P. Actinide migration, Proceedings CD Rom du Symposium Plutonium today: from ion to molecule, CEA Marcoule, 6 septembre 2006.
- [RedImpact, 2007] RED-IMPACT - Impact of Partitioning, Transmutation and Waste - Reduction Technologies on the Final Nuclear Waste Disposal. Workpackage n°4 - Third and Final Report on Waste Management and Disposal. Site internet Redimpact, juin 2007
- [Règlement Euratom, 1989] Règlement Euratom n° 2218/89 du conseil du 18 juillet 1989 modifiant le règlement (Euratom) n°3954/87 fixant les niveaux maximaux admissibles de contamination radioactive pour les denrées alimentaires et les aliments pour bétail après un accident nucléaire ou dans toute autre situation d'urgence radiologique.
- [Renoux, 1998] Renoux, A., Boulaud, D. Les aérosols, Physique et Métrologie. TECDOC, ed. Lavoisier. Paris, 1998.
- [Wigeland, 2006] Wigeland R.A. Criteria derived for geological disposal concepts, OECD/NEA 9th Information exchange Meeting on actinide and fission product partitioning and transmutation, Nîmes, 28 septembre 2006.

VII EFFETS SUR LA SANTE

VII.1 TOXICITE DU PLUTONIUM

Cette section présente les différentes manifestations de la toxicité du plutonium après exposition humaine ainsi qu'une évaluation du niveau de risque en fonction des expositions. De très nombreuses données sur les relations dose-effet proviennent d'études expérimentales (rongeurs, chiens, primates non humains) : elles sont complétées par l'analyse d'études épidémiologiques, essentiellement en milieu professionnel.

La toxicité du plutonium fait surtout référence à sa toxicité radiologique. Ceci ne signifie pas que l'élément Pu n'a pas de toxicité chimique, mais elle est très difficile à individualiser. En effet, la radiotoxicité des isotopes du plutonium émetteurs alpha est liée à leur activité spécifique élevée ainsi qu'à l'énergie des rayonnements alpha, voisine de 5 MeV.

Du fait du faible pouvoir de pénétration des rayonnements alpha dans les tissus, l'exposition est très locale, là où le plutonium est retenu, essentiellement dans les principaux organes cibles.

La toxicité du plutonium peut se manifester sous la forme d'effets déterministes (inflammation, aplasie, fibrose) et/ou aléatoires comme les cancers. Après inhalation, et selon la forme chimique, ces cancers pourraient apparaître au site de contamination (poumons) ou à distance de celui-ci (foie et squelette après transfert du plutonium dans le sang).

VII.1.1 DONNEES EXPERIMENTALES ET HUMAINES

VII.1.1.1 Effets déterministes

En ce qui concerne les effets déterministes précoces, aucune observation n'ayant été faite à ce jour chez l'homme, l'essentiel des données toxicologiques provient d'expérimentations animales.

La dose létale 50²⁵ (DL50), d'après les données expérimentales obtenues chez le rongeur, le chien et le babouin, après inhalation d'oxyde de plutonium [Bair, 1980], a été estimée chez l'homme à 21 ; 2,1 et 0,85 MBq après un délai moyen de 1 mois, 1 an et environ 3 ans entre l'inhalation et le décès. La mortalité est liée principalement à l'apparition précoce d'une pneumonie interstitielle ou l'apparition plus tardive d'une fibrose.

VII.1.1.2 Effets aléatoires

Après inhalation de plutonium, le risque essentiel est celui d'un excès de cancer. Pour estimer ce risque, on dispose de données animales et de quelques données chez l'homme.

VII.1.1.2.1 *Toxicité pulmonaire*

L'essentiel des données relatives à l'apparition des tumeurs pulmonaires, après inhalation de composés de plutonium peu transférables, ont été obtenues chez le rat et le chien. Les études américaines montrent, chez le rat, après inhalation de ²³⁹PuO₂, une augmentation de la fréquence des cancers pour des doses pulmonaires supérieures à 1 Gy, la relation dose-effet étant considérée comme linéaire quadratique [Sanders, 1993]. Des résultats obtenus chez le chien suggèrent que, pour une même dose, le risque de cancer pulmonaire est d'autant plus élevé que la répartition de la dose alpha est homogène (²³⁹Pu-Nitrate > ²³⁹PuO₂ > ²³⁸PuO₂) [Dagle, 1989]. Des études plus récentes comparant, chez le rat exposé à des aérosols de différents oxydes d'actinides confirment cette hypothèse tout en précisant la nature linéaire de la relation dose effet [Fritsch, 2003]. Ainsi, si un

²⁵ La dose létale 50 est la dose qui entraîne le décès de 50% de la population exposée.

seuil existe quant à l'augmentation de l'incidence des cancers pulmonaires, sa valeur varierait en fonction des propriétés physico-chimiques des radiocontaminants.

Il a été montré chez l'animal que le tabac était un cofacteur aggravant.

Malgré la forte concentration mesurée dans les ganglions lymphatiques des animaux ayant inhalé de l'oxyde de plutonium, il n'a jamais été observé à ce jour de pathologie cancéreuse à ce niveau mais seulement des fibroses cicatricielles.

VII.1.1.2.2 Toxicité après transfert dans le sang

Les données sur la toxicité du plutonium après transfert dans le sang proviennent d'études expérimentales effectuées chez le chien et les rongeurs.

Le squelette est la principale cible pour l'induction de cancers après transfert du plutonium. Les tumeurs induites sont principalement des ostéosarcomes qui semblent apparaître au-delà d'un seuil évalué entre 0,9 et 1,4 Gy.

Bien que la dose délivrée au foie soit du même ordre de grandeur que celle délivrée aux surfaces osseuses, la fréquence des tumeurs hépatiques est négligeable devant celle des ostéosarcomes.

En effet, chez l'animal, les cancers du foie ont été rarement observés après inhalation d'oxyde de plutonium. Cependant, il convient d'être prudent sur une extrapolation, même qualitative, rongeur/homme, du fait des différences de comportement hépatique selon l'espèce.

Pour les cancers osseux, s'il est clair qu'un seuil a été observé aux alentours de 8 Gy au squelette chez les populations américaines de peintres de cadrans lumineux exposés au radium-226 (émetteur alpha), il est difficile d'extrapoler ces résultats au plutonium sans données supplémentaires, d'autant plus qu'un seul cas d'ostéosarcome a été observé parmi les travailleurs du projet Manhattan (cf. VII.1.2.1.2).

VII.1.2 DONNEES EPIDEMIOLOGIQUES

Les données humaines disponibles proviennent d'études effectuées sur 3 cohortes différentes : les travailleurs américains, les travailleurs du Royaume-Uni et ceux du complexe militaro-industriel de Mayak en ex-URSS.

L'interprétation des données fournies et des résultats obtenus lors de ces différentes études est limitée du fait :

- de l'hétérogénéité des données sur la dosimétrie interne individuelle des travailleurs souvent absente ou incomplète ;
- de l'inconstance des données sur la dosimétrie externe ;
- d'une association fréquente entre une exposition au plutonium, à d'autres radionucléides et une irradiation externe ;
- de l'absence de données sur des cofacteurs majeurs tels que le tabagisme (les habitudes tabagiques des travailleurs ne sont abordées que dans des études récentes sur les travailleurs de Mayak).

De plus, quelle que soit la cohorte étudiée, les paramètres décrivant la biocinétique sont insuffisamment documentés. Pour évaluer les risques, ces données sont nécessaires. Le comportement du plutonium dans l'organisme et les conséquences d'une incorporation sur la santé varient en fonction de la forme physico-chimique du composé, de l'isotope concerné et de la voie d'exposition.

En dépit de leurs limites, les études épidémiologiques sont importantes pour la surveillance globale des travailleurs exposés au plutonium. Cependant, les facteurs de risques ne peuvent être évalués quantitativement à partir des données humaines qu'en les confrontant aux données expérimentales établies sur plusieurs espèces de mammifères (rongeurs, chien, primates non humains).

VII.1.2.1 Travailleurs américains et britanniques

A partir des données fournies dans les différentes études, il est difficile de proposer une relation dose-effet après exposition au plutonium.

VII.1.2.1.1 Travailleurs britanniques

Des études ont été effectuées chez les travailleurs de l'AEA (Atomic Energy Authority), l'AWE (Atomic Weapons Establishment) et de l'usine de Sellafield au Royaume-Uni après exposition au plutonium et à d'autres radionucléides associée à une irradiation externe (exposition multiple). Les auteurs ont étudié la mortalité pour toutes causes et par cancer en fonction du type d'exposition [Carpenter, 1998 ; Omar, 1999 ; McGeoghegan, 2003].

Les résultats obtenus lors du suivi de ces travailleurs sont statistiquement insuffisants pour une évaluation du risque de cancer lié à l'exposition au plutonium.

VII.1.2.1.2 Travailleurs américains

Chez les travailleurs américains, les études les plus détaillées ont été effectuées chez les travailleurs du projet Manhattan et du laboratoire de Los Alamos. Lors du suivi de ces travailleurs, les charges pulmonaires et corporelles individuelles en plutonium ont été évaluées (en Becquerel).

i) Projet Manhattan

Dans le cadre du projet Manhattan (1944-1945), des observations médicales sur les travailleurs exposés au ²³⁹Pu ont été réalisées.

La première cohorte surveillée comprenait 26 travailleurs ayant incorporé du plutonium (principalement par inhalation) lors de l'élaboration des premières armes.

Chez les sujets exposés, différents types de lésions, qui semblent liées à l'incorporation de plutonium, ont été observées.

Parmi les anomalies apparues, différentes altérations osseuses : deux cas d'ostéoporose et de dégénérescence osseuse avec des fractures, ainsi que des zones de densification osseuse ou de calcification. Des anomalies non osseuses ont également été observées. Jusqu'en 1994, on notait dans cette cohorte 7 décès dont les causes sont répertoriées dans le Tableau VII-1.

| Année du décès | Age au moment de la mort | Cause de mortalité | Charge corporelle maximale en plutonium (Bq) |
|----------------|--------------------------|--|--|
| 1959 | 36 | Infarctus | 590 |
| 1975 | 52 | Accident de la circulation | 670 |
| 1982 | 62 | Pneumonie, accident cardiaque | 780 |
| 1985 | 71 | Cancer du poumon | 1 150 |
| 1988 | 70 | Maladie cardiaque (+cancer du poumon*) | 410 |
| 1989 | 66 | Cancer de la prostate (+cancer du poumon*) | 6 960 |
| 1990 | 66 | Ostéosarcome | 740 |

* Les autopsies indiquent la présence d'un cancer pulmonaire bien que celui-ci ne soit pas la cause du décès.

Tableau VII-1 : Causes de mortalité de 7 travailleurs du projet Manhattan sur 26 contaminés en 1944-1945, bilan établi en 1991. [Voelz, 1991]

Après 44 ans de surveillance, la fréquence de cancers du poumon (3/26) apparaît plus élevée que celle attendue, mais, la plupart des travailleurs étant de gros fumeurs, l'interprétation de ces données demeure délicate.

Les auteurs considèrent que l'unique cas d'ostéosarcome observé est difficilement attribuable à une incorporation de plutonium [Voelz, 1991]. En effet, sa localisation (au niveau du sacrum) ne correspond pas à celle habituellement observée pour de tels cancers. Chez l'homme, on n'observe généralement que 13% des cancers osseux dans cette région du squelette et les observations humaines (études effectuées chez les peintres de cadrans lumineux) montrent que la répartition des cancers osseux n'est pas modifiée par l'irradiation.

Malgré ces 4 cas de cancers, les auteurs considèrent que cette cohorte présente un déficit de décès par cancer, par rapport à la population de référence, puisque le rapport observés/attendus, en 1994 n'est que de 0,43 pour le nombre de décès et de 0,75 pour le nombre de cancers [Voelz, 1997].

ii) Travailleurs du laboratoire de Los Alamos

Une étude a porté sur un nombre plus important de travailleurs du laboratoire National de Los Alamos [Wiggs, 1994]. Ainsi, 303 travailleurs ayant reçu plus de 74 Bq de plutonium ont été suivis, ces travailleurs ne présentent pas d'excès de mortalité si on les compare aux populations non exposées des travailleurs ayant reçu des doses < 74 Bq. Le rapport entre population exposée et non exposée est de 0,89 pour toutes les causes de mortalité et de 1,07 pour tous les cancers.

Le cas d'ostéosarcome (cancer du squelette) rapporté dans le groupe du projet Manhattan est resté unique. Les cancers du poumon sont en excès, sans que cela soit statistiquement significatif, d'autant plus que nous ne possédons pas d'information sur les habitudes tabagiques de ces travailleurs [Wiggs, 1994].

Par ailleurs, des études effectuées chez les travailleurs de l'usine de Rocky Flats et de Hanford site ont permis de compléter les données sur la mortalité par cancer [Brown, 2004 ; Wing, 2004]. Les résultats obtenus mettent en évidence un taux de mortalité par cancer inférieur à celui de la population de référence. Les données relatives au taux de mortalité par cancer du poumon sont variables selon les études et les cohortes étudiées et ne permettent pas une évaluation du risque de cancer.

iii) conclusions des études effectuées sur les travailleurs américains

Pour des activités incorporées allant jusqu'à un millier de Becquerel, il n'y a pas d'excès constaté ni dans la mortalité toutes causes, ni dans la mortalité par cancer par rapport aux groupes témoins non exposés au plutonium.

Pour des activités incorporées de l'ordre de la centaine de Becquerel, il n'est pas constaté d'excès de cancer du poumon. Cette conclusion est toutefois entachée d'incertitudes du fait de la prise en compte inconstante de l'exposition tabagique dans les groupes exposés et témoins suivant les études.

Pour des activités incorporées de l'ordre de quelques centaines à un millier de Becquerels, quelques pathologies osseuses sont observées : ostéoporose, fracture spontanée, ostéosarcome. Compte tenu de leur rareté habituellement chez l'homme, mais aussi de l'absence de données sur les autres facteurs de risque éventuels chez ces travailleurs (facteurs génétiques, autres expositions professionnelles antérieures,...) il n'est pas possible de conclure sur l'existence ou non d'un excès de pathologies osseuses après ce type d'exposition.

Au regard des résultats de ces différentes études, le risque de cancer du poumon après inhalation de plutonium ne ressort pas comme un risque majeur pour des expositions pulmonaires de l'ordre de la centaine de Becquerel.

VII.1.2.2 Travailleurs russes

Chez les travailleurs de Mayak, la charge corporelle moyenne est élevée (~2 000 Bq). Il est observé une augmentation des cancers du poumon, du foie et du squelette. Cependant, dans ce cas, les résultats sont difficiles à interpréter car l'exposition au plutonium est toujours associée à une irradiation externe.

Ces études ont été réalisées sur une cohorte de plusieurs milliers de travailleurs du complexe militaro-industriel de Mayak (ex-URSS) exposés au plutonium par inhalation et à de fortes doses de rayonnements gamma par exposition externe (l'exposition externe représentant environ les 2/3 de la dose). Il n'est pas rapporté d'exposition à d'autres radionucléides. La cohorte étudiée est composée de travailleurs hommes et femmes dont la dosimétrie individuelle a été évaluée rétrospectivement (dose en Gray). La période de suivi est bien délimitée, les doses les plus fortes ayant été reçues entre 1949 et 1951. Les habitudes tabagiques (analyse qualitative) des travailleurs ont également été prises en compte. Le suivi est de bonne qualité avec peu de perdus de vus (~10%) et une connaissance quasi-exhaustive des causes décès (97% des cas) [UNSCEAR 2006, 2007].

Le tableau qui suit (Tableau VII-2) décrit les caractéristiques de la cohorte [Koshurnilova, 2002]. Par la suite, cette cohorte initiale a été étendue et des modalités différentes de dosimétrie ont été développées. Ceci rend difficile l'interprétation comparative des différents résultats rapportés.

| Lieu de travail | Réacteur | Usine radiochimique | Extraction du Pu | Total |
|--|---------------|---------------------|--------------------|---|
| Type d'exposition | Externe | Externe et interne | Externe et interne | |
| Travailleurs dont femmes (%) | 4 397 (22) | 7 892 (25) | 6 544 (27) | 18 833 (25) |
| Age moyen à l'embauche (années) | 24,5 | 23,9 | 24,5 | 24,3 |
| Dose externe cumulée moyenne (Gy) | 0,66 | 1,21 | 0,44 | 0,87 (dosimétrie connue dans 83% des cas) |
| Charge corporelle moyenne en Pu (kBq) | 0,18 | 0,20 | 3,28 | 2,13 (dosimétrie connue dans 28% des cas) |
| Nombre de décès | 1 603 | 2 619 | 2 131 | 6 353 |

Tableau VII-2 : Caractéristiques principales de la cohorte des travailleurs de Mayak [Koshurnikova, 2002]

Chez les hommes, les cancers du poumon (37% des cancers) et de l'estomac (19%) représentent les premières causes de décès par cancer auxquels s'ajoute le cancer du sein (17%) chez la femme [Shilnikova, 2003].

Dans cette cohorte, différents auteurs ont également mis en évidence un excès de risque de cancer du foie et du squelette (principaux organes de rétention du plutonium) pouvant être associé à l'incorporation de plutonium.

i) Cancer du poumon

Le suivi de ces travailleurs a permis d'étudier la mortalité par cancer du poumon [Jacob, 2005 ; Gilbert, 2004], les données qualitatives sur les habitudes tabagiques des travailleurs étant connues.

Les auteurs ont ainsi mis en évidence une relation positive entre la dose au poumon, la dose externe et le risque de cancer du poumon comme le montre le Tableau VII-3.

Les résultats obtenus mettent en évidence un excès de mortalité par cancer du poumon ($RR > 1$) pour des doses supérieures à 0,2 Gy.

| Dose au poumon (Gy) | Hommes | | |
|---------------------|----------------------------|-------------|------------------------------------|
| | Décès par cancer du poumon | | Risque Relatif RR ²⁶ |
| | Observés | Attendus | |
| 0* | 176 | 154,5 (91%) | 1,00 |
| 0-0,2 | 91 | 73,5 (45%) | 1,4 (1,0 ; 1,8) |
| 0,2-1 | 33 | | 2,4 (1,5 ; 3,6) |
| 1-3 | 26 | | 10,1 (6,3 ; 15) |
| 3-5 | 10 | | 19 (9,5 ; 35) |
| >5 | 7 | | 33 (14 ; 67) |

| Dose au poumon | Femmes | | |
|----------------|----------------------------|-----------|----------------------|
| | Décès par cancer du poumon | | Risque Relatif RR |
| | Observés | Attendus | |
| 0* | 7 | 6,4 (91%) | 1,00 |
| 0-0,2 | 3 | 3,8 (14%) | 0,91 (<0,91 ; 3,1) |
| 0,2-1 | 8 | | 16 (6,1 ; 37) |
| 1-3 | 2 | | 15 (3,0 ; 38) |
| 3-5 | 1 | | |
| >5 | 10 | | 250 (110 ; 660) |

Tableau VII-3 : Décès par cancer du poumon et risque relatif pour la mortalité par cancer du poumon en fonction de la dose et du genre [Gilbert, 2004]

ii) Cancer du foie et du squelette

Les effets du plutonium sur le squelette et le foie ont également été étudiés chez ces travailleurs [Koshurnikova, 2000 ; Gilbert, 2000]. Les auteurs ont mis en évidence un excès de risque de cancers du foie et du squelette chez les travailleurs ayant inhalé les doses de plutonium les plus élevés (> 7 400 Bq).

