

**DOCUMENT PUBLIC**



## **Contamination des eaux souterraines par des éléments radioactifs**

---

**avril 1996**  
**Rapport BRGM R38471**



Étude réalisée dans le cadre des  
actions de service public du BRGM

95 - D - 421

---

**DOCUMENT PUBLIC**



## **Contamination des eaux souterraines par des éléments radioactifs**

---

**avril 1996  
Rapport BRGM R38471**



Étude réalisée dans le cadre des  
actions de service public du BRGM

95 - D - 421

**BRGM  
SERVICE GEOLOGIQUE NATIONAL  
Utilisation et Protection de l'Espace géologique**  
BP. 6009 - 45060 ORLEANS CEDEX 02 - FRANCE - Tél. (33) 38.64.34.34

## *Contamination des eaux souterraines par des éléments radioactifs*

Mots clés : Isotopes, Radionucléides, Hydrogéologie, Etude Documentaire.

En bibliographie, ce rapport sera cité de la façon suivante :

BARBIER J. (1996) - Contamination des eaux souterraines par des éléments radioactifs. Rapport BRGM R38471, 76 p.

© BRGM 1996, ce document ne peut être reproduit en totalité ou en partie sans l'autorisation expresse du BRGM.

## RESUME

A partir de la documentation disponible sur la contamination des nappes aquifères par des éléments radioactifs, on a réalisé une synthèse sur les mécanismes de migration des radionucléides, pour le compte du Ministère de l'Environnement (Convention "Ressources Ultimes" n° 11/94, notifiée le 26/12/94).

Les polluants potentiels sont nombreux, et essentiellement représentés par les produits de *fission* nucléaire. Les produits d'activation (hors actinides) sont en général à vie courte et ne posent pas de gros problèmes, et le tritium, produit de fusion, n'est pas de toxicité élevée. Les produits de fission sont dans l'ensemble les mêmes en cas d'explosion nucléaire et en cas de fuite à partir d'un réacteur. On distingue souvent les *volatils*, gazeux ou descendants de produits gazeux, et les *réfractaires*. Les premiers sont enrichis dans les émissions aériennes en cas de confinement poussé, ainsi que dans les retombées lointaines. Au contraire les réfractaires sont en plus grande quantité à proximité des sites où s'est produite la fission.

En ce qui concerne la mobilité des radioéléments dans le milieu souterrain, les processus de *sorption* jouent un rôle important. On distingue les éléments à comportement anionique, c'est-à-dire formant en solution des ions simples ou complexes négatifs, et les éléments cationiques, qui forment au contraire des ions positifs. Les premiers (iode, ruthénium), ainsi que les gaz rares, migrent comme l'eau ou comme le tritium ; les seconds au contraire (césium, strontium, baryum, Terres Rares) sont plus ou moins fortement piégés par la matrice des aquifères, qui joue un rôle de filtre. Cette rétention est souvent évaluée en terme de *retard*, en d'autres termes du rapport entre la vitesse de migration de l'élément, et la vitesse de migration de l'eau.

En cas de retombées radioactives, *les nappes les plus vulnérables sont les nappes alluviales*. Les cours d'eau sont contaminés par les retombées, et les radioéléments anioniques n'étant pas freinés migrent de ces cours d'eau vers la nappe, comme le fait l'eau elle-même. Comme ce sont en général des radioisotopes à vie courte, la pollution est aussi de courte durée. *Les nappes phréatiques sont partiellement protégées* par la sorption des radioéléments cationiques au niveau des sols, et par le temps de transit dans la zone non saturée. Cette durée d'infiltration laisse le temps aux radioéléments anioniques comme l'iode, à vie courte, de voir leur concentration très fortement diminuée. Une éventuelle question est la contamination des nappes phréatiques par le ruthénium, qui pourrait durer quelques années. *Les nappes captives profondes* sont selon toute vraisemblance très protégées.

Des exemples de migration de radionucléides dans les eaux de surface ou souterraine, suite à l'accident de Tchernobyl, sont donnés à propos de l'Allemagne du Sud, de la Suisse et de la Russie.

## SOMMAIRE

<b>1. INTRODUCTION</b> .....	10
<b>2. LES SOURCES DOCUMENTAIRES</b> .....	11
2.1. LA METHODE DE RECHERCHE.....	11
2.1.1. Le problème de l'exhaustivité .....	11
2.1.2. La question du chiffrage de la radioactivité.....	11
2.2. L'ORIGINE DES DOCUMENTS.....	12
<b>3. LES RADIOELEMENTS CONTENUS DANS LES RETOMBEES RADIOACTIVES</b> .....	13
3.1. CLASSIFICATION DES RETOMBEES RADIOACTIVES SELON LEUR ORIGINE .....	13
3.2. L'ORIGINE DES RADIONUCLEIDES .....	13
3.2.1. La fusion thermonucléaire.....	13
3.2.2. L'activation neutronique.....	14
3.2.3. La fission nucléaire.....	14
3.2.4. Conclusion.....	14
3.3. LA MIGRATION DES PRODUITS DE FISSION-VOLATILS ET REFRACTAIRES .....	14
3.3.1. Nucléides "volatils".....	14
3.3.2. Nucléides "réfractaires".....	15
3.3.3. Les proportions relatives des "volatils" et des "réfractaires" dans les retombées .....	15
3.3.4. Conclusion.....	15
<b>4. LE COMPORTEMENT DES RADIONUCLEIDES DANS LE MILIEU NATUREL</b> .....	16
4.1. EXPERIMENTATIONS, OBSERVATIONS ET LEURS LIMITES .....	16
4.2. UNE APPROCHE THEORIQUE.....	16
4.3. LA DUREE DE VIE DES RADIONUCLEIDES .....	17
<b>5. LES EXEMPLES DE CONTAMINATION</b> .....	18
5.1 - LE STADE INITIAL .....	18
5.1.1. Le terme-source : les retombées atmosphériques .....	18
5.1.2. Les radionucléides lors de l'infiltration - leur fixation dans le sol et la contamination des nappes superficielles .....	18
5.1.3. La contamination des nappes alluviales par les cours d'eau et l'effet de filtre des berges .....	21
5.1.4. La contamination des boues et des sédiments .....	21

5.2. L'EVOLUTION DE LA CONTAMINATION ET LA QUESTION DU RELARGAGE.....	22
5.2.1. Le relargage dans les aquifères à partir des sols.....	22
5.2.2. Le relargage dans les cours d'eau à partir des sédiments.....	22
5.2.3. Faiblesse théorique des concentrations en radioéléments lors du relargage.....	22
5.2.4. Conclusion sur les dangers de relargage.....	23
<b>6. DISCUSSION : LE RISQUE, SON IMAGE ET QUELQUES EVENTUALITES.....</b>	<b>24</b>
6.1. LA CONTAMINATION DES NAPPES DANS L'OPINION.....	24
6.1.1. L'opinion générale.....	24
6.1.2. Le point de vue des professionnels de l'eau.....	24
6.2. POLLUTIONS ACTUELLES ET FUTURES.....	25
6.2.1. Les tirs nucléaires.....	25
6.2.2. Les pollutions accidentelles.....	25
6.3. LES CONSEQUENCES SUR LA QUALITE DES NAPPES.....	26
6.3.1. Une pollution immédiate.....	26
6.3.2. Une pollution-retard ou de longue durée.....	26
6.3.3. Une pollution à moyen terme.....	26
<b>7. CONCLUSION.....</b>	<b>28</b>
<b>8. REFERENCE.....</b>	<b>29</b>

## LISTE DES ANNEXES

ANNEXE 1 - LE TERME-SOURCE DES CONTAMINATIONS RADIOACTIVES.....	30
ANNEXE 2 - RAPPELS SOMMAIRES SUR LA MIGRATION DES ELEMENTS EN SOLUTION DANS LE MILIEU GEOLOGIQUE.....	43
ANNEXE 3 - EXEMPLES CONCRETS DE MIGRATION OU DE RETENTION DE RADIONUCLEIDES .....	54
ANNEXE 4 - LA CONTAMINATION EN $^{137}\text{CS}$ ET EN $^{90}\text{SR}$ DES NAPPES SOUTERRAINES EN RUSSIE AU SUD DE MOSCOU .....	71

## LISTE DES TABLEAUX

**Tableau A1.1.** Périodes (durée de demi-vie) des principaux radionucléides. On remarquera que ceux qui ont un comportement neutre ( $^{140}\text{Xe}$ ,  $^{131}\text{I}$ ,  $^{132}\text{I}$ ) ou anionique ( $^{131}\text{I}$  et  $^{132}\text{I}$  également, ainsi que  $^{99\text{m}}\text{Tc}$ ,  $^{106}\text{Rh}$ ,  $^{132}\text{Te}$ ) ont des périodes courtes. En d'autres termes ils disparaissent d'eux-mêmes relativement vite de l'environnement, le plus durable étant  $^{106}\text{Ru}$ . Par ailleurs les isotopes à vie longue  $^{129}\text{I}$  et  $^{85}\text{Kr}$ , ne sont produits qu'en quantité très faible : ils ne figurent pas dans les principaux nucléides répertoriés tableau I.2, ni dans ceux qui ont été analysés lors du passage du nuage de Tchernobyl (cf. figure A3.3).

**Tableau A1.2.** Rejets estimés (en  $10^{15}$  Bq) selon Haberer (1987, tableaux 1 et 3), des essais militaires nucléaires ("explosions"), des accidents de Winscale, Harrisburg (Three Miles Island), et Tchernobyl. On a complété le tableau de K. Haberer par des chiffres *en italiques*, qui sont ceux donnés par l'IPSN (1986) ; pour les éléments cités par K. Haberer, ( $^{131}\text{I}$ ,  $^{140}\text{Ba}$ , etc.) l'IPSN donne des valeurs légèrement plus faibles, en général d'un tiers environ. Il est probable que ceci vient d'une correction faite sur des données fournies par les Soviétiques (IPSN, 1986, tableau 6-1), correction que n'a peut-être pas faite K. Haberer.

**Tableau A1.3.** Proportion des éléments du coeur d'un réacteur (à eau pressurisée, REP) en cas d'incident majeur avec fusion du coeur (Haberer, 1987). TR : Terres rares, Act. : actinides.

**Tableau A3.1.** Moyennes annuelles des concentrations (Bq/l) en  $^{90}\text{Sr}$  dans les eaux de surface et dans les eaux souterraines en Allemagne (Aurand *et al.*, 1972, p. 308). Les données originelles sont en pCi/l, elles ont été converties en Bq/l ( $1 \text{ pCi} = 3,7 \cdot 10^{-2} \text{ Bq}$ ). On voit que par rapport à une norme de 100 Bq/l, les concentrations relevées sont quasiment homéopathiques. En fait ces déterminations ont été faites non pas dans une optique de santé, mais pour utiliser  $^{90}\text{Sr}$  comme traceur en hydrogéologie.

**Tableau A3.2.** Activité (en Bq/l) des eaux de la rivière Glatt et de la nappe alluviale adjacente, le point de prélèvement dans la nappe correspondant environ à un trajet de 1 jour depuis la rivière. On remarquera que l'activité de  $^{131}\text{I}$  et  $^{103}\text{Ru}$  n'est pratiquement pas modifiée, alors que celle de  $^{132}\text{Te}$  est fortement diminuée et que celle de  $^{134}\text{Cs}$  et  $^{137}\text{Cs}$  a complètement disparu (Von Gunten *et al.*, 1988). Ceci met en évidence l'effet de filtre des berges de la rivière et de la matrice de l'aquifère, pour le tellure comme pour les césiums.

**Tableau A3.3.** Ratio activité "dissoute"/activité "particulaire" dans les eaux de la rivière Glatt et dans la nappe adjacente (eaux filtrées à 0,05 m).

## LISTE DES FIGURES

**Figure A1.1.** Situation des nucléides de fission dans le tableau périodique de Mendéléiev : les masses vont de celle du krypton à celles du milieu des lanthanides.

**Figure A2.1.** Schéma de répartition des éléments réfractaires ( $^{95}\text{Nb}$ ,  $^{95}\text{Zr}$ ) et volatils ( $^{131}\text{I}$ ,  $^{103}\text{Ru}$ , et  $^{132}\text{Te}$ ) dans l'environnement d'une explosion non confinée (Barthoux *et al.*, 1970).

**Figure A2.1.** Place des éléments sorbants et des éléments non sorbants dans le milieu géologique, en fonction de leur situation dans le tableau périodique de Mendéléiev.

**Figure A3.1.** Concentrations résiduelles en Cs et Pu à Nagasaki (Mahara et Miyahara, 1984). On notera que l'échelle des concentrations est lognormale. La décroissance régulière suggère que les deux éléments ont été retenus dans les sols : s'il y avait eu lessivage, les teneurs seraient plus faibles en surface et plus fortes vers la profondeur.

**Figure A3.2.** Schéma du dispositif de pompage sur le site de Cambric au Nevada (Etats-Unis) après une explosion souterraine (Hoffman *et al.*, 1984). Les eaux pompées dans le puits RNM-2S ont montré des concentrations en  $^3\text{H}$ ,  $^{85}\text{Kr}$  et  $^{106}\text{Ru}$ , telles que ces derniers éléments ont manifestement migré depuis la cavité visée par le forage RNM-1 à la même vitesse que l'eau : ils ne sont donc pas sorbés dans les terrains. La ligne ondulée représente le niveau hydrostatique, les profondeurs sont en mètres.

**Figure A3.3.** Radioéléments présents dans les pluies le 30 Avril 1986 à Munich (Allemagne) après l'accident de Tchernobyl ; le total de l'activité dans les eaux de pluie a culminé à 35.000 Bq/l.

**Figure A3.4.** Décroissance des concentrations en radioéléments dans les eaux et dans les sédiments du Danube, à la suite de l'accident de Tchernobyl (Friedmann *et al.*, 1986). La décroissance de  $^{137}\text{Cs}$  est trop rapide pour qu'on l'attribue à la décroissance radioactive (la période est de 30 ans), il s'agit donc d'un relargage. Ce relargage n'a pas empêché les eaux de revenir très vite à des concentrations inférieures au seuil analytique.

**Figure A3.5.** Concentrations en  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{54}\text{Mn}$ , et  $^{60}\text{Co}$  dans trois sols, après percolation des radioéléments dissous dans de l'eau distillée et dans une eau de rivière (Saas et Grauby, 1973).

**Figure A4.1.** Répartition des concentrations en  $^{137}\text{Cs}$  et  $^{134}\text{Cs}$  sur le site de Novozybkov (Russie ; Dubinchuk *et al.*, 1993), à la suite de la pollution due à l'accident de Tchernobyl. On comparera ce schéma de répartition avec ceux des figures A3.1 et A3.5, qui sont très similaires.

## AVANT-PROPOS

Le présent travail a été réalisé à la demande du Ministère de l'Environnement. Il s'agit d'une étude documentaire, c'est-à-dire d'une compilation faite en un *temps limité* à partir de publications, rapports ou notes techniques de diverses origines.

En d'autres termes, ce document n'est pas une prise de position du Ministère de l'Environnement ni du BRGM, sur la question de la vulnérabilité des nappes souterraines à la pollution radioactive. C'est au contraire un simple aperçu, commenté, de ce que l'on trouve dans la littérature scientifique. Les *opinions* formulées dans le texte représentent un essai de synthèse destiné à dégager, de façon aussi simple et claire que possible et à partir d'une somme d'information assez complexe, quelques grandes idées directrices. Certains points comme les questions de "relargage" ont peut-être été développés plus que nécessaire, mais c'est parce qu'ils correspondent à des préoccupations fréquemment rencontrées chez des non-spécialistes.

Quoiqu'il en soit, les diverses opinions exposées ne sauraient en aucun cas représenter, en l'état, des positions officielles d'Organismes publics.

## 1. INTRODUCTION

Le but de la présente étude est de présenter l'état des connaissances sur les mécanismes qui conduisent à la contamination des eaux souterraines, et notamment l'étape du passage des radioéléments de l'atmosphère aux nappes. En effet, les pouvoirs publics seront ainsi mieux éclairés sur les moyens à mettre en oeuvre pour assurer si possible cette protection, pour identifier plus précisément les ressources protégées et la durée de leur protection. En outre cet état des connaissances pourrait éventuellement conduire à identifier les axes de recherche appliquée, qui s'avèreraient nécessaires pour une meilleure adéquation entre les méthodes d'investigation et les techniques d'exploitation de ces ressources "protégées".

Dans un souci de clarté, nous avons choisi de présenter les résultats de l'étude sous forme d'une *courte synthèse*, allégée de tout symbole chimique (ils ne sont pas nécessairement familiers à tous), et de toute référence bibliographique (dont l'accumulation risquerait de donner un caractère touffu au texte) sauf une. Ces différents renseignements ne sont pas passés sous silence mais sont consignés en quatre *annexes* détaillées, qui comprennent également plusieurs rappels d'ordre technique, annexes auxquelles le texte renvoie en tant que de besoin. La courte synthèse en question doit être comprise comme une sorte de résumé étendu, le lecteur étant prié de se référer aux quatre annexes pour une information plus approfondie.

Le même souci d'allègement nous a conduit à éviter de chiffrer les radioactivités dans la synthèse en question, les unités habituelles ainsi que leur signification n'étant pas familières à tous ; on les a en revanche largement utilisées dans les annexes. Les unités trouvées dans la documentation originelle ont été gardées, avec une conversion le cas échéant en des unités différentes lorsque les besoins de recoupement avec d'autres sources l'exigeaient. Pour ce faire nous avons employé indifféremment le Béquerel par seconde (soit une désintégration par seconde), de symbole Bq, la Curie (Ci) ou la picocurie (pCi, soit  $10^{-12}$  Ci,) avec la correspondance  $1 \text{ pCi} = 3,7 \cdot 10^{-2} \text{ Bq}$ .