Le suivi de ces travailleurs a permis de mettre en évidence une relation dose-effet en fonction du niveau d'exposition au plutonium.

²⁶²⁶ RR = fréquence de la pathologie dans une population exposée / fréquence de la pathologie dans une population non exposée.

iii) Discussion sur le seuil

Sokolnikov [Sokolnikov, 2002] exclut la présence d'un seuil supérieur à 0,3 Gy de plutonium au poumon, ce qui est en contradiction directe avec le seuil de 0,8 Gy mis en évidence lors d'une étude précédente [Tokarskaya, 1998]. Les études expérimentales sur la cancérogénicité du $^{239}\text{PuO}_2$ indiquent un excès de cancer au-dessus de doses pulmonaires estimées à environ 1 Gy.

iv) Evaluation du risque

Les études du groupe Gilbert et du groupe de Koshurnikova ont permis d'évaluer les ERR (Excès de Risque Relatif) de mortalité par tumeurs solides et, quand cela est possible, pour les différents organes cibles (poumon, foie, squelette). Ces estimations diffèrent selon que l'on calcule le risque pour la dose d'irradiation externe (en ajustant sur la dose due au plutonium) ou que l'on calcule le risque pour la dose de plutonium en ayant ajusté sur la dose externe.

Les évaluations du risque de mortalité par cancer sont les suivantes [UNSCEAR 2006, à paraître] :

- Pour l'ensemble des tumeurs solides, l'ERR (dose externe) est de $0,15 \text{ Gy}^{-1}$ (90% IC : 0,09-0,20) ;
- Pour les cancers du poumon, du foie et du squelette, l'ERR après ajustement sur la dose Pu est de $0,30 \text{ Gy}^{-1}$ (90% IC : 0,18-0,46) ;
- Pour les autres tumeurs solides, l'ERR après ajustement sur la dose Pu est de $0,08 \text{ Gy}^{-1}$ (90% IC : 0,03-0,14).

Ces estimations de risque apparaissent plus faibles que celle de la cohorte des survivants d'Hiroshima-Nagasaki mais l'UNSCEAR [UNSCEAR 2006, à paraître] souligne la difficulté d'interprétation et de comparaison des données dans la mesure où l'ajustement sur les différents types de rayonnements est difficile et la répartition de dose très différente dans ces deux groupes.

Le Centre International de Recherche sur le Cancer (CIRC) a classé le ^{239}Pu et ses descendants comme cancérogène pour l'homme (classe 1) en aérosol.

VII.2 TRAITEMENT DES CONTAMINATIONS

Lorsqu'un radionucléide pénètre accidentellement dans l'organisme par ingestion, inhalation ou blessure, on parle alors de contamination interne. La répartition ou l'accumulation du radionucléide dans l'organisme peut provoquer des effets toxiques à court terme ou à long terme. C'est pourquoi l'administration d'un traitement pour réduire la charge interne en radionucléide est recommandée.

Il faut néanmoins rappeler que dans le cas d'un traumatisme, la priorité est toujours de protéger les fonctions vitales du patient avant de traiter la contamination.

Après contamination par du plutonium, le traitement recommandé, appelé décorporation, vise à augmenter l'excrétion spontanée du Pu. La molécule chimique utilisée est un agent chélatant, le Ca-Diéthylènetriaminepentacétate (Ca-DTPA). Ce dernier ayant une forte affinité pour le Pu forme un complexe stable par échange avec les ions calcium. Le complexe Pu-DTPA est rapidement éliminé, principalement dans les urines.

Le DTPA est efficace avec les formes solubles de Pu (nitrate, chlorure...) mais l'est très peu avec les formes insolubles (oxydes...) et les complexes organiques de Pu comme le Tributylphosphate (TBP). Cette efficacité est également observée pour l'américium et le curium (degré d'oxydation III) mais pas pour l'uranium (degré d'oxydation VI) et le neptunium (degré d'oxydation V). On rappelle que le degré d'oxydation prépondérant du Pu est IV.

Le DTPA est toutefois le seul traitement médical disponible pour décorporer le Pu.

Au CEA, plusieurs centaines de contaminations survenues chez des travailleurs ont été traitées par le Ca-DTPA depuis une quarantaine d'années. Le bilan des injections de Ca-DTPA pratiquées dans les centres CEA et COGEMA de 1970 à 2003 a été réalisé [Grappin, 2006] et fait partie du dossier de demande d'AMM de ce produit, pour la voie intraveineuse, déposée par la Pharmacie Centrale des Armées qui fabrique ce produit. La procédure est arrivée à terme en octobre 2007.

VII.2.1 FORME PHARMACEUTIQUE

- Ampoule de 4 ml contenant une solution de DTPA à 250 mg/ml (25%)
- En cas d'inhalation de Pu, le turboinhalateur fait également partie des traitements proposés. Il contient une poudre micronisée de Ca-DTPA (5 gélules de 40 mg Ca-DTPA).

VII.2.2 POSOLOGIE ET VOIE D'ADMINISTRATION

La dose habituellement recommandée, par les organismes internationaux, est de 1 g par injection ou par jour, administrée par voie intraveineuse. Cette dose pourra être éventuellement renouvelée dans les jours suivants.

On peut cependant noter que dans leur rapport récent [Grappin, 2006], les membres du groupe de travail CEA-COGEMA-SPRA préconisent une baisse de la posologie de 1 g à 0,5 g.

Une posologie pour les enfants de moins de 12 ans devrait également être recommandée, la dose initiale serait alors de 14 mg/kg sans dépasser 0,5 g par jour.

En cas de plaie, le lavage avec une solution de Ca-DTPA à 25% est préconisé.

Pour des situations de suspicion d'inhalation de Pu, les agents concernés disposent du turboinhalateur dans certains ateliers. Ils peuvent alors l'utiliser avant même que l'injection intraveineuse soit pratiquée dans le service de santé au travail.

La poursuite du traitement est décidée d'abord en fonction des informations relatives aux conditions de l'accident, ensuite en fonction des résultats, des analyses radiotoxicologiques urinaires.

VII.2.3 CONTRE-INDICATION

Aucune contre-indication absolue n'est connue pour ce produit.

VII.2.4 PRECAUTION D'EMPLOI

Le Ca-DTPA peut également complexer d'autres ions métalliques. Pour pallier tout risque de déplétion en zinc, magnésium, cobalt ou manganèse, une supplémentation en minéraux peut être entreprise si cela s'avère nécessaire.

Le Ca-DTPA n'est pas recommandé pendant la grossesse et l'allaitement.

VII.2.5 EFFETS SECONDAIRES

Les études connues n'ont pas mis en évidence d'effets secondaires sérieux dus aux traitements par le Ca-DTPA, même après des traitements de longue durée. Ainsi après l'accident de Hanford, ayant mis en cause de l'américium, le patient a reçu environ 580 g de DTPA. Le traitement échelonné sur 4 ans n'a pas entraîné d'effet néfaste.

Dans la littérature, de rares effets précoces non spécifiques tels que nausées, vomissements, diarrhées...ont été décrits.

Dans l'étude française [Grappin, 2006], sur 1158 injections, il n'a été rapporté qu'un seul effet indésirable : une manifestation allergique cutanée immédiate rapidement résolutive sans séquelle.

VII.2.6 PROPRIETES PHARMACOLOGIQUES ET PHARMACOCINETIQUES

Une fois présent dans le compartiment sanguin, le Ca-DTPA est rapidement distribué dans les fluides extracellulaires, sans pénétrer significativement dans les cellules. Ceci suggère que la chélation a lieu principalement dans le sang et les liquides interstitiels. Or, comme le Pu présent dans le sang est distribué assez rapidement vers ses sites de dépôt, l'efficacité du Ca-DTPA décroît rapidement avec le temps, ce qui justifie l'administration du traitement précocement après la contamination.

De plus, la période biologique du Ca-DTPA est courte. Plus de 95% de la quantité injectée est excrétée en moins de 6 heures [Durbin, 1989]. Ainsi, la période biologique courte du Ca-DTPA et son champ d'action limité au compartiment sanguin ne lui permettent pas de chélater le plutonium après sa fixation dans les organes de dépôt.

Comme seule une faible fraction du Pu est recyclée à partir des organes de dépôt vers le sang, celle-ci peut être accessible au traitement par le Ca-DTPA.

Ces données justifient une administration thérapeutique du Ca-DTPA en 2 temps :

- une administration la plus précoce possible après la contamination avant la fixation du contaminant dans les organes de dépôt ;
- une administration à distance de la contamination pour 'piéger' la fraction circulante. En cas de contamination importante, la fraction recirculante d'une partie du plutonium justifie la poursuite du traitement à distance de l'incident.

Il est à noter que les décisions en matière de traitement des contaminations au plutonium peuvent différer entre les pays qui utilisent ce produit. Il peut alors en découler des différences notables dans les protocoles de traitement [Ménétrier, 2005].

VII.2.7 PERSPECTIVES : AUTRES FORMES PHARMACEUTIQUES

Le traitement actuellement recommandé en France est donc le DTPA en injection intraveineuse, ou en poudre micronisée par inhalation. Des recherches sont en cours afin de mettre au point d'autres formes pharmaceutiques de DTPA. Les caractéristiques recherchées comprennent :

- une forme facile à administrer par inhalation dont l'efficacité soit prouvée,
- une forme qui permette une efficacité sur une durée plus grande.

Dans le cadre du Programme Toxicologie Nucléaire initié il y a 5 ans au CEA [CEA, 2007], un projet relatif à la mise au point de nouvelles formes pharmaceutiques de DTPA a été entrepris. Il concerne 2 formes : l'une par injection, l'autre par inhalation.

Pour l'injection, des liposomes (conventionnels ou furtifs, selon la qualité de la paroi) de diamètre de l'ordre de 1 μm de diamètre ont été fabriqués et testés dans les études de Phan et al. [Phan, 2004 ; Phan, 2005 ; Phan, 2006a ; Phan, 2006b). L'encapsulation de DTPA dans ces liposomes modifie sa répartition chez les rats observés, permettant ainsi au DTPA d'atteindre des sites de dépôt du Pu comme le squelette et surtout le foie. A ces modifications sont associées une réduction significative de la rétention du Pu et en conséquence une excrétion urinaire accrue de Pu.

Pour l'inhalation, l'efficacité de la poudre micronisée actuelle semble être devoir vérifiée. Le but de l'étude de Gervelas [Gervelas, 2007] est d'améliorer les performances d'aérosolisation. Les auteurs s'emploient à modifier des caractéristiques de la poudre comme sa porosité permettant ainsi d'augmenter la proportion de particules de poudre qui serait déposée dans le poumon profond. Des études préliminaires chez l'animal montrent une décorporation accrue de PuO_2 suite à une contamination par inhalation. Des études sont en cours pour expliquer le mécanisme d'action du DTPA après administration pulmonaire.

Ainsi, comme cela a été montré précédemment, des performances intéressantes pourraient être développées avec des nouvelles formes de DTPA, dans la perspective d'un traitement facilement accessible à un grand nombre de personnes d'une part, et plus efficace d'autre part.

- La forme liposome permettrait une efficacité accrue sur une durée plus grande (pour des doses plus faibles que le traitement actuellement préconisé), en évitant d'avoir à procéder à plusieurs injections rapprochées.
- Concernant l'administration par inhalation, une poudre avec de meilleures performances d'aérosolisation permettrait une efficacité accrue avec une administration facilitée.

VII.3 CONCLUSIONS

- 1- La toxicité du plutonium est dominée par le **risque cancérogène**. Le principal isotope étudié en toxicologie est le plutonium 239.
- 2- Le plutonium est considéré comme **faiblement transférable** ($<10^{-4}$) et ce, quelle que soit sa forme physico-chimique. Après absorption digestive, l'élimination fécale précoce est prépondérante. Après dépôt cutané, il y a peu de transfert transcutané, avec une réserve cependant sur le devenir de certaines contaminations impliquant des solvants. Après inhalation, le comportement biologique du plutonium dépend de deux facteurs : la **solubilité relative** et la **taille des particules inhalées**. A ces deux facteurs communément pris en compte pour l'évaluation de la dose aux différents organes, il convient également d'ajouter les facteurs « **masse** » et « **nombre de particules inhalées** » dont les valeurs peuvent conduire à sélectionner des modèles de calcul de dose et de risque différents de ceux habituellement utilisés par défaut pour l'inhalation, sauf dans quelques cas particuliers comme les feux Pu-Na ou Mg, les aérosols issus de liquides, l'usage de torche à plasma, la taille des aérosols renfermant du Pu est le plus souvent supérieure à celle proposée par défaut pour le travailleur (DAMA 5 μm) et la population (1 μm). **Pour une même activité inhalée, il en résulte un dépôt pulmonaire environ 2 à 3 fois plus faible que celui calculé avec les valeurs par défaut.**
- 3- Après incorporation, **l'élimination du Pu est lente** avec des périodes effectives de plusieurs dizaines d'années, notamment quand le plutonium est incorporé dans le squelette
- 4- Les **doses équivalentes** calculées selon les recommandations de la CIPR (reprises dans l'arrêté du 1er septembre 2003 [BO, 2003a]) sont basées sur l'hypothèse d'une répartition homogène dans les différentes structures de l'organe. Le plutonium étant un émetteur alpha (sauf pour ^{241}Pu), les effets radio-induits se produisent localement au contact du radionucléide (rayon de $\sim 40 \mu\text{m}$ dans les tissus mous, de $\sim 500 \mu\text{m}$ dans le parenchyme pulmonaire). La distribution du plutonium dans un tissu est le critère essentiel pour évaluer la distribution de dose. Dans le cas de composés peu solubles, cette distribution est hétérogène. Pour un même dépôt, l'hétérogénéité augmente avec la taille des aérosols et, pour un même DAMA, avec l'activité spécifique des composés. Ces facteurs sont à prendre en compte pour évaluer les incertitudes sur les doses autour de la valeur calculée par défaut.
- 5- D'une manière générale, la répartition du plutonium dans l'organisme est très hétérogène, avec essentiellement trois organes de rétention : le poumon (dans le cas d'inhalation de composés insolubles), le foie et le squelette. De ce fait, **la dose efficace, qui représente le risque global de développer un cancer en se basant sur une irradiation homogène corps entier, n'est pas la grandeur adaptée à l'évaluation du risque Pu**. La dose efficace (et donc les DPUI) est dans ce cas utilisée comme un outil de gestion en radioprotection, mais la dose efficace ne peut être considérée comme représentative du risque.

- 6- L'élimination du plutonium peut être accélérée par l'utilisation d'un chélatant : le DTPA (sous forme Ca ou Zn DTPA). Actuellement, le **traitement recommandé en pratique au niveau international est l'injection intraveineuse de sels de DTPA**, chélatant le plutonium présent dans le sang, l'ensemble chélatant-Pu étant ensuite éliminé par voie urinaire. Le traitement est d'autant plus efficace que la forme contaminante est soluble et que la première injection intervient rapidement après la contamination. En pratique, l'efficacité du traitement est limitée par (1) l'action du DTPA restreinte au compartiment sanguin, (2) la période biologique du sel de DTPA, quasiment éliminé en totalité en moins de 6 heures, (3) surtout la faible fraction de Pu passant dans le compartiment sanguin après inhalation ou plaie par des formes insolubles de Pu (oxydes industriels). Des développements pharmaceutiques sont en cours pour améliorer l'efficacité du chélatant.
- 7- Les risques pour la santé ont été évalués à partir de données expérimentales dont les premières datent du programme Manhattan (USA-1944-45) et sur des études épidémiologiques de mortalité par cancers chez des travailleurs britanniques, américains et russes. Les niveaux d'exposition moyens sont de l'ordre :
 - a. de la dizaine à la centaine de Bq chez les travailleurs américains,
 - b. de quelques centaines à quelques milliers de Bq chez les travailleurs du complexe Mayak.
- 8- Une des principales difficultés rencontrées dans l'évaluation des risques est la diversité des grandeurs utilisées pour caractériser la contamination. De nombreux résultats sont discutés en fonction de valeurs calculées (dose équivalente à un organe ou même dose efficace) à partir desquelles il n'est pas possible, a posteriori, de retrouver les doses absorbées (en Gy) ou les activités (en Bq). La qualité des comparaisons entre études est de ce fait très sujette à discussion. Les quelques ordres de grandeur donnés ci-dessous portent volontairement sur des activités incorporées ou des estimations de risque par Gy à l'organe considéré.
 - a. Pour des activités incorporées de l'ordre de la **centaine de becquerels**, il n'est pas constaté d'excès de cancer du poumon. Cette conclusion est toutefois entachée d'incertitudes du fait du report inconstant de l'exposition tabagique dans les groupes exposés et témoins (travailleurs américains).
 - b. Pour des activités incorporées allant **jusqu'à un millier de becquerels**, il n'y a pas d'excès constaté, ni dans la mortalité toutes causes, ni dans la mortalité par cancer par rapport aux groupes témoins non exposés au plutonium (travailleurs américains).
 - c. Pour des activités incorporées de **l'ordre du millier de becquerels**, il est observé un excès de cancers du poumon chez les travailleurs Mayak. L'excès est indiscutable pour des doses pulmonaires supérieures à 1 Gy, discutable entre 0,2 et 1 Gy. Ce sont les seules études qui permettent d'établir une relation dose-effet.
 - d. Pour des activités inhalées de l'ordre de **quelques milliers de becquerels (> 7400 Bq)**, un excès de cancers du foie et du squelette est également observé chez les travailleurs de Mayak. Des pathologies osseuses (cancer et pathologies non cancéreuses) ont également été observées chez les travailleurs américains pour des activités incorporées de l'ordre du millier de Bq.