## 2. LES SOURCES DOCUMENTAIRES

### 2.1. LA METHODE DE RECHERCHE

On a consulté tout d'abord, la base de données géologiques GEOREF de l'U. S. Geological Survey. Pour ce faire on a utilisé le croisement de mots-clé comme "Tchernobyl", "retombées (fallout)", "isotopes", "hydrogéologie", "Cs-137", etc.

Par ailleurs, on a consulté les mémoires consacrés au *stockage ultime de produits radioactifs*. Il y a en effet de nombreuses analogies entre le problème de la pollution par retombées radioactives, et celui de la rétention des radioéléments par la roche-hôte aux alentours d'un site de stockage. Ces mémoires sont ceux de la MRS (Material Research Society), qui comporte de nombreuses études sur la solubilité, la sorption et le transport des actinides comme des produits de fission.

#### 2.1.1. Le problème de l'exhaustivité

Les documents identifiés ont eux-mêmes permis de remonter à d'autres travaux, au moyen de leur bibliographie. Par ailleurs, les publications récentes en matière d'environnement, ont été systématiquement suivies. Cependant, on ne peut prétendre avoir fait un travail exhaustif. En effet, une grande partie de la documentation identifiée est difficile d'accès et appartient au domaine de la "littérature grise" : ce sont par exemple des rapports de laboratoire de recherches américains. L'indexage de GEOREF étant fait aux Etats-Unis, il est compréhensible que ces ouvrages figurent dans la base de données en question, mais l'obtention des copies ou microfiches prend plusieurs semaines ou quelques mois. Par ailleurs de nombreux documents qui paraissent intéressants de prime abord au vu de leur titre, se révèlent décevants ou relativement "vides". Il n'est donc pas facile de trouver tout de suite les ouvrages-clé.

A cet égard, il est intéressant de se pencher sur la synthèse récente publiée à la suite de l'accident de Tchernobyl, par une équipe russe (annexe 4). Cette étude est remarquable à plus d'un titre, importance de l'événement auquel elle se rapporte, nombre de contributeurs scientifiques impliqués directement ou indirectement (une trentaine environ), variété des techniques considérées et mises en oeuvre. Dans l'ensemble ce travail recoupe bien les connaissances antérieures, tout en montrant les limites et en suggérant des ouvertures possibles pour l'avenir.

#### 2.1.2. La question du chiffrage de la radioactivité

La documentation rassemblée conduit *qualitativement* dans l'ensemble à un schéma relativement cohérent sur les contaminations nucléaires : il n'y a pas de contradictions majeures dans les résultats des différents travaux consultés. Par conséquent l'échantillonnage que nous avons effectué dans la littérature scientifique, semble suffisamment représentatif pour que les conclusions d'ensemble que nous en avons tirées soient crédibles. Il est probable qu'une recherche plus approfondie prenant davantage de temps, étofferait l'argumentation mais ne modifierait pas ces conclusions de façon fondamentale.

Un problème doit cependant être souligné : il existe des coquilles manifestes dans certains rapports techniques, lesquels n'ont pas fait l'objet de vérifications aussi poussées que les publications scientifiques. De telles coquilles sont gênantes lorsqu'elles portent sur les chiffres de radioactivité, ou sur les unités employées. Les valeurs annoncées devront donc faire l'objet de contrôle à chaque fois que possible. Pour cette raison, et aussi à cause du nombre relativement faible de mesures publiées, il faut être très prudent sur la question des niveaux de radioactivité. Cet aspect *quantitatif* est certainement celui qui progresserait le plus, en cas d'instruction supplémentaire du dossier.

## 2.2. L'ORIGINE DES DOCUMENTS

Globalement, il s'avère que la documentation identifiée vient de trois grandes sources.

La première est le *programme Plowshare* d'utilisation pacifique de l'énergie atomique, aux Etats-Unis, développé au cours des années 60 (plowshare, en anglais "soc de charrue", allusion au verset biblique "... et ils changèrent leurs épées en socs de charrue" ; *Isaïe*, 11/4). Dans le cadre de ce programme, plusieurs explosions souterraines nucléaires et thermonucléaires ont été réalisées ; les renseignements dont nous disposons concernent donc les pollutions induites dans les nappes souterraines par les tirs.

La seconde source est liée aux questions de *sécurité des stockages nucléaires* ; il s'agit essentiellement de travaux méthodologiques de laboratoire, destinés à évaluer certains paramètres régissant la migration des radioéléments dans les aquifères jusqu'à leur exutoire en surface.

Enfin la troisième source provient des études faites en Europe après *l'accident du réacteur de Tchernobyl* ; elles ont fourni en particulier des renseignements sur les relations entre retombées atmosphériques et nappes souterraines.

Les données ainsi recueillies ont été reventilées en trois volets :

- une description des éléments et des isotopes présents dans les retombées radioactives ;
- le comportement des ces radioéléments dans le milieu naturel avec en particulier le passage de l'atmosphère vers l'hydrosphère ;
- et enfin une description de cas de contaminations radioactives dans les eaux souterraines.

Chacun de ces volets fait l'objet d'un chapitre particulier (§ 3 à 5), et est étoffé d'une annexe spécifique (annexes 1 à 3). L'ensemble se termine (annexe 4) par un résumé commenté de l'étude russe signalée plus haut : thématiquement cette étude se rattacherait au troisième de nos volets ainsi qu'à l'annexe 3, mais son caractère très récent, l'importance des données concernées et la variété des sujets abordés, justifie qu'on lui consacre une annexe à part.

### 3. LES RADIOELEMENTS CONTENUS DANS LES RETOMBEEES RADIOACTIVES

Les radioéléments, et surtout les radioisotopes (ou radionucléides - il y a en général plusieurs isotopes c'est-à-dire plusieurs structures nucléaires différentes pour un même élément), sont très nombreux et pour faciliter la mémorisation des faits, on essaiera de les classer par familles. La question est de trouver la classification la mieux adaptée au problème considéré ici, à savoir la migration de ces radionucléides dans le milieu géologique.

#### 3.1. CLASSIFICATION DES RETOMBEEES RADIOACTIVES SELON LEUR ORIGINE

Il était prévu initialement de classer les différentes pollutions radioactives en fonction de leur origine, accident (Tchernobyl, Three Mile Island), explosion de bombe à fission (Alamo Gordo, Hiroshima), explosion à fusion ou thermonucléaire (bombe "H"). En fait il n'y a pas lieu de faire une telle distinction, pour plusieurs motifs :

- Les dispositifs à fission sont employés comme détonateurs pour les explosions thermonucléaires. Après un tir de cette nature, on retrouvera donc nécessairement des produits résultant, non seulement de la fusion (tritium), mais aussi de la fission.
- Le matériel fissile peut être de l'uranium (isotope  $^{235}\text{U}$ ) ou du plutonium ( $^{239}\text{Pu}$ ) ; nous n'avons pas trouvé de renseignements concernant une différence qualitative dans les produits de fission de ces deux éléments. Les rapports des isotopes du plutonium dans les retombées radioactives ont été employés pour savoir si l'explosion provenait de l'emploi d'uranium ou de plutonium comme matériau fissile, ce qui laisse penser qu'une distinction par d'autres moyens comme la nature ou l'abondance des produits de fission, n'est pas possible.
- L'éventail des produits de fission dégagés par les essais militaires d'une part, par des accidents comme ceux de Windscale (Angleterre) en 1957 et de Tchernobyl (Ukraine) en 1986 d'autre part, ne serait pas qualitativement très différents. On se reportera à l'annexe 1, où ces détails sont exposés.

#### 3.2. L'ORIGINE DES RADIONUCLEIDES

Il est plus commode de décrire les divers radionucléides en fonction des phénomènes physiques qui leur donnent naissance, à savoir fusion thermonucléaire, activation neutronique, et fission.

##### 3.2.1. La fusion thermonucléaire

La fusion thermonucléaire induit la présence de *tritium* résiduel, qui ne sera pas évoquée ici. En effet c'est un isotope utilisé depuis longtemps par les hydrogéologues comme traceur, parcequ'il se comporte comme la molécule d'eau. Le seul point à examiner serait de savoir si une

contamination atmosphérique d'origine thermonucléaire pourrait entraîner des concentrations en tritium allant au-delà des limites de potabilité : mais d'une part ce n'est pas l'objet de notre étude, et d'autre part c'est une question à laquelle les travaux de scientifiques américains conduisent à proposer une réponse plutôt négative (annexe 1).