Les études épidémiologiques de travailleurs russes (Mayak) permettent d'établir des relations dose-effet. Le risque de mortalité par cancer (excès de risque relatif ERR) pour les cancers du poumon, du foie et du squelette, est évalué en fonction de la dose à l'organe (en Gy) ajusté en fonction du niveau de contamination interne par le Pu :

$$\text{ERR} = 0,30 \text{ par Gy (90\% IC : 0,18-0,46) [UNSCEAR 2006]}$$

VII.4 RÉFÉRENCES

- [Anspaugh, 2002] Anspaugh L.R., Degteva M.O., Vasilenko E.K. Mayak production association: introduction. *Radiation environmental biophysics* 41. p.19-22. 2002
- [Bair, 1980] Bair W., Métivier H., Park J.F., Masse R., Stevens D.L., Lafuma J., Watson C.R. Nolibé D. Comparison of early mortality in baboons and dogs after inhalation of $^{239}\text{PuO}_2$. *Radiat. Res.* 82, 588-610 (1980).
- [Beral, 1985] Beral V., Inskip H., Fraser P., Booth M., Coleman D., Rose G. Mortality of employees of the United Kingdom atomic energy authority, 1946-1979. *Br Med J (Clin Res Ed)*. Aug 291(6493). p.440-447. 1985
- [Brown, 2004] Brown S.C., Schonbeck M.F., McClure D., Baron A.E., Navidi W.C., Byers T., Ruttenberg A.J. Lung cancer and internal lung doses among plutonium workers at the Rocky Flats plant: a case-control study. *American journal of epidemiology*. Jul 160(2). p.163-172. 2004
- [Carpenter, 1998] Carpenter L.M., Higgins C.D., Douglas A.J., Maconochie N.E, Omar R.Z., Fraser P., Beral V., Smith P.G. Cancer mortality in relation to monitoring for radionuclide exposure in three UK nuclear industry workforces. *British journal of cancer*. Nov 78(9). p.1224-1232. 1998
- [CEA, 2007] Site internet ToxNuc-E, <http://www.toxnuc-e.org/>
- [Dagle, 1989] Dagle G.E., Park J.F., Gilbert E.S., Weller R.E. Risk estimates for lung tumours from inhaled $^{239}\text{PuO}_2$, $^{238}\text{PuO}_2$, and $^{239}\text{Pu}(\text{NO}_3)_4$ in beagle dogs. *Radiat. Prot. Dosim.* 26, 173-176 (1989).
- [Durbin, 1989] Durbin P., Schmidt C. Predicting the kinetics of chelating agents in man from animal data - *Health physics*, Vol 57, Sup 1, p 165-174, 1989.
- [Fritsch, 2003] Fritsch P., Dudoignon N., Guillet K., Oghiso Y., Morlier J.P., Monchaux G. Does dose calculated for inhaled actinide oxides actually reflect the risk of malignant lung tumour induction? *Radiat Prot Dosim* 105:149-152; 2003.
- [Gervelas, 2007] Gervelas C., Serandour A.L., Geiger S., Grillon G., Fritsch P., Taulelle C., Le Gall B., Deverre J.R., Fattal E., and Tsapis. N. Direct lung delivery of a dry powder formulation of DTPA with improved aerosolization properties: effect on lung and systemic decorporation of plutonium. *J. of Controlled Release*. 118, 78-86 (2007).
- [Gilbert, 2000] Gilbert E.S., Koshurnikova N.A., Sokolnikov M., Khokhryakov V.F., Miller S., Preston D.L., Romanov S.A., Shilnikova N.S., Suslova K.G., Vostrotin V.V. Liver cancer in Mayak workers. *Radiation research* 154. p.246-252. 2000
- [Gilbert, 2004] Gilbert E.S., Koshurnikova N.A., Sokolnikov M.E., Shilnikova N.S., Preston D.L., Ron E., Okatenko P.V., Khokhryakov V.F., Vasilenko E.K., Miller S., Eckerman K., Romanov S.A. Lung cancer in Mayak workers. *Radiation research*. Nov 162(5). p.505-516. 2004
- [Grappin, 2006] Grappin L., Bérard P., Beau P., Carbone L., Castagnet X., Courtay C., Le Goff J.P., Ménétrier F., Néron M.O., Piechowski J. Exposition aux actinides : bilan des injections de Ca-DTPA dans les centres CEA-COGEMA - Rapport CEA-R-6097, 2006.
- [Hohryakov, 1994] Hohryakov V.F., Romanov S.A. Lung cancer in radiochemical industry worker. *The science of the total environment* 142. p.25-28. 1994
- [Jacob, 2005] Jacob V., Jacob P., Meckbach R., Romanov S.A., Vasilenko E.K. Lung cancer in Mayak workers: interaction of smoking and plutonium exposure. *Radiation environmental biophysics*. Oct 44(2). p.119-129. 2005
- [Kellerer, 2002] Kellerer A.M. The southern Urals radiation studies. A reappraisal of the current status. *Radiation environmental biophysics* 41. p.307-316. 2002
- [Koshurnikova, 1999] Koshurnikova N.A., Shilnikova N.S., Okatenko P.V., Kreslov V.V., Bolotnikova M.G., Sokolnikov M.E., Khokhryakov V.F., Suslova K.G., Vassilenko E.K., Romanov S.A. Characteristics of the cohort of workers at the Mayak nuclear complex. *Radiation research* 152. p.352-363. 1999
- [Koshurnikova, 2000] Koshurnikova N.A., Gilbert E.S., Sokolnikov M., Khokhryakov V.F., Miller S., Preston D.L., Romanov S.A., Shilnikova N.S., Suslova K.G., Vostrotin V.V. Bone cancers in Mayak workers. *Radiation research* 154. p.237-245. 2000

- [Koshurnikova, 2002] Koshurnikova N.A., Gilbert E.S., Shilnikova N.S., Sokolnikov M., Preston D.L., Kreisheimer M., Ron E., Okatenko P., Romanov S.A. Studies on the Mayak nuclear workers: health effects. *Radiation environmental biophysics* 41. p.29-31. 2002
- [Kreisheimer, 2000] Kreisheimer M., Koshurnikova N.A., Nekolla E., Khokhryakov V.F., Romanov S.A., Sokolnikov M.E., Shilnikova N.S., Okatenko P.V., Kellerer A.M. Lung cancer mortality among male nuclear workers of the Mayak facilities in the former Soviet Union. *Radiation research* 154. p.3-11. 2000
- [McGeoghegan, 2003] McGeoghegan D., Gillies M., Riddell A.E., Binks K. Mortality and cancer morbidity experience of female workers at the British Nuclear Fuels Sellafield plant, 1946-1998. *Am J Ind Med.* Dec 44(6). p.653-663. 2003
- [Ménétrier, 2005] Ménétrier F., Grappin L., Raynaud P., Courtay C., Wood R., Joussineau S., List V., Stradling G.N., Taylor D.M., Bérard Ph., Morcillo M.A., Rencova J. Treatment of accidental intakes of plutonium and americium: guidance notes – *Applied Radiation and Isotopes*, 62, 829-846, 2005
- [Omar RZ, 1999] Omar R.Z., Barber J.A., Smith P.G. Cancer mortality and morbidity among plutonium workers at the Sellafield plant of British Nuclear Fuels. *British journal of cancer.* Mar 79(7/8). p.1288-1301. 1999
- [Phan, 2004] Phan G., Ramounet-Le Gall B., Manceau J., Fanet, Benech H., Fritsch P., Fattal E., Deverre J.R. Targeting of diethylene triamine pentaacetic acid encapsulated in liposomes to rat liver: an effective strategy to prevent bone deposition and increase urine elimination of plutonium in rats. *Int.J. Radiat. Biol.*, June, Vol. 80, No 6, p 413-422, 2004.
- [Phan, 2005] Phan G., Herbert A., Cholet S., Benech H., Deverre J.R., Fattal E. Pharmacokinetics of DTPA entrapped in conventional and long-circulating liposomes of different size for plutonium decorporation. *J. of Controlled Release*, 110, 177-188, 2005.
- [Phan, 2006a] Phan G., Le Gall B., Grillon G., Rouit E., Fouillit M., Benech H., Fattal E., Deverre J.R. Enhanced decorporation of plutonium by DTPA encapsulated in small PEG-coated liposomes. *Biochimie*, 88, p 1843-1849, 2006a.
- [Phan, 2006b] Phan G., Le Gall B., Deverre J.R., Fattal E., Benech H. Predicting plutonium decorporation efficacy after intravenous administration of DTPA formulations: study of pharmacokinetic – pharmacodynamic relationships in rats. *Pharmaceutical Research*, 23 (9), p 2030-2035, 2006b.
- [Riddell, 2000] Riddell A.E., Battersby W.P., Peace M.S., Strong R. The assessment of organ doses from plutonium for an epidemiological study of the Sellafield workforce. *Journal of radiological protection.* Sep 20(3). p.275-286. 2000
- [Sanders, 1993] Sanders C.L., Lauhala K.E., McDonald K.E. Lifespan studies in rats exposed to ²³⁹PuO₂ aerosol. III. Survival and lung tumours. *Int J Radiat Biol*, 1993. 64(4): p. 417-30.
- [Sérandour, 2006] Sérandour A.L., Tsapis N., Gervelas C., Grillon G., Frechou M., Deverre J.R., Benech H., Fattal E., Fritsch P., Poncy J.L. Decorporation of plutonium by pulmonary administration of dry Ca-DTPA powder: a study in rat after lung contamination with different plutonium forms. *Internal Dosimetry of Radionuclides*, Montpellier octobre 2006, soumis à *Radiat. Prot. Dosim.* Sous presse.
- [Shilnikova, 2003] Shilnikova N.S., Preston D.L., Ron E., Gilbert E.S., Vassilenko E.K., Romanov S.A., Kuznetsova I.S., Sokolnikov M.E., Okatenko P.V., Kreslov V.V., Koshurnikova N.A. Cancer mortality among workers at the Mayak nuclear complex. *Radiation research* 159. p.787-798. 2003
- [Stebbing, 1999] Stebbings J.H. A case study of selected medical findings among plutonium injectees. *Health Physics* 76(5). p. 477-488. 1999
- [UNSCEAR 2006, à paraître] UNSCEAR 2006. Annex A: epidemiological studies of radiation and cancer. A paraître.
- [Voelz, 1997] Voelz G.L., Lawrence J.N., Johnson E.R. Fifty years of plutonium exposure to the Manhattan project plutonium workers: an update. *Health Physics.* Oct, 73(4). p. 611-619. 1997
- [Voelz, 1991] Voelz G.L., Lawrence J.N.P. Medical follow-up of Manhattan project plutonium workers. *Health Physics.* Août, 61(2). p. 181-190. 1991

- [Wiggs, 1994] Wiggs L.D., Johnson E.R., Cox-DeVore C.A., Voelz G.L. Mortality trough 1990 among white male workers at the Los Alamos National Laboratory. Considering exposures to plutonium and external ionizing radiation. *Health physics* 67(6). p. 577-588. 1994
- [Wilkinson, 1987] Wilkinson G.S., Tietjen G.L., Wiggs L.D., Galke W.A., Acquavella J.F., Reyes M., Voelz G.L., Waxweiler R.J. Mortality among plutonium and other radiation workers at a plutonium weapons facility. *American journal of epidemiology*. Feb 125(2). p.231-250. 1987
- [Wing, 2004] Wing S., Richardson D., Wolf S., Mihlan G. Plutonium-related work and cause specific mortality at the United States Department of Energy Hanford Site. *Am J Ind Med*. Feb 45(2). p.153-164. 2004
- [Wing, 2005] Wing S., Richardson D.B. Age at exposure to ionising radiation and cancer mortality among Hanford workers: follow up through 1994. *Occup Environ Med* 62. p.465-472. 2005

VIII CONCLUSIONS

Cette analyse permet, après une présentation des propriétés caractéristiques des isotopes du plutonium et des différentes sources pour l'environnement, de faire un point sur l'état des connaissances actuelles sur l'ensemble des conséquences radiologiques résultant d'un rejet de plutonium, de la source jusqu'à l'homme, en explorant les différentes voies de transfert, et d'évaluer l'importance relative des voies d'exposition en particulier vis-à-vis des interventions possibles.

Cette conclusion reprend les éléments principaux qu'il convient de connaître sur le plutonium en cas d'accident ou incident.

ORIGINE DU PLUTONIUM DANS L'ENVIRONNEMENT

Le plutonium trouve **sa source de production** essentiellement dans les réacteurs à partir de combustibles constitués d'uranium, même s'il existe à l'état naturel.

Le plutonium mesurable aujourd'hui dans l'environnement provient essentiellement des activités humaines. La source essentielle en est les essais d'armes nucléaires dits atmosphériques entre 1959 et 1963 qui ont conduit à une dispersion des produits radioactifs à l'échelle de la planète (**environ 10 000 TBq**).

La seconde source est le rejet en mer ou en rivière des installations de traitement des combustibles lors d'une période historique allant jusqu'aux années 70. Cette période concerne les complexes d'installations de production de matériaux nucléaires destinés aux armes et en particulier les installations de retraitement de combustibles (**de l'ordre de 1000 TBq en mer et jusqu'à quelques dizaines de TBq en rivières**).

La troisième source résulte d'accidents de type transport d'arme ou incendies d'installations de production ayant conduit à la rupture de toutes les barrières. L'impact a alors été local.

Aujourd'hui, les réacteurs nucléaires ne produisent pas d'effluent contenant du plutonium. Il en va de même de la plupart des installations en ce qui concerne les rejets atmosphériques et les usines de traitement du combustible ont fortement réduit leur rejet par voie liquide (autorisation de l'ordre **de 0,1 TBq/an**).

SOURCES POTENTIELLES DE PLUTONIUM

En raison de ses propriétés fissiles (aptitude à fissionner sous l'action de neutrons en libérant de l'énergie et d'autres neutrons), le plutonium 239 peut être utilisé comme source d'énergie par fission dans le combustible d'oxydes mixtes uranium-plutonium. Il constitue également un des matériaux fissiles des bombes atomiques.

Le plutonium est ainsi utilisé, produit ou manipulé dans différents types d'installations (réacteurs, usines de traitement et de fabrication du combustible et installations de recherche), ce qui conduit à le trouver sous différentes formes physico-chimiques et conditionnements :

- Dans les usines de traitement des combustibles, le plutonium des combustibles usés est séparé de l'uranium et des produits de fission. On le trouve sous forme dissoute dans des phases aqueuses et organiques puis stabilisé sous forme de PuO₂.
- Dans les usines de fabrication de combustibles, le plutonium est presque toujours sous forme d'oxyde qui est incorporé à l'oxyde d'uranium. On le trouve essentiellement sous forme solide, successivement en poudre, pastilles, pastilles frittées et crayons (ou aiguilles).
- Dans le cas des réacteurs, le plutonium se trouve dans les éléments de combustibles et ne peut constituer qu'une source d'exposition mineure même en cas d'accident très grave.

La sûreté et la radioprotection des installations du cycle du plutonium sont concentrées d'une part sur la maîtrise du risque de criticité (emballement des fissions spontanées conduisant à un ou plusieurs flashes radiologiques pouvant être mortels pour les travailleurs), d'autre part sur la maîtrise du risque de dispersion d'aérosols.

On dénombre neuf **accidents de criticité** mettant en œuvre du plutonium, entre 1945 et 1978. Trois morts et environ une trentaine d'irradiation sont à déplorer parmi le personnel des installations. Aucune conséquence hors site n'a été signalée.

Hors risque de criticité, la sûreté des installations mettant en œuvre du plutonium repose sur la maîtrise de la génération d'aérosols et l'efficacité des techniques de confinement. Peu d'accidents ont conduit à des rejets significatifs d'aérosols de plutonium. On notera essentiellement les accidents d'avions transporteurs d'armes à Thulé (Groenland) et Palomarès (Espagne), et les accidents d'incendies et explosions de Rocky flats(USA) et de Mayaks (Oural).

TRANSFERT DU PLUTONIUM DANS LES INSTALLATIONS ET LEUR ENVIRONNEMENT

Deux cas sont à analyser en ce qui concerne les transferts du plutonium dans l'environnement, d'une part l'émission atmosphérique de plutonium sous forme de particules, d'autre part le transfert en milieu géologique et sol de surface pour le stockage de déchets radioactifs.

En cas de rejet atmosphérique, la granulométrie joue un rôle primordial dans le transfert accidentel de particules d'une installation vers son environnement. Ce paramètre joue sur la quantité de matière qui peut être émise dans l'installation, puis transférée à l'extérieur, puis véhiculée par l'air jusqu'aux points d'impact, sur les possibilités d'inhalation de ces particules et par là même sur l'exposition par inhalation. Seules les particules dont le diamètre aérodynamique est inférieur à quelques dizaines de micromètres jouent un rôle significatif en termes de transfert et d'impact.

Dans le cas de stockage de déchets en milieu géologique ou de surface, les propriétés chimiques du plutonium deviennent fondamentales dans l'évaluation des migrations au sein de la roche.

Rejets atmosphériques accidentels

Dans les installations, la forme physicochimique du plutonium (métal massif, poudre, pastille ou liquide) joue un rôle prépondérant dans la génération d'aérosols.

- A température ambiante, le plutonium métal s'oxyde lentement et génère peu de particules mais essentiellement inhalables. Il peut s'enflammer à l'air spontanément selon la configuration entre 300°C et 500°C et de façon sûre à 500°C. Au point de fusion à 639,4°C, son oxydation génère de grosses particules. Entre 2000°C et l'ébullition à 3235°C, la fraction inhalable passe de $2,5 \cdot 10^{-4}$ à 0,5.
- Sous forme de poudre, les mécanismes élémentaires sont l'entraînement par l'air des particules déposées au sol, le souffle de vent sur un tas de poudre, la mise en suspension par chute de poudre sur une surface, ou à l'inverse la chute de charge sur de la poudre, et l'incendie. Les fractions émises sont extrêmement variables en fonction de l'évènement et il est souhaitable dans les analyses de sûreté d'utiliser les données expérimentales les plus proches des situations rencontrées sur l'installation.
- Sous forme liquide, les émissions sont assez faibles sauf à atteindre l'assèchement, ou l'incorporation turbulente dans un incendie d'hydrocarbure.

Dans l'environnement :

L'impact dû aux dépôts et à la chaîne alimentaire est faible par rapport à la voie inhalation. On ne mentionnera donc ici que quelques éléments utiles en cas d'intervention sur les productions agricoles.

- ***Entre air et sol***, les dépôts aux sols ne modifient pas de façon importante la concentration de l'air en aérosols inhalables à l'échelle de quelques kilomètres.

- **Entre sol et air**, l'exposition par inhalation par remise en suspension du dépôt constitue une fraction faible de l'exposition pendant le passage du nuage.
- **De l'air au végétal**, pour l'interception des aérosols, on retiendra que les particules inhalables (<10 µm en diamètre aérodynamique) sont fortement interceptées dès lors que la surface des feuilles est abondante (50 à 100%). Les particules de diamètre aérodynamique compris entre 100 et 200 µm ont des rapports d'interception sensiblement plus faibles, allant de quelques % à 20 ou 30% suivant les rendements.
- **Sur le végétal**, la demi-vie biologique sur les végétaux, pour des radionucléides liés à des particules fines, est de 12 jours en moyenne avec une plage de variation de 9 à 19 jours, c'est-à-dire que la concentration diminue de moitié tous les 12 jours.
- **Du sol à la chaîne alimentaire** (végétaux et animaux) les apports de plutonium apparaissent particulièrement peu transférables en particulier sous la forme oxyde.
- La contamination de la **viande** par le l'ingestion de fourrage n'est pas une voie de transfert importante. Le foie est l'organe le plus susceptible d'être contaminé. Sa concentration devrait être 400 fois celle de la viande. L'élimination naturelle étant très faible, un animal contaminé le resterait jusqu'à sa mort, sans décroissance significative.
- La concentration du **lait** augmente de façon proportionnelle à l'activité ingérée et reste pratiquement constante après arrêt de l'ingestion par l'animal jusqu'à la réforme de l'animal. Le transfert est également très faible. La concentration du lait de chèvre ou brebis devrait être approximativement la même que la concentration dans le lait de vache.

Transfert par voie eau

Le plutonium présente une chimie particulièrement complexe de par l'existence de plusieurs degrés redox et une chimie de coordination riche. C'est un ion dit dur qui réagit de façon exclusive avec les molécules oxygénées. Ainsi pour un même ligand on retrouve l'affinité suivante : Pu(+IV) > Pu(+III) ~ Pu(+VI) > Pu(+V).

Dans les milieux naturels (terrestres, aquatiques), on peut noter pour le plutonium la prédominance du **degré d'oxydation +IV** même si l'existence des degrés redox des formes oxydées (V, VI) n'est pas à négliger. Il en découle un comportement environnemental complexe en raison de la forte tendance à l'hydrolyse de la valence (+IV) et la formation d'espèces colloïdales qui vont fortement influencer les vitesses de transport dans les nappes phréatiques et les sols.

La rétention du plutonium dans les sols dépend d'un certain nombre de paramètres dont le pH, la nature des phases minérales, la présence de matières organiques et la composition de la phase liquide.

Parmi les entités rencontrées dans l'environnement, la **matière organique naturelle** telle que les substances humiques est à considérer tout particulièrement (associations colloïdales, réactions de complexation, réactivité redox). Dans les eaux, le plutonium est le plus souvent **présent dans les fractions colloïdales** (le plus souvent organique comme les substances humiques) voire particulaires, et se trouve dans ce cas sous formes réduites Pu(III, IV). En absence de telles entités colloïdales, qui peuvent conduire à une mobilité accrue du plutonium, le plutonium est un élément peu soluble et peu mobile dans les conditions environnementales. Dans les sols agricoles, les dépôts en surface migrent toujours très lentement à l'échelle de la vie humaine.

Concernant la contamination par les **poissons**, le transfert eau-poisson est suffisamment faible pour que la consommation de poissons ait un impact mineur comparé à l'eau de boisson.

INCORPORATION ET COMPORTEMENT DANS LE CORPS HUMAIN

Lors d'expositions humaines, quelle que soit la voie d'incorporation, **le plutonium est peu à très peu soluble, et très peu transférable.**

Les **organes à risque** sont ceux dans lesquels le plutonium est retenu : il s'agit donc en premier lieu de l'organe de dépôt (**poumon** après inhalation, **tissu sous-cutané** lors de plaie), qui sont les deux principales voies d'exposition et des deux organes dans lequel le Pu se fixe après passage dans le sang (**squelette et foie**).

Après ingestion, l'élimination fécale précoce est très importante.

Après dépôt cutané, il y a peu de transfert transcutané, avec une réserve cependant sur le devenir de certaines contaminations impliquant des solvants.

Après inhalation, le comportement biologique du plutonium dépend de deux facteurs : la solubilité relative et la taille des particules inhalées. A ces deux facteurs communément pris en compte pour l'évaluation de la dose aux différents organes, il convient également d'ajouter les facteurs "masse" et "nombre de particules inhalées".

En première approximation, on considère que la totalité des particules de 10 µm à 100 µm de diamètre aérodynamique se déposent transitoirement dans les voies aériennes supérieures et sont éliminées par ingestion, la totalité des particules de 5 à 10 µm se déposent plus profondément dans les voies aériennes supérieures puis remontent vers le carrefour digestif. 30% des particules de 1µm se déposent dans le parenchyme respiratoire et sont alors transférés lentement par voie sanguine ou par le système lymphatique.

Le diamètre des particules a de ce fait une incidence significative sur l'exposition. Par rapport au diamètre de référence de 1 µm, on constate que les Dose Par Unité d'Incorporation diminuent rapidement pour les diamètres supérieurs pour fortement diminuer pour les particules non inhalables (au-delà de 100 µm).

Le nombre de particules pour un Bq peut varier entre quelques particules et quelques milliers de particules. Ceci a évidemment une influence sur l'homogénéité de l'irradiation. Le plutonium étant émetteur alpha (sauf ²⁴¹Pu), les effets radio-induits se produisent localement au contact du radionucléide (rayon de ~40 µm dans les tissus mous, de ~500 µm dans le parenchyme pulmonaire). Lorsque les particules sont peu nombreuses, leur forte activité spécifique entraîne une irradiation pulmonaire très hétérogène qui contribue à diminuer le risque de cancer par mise en œuvre par l'organisme de protections contre le rayonnement. Les paramètres retenus par la Commission Internationale de Protection contre les Rayonnements ionisants apparaissent dans les études sur les incertitudes très généralement pessimistes. Sauf dans quelques cas particuliers comme les feux Pu-Na ou Mg, les aérosols issus de liquides ou l'usage de torche à plasma, la taille des aérosols renfermant du Pu est le plus souvent supérieure à celle proposée par défaut pour le travailleur (DAMA 5 µm) et la population (1 µm). **Pour une même activité inhalée, il en résulte un dépôt pulmonaire environ 2 à 3 fois plus faible que celui calculé avec les valeurs recommandées par défaut.**

Après absorption, **l'élimination du Pu est lente** avec des périodes effectives de plusieurs dizaines d'années, notamment quand le plutonium est incorporé dans le squelette. C'est pourquoi l'exposition après incorporation unique est délivrée sur la vie des individus (par convention sur 50 ans ou jusqu'à l'âge de 70 ans selon l'âge au moment de la contamination).

En cas de contamination maternelle, la **contamination du fœtus ou du nourrisson** est plus faible que celle de la mère du fait d'un faible passage materno-fœtal et d'un faible transfert dans le lait maternel.

IMPACTS DOSIMETRIQUES

Cas de rejets atmosphériques

Bien qu'il existe quinze isotopes connus du plutonium, seuls les isotopes 238 à 242 présentent un réel intérêt en termes d'impact. Les isotopes ^{238}Pu , ^{239}Pu , ^{240}Pu et ^{242}Pu sont des isotopes à vie assez longue et sont des émetteurs alpha de forte énergie, et le ^{241}Pu est un émetteur beta à vie courte père d'un émetteur à vie longue l' ^{241}Am .

La composition isotopique du plutonium évolue au cours de l'irradiation dans les réacteurs et est fonction du type de combustible, du taux de combustion, du temps d'attente avant recyclage ainsi que de la neutronique mise en œuvre dans le cœur. Toutefois, **quelles que soient ces conditions, le ^{239}Pu reste majoritaire en masse et les isotopes 238 et 241 sont importants d'un point de vue activité et radiotoxicité. Pour les isotopes principaux indiqués ci-dessus, la voie d'atteinte est très nettement la voie "inhalation".** Pour les isotopes émetteurs α et le ^{241}Pu , la dose reçue par inhalation (et donc la dose totale) est toujours plus élevée pour un adulte que pour un enfant. **Aucune mesure particulière n'est donc à envisager pour les enfants.**

Tous les isotopes majeurs émetteurs alpha à vie assez longue conduisent à des expositions très voisines pour une même activité rejetée. En termes d'impact relatif des voies d'exposition, le ^{241}Pu est très comparable aux isotopes émetteurs alpha, mais, à activité égale, la dose est 50 fois plus faible. Compte tenu de ces similitudes, il est possible d'additionner les activités des isotopes 238 à 242 en pondérant celle du ^{241}Pu par un facteur 2%.

Suivant les formations et métiers des personnels concernés, l'usage est d'exprimer les quantités de plutonium en Becquerel ou grammes qui sont, soit précisés par isotope, soit exprimés par rapport à l'élément plutonium ou par rapport au métal lourd (contenant uranium et plutonium). Quelle que soit l'unité retenue, il convient d'être très précis dans la définition d'une quantité rejetée.

Pour du plutonium exclusivement sous forme de particules inhalables de $1\ \mu\text{m}$:

Un rejet de 1 GBq de plutonium émetteur α conduit au plus à une exposition de l'ordre de 1 mSv à une distance de 1 km.

Un rejet de 5 g de plutonium 239 seul ne devrait pas conduire à des interventions de type confinement et a fortiori évacuation ; mai un rejet de 5 g de plutonium contenant 25 mg de plutonium 238 ou 0,2 g de plutonium 241 conduira très probablement à un confinement local.

Un rejet de 1 g de métal lourd peut avoir un impact très variable en fonction de la composition isotopique du métal mais ne devrait pas conduire à confinement.

Un rejet de 1 g de plutonium de combustible MOx à composition isotopique réaliste, peut correspondre en première approximation à un niveau justifiant d'une intervention très locale.

Le ^{238}Pu et le ^{241}Pu sont généralement responsables d'une grande partie de l'exposition.

En pratique, ces niveaux de rejet impliquent des inventaires mis en jeu beaucoup plus importants.

Les normes de commercialisation sont atteintes plus rapidement que les critères de dose pour le confinement (protection contre l'inhalation). **Il existerait donc une zone "d'interdiction de commercialisation" d'extension sensiblement plus grande que la zone de confinement.** La justification n'est pas de nature dosimétrique, l'exposition par ingestion étant, pour un rejet donné, très sensiblement inférieure à celle par inhalation.

La contamination des végétaux ne concerne que la végétation en place au moment de l'accident et est donc limité dans le temps à quelques semaines.

Impact dosimétrique en stockage géologique

Le projet Européen RedImpact, qui a pour objectif de comparer des scénarii de gestion du combustible usé, en termes de performances et de contraintes associées au stockage géologique en formation argileuse de ces déchets conclut que le plutonium n'apparaît pas comme un élément

susceptible de conduire à un impact sensible. Dans le cas de l'évaluation de la faisabilité d'un stockage géologique de déchets de haute activité et à vie longue en formation argileuse (site de Bure, France), pour un scénario d'évolution normale, dans le cas de combustibles usés, les actinides dont le plutonium ne sont pas mobiles, les doses à l'exutoire sont dues aux produits de fission et d'activation.

EFFETS SUR LA SANTE

La toxicité du plutonium est dominée par le **risque cancérogène**.

D'une manière générale, la répartition du plutonium dans l'organisme est très hétérogène, avec essentiellement trois organes de rétention : le poumon (dans le cas d'inhalation de composés insolubles), le foie et le squelette. De ce fait, la dose efficace, qui représente le risque global de développer un cancer en se basant sur une irradiation homogène corps entier, n'est pas la grandeur la plus appropriée à l'évaluation du risque Pu. La dose efficace (et donc les DPUI) est dans ce cas utilisée comme un outil de gestion en radioprotection, mais la dose efficace ne peut être considérée comme représentative du risque.

Les risques pour la santé ont été évalués à partir de données expérimentales et sur des études épidémiologiques de mortalité par cancers chez des travailleurs britanniques, américains et russes. Malgré les difficultés rencontrées dans l'évaluation des risques en raison de la diversité des cas et de la précision très variable des informations, on peut citer avec toutes les réserves qui s'imposent les résultats de ces études :

- ⇒ Pour des activités incorporées de l'ordre de 100 becquerels, il n'est pas constaté d'excès de cancer du poumon. Il existe des incertitudes du fait du report inconstant de l'exposition tabagique dans les groupes exposés et témoins (travailleurs américains).
- ⇒ Pour des activités incorporées allant jusqu'à un millier de becquerels, il n'y a pas d'excès constaté, ni dans la mortalité toutes causes, ni dans la mortalité par cancer par rapport aux groupes témoins non exposés au plutonium (travailleurs américains).
- ⇒ Pour des activités incorporées de l'ordre du millier de becquerels, il est observé un excès de cancers du poumon chez les travailleurs Mayak. L'excès est indiscutable pour des doses pulmonaires supérieures à 1 Gy, discutable entre 0,2 et 1 Gy. Ce sont les seules études qui permettent d'établir une relation dose-effet.
- ⇒ Pour des activités inhalées de l'ordre de quelques milliers de becquerels (> 7400 Bq), un excès de cancers du foie et du squelette est également observé chez les travailleurs de Mayak. Des pathologies osseuses (cancer et pathologies non cancéreuses) ont également été observées chez les travailleurs américains pour des activités incorporées de l'ordre du millier de Bq.

Les études épidémiologiques de travailleurs russes (Mayak) permettent d'établir des relations dose-effet. Le risque de mortalité par cancer (excès de risque relatif ERR) pour les cancers du poumon, du foie et du squelette, est évalué, en fonction de la dose à l'organe, à **0,30 par Gy**.

L'élimination du plutonium peut être accélérée par l'utilisation d'un chélatant : le DTPA (sous forme Ca ou Zn DTPA). Actuellement, le **traitement recommandé en pratique au niveau international est l'injection intraveineuse de sels de DTPA**, chélatant le plutonium présent dans le sang, l'ensemble chélatant-Pu étant ensuite éliminé par voie urinaire. Le traitement est d'autant plus efficace que la forme contaminante est soluble et que la première injection intervient rapidement après la contamination. En pratique, l'efficacité du traitement est limitée par (1) l'action du DTPA restreinte au compartiment sanguin, (2) la période biologique du sel de DTPA, quasiment éliminé en totalité en moins de 6 heures, (3) surtout la faible fraction de Pu passant dans le compartiment sanguin après inhalation ou plaie par des formes insolubles de Pu (oxydes industriels). Des développements pharmaceutiques sont en cours pour améliorer l'efficacité du chélatant.

IX ANNEXE 1 : REACTIONS ALPHA - NEUTRON (α , N)

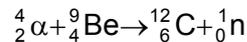
Cette annexe présente les principales données conduisant à la production de neutrons à partir de nucléides émetteurs de particules alpha.

Ces réactions sont à l'origine de la production naturelle de plutonium à partir de l'uranium.

Elles constituent également une source de rayonnement neutronique pouvant impliquer des mesures particulières de radioprotection, en particulier dans les laboratoires de chimie.

Les réactions (α, n) consistent en l'absorption de particules α par des noyaux légers stables et à la production de neutrons. C'est le cas en particulier pour les isotopes d'oxygènes ^{17}O et ^{18}O , le carbone ^{13}C , le bore, le lithium, le fluor et le béryllium.

Ce type de réaction a conduit à la découverte du neutron :



Les particules α ayant un parcours très faible dans la matière, l'émetteur α et les noyaux cibles (Be dans l'exemple ci-dessus) doivent être intimement associés pour que la réaction puisse avoir lieu.

La réaction (α, n) est exoénergétique et libère de l'énergie. Les neutrons émis par la réaction (α, n) se répartissent sur un spectre énergétique caractéristique du couple émetteur α - atomes du milieu environnant.

Ce spectre continu résulte principalement de la combinaison des processus suivants :

- a) le spectre α de l'émetteur peut comporter différentes raies d'énergie,
- b) le noyau de l'atome produit à partir de l'atome cible peut être produit dans différents états excités,
- c) le neutron émis peut perdre une partie de son énergie cinétique par diffusion élastique au sein même de la source (cet effet est d'autant plus important que la source est grosse),
- d) des réactions "secondaires" peuvent contribuer à la production de neutrons :
 - réaction de fission d'atomes cibles,
 - réaction ($n, 2n$)
 - fission provoquée de noyaux émetteurs α .

Le Tableau IX-1 présente le rendement (α, n) qui est le nombre de neutrons produits pour une particule alpha émise dans un milieu de combustible UO_2 et les caractéristiques des fissions spontanées [Cheikh M'Backé Diop, 2006].

| Elément | Rendement de la réaction (α, n) sur l'oxygène d'un combustible UO_2 - Neutrons par désintégration alpha | Branchement de fission spontanée | Nombre moyen de neutrons émis par fission spontanée | dans UO_2 total neutrons / g d'isotope.s |
|------------|--|----------------------------------|---|--|
| ^{236}Pu | $2,62 \cdot 10^{-8}$ | $8,1 \cdot 10^{-10}$ | 2,126 | $5,50 \cdot 10^5$ |
| ^{238}Pu | $2,3 \cdot 10^{-8}$ | $1,84 \cdot 10^{-9}$ | 2,21 | $1,72 \cdot 10^4$ |
| ^{239}Pu | $1,8 \cdot 10^{-8}$ | $4,4 \cdot 10^{-12}$ | 2,32 | $4,15 \cdot 10^1$ |
| ^{240}Pu | $1,89 \cdot 10^{-8}$ | $5,7 \cdot 10^{-8}$ | 2,15 | $1,19 \cdot 10^3$ |
| ^{241}Pu | $3,82 \cdot 10^{-13}$ | 0 | - | 1,46 |
| ^{241}Am | $2,29 \cdot 10^{-8}$ | $4,1 \cdot 10^{-12}$ | 2,5 | $2,92 \cdot 10^3$ |
| ^{242}Pu | $1,6 \cdot 10^{-8}$ | $5,5 \cdot 10^{-6}$ | 2,14 | $1,72 \cdot 10^3$ |
| ^{234}U | $1,43 \cdot 10^{-8}$ | $1,2 \cdot 10^{-11}$ | 1,80 | 3,32 |
| ^{235}U | $1,95 \cdot 10^{-8}$ | $2,6 \cdot 10^{-7}$ | 1,87 | $4,05 \cdot 10^{-2}$ |
| ^{238}U | $7,418 \cdot 10^{-9}$ | $7,45 \cdot 10^{-7}$ | 2,00 | $1,87 \cdot 10^{-2}$ |

Tableau IX-1 : Nombre de neutrons par seconde par fission spontanée et réaction (α, n), en milieu UO_2 par désintégration

Le Tableau IX-2 présente le nombre de neutrons produits par seconde par réactions (α, n) et fissions spontanées par gramme d'isotope du plutonium (et américium 241) en milieu PuO_2 et PuF_4 . [Wilson W.B., 1993]