### 3.2.2. L'activation neutronique

En revanche, on peut distinguer les produits d'activation, qui résultent de l'action des neutrons sur les divers noyaux atomiques, et les produits de fission, qui résultent de la rupture des isotopes fissiles. Les produits d'activation sont en général à durée de vie très courte, et on peut les passer sous silence à quelques exceptions près, ainsi que le carbone 14, qui a une durée de vie longue mais est produit en très petites quantités. Il ne reste à considérer que deux isotopes du *fer* et du *cobalt*, et les transuraniens comme *plutonium* ou *neptunium* (annexe 1).

### 3.2.3. La fission nucléaire

Non seulement la fission nucléaire est le processus qui fournit le plus de radionucléides (plusieurs dizaines) mais en plus ce sont les plus dangereux pour la santé et pour l'environnement. C'est donc sur eux que sera concentrée l'analyse qui suit. L'annexe 1 donne quelques indications sur les produits de fission, et leur évolution avec les différentes chaînes radioactives correspondantes.

### 3.2.4. Conclusion

Une classification par phénomènes physiques ayant produit des radionucléides est utile, mais dans la mesure où les principaux nucléides qui nous intéressent sont des produits de fission, elle ne nous est pas d'un grand avantage. Elle est donc mentionnée pour mémoire.

## 3.3. LA MIGRATION DES PRODUITS DE FISSION : VOLATILS ET REFRACTAIRES

La distinction la plus souvent faite à propos des radionucléides dans les retombées radioactives, est celle qui distingue les *volatils* des *réfractaires*. Elle repose sur l'abondance relative des divers produits de fission à différents stades de leur migration.

### 3.3.1. Nucléides "volatils"

Ce sont ceux qui se trouvent entièrement à l'état gazeux (*krypton*, *xénon*), ou de façon occasionnelle (*iode*), ou qui dérivent de gaz par désintégration radioactive, comme les isotopes du *strontium* et du *césium* provenant de la désintégration de noyaux de *krypton*. Viennent s'y joindre les isotopes du *tellure*, élément qui n'est pourtant pas un gaz dans le milieu naturel et qui n'a pas de précurseur radioactif gazeux : il est possible qu'à haute température ce soit effectivement un gaz.

### 3.3.2. Nucléides "réfractaires"

Ce sont les isotopes du *zirconium*, du *niobium*, ou de diverses *Terres rares* (lanthane et cérium surtout) caractérisés au point de vue chimique par une grande insolubilité.

### 3.3.3. Les proportions relatives des "volatils" et des "réfractaires" dans les retombées

Dans les produits de fission émis, que ce soit après des tirs nucléaires ou un accident sur un réacteur, la proportion de volatils et de réfractaire dépend du *confinement* initial : les gaz constituent en effet la phase la plus mobile. Ainsi lors d'une explosion nucléaire souterraine les émissions dans l'atmosphère si elles se produisent, seront presque uniquement constituées de volatils. Il en va de même pour un accident de faible gravité sur une centrale : ainsi à Three Mile Island il n'y aurait eu que des gaz rares et de l'iode comme radioéléments rejetés. Au contraire pour une explosion aérienne, nucléaire ou non, les réfractaires se trouvent disséminés : à Tchernobyl ils constituaient une grande part de la radioactivité au sol aux environs immédiats du réacteur détruit (annexe 1).

De la même manière, la proportion volatils/réfractaires varie en fonction de la *distance* par rapport au lieu d'émission : toujours lors de l'accident de Tchernobyl, en Europe occidentale la radioactivité dans les pluies a été presque exclusivement liée à des radionucléides "volatils".

### 3.3.4. Conclusion

Selon qu'une source accidentelle ou délibérée de radionucléides aura été ou non l'objet d'un confinement initial poussé, et en fonction de la distance à cette source, les éléments susceptibles de contaminer l'environnement seront en proportions sensiblement différentes :

- dans le cas d'un fort confinement et d'une distance éloignée, ce seront surtout des éléments gazeux et/ou relativement solubles (isotopes du césium, et alcalino-terreux).
- dans le cas d'un confinement faible ou nul, et d'une distance proche du lieu d'émission, les nucléides comprendront, en plus des précédents, des éléments fortement insolubles tels que zirconium et Terres rares.

*Il va de soi qu'une telle différenciation a des conséquences pour la dissémination ultérieure des radionucléides dans le sous-sol (cf. paragraphe suivant).*

## 4. LE COMPORTEMENT DES RADIONUCLÉIDES DANS LE MILIEU NATUREL

Certains isotopes sont donc fortement insolubles, tandis que d'autres ont le comportement de gaz. Il est cependant peu probable que la majorité des radionucléides aient un comportement régi par des questions de solubilité-précipitation : dans la littérature sur les contaminations nucléaires on ne trouve pratiquement aucune allusion à ces questions. En revanche, une grande attention est apportée aux processus de *sorption/désorption*. En effet et à la différence des phénomènes de précipitation, ces processus fonctionnent même à des concentrations extrêmement faibles (c'est même dans ce domaine qu'ils sont les plus simples à décrire), ce qui est le cas pour de nombreux radionucléides. On trouvera en annexe II quelques rappels très sommaires sur les processus de sorption, leur mécanismes et leur description.

### 4.1. EXPERIMENTATIONS, OBSERVATIONS, ET LEURS LIMITES

Trois approches sont possibles pour évaluer les propriétés de sorption. La première est entièrement *théorique* et fondée sur les propriétés des ions en solution ; la seconde est *expérimentale* et consiste à mesurer la sorption en laboratoire (annexe 2), ou sur le terrain ; enfin la troisième consiste en *l'observation* des processus de sorption ou de rétention, à la suite de contaminations accidentelles (annexe 3).

Plusieurs difficultés se présentent ; tout d'abord, on a souvent signalé des *divergences numériques* extrêmement importantes entre les expériences de laboratoire, et les mesures ou les observations faites sur le terrain à une échelle différente. Ensuite, les mesures de laboratoire ne portent que sur quelques radioéléments, usuellement strontium et césium. Enfin, les observations de contaminations accidentelles sont relativement lacunaires, en ce sens qu'elles ne permettent pas de décrire le comportement de tous les radionucléides dans des contextes géologiques variés.

### 4.2. UNE APPROCHE THEORIQUE

Aussi une *approche théorique* des processus de sorption et du comportement des radionucléides, semble préférable et plus simple. Dans l'ensemble une telle approche recoupe très bien, au moins qualitativement, les quelques mesures partielles faites en laboratoire ou les rares observations de terrain. On peut donc légitimement l'utiliser par extension à tous les radionucléides.

Très schématiquement, cela revient à distinguer, en premier lieu les éléments qui auront en solution un comportement *cationique*, c'est-à-dire qu'ils formeront des ions simples ou complexes *positifs* ; ensuite, les éléments présents en solution avec une charge nulle, comme les complexes *neutres* et aussi comme les gaz rares (isotopes du krypton) ; enfin, les éléments qui auront en solution un comportement *anionique*, ou en d'autres termes qui formeront des ions simples ou complexes *négatifs*.

Les premiers (à comportement cationique) seront sorbés plus ou moins fortement sur les surfaces solides, et seront donc peu mobiles. On y trouve les alcalins, rubidium et surtout césium, les alcalino-terreux strontium et baryum, les Terres rares, le zirconium, l'argent.

Les deux autres catégories (complexes neutres et éléments à comportement anionique) ne seront que peu ou pas sorbés et les éléments correspondants migreront comme l'eau, ou bien pour prendre comme exemples des contamination non nucléaires, auront le comportement de nitrates ou de chlorures. En dehors des isotopes du krypton et du xénon ce sont principalement l'iode, le ruthénium, le tellure, le molybdène, le technétium.

*Remarque* : pour les trois derniers éléments, des conditions réductrices sont à même de décomposer les ions complexes négatifs et d'amener une certaine rétention des éléments correspondants dans les terrains (cf. en annexe 3, § A3.2.3.2 et A3.2.4).

En résumé, une part des éléments présents dans les retombées radioactives sera retenue à la surface des solides et éventuellement relarguée ultérieurement, tandis que l'autre partie restera en solution et migrera à la même vitesse que l'eau.

### 4.3. LA DUREE DE VIE DES RADIONUCLEIDES

On sait que la durée de vie des radionucléides n'est pas influencée par le milieu ambiant, et donc par les conditions géologiques. Il est intéressant de souligner que les nucléides les plus radioactifs sont, *ipso facto*, les plus fugaces puisqu'ils s'autodétruisent, et de voir quelles conséquences cela présente pour la contamination du milieu naturel.

Le tableau des périodes (ou durée de demi-vie) des principaux radionucléides, est donné en annexe I. Il est important de souligner que ceux qui ont un comportement neutre ou anionique, donc les plus mobiles, ont tous *des durées de vie assez courte*. La contamination qu'ils induisent disparaîtra donc d'elle-même relativement vite. En revanche les contaminations de longue durée, produites par exemple par le césium ou le strontium, sont liées à des éléments à comportement cationique se fixant fortement sur le milieu, et resteront donc en place longtemps.