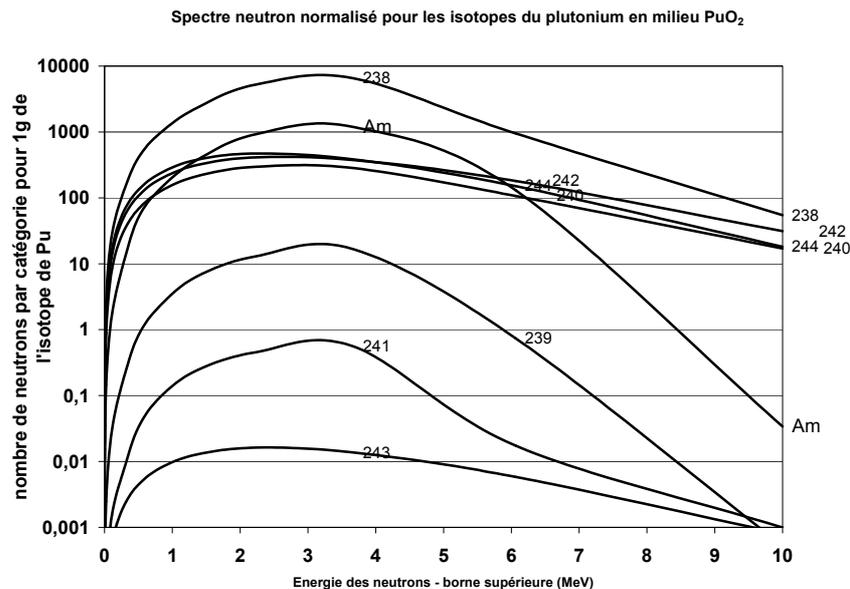
| n.s ⁻¹ par gramme d'isotope | Fission spontanée | PuO_2 (α, n) | PuO_2 Total | PuF_4 (α, n) | PuF_4 Total | Pu dans UO_2 |
|--|---|--------------------------------------|-----------------------|--------------------------------------|-----------------------|-------------------|
| ^{238}Pu | $2,587 \cdot 10^3$ | $1,412 \cdot 10^4$ | $1,671 \cdot 10^4$ | $2,175 \cdot 10^6$ | $2,178 \cdot 10^6$ | $1,72 \cdot 10^4$ |
| ^{239}Pu | $2,181 \cdot 10^{-2}$ | $4,013 \cdot 10^1$ | $4,015 \cdot 10^1$ | $5,653 \cdot 10^3$ | $5,653 \cdot 10^3$ | $4,15 \cdot 10^1$ |
| ^{240}Pu | $1,026 \cdot 10^3$ | $1,481 \cdot 10^2$ | $1,174 \cdot 10^3$ | $2,091 \cdot 10^4$ | $2,194 \cdot 10^4$ | $1,19 \cdot 10^3$ |
| ^{241}Pu | $4,939 \cdot 10^{-2}$ | 1,357 | 1,406 | $1,704 \cdot 10^2$ | $1,704 \cdot 10^2$ | 1,46 |
| ^{242}Pu | $1,717 \cdot 10^3$ | 2,150 | $1,719 \cdot 10^3$ | $2,696 \cdot 10^2$ | $1,987 \cdot 10^3$ | $1,72 \cdot 10^3$ |
| ^{243}Pu | $6,618 \cdot 10^{-2}$ | 0 | $6,618 \cdot 10^{-2}$ | 0 | $6,618 \cdot 10^{-2}$ | $2,92 \cdot 10^3$ |
| ^{244}Pu | $1,900 \cdot 10^3$ | $7,531 \cdot 10^{-3}$ | $1,900 \cdot 10^3$ | $7,628 \cdot 10^{-1}$ | $1,901 \cdot 10^3$ | |
| ^{241}Am | 1,182 | $2,817 \cdot 10^3$ | $2,818 \cdot 10^3$ | $4,331 \cdot 10^5$ | $4,331 \cdot 10^5$ | |

Tableau IX-2 : Nombre de neutrons par seconde par fission spontanée et réactions (α, n), par gramme de chaque isotope de plutonium sous forme PuO_2 et PuF_4

Le Tableau IX-3 donne le détail des neutrons produits par groupe d'énergie pour un gramme de plutonium dans un environnement PuO_2 avec la figure associée.

| Borne sup Mev Des groupes d'énergie | ²³⁸ PuO ₂ | ²³⁹ PuO ₂ | ²⁴⁰ PuO ₂ | ²⁴¹ PuO ₂ | ²⁴² PuO ₂ | ²⁴³ PuO ₂ | ²⁴⁴ PuO ₂ | ²⁴¹ AmO ₂ |
|---|---------------------------------|---------------------------------|---------------------------------|---------------------------------|---------------------------------|---------------------------------|---------------------------------|---------------------------------|
| 10 | 54,53 | 5,260 10 ⁻⁴ | 17,02 | 9,961 10 ⁻⁴ | 31,19 | 7,996 10 ⁻⁴ | 18,09 | 3,406 10 ⁻² |
| 6,065 | 952,9 | 0,74 | 106,7 | 1,733 10 ⁻² | 180,2 | 5,819 10 ⁻³ | 150,3 | 130,2 |
| 3,679 | 6533 | 16,61 | 282,7 | 0,5551 | 373,7 | 1,373 10 ⁻² | 382,8 | 1189 |
| 2,231 | 5233 | 12,97 | 295,2 | 0,4519 | 411,6 | 1,622 10 ⁻² | 470,6 | 921,9 |
| 1,353 | 2302 | 6,332 | 212,5 | 0,2383 | 313,3 | 1,275 10 ⁻² | 376,7 | 369,3 |
| 0,8210 | 967,9 | 2,324 | 125 | 9,520 10 ⁻² | 192,7 | 7,936 10 ⁻³ | 236,1 | 137,7 |
| 0,5000 | 408,4 | 0,827 | 68,05 | 3,320 10 ⁻² | 107,6 | 4,446 10 ⁻³ | 132,5 | 50,57 |
| 0,3025 | 141,3 | 0,2129 | 34,17 | 8,491 10 ⁻³ | 55,3 | 2,285 10 ⁻³ | 68,08 | 12,28 |
| 0,1830 | 59,94 | 7,331 10 ⁻² | 16,73 | 3,349 10 ⁻³ | 27,29 | 1,127 10 ⁻³ | 33,53 | 4,101 |
| 0,1110 | 27,56 | 2,950 10 ⁻² | 8,114 | 1,537 10 ⁻³ | 13,29 | 5,479 10 ⁻⁴ | 16,29 | 1,673 |
| 6,734 10 ⁻² | 12,85 | 1,257 10 ⁻² | 3,896 | 6,775 10 ⁻⁴ | 6,392 | 2,634 10 ⁻⁴ | 7,827 | 0,7215 |
| 4,085 10 ⁻² | 5,983 | 5,386 10 ⁻³ | 1,858 | 2,990 10 ⁻⁴ | 3,053 | 1,257 10 ⁻⁴ | 3,734 | 0,3137 |
| 2,478 10 ⁻² | 2,833 | 2,481 10 ⁻³ | 0,8832 | 1,390 10 ⁻⁴ | 1,452 | 5,978 10 ⁻⁵ | 1,775 | 0,1464 |
| 1,503 10 ⁻² | 1,35 | 1,196 10 ⁻³ | 0,4188 | 6,668 10 ⁻⁵ | 0,6885 | 2,834 10 ⁻⁵ | 0,8412 | 7,130 10 ⁻² |
| 9,118 10 ⁻³ | 0,6462 | 5,759 10 ⁻⁴ | 0,1985 | 3,197 10 ⁻⁵ | 0,3262 | 1,342 10 ⁻⁵ | 0,3985 | 3,466 10 ⁻² |
| 5,530 10 ⁻³ | 0,2869 | 2,561 10 ⁻⁴ | 8,754 10 ⁻² | 1,418 10 ⁻⁵ | 0,1439 | 5,923 10 ⁻⁶ | 0,1758 | 1,555 10 ⁻² |
| 3,519 10 ⁻³ | 0,1468 | 1,301 10 ⁻⁴ | 4,451 10 ⁻² | 7,208 10 ⁻⁶ | 7,309 10 ⁻² | 3,012 10 ⁻⁶ | 8,935 10 ⁻² | 7,981 10 ⁻³ |
| 2,239 10 ⁻³ | 7,476 10 ⁻² | 6,650 10 ⁻⁵ | 2,259 10 ⁻² | 3,678 10 ⁻⁶ | 3,714 10 ⁻² | 1,524 10 ⁻⁶ | 4,537 10 ⁻² | 4,119 10 ⁻³ |
| 1,425 10 ⁻³ | 3,812 10 ⁻² | 3,403 10 ⁻⁵ | 1,145 10 ⁻² | 1,878 10 ⁻⁶ | 1,890 10 ⁻² | 7,768 10 ⁻⁷ | 2,032 10 ⁻² | 2,128 10 ⁻³ |
| 9,069 10 ⁻⁴ | 2,921 10 ⁻² | 2,624 10 ⁻⁵ | 8,780 10 ⁻³ | 1,444 10 ⁻⁶ | 1,446 10 ⁻² | 5,926 10 ⁻⁷ | 1,766 10 ⁻² | 1,670 10 ⁻³ |
| 3,673 10 ⁻⁴ | 7,626 10 ⁻³ | 6,793 10 ⁻⁶ | 2,290 10 ⁻³ | 3,732 10 ⁻⁷ | 3,674 10 ⁻³ | 1,520 10 ⁻⁷ | 4,504 10 ⁻³ | 4,457 10 ⁻⁴ |
| 1,487 10 ⁻⁴ | 1,573 10 ⁻³ | 1,510 10 ⁻⁶ | 4,901 10 ⁻⁴ | 8,392 10 ⁻⁸ | 8,521 10 ⁻⁴ | 3,653 10 ⁻⁸ | 1,033 10 ⁻³ | 1,002 10 ⁻⁴ |
| 7,550 10 ⁻⁵ | 8,904 10 ⁻⁴ | 8,180 10 ⁻⁷ | 2,717 10 ⁻⁴ | 4,481 10 ⁻⁸ | 4,343 10 ⁻⁴ | 1,713 10 ⁻⁸ | 5,291 10 ⁻⁴ | 5,382 10 ⁻⁵ |
| total | 1,671E+04 | 4,015E+01 | 1,174E+03 | 1,406E+00 | 1,719E+03 | 6,618E-02 | 1,900E+03 | 2,818E+03 |

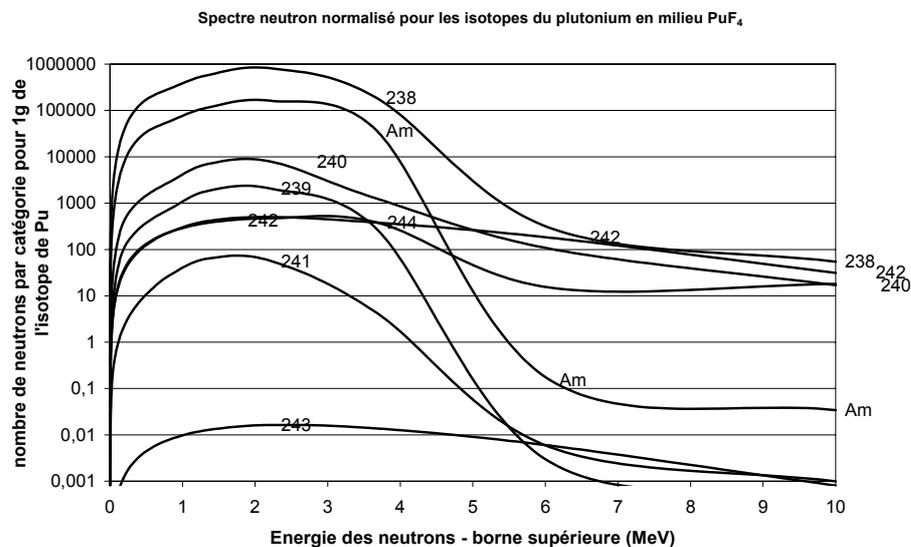
Tableau IX-3 : Nombre de neutrons produits par fission spontanée et réactions (α, n), par gramme de chaque isotope de plutonium sous forme PuO₂ par groupe d'énergie.



Le Tableau IX-4 donne le détail des neutrons produits par groupe d'énergie pour un gramme de plutonium dans un environnement PuF_4 avec la figure associée.

| Borne sup Des groupes d'énergie | $^{238}\text{PuF}_4$ | $^{239}\text{PuF}_4$ | $^{240}\text{PuF}_4$ | $^{241}\text{PuF}_4$ | $^{242}\text{PuF}_4$ | $^{243}\text{PuF}_4$ | $^{244}\text{PuF}_4$ | $^{241}\text{AmF}_4$ |
|---------------------------------------|----------------------|----------------------|----------------------|----------------------|----------------------|----------------------|----------------------|----------------------|
| 10 | 290,6 | 2,588E-03 | 103,9 | 5,425E-03 | 180,2 | 5,819E-03 | 15,03 | 0,1513 |
| 6,065 | 1,854E+05 | 273,7 | 1251 | 4,243 | 379,4 | 1,373E-02 | 382,8 | 3,64E+04 |
| 3,679 | 8,089E+05 | 2046 | 7831 | 55,92 | 499,2 | 1,622E-02 | 470,7 | 1,61E+05 |
| 2,231 | 5,803E+05 | 1853 | 7008 | 63,54 | 413,6 | 1,275E-02 | 377 | 1,16E+05 |
| 1,353 | 2,936E+05 | 743 | 2855 | 27,73 | 236,5 | 7,936E-03 | 236,3 | 5,83E+04 |
| 0,8210 | 1,721E+05 | 376,3 | 1464 | 10,76 | 124,46 | 4,446E-03 | 132,6 | 3,42E+04 |
| 0,5000 | 8,179E+04 | 193,2 | 754,2 | 4,497 | 62,37 | 2,285E-03 | 68,1 | 1,63E+04 |
| 0,3025 | 3,342E+04 | 97,43 | 378,2 | 2,006 | 30,44 | 1,127E-03 | 33,54 | 6,68E+03 |
| 0,1830 | 1,323E+04 | 41,18 | 159,8 | 0,9409 | 14,76 | 5,479E-04 | 16,29 | 2,64E+03 |
| 0,1110 | 5136 | 16,25 | 63,89 | 0,444 | 7,09 | 2,634E-04 | 7,828 | 1,03E+03 |
| $6,734 \cdot 10^{-2}$ | 2158 | 7,026 | 27,89 | 0,2264 | 3,41 | 1,257E-04 | 3,737 | 4,30E+02 |
| $4,085 \cdot 10^{-2}$ | 931,3 | 3,139 | 12,56 | 0,1053 | 1,619 | 5,978E-05 | 1,775 | 1,85E+02 |
| $2,478 \cdot 10^{-2}$ | 392,9 | 1,373 | 5,475 | 4,489E-02 | 0,7597 | 2,834E-05 | 0,8413 | 7,80E+01 |
| $1,503 \cdot 10^{-2}$ | 167,1 | 0,5931 | 2,368 | 1,895E-02 | 0,3564 | 1,342E-05 | 0,3985 | 3,32E+01 |
| $9,118 \cdot 10^{-3}$ | 68,32 | 0,2441 | 0,9864 | 7,736E-03 | 0,1563 | 5,923E-06 | 0,1758 | 1,36E+01 |
| $5,530 \cdot 10^{-3}$ | 33,27 | 0,1193 | 0,4844 | 3,747E-03 | 7,906E-02 | 3,012E-06 | 8,935E-02 | 6,65E+00 |
| $3,519 \cdot 10^{-3}$ | 16,35 | 5,879E-02 | 0,2389 | 1,831E-03 | 4,005E-02 | 1,526E-06 | 4,537E-02 | 3,27E+00 |
| $2,239 \cdot 10^{-3}$ | 8,13 | 2,932E-02 | 0,1189 | 9,060E-04 | 2,034E-02 | 7,768E-07 | 2,302E-02 | 1,63E+00 |
| $1,425 \cdot 10^{-3}$ | 6,146 | 2,218E-02 | 9,000E-02 | 6,830E-04 | 1,555E-02 | 5,926E-07 | 1,766E-02 | 1,23E+00 |
| $9,069 \cdot 10^{-4}$ | 1,57 | 5,672E-03 | 2,306E-02 | 1,742E-04 | 3,951E-03 | 1,520E-07 | 4,504E-03 | 3,14E-01 |
| $3,673 \cdot 10^{-4}$ | 0,3469 | 1,252E-03 | 5,070E-03 | 3,855E-05 | 9,134E-04 | 3,653E-08 | 1,033E-03 | 6,94E-02 |
| $1,487 \cdot 10^{-4}$ | 0,1872 | 6,773E-04 | 2,753E-03 | 2,078E-05 | 4,673E-04 | 1,713E-08 | 5,292E-04 | 3,75E-02 |
| $7,550 \cdot 10^{-5}$ | 2,178E+06 | 5,653E+03 | 2,194E+04 | 1,705E+02 | 1,986E+03 | 6,616E-02 | 1,765E+03 | 4,33E+05 |
| total | 2,178E+06 | 5,653E+03 | 2,194E+04 | 1,705E+02 | 1,986E+03 | 6,616E-02 | 1,765E+03 | 4,33E+05 |

Tableau IX-4 : Nombre de neutrons produits par fission spontanée et réactions (α, n), par gramme de chaque isotope de plutonium sous forme PuF_4 par groupe d'énergie.



On retiendra :

- Que les réactions (α,n) en milieu UO_2 et PuO_2 augmentent sensiblement le taux d'émission de neutrons par rapport à la fission spontanée, pour les isotopes ^{238}Pu à ^{241}Pu .
- Les différences de productions entre PuO_2 et UO_2 ne sont pas très importantes. Par contre, la production de neutrons augmente de deux ordres de grandeur en milieu PuF_4 .
- Ceci peut constituer une source d'exposition potentielle par irradiation externe non négligeable dans les laboratoires de chimie.
- On notera dans les deux cas de figures présentés que l'énergie des neutrons produits est importante et se situe principalement entre 1 et 5 Mev.

Références :

[Cheikh M'Backé Diop, 2006] dans Radioprotection et Ingénierie Nucléaire. Coordinateur Henri Métivier INSTN. Collection Génie atomique EDP Sciences, 2006.

[Wilson, 1993] Perry R.T., Stewart J.E., England T.R., Madland D.G., Arthur E.D., Development of the sources code and spectra from (α,n) reactions, spontaneous fission, (β,n) delayed neutrons, LA 941 PR, p.65, Los Alamos National Lab., 1993

X ANNEXE 2 : QUELQUES NOTIONS SUR LA GRANULOMETRIE DES AEROSOLS

X.1 DIMENSIONS STATISTIQUES DES AEROSOLS

Les théories de la physique des aérosols sont le plus souvent établies pour des particules sphériques. Toutefois, dans la plupart des cas, les aérosols que l'on rencontre dans l'air n'ont pas cette géométrie de référence. Le problème se pose alors de définir ce à quoi correspond la dimension d'une particule et il est donc nécessaire d'introduire des diamètres statistiques.

Il existe un grand nombre de diamètres statistiques. Parmi eux, on trouve :

- le diamètre de Martin, qui correspond à la longueur du segment parallèle à une direction donnée qui sépare en deux aires égales la surface projetée de la particule,
- le diamètre de Feret, qui, suivant une direction donnée, est la distance moyenne séparant deux points opposés de l'aérosol (Allen, 1975),
- le diamètre de Stokes d_s , qui est le diamètre d'une sphère ayant la même vitesse de chute et la même masse volumique que la particule considérée,
- le diamètre de volume équivalent d_{ev} , qui est le diamètre de la sphère possédant la même masse m que la particule et la masse volumique ρ_p du matériau :

$$d_{ev} = \left[\frac{m}{(\pi/6)\rho_p} \right]^{\frac{1}{3}} \quad (1)$$

- le diamètre aérodynamique d_{ae} , qui est défini comme le diamètre de la sphère de masse volumique $\rho_0 = 1 \text{ g.cm}^{-3}$ ayant la même vitesse limite de chute que la particule en question de diamètre physique d_p et de masse volumique ρ_p :

$$d_{ae} = d_p \sqrt{\frac{\rho_p}{\chi}} \quad (2)$$

avec χ facteur de forme dynamique défini comme le rapport entre la force de frottement qu'une particule non sphérique subit et celle exercée sur une particule sphérique de même volume et de même masse, et se déplaçant à la même vitesse (dans le cas d'une sphère, $\chi = 1$; dans le cas de l'aérosol nucléaire, on estime que $1 < \chi < 1,5$).

De ce fait, le diamètre aérodynamique est un diamètre équivalent de référence très utilisé lorsqu'on s'intéresse au comportement aérodynamique (sédimentation, inertie) d'une particule supermicronique. Il a l'avantage de permettre de faire des calculs et des évaluations sans pour autant connaître la masse volumique de la particule, souvent difficile à quantifier.

Grâce à ces diamètres statistiques, il est possible de ramener tout aérosol à une particule sphérique équivalente. Toutefois, les écarts entre ces différents diamètres sont d'autant plus grands que la forme de la particule s'éloigne d'une sphère. Ainsi, la notion de facteur de forme, utilisé pour tenir compte de l'influence de la forme d'une particule sur son mouvement, est d'une grande importance pour appréhender le comportement d'un aérosol quelconque, comme pour corrélérer des analyses dimensionnelles réalisées avec des techniques de mesures différentes.

X.2 DISTRIBUTIONS GRANULOMETRIQUES

De par leur taille unique, les aérosols monodispersés sont parfaitement caractérisés par un seul paramètre, le diamètre des particules. Cependant, l'aérosol qu'on rencontre le plus souvent, en plus de ne pas être sphérique, est polydispersé, c'est-à-dire composé de particules de tailles différentes dont la gamme de dimensions peut s'étendre sur plusieurs ordres de grandeur. Dans ce cas, il est nécessaire de caractériser également ces distributions en taille (ou distributions granulométriques) par des moyens statistiques. En général, on attribue à ces distributions une fonction de densité de probabilité, c'est-à-dire la probabilité qu'a une particule prise au hasard dans la population d'avoir un diamètre choisi.

Les distributions granulométriques sont représentées le plus souvent par une loi log normale, caractérisée par un diamètre médian d_{50} et un écart type géométrique de la distribution σ_g . Cet écart type, correspondant à l'étalement de la courbe, est toujours supérieur à l'unité et tend vers 1 quand la population devient monodispersée. Il est défini par le rapport :

$$\sigma_g = \frac{d_{84}}{d_{50}} \quad (3)$$

où d_{84} est le diamètre correspondant à 84% des observations et d_{50} , celui à 50%. Il ne varie pas quelle que soit la grandeur au moyen de laquelle on définit le diamètre (nombre, surface, volume).

D'autres diamètres statistiques interviennent alors :

- le diamètre modal (ou mode) est la valeur du diamètre pour laquelle il y a le plus grand nombre d'observations. Dans le cas d'une distribution unimodale, il correspond au maximum de la fonction de distribution. S'il existe plusieurs maxima, il y aura autant de diamètres modaux. On parle alors de distribution bimodale, trimodale, etc.
- le diamètre moyen correspond au centre de gravité de la distribution. On distingue :
 - le *diamètre arithmétique moyen* (qui n'est autre que la moyenne arithmétique des diamètres),
 - le *diamètre géométrique moyen* d_g (le plus couramment utilisé) :

$$d_g = \sqrt[p]{\sum p_i d_i} \quad (4)$$

avec p propriété qui varie avec le diamètre :

en surface : $p = 2$

en masse ou en volume : $p = 3 \dots$,

et p_i observations de taille d_i .

- le *diamètre médian* d_{50} qui, comme on l'a vu, divise la distribution en deux parts égales, c'est-à-dire qu'il correspond au diamètre pris à 50% de la population. Dans le cas d'une distribution log normale, le diamètre médian est égal au diamètre géométrique moyen. Il peut concerner le nombre, la masse, la surface ou le volume des particules.

X.3 UTILISATION DES DIAMETRES

L'utilisation d'un diamètre plutôt qu'un autre se fera en fonction du choix de la technique de mesure. Ainsi, les diamètres de Martin et de Feret, définis précédemment, sont particulièrement utilisés lorsque l'on fait des mesures par microscopie. De la même façon, les compteurs optiques de particules donnent un diamètre optique lié à l'indice de réfraction des aérosols et les analyseurs électriques mesurent un diamètre dit électrique, lié à la mobilité électrique des aérosols. Enfin, si ces derniers donnent des résultats en nombre de particules, d'autres techniques telles que les impacteurs donnent des distributions granulométriques en masse. Le diamètre représentatif d'un aérosol est donc une notion fort délicate et la relation entre diamètre mesuré et diamètre physique, est quelquefois difficile à établir. Cela est d'autant plus vrai pour les particules non sphériques, cas le plus fréquent.

Lors de mesures des dimensions d'un aérosol, il est donc nécessaire de s'interroger également sur la technique instrumentale choisie et notamment sur le diamètre réellement mesuré par cette technique. Ainsi, selon le type de mesure réalisé, on parlera de :

- DMN : diamètre médian en nombre,
- DMM : diamètre médian en masse,
- DMS : diamètre médian en surface,
- DMMV : diamètre médian en masse équivalent en volume,
- DAMM : diamètre aérodynamique médian en masse,
- DAMA : diamètre aérodynamique médian en activité.

D'après la CIPR 30 [CIPR 30, 1979], le DAMA est défini comme le diamètre aérodynamique pour lequel la distribution particulière en activité est telle que l'activité des particules les plus actives est égale à l'activité cumulée des particules les moins actives.

Du fait de la proportionnalité de l'activité à la masse, on a la relation :

$$DAMA = DMM \sqrt{\rho_p} \quad (5)$$

Ceci, quand la loi de Stokes est applicable, c'est-à-dire pour $d_p \ll 100 \mu\text{m}$.

X.4 RELATIONS ENTRE LES GRANDEURS

Si $f(d_p)$ correspond à l'expression mathématique de la loi log normale en nombre, les distributions en surface $S(d_p)$, en volume $V(d_p)$ et en masse $M(d_p)$, s'écriront respectivement :

$$S(d_p) = \pi d_p^2 f(d_p) \quad (6)$$

$$V(d_p) = \frac{\pi}{6} d_p^3 f(d_p) \quad (7)$$

$$M(d_p) = \frac{\pi}{6} \rho_p d_p^3 f(d_p) \quad (8)$$

En ce qui concerne les diamètres médians, on aura alors les relations suivantes :

pour une distribution en surface :

$$\log(DMS) = \log(DMN) + 2(\log^2 \sigma_g) \quad (9)$$

pour une distribution en masse :

$$\log(\text{DMM}) = \log(\text{DMN}) + 3(\log n^2 \sigma_g) \quad (10)$$

La vitesse de déplacement d'une particule individuelle dans un fluide dépend de son volume, de sa forme et de son poids.

Les théories de la physique des aérosols sont le plus souvent établies pour des particules sphériques. Toutefois, dans la plupart des cas, une particule que l'on rencontre dans l'air n'a pas cette géométrie de référence. Le problème se pose alors de définir une dimension de référence qui permette de rendre compte de ses dimensions réelles ou de son comportement dynamique.

On définit ainsi différents diamètres, dont le plus important en termes de transfert est le diamètre aérodynamique d_{ae} , qui est défini comme le diamètre d'une sphère de densité $\rho_0 = 1$ ayant la même vitesse limite de chute que la particule réelle. Le diamètre physique équivalent d_p de la particule peut être déduit de son poids et de sa masse volumique ρ_p , lesquels permettent de calculer son volume et par la même le diamètre d'une sphère occupant ce même volume.

Cette définition nécessite l'introduction d'un facteur correctif supplémentaire appelé facteur de forme dynamique, lequel prend la valeur 1 dans le cas d'une sphère, $\chi = 1$, et augmente d'autant plus que la forme de la particule s'éloigne de la forme sphérique. Dans le cas de l'aérosol nucléaire, on estime que $1 < \chi < 1,5$).

$$d_{ae} = d_p \sqrt{\frac{\rho_p}{\chi}}$$

On s'intéresse généralement à une population d'aérosols présentant une hétérogénéité de dimension. Il est d'usage de représenter cette population en considérant une distribution suivant une loi log normale.

Références

[Allen, 1975] Allen T. Particle size measurement. Chapman and Hall, Londres, 1975

[CIPR 30, 1979] ICRP Publication 30, Limits for intakes of radionuclides by workers. Publication 30, Part 1, Pergamon Press, Oxford, Annals of the ICRP 3/4, 1979.

XI ANNEXE 3 : COEFFICIENTS DE DOSE

Les coefficients de dose efficace par exposition directe au nuage et par exposition externe aux dépôts au sol proviennent du rapport Federal Guidance n°12 [Eckerman, 1993].

Les coefficients de dose efficace par inhalation (DAMA de 1 μm) et par ingestion pour les membres du public proviennent de l'arrêté du 1^{er} septembre 2003 [BO, 2003a].

Les coefficients de dose efficace par inhalation (DAMA de 1 et 5 μm) et par ingestion pour les travailleurs proviennent de l'arrêté du 1^{er} septembre 2003 [BO, 2003a].

Les coefficients de dose efficace pour d'autres DAMA pour les membres du public, ainsi que les coefficients de dose aux organes relatifs à la voie inhalation proviennent de la CIPR 71 [CIPR71, 1996]. Les coefficients de dose aux organes relatifs à la voie ingestion proviennent de la CIPR 72 [CIPR72, 1996].

XI.1 COEFFICIENTS DE DOSE EXTERNE

| Isotope | Exp. panache | Exp. dépôt |
|-------------------|---|---|
| | (Sv.s ⁻¹)/(Bq.m ⁻³) | (Sv.s ⁻¹)/(Bq.m ⁻²) |
| ²³⁴ Pu | 2,85.10 ⁻¹⁵ | 6,26.10 ⁻¹⁷ |
| ²³⁵ Pu | 3,92.10 ⁻¹⁵ | 8,65.10 ⁻¹⁷ |
| ²³⁶ Pu | 6,35.10 ⁻¹⁸ | 9,81.10 ⁻¹⁹ |
| ²³⁷ Pu | 2,02.10 ⁻¹⁵ | 4,65.10 ⁻¹⁷ |
| ²³⁸ Pu | 4,88.10 ⁻¹⁸ | 8,38.10 ⁻¹⁹ |
| ²³⁹ Pu | 4,24.10 ⁻¹⁸ | 3,67.10 ⁻¹⁹ |
| ²⁴⁰ Pu | 4,75.10 ⁻¹⁸ | 8,03.10 ⁻¹⁹ |
| ²⁴¹ Pu | 2,19.10 ⁻¹⁹ | 5,19.10 ⁻²¹ |
| ²⁴¹ Am | 8,18.10 ⁻¹⁶ | 2,75.10 ⁻¹⁷ |
| ²⁴² Pu | 4,01.10 ⁻¹⁸ | 6,67.10 ⁻¹⁹ |
| ²⁴³ Pu | 1,03.10 ⁻¹⁵ | 2,41.10 ⁻¹⁷ |
| ²⁴⁴ Pu | 4,23.10 ⁻¹⁷ | 4,79.10 ⁻¹⁸ |
| ²⁴⁵ Pu | 2,17.10 ⁻¹⁴ | 4,43.10 ⁻¹⁶ |
| ²⁴⁶ Pu | 3,89.10 ⁻¹⁴ | 8,09.10 ⁻¹⁶ |

Tableau XI-1 : Coefficients de dose externe, valables quelle que soit la classe d'âge

XI.2 COEFFICIENTS DE DOSE INTERNE - EFFICACE

XI.2.1 COEFFICIENTS DE DOSE PAR INHALATION

3 "clairance" sont proposées dans le cas des isotopes du plutonium

1. forme M correspondant aux types d'absorption pulmonaire recommandés par la CIPR 71 [CIPR 71, 1996] pour le nitrate de Pu, le tributyl-phosphate de Pu mais aussi des oxydes mixtes de Pu avec du sodium, potassium, calcium ou magnésium, et par défaut pour les isotopes du plutonium dont la forme chimique est inconnue
2. forme S correspondant aux oxydes et oxydes mixtes de Pu et U
3. forme F aucune forme de plutonium n'y est associée

| Isotope | Voie inhalation | | | | | | | | | | | |
|-------------------|------------------|-------------------|---------------------|---------|------------------|-------------------|---------------------|---------|------------------|-------------------|---------------------|---------|
| | <i>1 μm - F</i> | | | | <i>1 μm - M</i> | | | | <i>1 μm - S</i> | | | |
| | Bébé (3 mois) | Enfant de 1 an | Enfant de 10 ans | Adulte | Bébé (3 mois) | Enfant de 1 an | Enfant de 10 ans | Adulte | Bébé (3 mois) | Enfant de 1 an | Enfant de 10 ans | Adulte |
| ²⁴¹ Am | 1.8E-04 | 1.8E-04 | 1.0E-04 | 9.6E-05 | 7.3E-05 | 6.9E-05 | 4.0E-05 | 4.2E-05 | 4.6E-05 | 4.0E-05 | 1.9E-05 | 1.6E-05 |
| ²³⁴ Pu | 3.0E-08 | 2.0E-08 | 5.7E-09 | 3.0E-09 | 7.8E-08 | 5.9E-08 | 2.8E-08 | 2.1E-08 | 8.7E-08 | 6.6E-08 | 3.1E-08 | 2.4E-08 |
| ²³⁵ Pu | 1.0E-11 | 7.9E-12 | 2.2E-12 | 1.0E-12 | 1.3E-11 | 1.0E-11 | 2.9E-12 | 1.4E-12 | 1.3E-11 | 1.0E-11 | 3.0E-12 | 1.5E-12 |
| ²³⁶ Pu | 1.0E-04 | 9.5E-05 | 4.4E-05 | 4.0E-05 | 4.8E-05 | 4.3E-05 | 2.1E-05 | 2.0E-05 | 3.6E-05 | 3.1E-05 | 1.4E-05 | 1.0E-05 |
| ²³⁷ Pu | 2.2E-09 | 1.6E-09 | 4.8E-10 | 2.6E-10 | 1.9E-09 | 1.4E-09 | 5.4E-10 | 3.5E-10 | 2.0E-09 | 1.5E-09 | 5.9E-10 | 3.9E-10 |
| ²³⁸ Pu | 2.0E-04 | 1.9E-04 | 1.1E-04 | 1.1E-04 | 7.8E-05 | 7.4E-05 | 4.4E-05 | 4.6E-05 | 4.5E-05 | 4.0E-05 | 1.9E-05 | 1.6E-05 |
| ²³⁹ Pu | 2.1E-04 | 2.0E-04 | 1.2E-04 | 1.2E-04 | 8.0E-05 | 7.7E-05 | 4.8E-05 | 5.0E-05 | 4.3E-05 | 3.9E-05 | 1.9E-05 | 1.6E-05 |
| ²⁴⁰ Pu | 2.1E-04 | 2.0E-04 | 1.2E-04 | 1.2E-04 | 8.0E-05 | 7.7E-05 | 4.8E-05 | 5.0E-05 | 4.3E-05 | 3.9E-05 | 1.9E-05 | 1.6E-05 |
| ²⁴¹ Pu | 2.8E-06 | 2.9E-06 | 2.4E-06 | 2.3E-06 | 9.1E-07 | 9.7E-07 | 8.3E-07 | 9.0E-07 | 2.2E-07 | 2.3E-07 | 1.7E-07 | 1.7E-07 |
| ²⁴² Pu | 2.0E-04 | 1.9E-04 | 1.2E-04 | 1.1E-04 | 7.6E-05 | 7.3E-05 | 4.5E-05 | 4.8E-05 | 4.0E-05 | 3.6E-05 | 1.7E-05 | 1.5E-05 |
| ²⁴³ Pu | 2.7E-10 | 1.9E-10 | 5.7E-11 | 3.2E-11 | 5.6E-10 | 3.9E-10 | 1.3E-10 | 8.3E-11 | 6.0E-10 | 4.1E-10 | 1.4E-10 | 8.6E-11 |
| ²⁴⁴ Pu | 2.0E-04 | 1.9E-04 | 1.2E-04 | 1.1E-04 | 7.4E-05 | 7.2E-05 | 4.5E-05 | 4.7E-05 | 3.9E-05 | 3.5E-05 | 1.7E-05 | 1.5E-05 |
| ²⁴⁵ Pu | 1.8E-09 | 1.3E-09 | 3.5E-10 | 1.6E-10 | 3.6E-09 | 2.5E-09 | 8.0E-10 | 4.0E-10 | 3.8E-09 | 2.6E-09 | 8.5E-10 | 4.3E-10 |
| ²⁴⁶ Pu | 2.0E-08 | 1.4E-08 | 4.4E-09 | 2.5E-09 | 3.5E-08 | 2.6E-08 | 1.1E-08 | 7.4E-09 | 3.8E-08 | 2.8E-08 | 1.2E-08 | 8.0E-09 |