## 5. LES EXEMPLES DE CONTAMINATION

Après avoir examiné d'une façon générale la chimie des radioéléments et leur comportement, il faut considérer comment un milieu géologique donné se comporte vis-à-vis de l'arrivée de radionucléides artificiels. Trois interfaces sont à considérer, la frontière entre l'atmosphère et le sol lors de l'infiltration des pluies, entre berges et cours d'eau, et entre l'eau du réseau hydrographique et les sédiments déposés. Enfin il faut évidemment prendre aussi en compte le milieu des nappes souterraines.

### 5.1. LE STADE INITIAL

On décrira d'abord la contamination initiale, sous l'influence des retombées radioactives, avant d'examiner dans un deuxième temps l'évolution de la contamination lorsque les retombées auront disparu.

#### 5.1.1. Le terme-source : les retombées atmosphériques

La radioactivité des pluies en Bavière a été mesurée lors du passage du nuage de Tchernobyl. Elle s'est montrée très variable, avec un pic le 30 avril 1986 (quatre jours après l'accident) excédant dix fois les valeurs du jour précédent et des jours suivants. A cette occasion, les niveaux ont atteint jusqu'à 25 fois les normes de potabilité de crise, qui ont donc été largement dépassées pendant une semaine environ. Il s'agit essentiellement de radioéléments *volatils*, iode et tellure, à moindre titre ruthénium et technétium, avec des traces de césium. En ce qui concerne la région de Tchernobyl elle-même, nous n'avons pas trouvé d'indications sur la radioactivité des pluies. En revanche on dispose de quelques données sur la contamination correspondante des sols en césium et strontium 400 km plus à l'Est, dans la région de Moscou (annexe 4).

#### 5.1.2. Les radionucléides lors de l'infiltration - leur fixation dans le sol et la contamination des nappes superficielles

##### a) L'effet de filtre des sols pour certains radionucléides

Les exemples donnés en annexes 3 et 4 indiquent que le sol est un filtre très efficace pour les isotopes radioactifs du *césium*, du *plutonium*, de *l'américium* et du *strontium*. Ces exemples portent sur le site de Nagasaki où a explosé la deuxième bombe nucléaire américaine, un site de stockage au Colorado, sur des aquifères d'Allemagne, et la région sud-moscovite enfin.

Pour le césium dans les deux premiers cas (de même qu'aux environs de Moscou, annexe 4), ainsi que comme pour le plutonium, on constate une diminution des teneurs des sols depuis la surface vers la profondeur, signe que les radioéléments sont restés piégés et n'ont que peu ou pas migré en profondeur.

Pour le strontium, on a pu montrer qu'à la suite des tirs nucléaires atmosphériques, la concentration dans les eaux des nappes karstiques en Allemagne est 10 à 100 fois plus faible que dans les eaux de surface ; et dans les aquifères poreux, les concentrations sont encore 3 à 5 fois plus faibles que dans les aquifères karstiques.

Ces travaux prouvent *l'effet de filtre des sols* et du sous-sol, y compris pour des aquifères réputés vulnérables comme les aquifères karstiques.

La filtration en question n'est pas d'une efficacité totale, puisque par exemple des traces (très faibles) de strontium ont été constatées dans les aquifères d'Allemagne. De façon semblable, la plupart des nappes (superficielles, et même certaines nappes artésiennes) étudiées en Russie au sud de Moscou, 400 km à l'ENE de Tchernobyl, contiennent actuellement des traces de césium radioactif (annexe 4) à la suite de l'explosion du réacteur.

On peut légitimement généraliser ces observations à tous les éléments qui forment en solution des ions positifs, notamment à l'argent pour ce qui est des ions monovalents, au rubidium par analogie avec le césium pour les alcalins, au baryum par analogie avec le strontium pour les alcalino-terreux (cf. figure A2.1). Les éléments tri-, quadri- ou pentavalents comme yttrium, Terres rares, zirconium ou niobium sont très peu solubles, et en cas de contamination atmosphérique resteront probablement piégés eux aussi, en grande majorité, au niveau de la partie superficielle des sols.

En revanche, ce stock de radioéléments contenus dans les sols peut représenter une *menace à long terme*, le relargage pouvant intervenir plusieurs années ou dizaines d'années après la contamination ; cette question est exposée en annexe 4. On n'oubliera pas toutefois que ceci ne représente un danger qu'en cas de très fortes concentrations initiales dans les sols, donc de très forte pollution.

#### *b) Les radioéléments non retenus au niveau du sol*

Si certains éléments sont filtrés et retenus dans les sols, d'autres au contraire ne le sont pas et migrent comme l'eau. Le cas le plus évident est celui du tritium, mais pour les autres radionucléides nous n'avons toutefois pas trouvé dans la littérature d'exemples concrets et circonstanciés : ainsi un rapport de l'IPSN (annexe 3) affirme qu'à Tchernobyl la nappe phréatique est polluée, mais ne donne pas la composition des radionucléides qui y auraient migré.

On peut toutefois prédire, sur des bases théoriques, quels sont les nucléides susceptibles de passer en majeure partie au travers du sol, et de s'infiltrer vite et profondément (cf. § 4.2) : ce sont les isotopes de l'iode, du tellure, du ruthénium, du technétium et du molybdène. Il se trouve que dans des retombées radioactives comme celles de Tchernobyl, ce sont précisément ces éléments qui sont les plus abondants, avant les isotopes du césium et autres éléments à ions positifs. Par conséquent, pour de telles retombées, *la majeure partie ne sera initialement ni filtrée ni retenue dans les sols*.

Toutefois, ces radionucléides sont dans l'ensemble à vie courte, les périodes étant en général de quelques semaines ou quelques mois (annexe A1.1). Pour cette raison, ils disparaissent d'eux-même très vite ; à propos de la pollution des nappes du sud de Moscou (annexe 4), seuls ont été considérés les radioisotopes à vie longue, césium ainsi que strontium. Depuis 1986 en effet, la

décroissance radioactive a diminué de façon considérablement le niveau de contamination induits par les radioéléments à vie courte, qui ont dû constituer l'essentiel de la pollution initiale des nappes.

*c) Le rôle de la zone non saturée*

La zone qui s'étend sous les sols jusqu'au niveau de la nappe phréatique, est appelée zone non saturée : l'eau n'y remplit en effet les pores que de manière très partielle. Le temps de transit entre les sols et les nappes phréatiques est souvent de quelques semaines à quelques mois, et peut même atteindre plusieurs années dans des milieux argileux. Il varie selon les saisons, étant plus long à l'automne après les sécheresses de l'été, et plus court au printemps après les pluies d'hiver.

Or, les radioéléments non sorbants susceptibles d'accompagner l'eau dans sa migration, sont en général à durée de vie relativement courte : par exemple, l'activité de l'isotope 131 de l'iode sera divisée par plus de 200 en deux mois, à cause de la désintégration radioactive. Lors de l'infiltration, il se produira donc une sorte d'autodégradation de la pollution radioactive induite par les isotopes de l'iode, du tellure, du ruthénium, etc. En conséquence une partie importante de la contamination radioactive des précipitations s'autodétruit (annexe 2) avant d'atteindre la nappe phréatique, lors de l'infiltration des pluies.

Le rôle de la zone non saturée paraît primordial également pour les éléments sorbants retenus en grande partie dans les sols, comme césium et strontium. Ainsi, l'étude sur la vulnérabilité des nappes de la région sud-moscovite (cf. annexe 4) n'a porté que sur le comportement à long terme de ces deux radioéléments. Cette vulnérabilité a été estimée essentiellement en fonction de l'épaisseur de la zone non saturée et du temps de transit de l'eau dans cette zone.

*d) Conclusion : le comportement des radionucléides et la contamination des nappes superficielles par les retombées*

Lors de retombées radioactives, les nappes phréatiques même considérées comme vulnérables (peu profondes et/ou sans écran imperméable), sont de fait partiellement protégées *en partie* par un double phénomène :

Le premier est la *rétenion par sorption* dans les sols et dans la partie supérieure de la zone non saturée, des ions positifs comme césium, strontium, des complexes de plutonium et américium, etc. ; ces ions n'atteignent les nappes phréatiques qu'en faible proportion. Le second phénomène est celui de la *décroissance radioactive lors de l'infiltration* : les ions qui ne se sorbent pas sur les phases solides et qui accompagnent l'eau dans sa migration, sont dans l'ensemble à vie courte, et compte tenu du temps de transit dans la zone superficielle non saturée, devraient voir leur activité considérablement diminuée avant d'atteindre les nappes phréatiques. La vulnérabilité à *court terme* des nappes les plus sensibles à une pollution radioactive devrait donc varier avec les saisons, étant plus forte au printemps et plus faible à l'automne.