Tableau XI-2 : Coefficients de dose efficace par inhalation pour le public (Sv.Bq⁻¹) – DAMA = 1 μm [BO, 2003a]

| Isotope | Voie inhalation | | | | | | | | | | | |
|-------------------|------------------|-------------------|---------------------|---------|------------------|-------------------|---------------------|---------|------------------|-------------------|---------------------|---------|
| | <i>5 μm - F</i> | | | | <i>5 μm - M</i> | | | | <i>5 μm - S</i> | | | |
| | Bébé (3 mois) | Enfant de 1 an | Enfant de 10 ans | Adulte | Bébé (3 mois) | Enfant de 1 an | Enfant de 10 ans | Adulte | Bébé (3 mois) | Enfant de 1 an | Enfant de 10 ans | Adulte |
| ²⁴¹ Am | 1.9E-04 | 1.8E-04 | 1.2E-04 | 1.2E-04 | 3.9E-05 | 3.7E-05 | 2.7E-05 | 3.1E-05 | 2.7E-05 | 2.3E-05 | 1.3E-05 | 1.0E-05 |
| ²³⁴ Pu | 3.0E-08 | 2.0E-08 | 6.5E-09 | 3.6E-09 | 4.4E-08 | 3.0E-08 | 2.0E-08 | 1.8E-08 | 4.7E-08 | 3.3E-08 | 2.3E-08 | 2.1E-08 |
| ²³⁵ Pu | 1.6E-11 | 1.2E-11 | 3.8E-12 | 1.9E-12 | 1.9E-11 | 1.5E-11 | 4.7E-12 | 2.5E-12 | 2.0E-11 | 1.5E-11 | 4.9E-12 | 2.6E-12 |
| ²³⁶ Pu | 1.1E-04 | 9.5E-05 | 5.1E-05 | 4.8E-05 | 2.5E-05 | 2.2E-05 | 1.4E-05 | 1.5E-05 | 2.0E-05 | 1.8E-05 | 9.9E-06 | 8.5E-06 |
| ²³⁷ Pu | 2.4E-09 | 1.6E-09 | 5.7E-10 | 3.3E-10 | 1.5E-09 | 1.1E-09 | 4.8E-10 | 2.8E-10 | 1.4E-09 | 1.1E-09 | 4.9E-10 | 3.0E-10 |
| ²³⁸ Pu | 2.0E-04 | 1.9E-04 | 1.3E-04 | 1.3E-04 | 4.2E-05 | 4.0E-05 | 3.0E-05 | 3.4E-05 | 2.5E-05 | 2.3E-05 | 1.3E-05 | 1.0E-05 |
| ²³⁹ Pu | 2.1E-04 | 2.0E-04 | 1.4E-04 | 1.4E-04 | 4.3E-05 | 4.1E-05 | 3.3E-05 | 3.7E-05 | 2.4E-05 | 2.2E-05 | 1.3E-05 | 1.0E-05 |
| ²⁴⁰ Pu | 2.1E-04 | 2.0E-04 | 1.4E-04 | 1.4E-04 | 4.3E-05 | 4.1E-05 | 3.3E-05 | 3.7E-05 | 2.4E-05 | 2.2E-05 | 1.3E-05 | 1.0E-05 |
| ²⁴¹ Pu | 2.9E-06 | 2.9E-06 | 2.7E-06 | 2.8E-06 | 5.2E-07 | 5.4E-07 | 5.7E-07 | 6.6E-07 | 8.0E-08 | 8.6E-08 | 8.7E-08 | 1.0E-07 |
| ²⁴² Pu | 2.0E-04 | 1.9E-04 | 1.4E-04 | 1.4E-04 | 4.1E-05 | 3.9E-05 | 3.1E-05 | 3.5E-05 | 2.2E-05 | 2.0E-05 | 1.2E-05 | 9.4E-06 |
| ²⁴³ Pu | 4.1E-10 | 2.8E-10 | 9.1E-11 | 5.3E-11 | 7.0E-10 | 4.7E-10 | 1.7E-10 | 1.1E-10 | 7.3E-10 | 4.9E-10 | 1.8E-10 | 1.2E-10 |
| ²⁴⁴ Pu | 2.0E-04 | 1.9E-04 | 1.3E-04 | 1.4E-04 | 4.0E-05 | 3.8E-05 | 3.0E-05 | 3.4E-05 | 2.2E-05 | 2.0E-05 | 1.2E-05 | 9.0E-06 |
| ²⁴⁵ Pu | 2.7E-09 | 1.9E-09 | 5.8E-10 | 2.9E-10 | 4.5E-09 | 3.1E-09 | 1.1E-09 | 6.3E-10 | 4.8E-09 | 3.3E-09 | 1.1E-09 | 6.7E-10 |
| ²⁴⁶ Pu | 2.3E-08 | 1.6E-08 | 5.6E-09 | 3.3E-09 | 3.0E-08 | 2.3E-08 | 9.4E-09 | 7.1E-09 | 3.1E-08 | 2.4E-08 | 1.0E-08 | 7.7E-09 |

Tableau XI-3 : Coefficients de dose efficace par inhalation pour le public (Sv.Bq⁻¹) – DAMA = 5 μm [CIPR 71, 1996]

XI.2.2 COEFFICIENTS DE DOSE PAR INGESTION

| Isotope | Ingestion | | | |
|-------------------|------------------|-------------------|---------------------|---------|
| | Bébé (3 mois) | Enfant de 1 an | Enfant de 10 ans | Adulte |
| ²⁴¹ Am | 3.7E-06 | 3.7E-07 | 2.2E-07 | 2.0E-07 |
| ²³⁴ Pu | 2.1E-09 | 1.1E-09 | 3.3E-10 | 1.6E-10 |
| ²³⁵ Pu | 2.2E-11 | 1.3E-11 | 3.9E-12 | 2.1E-12 |
| ²³⁶ Pu | 2.1E-06 | 2.2E-07 | 1.0E-07 | 8.7E-08 |
| ²³⁷ Pu | 1.1E-09 | 6.9E-10 | 2.2E-10 | 1.0E-10 |
| ²³⁸ Pu | 4.0E-06 | 4.0E-07 | 2.4E-07 | 2.3E-07 |
| ²³⁹ Pu | 4.2E-06 | 4.2E-07 | 2.7E-07 | 2.5E-07 |
| ²⁴⁰ Pu | 4.2E-06 | 4.2E-07 | 2.7E-07 | 2.5E-07 |
| ²⁴¹ Pu | 5.6E-08 | 5.7E-09 | 5.1E-09 | 4.8E-09 |
| ²⁴² Pu | 4.0E-06 | 4.0E-07 | 2.6E-07 | 2.4E-07 |
| ²⁴³ Pu | 1.0E-09 | 6.2E-10 | 1.8E-10 | 8.5E-11 |
| ²⁴⁴ Pu | 4.0E-06 | 4.1E-07 | 2.6E-07 | 2.4E-07 |
| ²⁴⁵ Pu | 8.0E-09 | 5.1E-09 | 1.5E-09 | 7.2E-10 |
| ²⁴⁶ Pu | 3.6E-08 | 2.3E-08 | 7.1E-09 | 3.3E-09 |

Tableau XI-4 : Coefficients de dose par ingestion (Sv.Bq⁻¹) pour le public [BO, 2003a]

XI.3 COEFFICIENTS DE DOSE PAR INHALATION PAR ORGANE CIBLE POUR DIFFERENTES CLASSES D'AGE

| Isotope | Organe | Adulte | | Enfant 1 an | | Enfant 10 ans | |
|-------------------|-----------------|-------------------|-----------|-------------------|-----------|-------------------|-----------|
| | | Inhalation (M) | Ingestion | Inhalation (M) | Ingestion | Inhalation (M) | Ingestion |
| ²³⁴ Pu | surface osseuse | 1.3E-08 | 1.7E-10 | 6.8E-08 | 9.5E-10 | 2.3E-08 | 3.3E-10 |
| | foie | 2.4E-09 | 3.6E-11 | 4.7E-09 | 1.2E-10 | 2.8E-09 | 5.7E-11 |
| | ovaires | 1.8E-10 | 9.3E-11 | 5.7E-10 | 4.6E-10 | 3.5E-10 | 1.8E-10 |
| | poumons | 1.7E-07 | 2.4E-12 | 4.6E-07 | 2.1E-11 | 2.2E-07 | 5.8E-12 |
| | testicules | 1.7E-10 | 1.0E-11 | 4.9E-10 | 6.4E-11 | 3.0E-10 | 2.4E-11 |
| ²³⁵ Pu | surface osseuse | 4.7E-13 | 2.0E-13 | 1.8E-12 | 1.2E-12 | 6.6E-13 | 3.8E-13 |
| | foie | 1.6E-13 | 2.1E-13 | 7.5E-13 | 1.7E-12 | 2.7E-13 | 5.4E-13 |
| | ovaires | 9.3E-14 | 6.2E-13 | 7.0E-13 | 3.3E-12 | 2.2E-13 | 1.2E-12 |
| | poumons | 3.6E-12 | 1.1E-13 | 1.1E-11 | 7.0E-13 | 4.9E-12 | 2.4E-13 |
| | testicules | 1.3E-14 | 1.8E-14 | 1.1E-13 | 2.8E-13 | 3.1E-14 | 6.7E-14 |
| ²³⁶ Pu | surface osseuse | 4.9E-04 | 2.6E-06 | 5.6E-04 | 3.5E-06 | 3.7E-04 | 2.3E-06 |
| | foie | 1.0E-04 | 5.5E-07 | 1.6E-04 | 9.5E-07 | 1.0E-04 | 6.4E-07 |
| | ovaires | 6.3E-06 | 3.4E-08 | 9.4E-06 | 5.7E-08 | 7.5E-06 | 4.7E-08 |
| | poumons | 3.7E-05 | 4.7E-09 | 1.2E-04 | 2.1E-08 | 5.1E-05 | 8.0E-09 |
| | testicules | 6.4E-06 | 3.5E-08 | 1.1E-05 | 6.9E-08 | 7.5E-06 | 4.5E-08 |
| ²³⁷ Pu | surface osseuse | 1.1E-09 | 2.1E-11 | 5.3E-09 | 1.2E-10 | 1.8E-09 | 4.0E-11 |
| | foie | 3.0E-10 | 7.4E-12 | 6.2E-10 | 4.5E-11 | 3.6E-10 | 1.6E-11 |
| | ovaires | 3.9E-11 | 6.9E-11 | 2.0E-10 | 4.1E-10 | 7.9E-11 | 1.5E-10 |
| | poumons | 2.3E-09 | 7.9E-13 | 7.8E-09 | 9.0E-12 | 3.2E-09 | 2.3E-12 |
| | testicules | 1.7E-11 | 4.8E-12 | 6.2E-11 | 3.8E-11 | 3.2E-11 | 1.2E-11 |

| Isotope | Organe | Adulte | | Enfant 1 an | | Enfant 10 ans | |
|-------------------|-----------------|----------------|-----------|----------------|-----------|----------------|-----------|
| | | Inhalation (M) | Ingestion | Inhalation (M) | Ingestion | Inhalation (M) | Ingestion |
| ²³⁸ Pu | surface osseuse | 1.4E-03 | 7.4E-06 | 1.2E-03 | 6.9E-06 | 9.8E-04 | 5.9E-06 |
| | foie | 2.9E-04 | 1.6E-06 | 4.1E-04 | 2.4E-06 | 2.9E-04 | 1.8E-06 |
| | ovaires | 1.8E-05 | 9.7E-08 | 2.5E-05 | 1.4E-07 | 2.1E-05 | 1.3E-07 |
| | poumons | 3.7E-05 | 1.3E-08 | 1.2E-04 | 4.5E-08 | 5.1E-05 | 2.0E-08 |
| | testicules | 1.9E-05 | 9.9E-08 | 2.8E-05 | 1.7E-07 | 1.9E-05 | 1.1E-07 |
| ²³⁹ Pu | surface osseuse | 1.5E-03 | 8.2E-06 | 1.3E-03 | 7.6E-06 | 1.1E-03 | 6.8E-06 |
| | foie | 3.3E-04 | 1.7E-06 | 4.5E-04 | 2.7E-06 | 3.2E-04 | 2.0E-06 |
| | ovaires | 2.0E-05 | 1.1E-07 | 2.7E-05 | 1.6E-07 | 2.3E-05 | 1.4E-07 |
| | poumons | 3.3E-05 | 1.4E-08 | 1.1E-04 | 4.8E-08 | 4.6E-05 | 2.3E-08 |
| | testicules | 2.1E-05 | 1.1E-07 | 3.0E-05 | 1.8E-07 | 2.1E-05 | 1.2E-07 |
| ²⁴⁰ Pu | surface osseuse | 1.5E-03 | 8.2E-06 | 1.3E-03 | 7.6E-06 | 1.1E-03 | 6.8E-06 |
| | foie | 3.3E-04 | 1.7E-06 | 4.5E-04 | 2.7E-06 | 3.2E-04 | 2.0E-06 |
| | ovaires | 2.0E-05 | 1.1E-07 | 2.7E-05 | 1.6E-07 | 2.3E-05 | 1.4E-07 |
| | poumons | 3.3E-05 | 1.4E-08 | 1.1E-04 | 4.8E-08 | 4.6E-05 | 2.3E-08 |
| | testicules | 2.1E-05 | 1.1E-07 | 3.0E-05 | 1.8E-07 | 2.1E-05 | 1.2E-07 |
| ²⁴¹ Pu | surface osseuse | 3.1E-05 | 1.6E-07 | 2.2E-05 | 1.2E-07 | 2.4E-05 | 1.4E-07 |
| | foie | 6.5E-06 | 3.4E-08 | 8.0E-06 | 4.6E-08 | 6.5E-06 | 3.9E-08 |
| | ovaires | 4.1E-07 | 2.2E-09 | 4.8E-07 | 2.8E-09 | 4.5E-07 | 2.7E-09 |
| | poumons | 6.6E-08 | 3.0E-10 | 1.7E-07 | 7.6E-10 | 8.9E-08 | 4.6E-10 |
| | testicules | 4.2E-07 | 2.2E-09 | 4.8E-07 | 2.8E-09 | 4.0E-07 | 2.4E-09 |
| ²⁴² Pu | surface osseuse | 1.5E-03 | 7.8E-06 | 1.2E-03 | 7.2E-06 | 1.1E-03 | 6.5E-06 |
| | foie | 3.1E-04 | 1.6E-06 | 4.3E-04 | 2.5E-06 | 3.1E-04 | 1.9E-06 |
| | ovaires | 1.9E-05 | 1.0E-07 | 2.6E-05 | 1.5E-07 | 2.2E-05 | 1.3E-07 |
| | poumons | 3.1E-05 | 1.4E-08 | 1.0E-04 | 4.6E-08 | 4.3E-05 | 2.2E-08 |
| | testicules | 2.0E-05 | 1.0E-07 | 2.9E-05 | 1.7E-07 | 2.0E-05 | 1.2E-07 |
| ²⁴³ Pu | surface osseuse | 1.3E-10 | 1.5E-12 | 1.2E-10 | 5.4E-12 | 9.5E-11 | 1.7E-12 |
| | foie | 2.7E-11 | 7.7E-13 | 4.0E-11 | 5.3E-12 | 2.7E-11 | 1.7E-12 |
| | ovaires | 2.7E-12 | 4.5E-12 | 9.8E-12 | 2.3E-11 | 4.2E-12 | 8.9E-12 |
| | poumons | 4.2E-10 | 1.2E-13 | 1.1E-09 | 1.2E-12 | 5.5E-10 | 3.2E-13 |
| | testicules | 1.9E-12 | 1.9E-13 | 4.5E-12 | 2.0E-12 | 2.3E-12 | 5.4E-13 |
| ²⁴⁴ Pu | surface osseuse | 1.5E-03 | 7.7E-06 | 1.2E-03 | 7.1E-06 | 1.1E-03 | 6.4E-06 |
| | foie | 3.1E-04 | 1.6E-06 | 4.3E-04 | 2.5E-06 | 3.0E-04 | 1.9E-06 |
| | ovaires | 1.9E-05 | 1.0E-07 | 2.5E-05 | 1.5E-07 | 2.2E-05 | 1.3E-07 |
| | poumons | 2.9E-05 | 1.4E-08 | 9.5E-05 | 4.6E-08 | 4.0E-05 | 2.2E-08 |
| | testicules | 2.0E-05 | 1.0E-07 | 2.8E-05 | 1.7E-07 | 2.0E-05 | 1.2E-07 |
| ²⁴⁵ Pu | surface osseuse | 2.5E-10 | 1.4E-11 | 1.3E-10 | 7.1E-11 | 2.1E-10 | 1.3E-11 |
| | foie | 6.5E-11 | 1.8E-11 | 8.1E-11 | 1.3E-10 | 7.8E-11 | 1.8E-11 |
| | ovaires | 3.0E-11 | 1.3E-10 | 1.8E-10 | 6.3E-10 | 6.4E-11 | 5.9E-11 |
| | poumons | 2.1E-09 | 3.7E-12 | 5.9E-09 | 3.1E-11 | 2.8E-09 | 3.1E-09 |
| | testicules | 7.0E-12 | 9.6E-12 | 3.3E-11 | 7.6E-11 | 1.3E-11 | 5.8E-12 |
| ²⁴⁶ Pu | surface osseuse | 1.3E-08 | 1.8E-10 | 2.7E-08 | 7.7E-10 | 1.3E-08 | 2.5E-10 |
| | foie | 3.3E-09 | 1.0E-10 | 5.8E-09 | 5.9E-10 | 3.6E-09 | 2.0E-10 |
| | ovaires | 4.1E-10 | 8.9E-10 | 1.9E-09 | 4.7E-09 | 7.7E-10 | 1.8E-09 |
| | poumons | 5.1E-08 | 1.4E-11 | 1.5E-07 | 1.4E-10 | 6.8E-08 | 3.7E-11 |
| | testicules | 2.2E-10 | 8.1E-11 | 6.3E-10 | 5.8E-10 | 3.2E-10 | 1.9E-10 |

| Isotope | Organe | Adulte | | Enfant 1 an | | Enfant 10 ans | |
|-------------------|-----------------|----------------|-----------|----------------|-----------|----------------|-----------|
| | | Inhalation (M) | Ingestion | Inhalation (M) | Ingestion | Inhalation (M) | Ingestion |
| ²⁴¹ Am | surface osseuse | 1.7E-03 | 9.0E-06 | 1.4E-03 | 8.3E-06 | 1.2E-03 | 7.3E-06 |
| | foie | 1.0E-04 | 5.5E-07 | 1.5E-04 | 8.8E-07 | 9.9E-05 | 6.1E-07 |
| | ovaires | 3.3E-05 | 1.8E-07 | 3.9E-05 | 2.3E-07 | 3.4E-05 | 2.1E-07 |
| | poumons | 3.7E-05 | 1.5E-08 | 1.2E-04 | 3.9E-08 | 5.1E-05 | 2.2E-08 |
| | testicules | 3.3E-05 | 1.7E-07 | 4.2E-05 | 2.5E-07 | 3.2E-05 | 1.9E-07 |

Tableau XI-5 : Coefficients de dose aux organes par inhalation et ingestion pour le public – DAMA = 1 µm, classe "M" [CIPR 71, 1996 ; CIPR 72, 1996]