Pour ces deux motifs, et sans parler de la dilution par les eaux en place non polluées, on a toutes raisons de penser que la contamination radioactive des nappes superficielles devrait être de plusieurs ordres de grandeur inférieure à celle des précipitations météoriques. De fait les contrôles des nappes phréatiques faits en Bavière après l'accident de Tchernobyl, n'ont montré qu'une activité très faible de l'ordre de 0,1 à 0,01 % ou moins de celle des pluies au moment du passage

du "nuage" radioactif. Une légère activité due au ruthénium et au césium a été détectée 2 à 3 mois après, sans que l'on puisse dire si ce décalage dans le temps est dû à la durée d'infiltration, ou à un relargage à partir des sols (annexe 3).

Toutefois en cas de très forte contamination, comme ce serait le cas pour l'explosion d'un réacteur avec éjection d'une grande partie du combustible, il y aura une pollution notable (mais temporaire) des nappes les plus vulnérables par les radioéléments non sorbants (iode, tellure, ruthénium). Cette pollution devrait disparaître en quelques semaines au plus, sauf peut-être pour le ruthénium. Il pourrait également y avoir une "pollution-retard" quelques années ou dizaines d'années plus tard, liée à l'arrivée dans les nappes des radioéléments sorbants à vie longue (césium, strontium). Ceci demanderait à être confirmé par des calculs spécifiques.

### **5.1.3. La contamination des nappes alluviales par les cours d'eau et l'effet de filtre des berges**

La Suisse offre un bon exemple pour le mécanisme de contamination des nappes alluviales, observé lors du passage du panache radioactif de Tchernobyl.

On a constaté (annexe 3, § A3.2.3.2) une rétention par les berges des isotopes du *césium* et à moindre titre du *tellure*. Le césium a donc le même comportement que lors du passage de l'atmosphère aux nappes phréatiques, c'est-à-dire qu'il est fortement sorbé et ne migre pratiquement pas dans les eaux. Cette rétention semble se produire selon deux processus différents, une filtration des colloïdes présents dans les eaux de surface et qui sont porteurs d'une partie de la radioactivité, ainsi qu'une sorption des isotopes du césium et peut-être une précipitation du tellure en solution. Au contraire l'*iode* et le *ruthénium* ont migré en première approximation comme l'eau, ce qui a conduit à une (très légère) contamination immédiate de la nappe. On peut rapprocher ces observations d'études faites pour des pollutions chimiques classiques : par exemple en cas de pollution du Rhône, une grande partie des captages d'alimentation en eau potable (AEP) serait atteinte dans les 24 heures.

### **5.1.4. La contamination des boues et des sédiments**

On sait que la radioactivité tend à se trouver concentrée dans les boues de toutes origines comme sédiments de rivière ou sédiments de lacs. Toujours lors du passage du nuage radioactif de Tchernobyl, on a pu observer en Bavière (annexe 3, § A3.2.3.2) des activités dans les boues activées des stations d'épuration, du même niveau que celle que l'on a mesuré sur les sols les plus pollués en Russie. Dans le Danube, la radioactivité des sédiments a atteint 10 % de ces niveaux ; de telles valeurs dépassent largement les concentrations les plus fortes relevées dans les précipitations. Il s'agit probablement en partie d'une fixation, sur des colloïdes ou des floculats, des éléments sorbants, à savoir césium, baryum, et Terres rares (lanthane) : en effet le rapports césium/ruthénium, ou baryum/iode, y sont beaucoup plus élevés que dans les précipitations qui ont marqué l'arrivée du nuage radioactif. Mais la présence également de très fortes activités en iode et ruthénium indique qu'on doit sans doute invoquer d'autres phénomènes, comme une combinaison possible avec des matières organiques.

## 5.2. L'EVOLUTION DE LA CONTAMINATION ET LA QUESTION DU RELARGAGE

Dans quelle mesure les radioéléments fixés de diverses façon dans les sols, les sédiments, les boues, peuvent-ils ultérieurement devenir une source de contamination ?

### 5.2.1. Le relargage dans les aquifères à partir des sols

Ce qui ressemble à un relargage a été observé en Bavière après l'accident de Tchernobyl. En effet, des traces de césium ont été mesurées dans un aquifère trois mois après l'accident, alors que jusque là on n'avait rien observé de tel. Comme entre temps un léger pic en ruthénium avait aussi été noté, on est en droit de penser qu'il ne s'agit pas d'un délai d'infiltration mais d'un relargage du césium jusque là retenu dans les sols ou dans la matrice de l'aquifère. Il ne s'est agit que de concentrations extrêmement faibles, de l'ordre du millième des limites admissibles.

Dans certains aquifères de la région de Moscou, il semble bien qu'on assiste à un relargage du césium 137 à partir des sols : on assiste à une légère montée des concentrations (annexe 4). Mais au contraire, les concentrations en radiostrontium des nappes aquifères d'Allemagne, après les tirs nucléaires atmosphériques des années 50, ont plutôt décru dans les années 60 (cf. en annexe § A3.1.2).

### 5.2.2. Le relargage dans les cours d'eau à partir des sédiments

En Bavière après le passage des retombées de Tchernobyl, le relargage a été indirectement mis en évidence à partir des sédiments du Danube, du Main et de la rivière Regen. La radioactivité des sédiments a décru lentement, d'une manière qui ne peut être imputée à la décroissance radioactive : il y a donc bien eu relargage.

Comme dans le même temps l'activité des eaux était redevenue négligeable (annexe 3 ; § A3.3.2.2), on peut en conclure que *le relargage des radioéléments sorbés ou fixés sur les sédiments n'a eu qu'une influence très faible sur la qualité de l'eau*. Toutefois, les mesures ayant été faites avec une limite de détection voisine des concentrations recommandées par l'Organisation Mondiale de la Santé, on ne peut en toute rigueur formuler un avis définitif.

### 5.2.3. Faiblesse théorique des concentrations en radioéléments lors du relargage

Une telle déduction est confortée par un calcul simple, à partir de la notion de coefficient de retard (annexe 2, § A2.1.2.2). La théorie indique qu'en cas de phénomènes de sorption et de désorption réversibles, les éléments sorbants migrent beaucoup plus lentement que les éléments non sorbants, et que *leur concentration en solution est également beaucoup plus faible*. Ce dernier point est imposé par le bilan de masse, qui veut que si de deux éléments introduits en même quantité dans un système, l'un migre  $n$  fois moins vite que l'autre, alors sa concentration en solution sera  $n$  fois plus faible (car les deux intégrales des concentrations en fonction du temps, doivent être égales).

#### 5.2.4. Conclusion sur les dangers de relargage

Par conséquent, le relargage consécutif à une sorption ne devrait pas conduire à des concentrations en radioéléments élevées, que ce soit dans les eaux de surface ou dans les nappes souterraines. Le danger du relargage viendrait de la *durée* et non de la concentration. En d'autres termes, la question est de savoir si la limite d'incorporation annuelle (LIA) pourrait être atteinte à la suite d'une ingestion de longue durée, d'eaux contaminées par le relargage de radioéléments initialement sorbés. Une telle probabilité paraît très faible : ainsi, compte tenu des valeurs de relargage observées dans les eaux de surface ou souterraines en Bavière, il faudrait donc une pollution qui soit de l'ordre de 300 ou 1 000 fois celle induite par les retombées de Tchernobyl, pour qu'à raison d'une ingestion de 1 l/jour pendant un an une personne dépasse cette LIA.

En conclusion, on n'a pas de motifs de penser que le relargage de radioéléments dans les rivières ou les fleuves à partir des sédiments soit un problème majeur, *sauf en cas de très fortes contamination initiale*.

## 6. DISCUSSION : LE RISQUE, SON IMAGE, ET QUELQUES EVENTUALITES

L'approche présentée ci-dessus est qualitative, c'est-à-dire que le comportement des radionucléides a été décrit indépendamment des niveaux de concentration atteints. On peut essayer de prendre en compte, du moins à un stade très préliminaire, les aspects quantitatifs : c'est ce qui vient d'être évoqué de manière indirecte dans le paragraphe précédent, à propos "de très forte contamination". Auparavant, il faut évoquer l'évaluation quantitative de la pollution des nappes, et l'image qu'en donne la littérature.

### 6.1. LA CONTAMINATION DES NAPPES DANS L'OPINION

Force est de constater que si l'on excepte l'étude russe mentionnée en annexe 4, la contamination des nappes souterraines semble avoir reçu assez peu d'attention de la part de la communauté scientifique. Ainsi en interrogeant la base de données GEOREF avec le mot-clé "Tchernobyl", on trouve 140 réponses ; ce nombre tombe à 10 si l'on ajoute le mot-clé "hydrologie" ou "hydrogéologie". Encore s'agit-il le plus souvent de travaux ayant considéré les radioéléments comme des traceurs de l'environnement, rivières et fleuves, et non comme une source de contamination souterraine.

#### 6.1.1. L'opinion générale

Les études sur la migration des radioéléments dans les eaux souterraines publiées dans le cadre du programme Plowshare aux Etats-Unis, ont probablement eu pour but (en partie) de rassurer l'opinion publique sur les essais nucléaires souterrains. En annexe III sont données quelques références, qui affirment que de tels essais n'auraient que des conséquences à moyen terme (un an) très limitées sur la qualité et la potabilité de l'eau souterraine. Dans le même ordre d'idées, un article de sir Frederic Warner (1988) sur les effets environnementaux d'une guerre nucléaire, a abondamment souligné les conséquences atmosphériques et climatiques, *mais ne dit mot sur la contamination des ressources en eau et leurs conséquences*. Tout se passe donc comme si les dangers comme radioactivité ambiante, contacts directs, inhalation, étaient considérés la plupart du temps comme bien plus importants que l'ingestion de radioéléments liés à la boisson.

#### 6.1.2. Le point de vue des professionnels de l'eau

Le point de vue des professionnels de l'eau est évidemment différent, puisqu'ils ont en charge non pas la gestion d'un risque global mais la garantie de la qualité d'un produit. De plus, l'alimentation de zone fortement peuplées peut se faire à partir de ressources localisées à grande distance des lieux de consommation. La question de la sécurité de la ressource peut donc se poser, même si celle des consommateurs n'est pas remise en cause.

Seuls les distributeurs d'eau, ainsi que certains pouvoirs publics, ont été sensibilisés au problème de la contamination radioactive des ressources en eau potable. C'est le cas en France des grandes

compagnies distributrices, avec des mesures de rétention de radionucléides dans des conditions de champs captants ; on signalera également l'étude réalisée en 1994 par le Ministère de l'Environnement sur la contamination des réseaux d'alimentation en eau potable (annexe 3). On sait qu'en Allemagne, les organismes publics de Bavière oeuvrant dans le domaine de l'eau (Landesamt für Wasserwirtschaft, LfW ; Landesanstalt für Wasserforschung, LWF) ont également procédé à des études approfondies. Il en est de même dans l'ex-Union Soviétique : après l'accident de la centrale ukrainienne et selon un rapport de l'IPSN (annexe 1), "...les soviétiques ont pris presque autant de soin pour la protection des nappes souterraines que pour limiter les rejets atmosphériques". On trouve un reflet de ce souci dans l'étude de la vulnérabilité des nappes en Russie, jusqu'à 400 km de Tchernobyl (annexe 4).

## 6.2. POLLUTIONS ACTUELLES ET FUTURES

Il s'avère que les données effectives dont on dispose sur les radionucléides dans l'environnement, semblent concerner ou bien des niveaux de *contamination relativement faibles*, pour des tirs nucléaires, ou bien des valeurs qui ne sont *peut-être pas des valeurs maximales*, pour les pollutions accidentelles.

### 6.2.1. Les tirs nucléaires

Il faut distinguer les tirs atmosphériques et les tirs souterrains :

Pour les *tirs atmosphériques*, le seul exemple trouvé est celui de la contamination des sols de Nagasaki au Japon (figure A3.1). On remarquera que le niveau maximum de radioactivité en césium est *mille fois plus faible* que la pollution induite dans les sols en Russie par l'accident de Tchernobyl (annexe 4). Une des raisons est probablement la faible quantité de matière fissile, (théoriquement) nécessaire pour un explosif à fission libérant une énergie de quelques kilotonnes de TNT. Cette quantité doit se chiffrer en kilogrammes, alors que la matière fissile d'un réacteur se chiffre en tonnes.

En ce qui concerne les essais souterrains, la dissémination des produits de fission étudiée dans le cadre du programme Plowshare ne porte que sur des essais de faible puissance, au plus quelques dizaines de kilotonnes. En conséquence, la radioactivité en césium et strontium ainsi produite lors de chaque tir n'aurait pas dépassé le millième de celles qui aurait été rejetée lors de l'accident de Tchernobyl (annexe 1, tableau A1.2).

Les exemples que nous avons donc trouvé sur les contaminations locales en radionucléides, induites par des tirs nucléaires, ne correspondent qu'à des sources de faible intensité.

### 6.2.2. Les pollutions accidentelles

Les principales d'entre elles sont évidemment des accidents sur réacteurs comme à Tchernobyl. Les mesures disponibles pour les radionucléides dans les sols, les eaux de surface ou les eaux souterraines, consécutives à l'explosion, *ne portent pas sur les régions les plus contaminées* : la Bavière ou la Suisse sont situées à plus de 800 km du site, la région de Moscou à 400 km. Nous n'avons trouvé que très peu d'indications sur les valeurs relatives à la zone d'exclusion de 30 km

autour de la centrale. Par ailleurs, il est fort possible que dans des conditions météoriques différentes de celles qui ont prévalu lors de l'explosion du réacteur ukrainien, la dispersion des radionucléides aurait pu être plus faible, et donc leur concentration plus forte. En cas d'absence d'inversion de température, l'air plus froid en altitude pourrait agir comme un couvercle en limitant la dissémination du panache (cf. § A3.3.2.3 en annexe). Il en résulterait dans l'environnement à proximité de la source de l'accident, des *concentrations en radionucléides aggravées*, toutes choses égales par ailleurs.

En conséquence, les valeurs relatives aux radionucléides dans les nappes, telles que figurant dans la littérature, *ne sont sans doute pas des valeurs maximales* et pourraient probablement être largement dépassées.

### 6.3. LES CONSEQUENCES SUR LA QUALITE DES NAPPES

On ne peut écarter donc l'hypothèse de contaminations du même type que celles qui ont déjà été observées, mais plus intenses, et qui se manifesteraient de *trois manières*.

#### 6.3.1. Une pollution immédiate

C'est celle que l'on rencontrerait dans les nappes alluviales et les champs captants. Elle est due à des éléments qui migrent à la même vitesse que l'eau, et qui ne sont pas filtrés par les terrains. Le niveau de radioactivité de ces éléments pourrait dépasser les normes de crise fixées par la Commission Européenne (annexe 3). L'eau des cours d'eau étant rapidement renouvelée, cette situation ne durerait pas longtemps, quelques jours à quelques semaines au plus, selon la saison.

#### 6.3.2. Une pollution-retard ou de longue durée

Elle correspond aux radionucléides à vie longue, strontium et césium ; leur présence dans les nappes est liée soit à une migration beaucoup plus lente que celle des eaux de pluie, soit au fait qu'une très faible partie de ces radioéléments migrerait de façon relativement rapide (annexe 4). On l'observe actuellement dans les nappes de l'ex-Union Soviétique : les niveaux de radioactivité dépassent en quelques endroits le seuil d'alerte recommandé par l'Organisation Mondiale pour la santé (OMS), mais les doses de référence en matière de radioactivité ne sont pas (ou pas encore) dépassées. Compte tenu de la longue durée de vie de ces radioéléments, la situation est vouée à perdurer.

#### 6.3.3. Une pollution à moyen terme

On désigne sous ce terme un type de contamination, encore hypothétique car il n'a pas réellement été observé, mais qui pourrait se produire. Il s'agirait de la pollution des nappes superficielles par le *ruthénium*. Au point de vue migration, cet élément se comporte souvent comme l'iode (cf. annexe 3), mais au point de vue de la durée de vie l'un de ses isotopes (le ruthénium 106) est intermédiaire entre l'iode et les radioéléments à vie longue comme strontium ou césium. Par conséquent pour le ruthénium 106, il n'y aurait ni rétention dans les sols comme pour ces deux éléments, ni décroissance radioactive rapide comme pour l'iode : la durée de transit depuis les sols jusqu'aux nappes phréatiques superficielles, est souvent inférieure à un an.

Une question serait donc d'évaluer si les concentrations correspondantes dans les nappes phréatiques, pourraient excéder les recommandations de l'OMS, voire les normes de crise de la Commission Européenne ou les limites d'incorporation annuelles (LIA). Compte tenu de la période du ruthénium 106, qui est de un an, le temps d'évolution de la situation pourrait être de l'ordre de *quelques années*.

## 7. CONCLUSION

Les données publiées sur la contamination des nappes souterraines, ne sont pas abondantes. Néanmoins, avec les renseignements disponibles et quelques faits généraux sur la chimie des corps en solution, il est possible d'avancer quelques hypothèses.

Les nappes les plus vulnérables sont les nappes alluviales alimentées par les cours d'eau. On sait que ce régime ne se produit pas à l'étiage, mais en période de crues ou sous l'effet de pompages. L'effet de filtre des berges est réel mais ne porte que sur certains éléments radioactifs. Pour les éléments qui ne sont pas retenus, la radioactivité des eaux des fleuves et rivières (liée à l'iode notamment) se retrouvera intégralement *et de façon quasi-immédiate* dans les eaux des captages exploités. Heureusement l'eau des cours d'eau est rapidement renouvelée, et la source de pollution devrait donc vite disparaître. Pour ce qui est des éléments radioactifs retenus par les berges, dans l'ensemble à durée de vie plus longue, ils migreront lentement vers les points de basse charge hydraulique, et feront donc l'objet d'un (faible) relargage vers les puits d'exploitation lorsque la pollution des cours d'eau aura disparu.