XI.4 COEFFICIENTS DE DOSE POUR LES TRAVAILLEURS

Les coefficients de dose efficace incorporée par ingestion et inhalation pour les travailleurs [BO, 2003a] sont répertoriés dans le Tableau XI-6 suivant :

| forme | Dose efficace (Sv/Bq incorporé) | | | |
|-------------------|---------------------------------|-----------------------|-------------------------|-------------------------|
| | Inhalation – 5 µm | | Ingestion | |
| | M | S | f1=5,0.10 ⁻⁴ | f1=1,0.10 ⁻⁵ |
| ²⁴¹ Am | 2,7.10 ⁻⁵ | - | 2,0.10 ⁻⁷ | - |
| ²³⁴ Pu | 1,6.10 ⁻⁸ | 1,8.10 ⁻⁸ | 1,6.10 ⁻¹⁰ | 1,5.10 ⁻¹⁰ |
| ²³⁵ Pu | 2,5.10 ⁻¹² | 2,6.10 ⁻¹² | 2,1.10 ⁻¹² | 2,1.10 ⁻¹² |
| ²³⁶ Pu | 1,3.10 ⁻⁵ | 7,4.10 ⁻⁶ | 8,6.10 ⁻⁸ | 6,3.10 ⁻⁹ |
| ²³⁷ Pu | 2,9.10 ⁻¹⁰ | 3,0.10 ⁻¹⁰ | 1,0.10 ⁻¹⁰ | 1,0.10 ⁻¹⁰ |
| ²³⁸ Pu | 3,0.10 ⁻⁵ | 1,1.10 ⁻⁵ | 2,3.10 ⁻⁷ | 8,8.10 ⁻⁹ |
| ²³⁹ Pu | 3,2.10 ⁻⁵ | 8,3.10 ⁻⁶ | 2,5.10 ⁻⁷ | 9,0.10 ⁻⁹ |
| ²⁴⁰ Pu | 3,2.10 ⁻⁵ | 8,3.10 ⁻⁶ | 2,5.10 ⁻⁷ | 9,0.10 ⁻⁹ |
| ²⁴¹ Pu | 5,8.10 ⁻⁷ | 8,4.10 ⁻⁸ | 4,7.10 ⁻⁹ | 1,1.10 ⁻¹⁰ |
| ²⁴² Pu | 3,1.10 ⁻⁵ | 7,7.10 ⁻⁶ | 2,4.10 ⁻⁷ | 8,6.10 ⁻⁹ |
| ²⁴³ Pu | 1,1.10 ⁻¹⁰ | 1,1.10 ⁻¹⁰ | 8,5.10 ⁻¹¹ | 8,5.10 ⁻¹¹ |
| ²⁴⁴ Pu | 3,0.10 ⁻⁵ | 7,4.10 ⁻⁶ | 2,4.10 ⁻⁷ | 1,1.10 ⁻⁸ |
| ²⁴⁵ Pu | 6,1.10 ⁻¹⁰ | 6,5.10 ⁻¹⁰ | 7,2.10 ⁻¹⁰ | 7,2.10 ⁻¹⁰ |
| ²⁴⁶ Pu | 6,5.10 ⁻⁹ | 7,0.10 ⁻⁹ | 3,3.10 ⁻⁹ | 3,3.10 ⁻⁹ |

Tableau XI-6 : Coefficients de dose incorporée pour les travailleurs par inhalation (DAMA = 5 µm) et par ingestion [BO, 2003a]

XI.5 DEBITS RESPIRATOIRES EN FONCTION DE L'AGE ET DU SEXE

Débit respiratoire en fonction de l'âge et du sexe

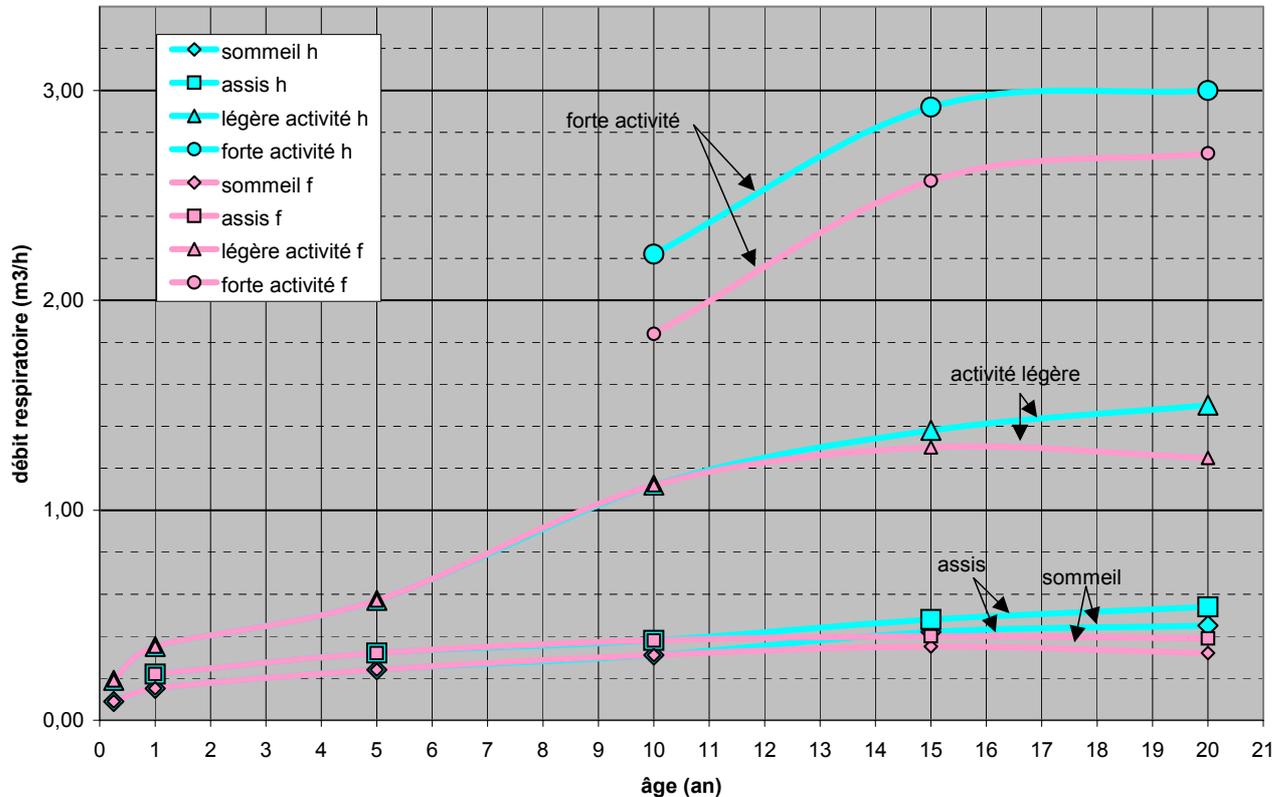


Figure XI-1 : Débits respiratoires en fonction de l'âge, du sexe et de l'activité

XI.6 REFERENCES

- [BO, 2003a] Arrêté du 1er septembre 2003 définissant les modalités de calcul des doses efficaces et des doses équivalentes résultant de l'exposition des personnes aux rayonnements ionisants. Bulletin Officiel BO 2003-46, novembre 2003.
- [Eckerman, 1993] Eckerman K.F., Ryman J.C. - External exposure to radionuclides in air, water and soil. Federal guidance report 12-EPA 402-R-93-081, 1993.
- [CIPR 71, 1996] ICRP Publication 71: The ICRP database of dose coefficients. Age-dependant doses to the members of the public from intake of radionuclides. Part 4: inhalation dose coefficients. Pergamon Press, 1996.
- [CIPR 72, 1996] ICRP Publication 72: The ICRP database of dose coefficients. Age-dependant doses to the members of the public from intake of radionuclides. Part 5: Compilation of ingestion and inhalation coefficients. Pergamon Press, 1996.

XII ANNEXE 4 : PHENOMENOLOGIE D'UN ACCIDENT DE CRITICITE

L'accident de criticité n'a aucun signe précurseur. Il ne peut être détecté qu'une fois l'excursion critique produite. Il peut durer quelques secondes (flash) à plusieurs jours.

D'une manière générale, le déroulement d'une excursion critique accidentelle est régi par :

- la quantité de matières fissiles présente,
- l'échauffement de la matière fissile,
- la variation de la densité du milieu,
- les échanges thermiques avec l'environnement,
- la formation de bulles de radiolyse et de vapeur (ébullition) en présence de solution aqueuse.

Lorsqu'une réaction en chaîne divergente s'établit, on observe une évolution exponentielle de la puissance (nombre de neutrons par unité de temps). Cette excursion de puissance est accompagnée de libération d'énergie que l'on retrouve principalement sous forme thermique. Ceci entraîne généralement l'apparition de mécanismes de contre réaction qui peuvent arrêter l'excursion critique.

Si l'accident de criticité survient dans une solution aqueuse de matières fissiles, on observe la formation de bulles de gaz de radiolyse résultant de l'action des particules sur les molécules d'eau et/ou de bulles de vapeurs (quand il y a ébullition). Par effet de vide et migration des bulles vers la surface, le milieu revient alors à un état sous-critique, entraînant la disparition des bulles de gaz. Le refroidissement de la solution permet alors à la réaction en chaîne de redémarrer. On peut ainsi observer une succession de pics de réactivité.

Ainsi, lorsque les mécanismes de contre-réaction contrebalancent la réactivité initiatrice de l'accident, on peut se trouver confronté à plusieurs types de situations post-accidentelles :

- le système divergent redevient définitivement sous-critique par suite d'une variation de la configuration (éjection de la matière fissile dans un récipient ouvert par exemple),
- le système est provisoirement rendu sous-critique par suite de l'échauffement de la matière fissile, auquel cas la réaction divergente est appelée à redémarrer dans un intervalle de temps plus ou moins long, en fonction des échanges thermiques avec le milieu environnant. Lorsque la température d'ébullition est atteinte, le phénomène d'évaporation de l'eau ou la reconcentration de la solution fissile conduit à une diminution ou une augmentation de la réactivité du système.

Les risques de tels accidents sont essentiellement liés à la manipulation de matières, soit dans les laboratoires et usines du cycle du combustible nucléaire civil ou de défense, soit dans les réacteurs de recherche.

Le maniement de matières fissiles, comme le plutonium, exige par conséquent le respect de certaines contraintes. Ainsi, des dispositions particulières ont été mises en place dans les installations lors de leurs conceptions et leurs agréments permettant d'écarter ou de rendre fortement improbable le déclenchement d'une réaction en chaîne incontrôlée. Il s'agit par exemple :

- du respect, avec une marge de sécurité suffisante, d'une limite de masse de matière fissile, en deçà de laquelle la réaction en chaîne devient physiquement impossible.
- de l'utilisation d'un équipement de "géométrie sûre", c'est-à-dire un équipement dont les dimensions sont telles que tout démarrage de réaction en chaîne est rendu physiquement impossible, en fonction de la masse de matière fissile présente.

Conscients que le risque de criticité existe dans toute installation nucléaire manipulant de la matière fissile, les exploitants nucléaires français le prennent systématiquement en compte dans les analyses de sûreté qu'ils mènent et soumettent pour contrôle et approbation à l'Autorité de Sûreté Nucléaire. Ces analyses permettent de justifier l'absence de risques de criticité lors de l'exploitation de l'installation et de définir les dispositions de conception et d'exploitation qui permettent de garantir la sûreté des installations, en prenant en compte les erreurs humaines possibles. Ces mesures s'accompagnent également d'une sensibilisation et d'une formation des opérateurs au risque de criticité.

Référence

[CEA, 2002] Clefs CEA n°45. L'étude de la phénoménologie des accidents de criticité, 2002.

XIII ANNEXE 5 : HYPOTHESES DE CALCUL UTILISEES

Les calculs d'impact dosimétrique présentés au paragraphe VI sont réalisés avec la plateforme CERES [Monfort, 2006].

REJET

Le rejet traité est ponctuel dans l'espace, à débit et direction constants, et effectué à une hauteur nulle.

L'impact environnemental et sanitaire est évalué dans l'axe du vent à une hauteur nulle ($z=0$ m) et à une distance de 1 km du point de rejet.

CONDITIONS METEOROLOGIQUES

Plusieurs conditions météorologiques ont été utilisées pour réaliser les calculs d'impact présentés au paragraphe VI. Elles sont présentées dans le Tableau XIII-1.

| Dénomination | Vitesse du vent | Type de diffusion | Hauteur de diffusion | Intensité de pluie (mm.h^{-1}) | Hauteur de pluie (mm) |
|--------------|----------------------|-------------------|----------------------|---|-----------------------|
| DF2 | 2 m.s^{-1} | Faible | 200 m | 0 | 0 |
| DN5 | 5 m.s^{-1} | Normale | 1000 m | 0 | 0 |
| DN5p2mm | 5 m.s^{-1} | Normale | 1000 m | 2 mm.h^{-1} | 2 mm |

Tableau XIII-1 : Conditions météorologiques

La hauteur de diffusion est prise de manière standard à 200 m en diffusion faible et à 1000 m en diffusion normale. La pluie est supposée tomber pendant **toute la durée du rejet**.

Le rejet est supposé ponctuel dans l'espace, à débit et direction constants sur une heure. On ne prend pas en compte les fluctuations de direction de vent sur cette période ("facteur de battement de vent" égal à 1).

DEPOT AU SOL

Les vitesses de dépôt au sol sont présentées dans le Tableau XIII-2. Ces données dépendent du diamètre des particules.

| Diamètre | Temps sec | Pluie de 2 mm/h à 1 km |
|-----------------|------------------------------------|------------------------------------|
| $1 \mu\text{m}$ | $5 \cdot 10^{-3} \text{ m.s}^{-1}$ | $2 \cdot 10^{-2} \text{ m.s}^{-1}$ |
| $5 \mu\text{m}$ | $1 \cdot 10^{-2} \text{ m.s}^{-1}$ | 10^{-1} m.s^{-1} |

Tableau XIII-2 : Vitesse de dépôt au sol

De manière pénalisante, le facteur d'irradiation externe et le taux de présence, qui pondèrent la dose due au dépôt au sol, ont été pris égaux à 1.

DONNEES HUMAINES

Deux groupes cibles d'individus sont considérés : **l'adulte et l'enfant de 1 an**.

Les expositions sont calculées pour des **doses efficaces**. Les coefficients de dose (ou Dose par Unité d'Incorporation – DPUI) sont disponibles pour plusieurs organes.

Le calcul de la dose à la **thyroïde** est sans intérêt pour le plutonium.

La ration alimentaire de chaque classe d'âge est celle utilisée dans les études relatives au centre de Cadarache. Les rations propres à chaque classe d'âge figurent dans le Tableau XIII-3.

| aliment | Adulte | | Enfant de 1 à 2 ans | |
|-----------------|---------------------|-------------------|---------------------|-------------------|
| | kg.an ⁻¹ | g.j ⁻¹ | kg.an ⁻¹ | g.j ⁻¹ |
| salades | 15 | 60 | 6.5 | 26 |
| carottes | 25 | 100 | 13 | 52 |
| tomates | 10 | 40 | 6.5 | 26 |
| pommes | 40 | 160 | 13 | 52 |
| viande (mouton) | 3 | 12 | - | - |
| viande (poulet) | 11 | 44 | 3 | 12 |
| lait (chèvre) | 42 | 168 | - | - |
| œufs | 6 | 24 | 1.5 | 6 |

Tableau XIII-3 : Ration alimentaire des classes d'âge étudiées

Les débits respiratoires utilisés sont ceux retenus en situation accidentelle correspondant au cas pénalisant où l'accident a lieu pendant la journée [CIPR 66, 1994].

| Classe d'âge | Débit respiratoire |
|----------------------|-------------------------------------|
| Adulte (homme/femme) | 1,2 m ³ .h ⁻¹ |
| Enfant de 1 an | 0,3 m ³ .h ⁻¹ |

Tableau XIII-4 : Débit respiratoire classes d'âge étudiées

DONNEES VEGETALES

Le mode de production des végétaux représente un élément essentiel pour évaluer la contamination due à leur ingestion. Deux types de végétaux sont considérés : ceux à récolte unique et ceux à production continue. Les végétaux et leur mode de culture sont caractérisés par plusieurs paramètres qui sont présentés dans le Tableau XIII-5 et le Tableau XIII-6. Les valeurs utilisées sont celles utilisées dans les études relatives au centre CEA de Cadarache.

| | Rdt organes consommés | Durée de croissance | Fin de consommation | Rapport des surfaces | Indice foliaire | % de matière sèche |
|----------|-----------------------|---------------------|---------------------|----------------------|-----------------|--------------------|
| | kg.m ⁻² | jours | jours | | | |
| Salade | 3 | 42 | 42 | 1 | 5 | 8% |
| Carottes | 2.5 | 100 | 360 | | 5 | 16% |
| Tomates | 3 | 30 | 60 | 0.2 | 5 | 6% |
| Pommes | 10 | 60 | 360 | 0.1 | 8 | 16% |
| Herbe | 0.7 | 42 | 42 | 1 | 5 | 10% |
| Foin | 0,3 | 42 | 42 | 1 | 5 | 79% |
| Mais | 1 | 30 | 360 | 10 ⁻² | 7 | 55% |

Tableau XIII-5 : Caractéristiques des végétaux

| Période biologique | | |
|--------------------|----|-------|
| Aérosols | 20 | jours |

Tableau XIII-6 : Période biologique de décroissance des dépôts sur végétaux

DONNEES ANIMALES

L'incorporation par les animaux de l'activité rejetée s'effectue essentiellement par l'ingestion de végétaux (herbes, maïs...). Les consommations quotidiennes et annuelles moyennes des animaux d'élevage à proximité du centre de Cadarache sont présentées dans le Tableau XIII-7.

| | Herbe | | Maïs | | Foin | |
|--------|---------------------|--------------------|---------------------|--------------------|---------------------|--------------------|
| | kg.an ⁻¹ | kg.j ⁻¹ | kg.an ⁻¹ | kg.j ⁻¹ | kg.an ⁻¹ | kg.j ⁻¹ |
| Mouton | 420 | 7 | | | 360 | 3 |
| Chèvre | 420 | 7 | | | 360 | 3 |
| Poule | | | 6 | 0.1 | | |

Tableau XIII-7 : Ration alimentaire des animaux

Dans le cas d'un rejet atmosphérique accidentel, la consommation d'eau contaminée par le bétail n'est pas prise en compte dans les calculs.

REFERENCES

[CIPR 66, 1994] ICRP Publication 66. Human respiratory tract model for radiological protection. ICRP publication 66, Ann. ICRP, 24(1-3), Oxford: Pergamon Press, 1994.

[Monfort, 2006] Présentation de la plate-forme CERES destinée à l'évaluation des conséquences des rejets de radionucléides dans l'atmosphère, Journée SFRP, Les Codes de Calcul en Radioprotection, Radiophysique et Dosimétrie, Novembre 2006, site internet SFRP.