Les nappes superficielles phréatiques alimentées par l'infiltration des eaux pluviales sont mieux protégées. La durée d'infiltration dans la zone non saturée peut atteindre plusieurs semaines ou plusieurs mois, voire plus, ce qui laisse le temps à la radioactivité des radioéléments les plus migrants de diminuer. Les éléments les plus sorbants comme les isotopes du césium, du strontium ou du plutonium, sont fortement retenus dans les niveaux superficiels du sol pendant des années. Là aussi le relargage se fera sentir de façon d'autant plus faible (mais plus longue) qu'il sera tardif. S'il se produit des retombées radioactives d'une extrême intensité, on ne peut exclure une contamination durable des nappes puisqu'une très faible partie des radioéléments à vie longue paraît néanmoins capable d'atteindre les nappes superficielles en quelques mois ou quelques années. Les nappes karstiques présentent un risque plus élevé à cause d'une migration des radionucléides liée à la turbidité des eaux, certains de ces nucléides se fixant sur les colloïdes et les matières en suspension.

Les nappes captives sont très probablement à l'épreuve de toute contamination importante. Les nappes phréatiques libres, comme on vient de le dire, étant déjà partiellement protégées doublement, par la sorption des sols et par la décroissance radioactive des éléments les plus solubles, *a fortiori* il en est de même pour les nappes protégées par un écran imperméable. Dans ce cas les facteurs à prendre en compte pour évaluer la propagation d'une pollution, sont la vitesse d'écoulement horizontal de la nappe, la décroissance radioactive (autodégradation de la pollution) et le facteur de retard lié aux propriétés de sorption-rétention. Nul doute que tous ces paramètres aboutissent à la notion d'une contamination très tardive et d'intensité très faible, des nappes captives. La question d'une pollution de grande extension due au manque d'étanchéité des forages exploitant les nappes captives, n'est probablement pas non plus à envisager.

Ces conclusions sont d'ordre qualitatif, et il serait opportun de se pencher sur le cas de situations liées à des retombées intenses (que l'on pourrait comparer à celle de la zone d'exclusion de 30 km autour de Tchernobyl). Seuls les calculs pourraient permettre une première approche, car nous n'avons trouvé aucune publication décrivant ce type de pollution.

## **8. REFERENCE**

WARNER F. (1988) - The Environmental Effects of Nuclear War. *Environment*, vol. 30, n° 5, pp. 2-7.

## **ANNEXE 1**

### **LE TERME-SOURCE DES CONTAMINATIONS RADIOACTIVES**

## A1.1. LES RADIOELEMENTS ARTIFICIELS

Les radionucléides susceptibles de contaminer l'environnement sont très variés, et leur nombre se monte à plusieurs dizaines. Aussi est-il souhaitable, dans un but de clarté, d'en faire une récapitulation en fonction de leur origine, car ils tirent leur existence de plusieurs processus bien distincts. Si l'on met à part les produits de concentration artificielle des dérivés naturels de l'uranium, comme le radium ou le polonium, ces phénomènes sont *l'activation nucléaire*, *la fusion*, et enfin *la fission*. C'est la fission nucléaire qui produit les radionucléides les plus nombreux et les plus gênants en termes environnementaux.

### A1.1.1. Les produits d'activation nucléaire

L'activation nucléaire est la capture d'un ou plusieurs neutrons par les noyaux atomiques. Les nouveaux nucléides ainsi formés sont instables et se désintègrent, ce qui correspond au phénomène de radioactivité. Les atomes-cible capturant les neutrons peuvent appartenir au milieu géologique lui-même, aux matériaux utilisés lors de l'emploi des techniques nucléaires, et enfin au combustible (ou à l'explosif) lui-même.

#### A1.1.1.1. L'activation du milieu naturel

Les principaux produits d'activation seraient  $^{28}\text{Al}$ ,  $^{56}\text{Mn}$ ,  $^{24}\text{Na}$ ,  $^{59}\text{Fe}$ ,  $^{60}\text{Co}$ . Les trois premiers ont des périodes de quelques minutes ou quelques heures, et leur activité décroît donc extrêmement vite. Les deux autres ont des période respectives de 45 jours et 5,2 ans ; très rapidement seule l'activité de  $^{60}\text{Co}$  serait à prendre en considération. Si la période du carbone est longue (5 600 ans), la quantité produite par activation est très faible et ne justifie pas sa prise en compte en tant que substance nocive pour la santé (Stead, 1963).

#### A1.1.1.2. L'activation des matériaux

Les mêmes isotopes  $^{28}\text{Al}$ ,  $^{59}\text{Fe}$ ,  $^{60}\text{Co}$  sont évidemment susceptible de se former par l'activation d'aluminium métal ou d'aciers. C'est probablement par leur détection que certains auteurs ont pu affirmer que tel ou tel tir nucléaire dans l'atmosphère n'avait pas été fait à la surface du sol, les seuls nucléides d'activation identifiés étant ceux de matériaux métalliques utilisés pour la confection de la bombe (Mamuro *et al.*, 1969).

#### A1.1.1.3. L'activation du combustible

La capture de neutrons par les combustibles conduit à la formation d'actinides artificiels, neptunium, plutonium, américium, curium, avec leurs différents isotopes. Le rapport  $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  ne serait pas le même selon que la substance fissile utilisée est du plutonium ou de l'uranium (Noshkin et Gatroussis, 1974) et le ratio  $^{238}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  aurait été utilisé pour déterminer la nature du détonateur pour certains essais thermonucléaires (Gavini, 1978).

### A1.1.2. Un produit résiduel de la fusion : le tritium

Présent naturellement en quantités infimes dans la haute atmosphère à cause du bombardement des noyaux d'azote (qui sont transformés en carbone) par les neutrons cosmiques, il est produit

artificiellement par la fusion d'isotopes d'atomes légers, hydrogène, hélium et lithium. L'opinion de Stead (1963) est que lors d'une explosion thermonucléaire souterraine dans un aquifère (dolomite ou tuff par exemple), la concentration en solution du tritium serait initialement 100 fois cette dose maximale admissible. Mais cette concentration serait ensuite très vite réduite par *dilution* lors de la migration de la nappe, à cause de la dispersion hydrodynamique. En cas d'explosion souterraine non confinée c'est-à-dire avec dégagement dans l'atmosphère, la concentration initiale en tritium dans la nappe pourrait être 10 à 100 fois plus faible.

Les estimations de F.W. Stead se sont trouvées vérifiées ultérieurement. Hoffmann *et al.* (1984) ont montré que les concentrations en tritium mesurées à 91 m d'une explosion thermonucléaire souterraine, dix ans après l'explosion, étaient de l'ordre de la concentration maximale admissible. Le caractère nocif d'une contamination par le tritium paraît donc très limité. Toutefois, on se souviendra qu'actuellement par prudence dans la pratique de la radioprotection, on ne retient pas de seuil et l'on considère que l'effet commence au premier becquerel.

Dans ces tentatives d'évaluer la contamination de l'environnement, le cas d'une pollution des nappes à partir de retombées atmosphériques n'a même pas été évoqué, ce qui semble impliquer qu'aucune crainte de dépassement de la concentration maximale admissible ne serait à envisager.

### **A1.1.3. Les produits de fission**

Ce sont de loin les plus nombreux, et ceux qui présentent le plus de danger en termes d'environnement.

#### **A1.1.3.1. Les nucléides originels produits par fission**

La fission est la *cassure* en deux morceaux des noyaux atomiques des isotopes fissiles  $^{235}\text{U}$  ou  $^{239}\text{Pu}$ , avec émission de 1, 2 ou 3 neutrons (2 le plus souvent). L'émission de ces neutrons puis leur impact sur ces mêmes isotopes va à son tour propager le processus de fission (réaction en chaîne). L'impact sur des noyaux non fissiles correspond au phénomène d'activation évoqué plus haut. La *masse atomique* des produits de fission va de 70 à 160 environ (Dupuis 1970, Kruger 1970), il existerait une quarantaine de possibilités de réaliser la fission avec autant de couples de produits. On voit donc que la fission nucléaire ne produit pas de nucléides légers, comme le sont les isotopes d'éléments comme lithium, azote, silicium, calcium, etc., dont la masse est très inférieure à 70, ni de nucléides lourds, comme les isotopes du tungstène, du platine ou du bismuth, dont la masse est de 180 et plus. En fait la plupart des produits de fission sont des isotopes d'éléments allant du krypton aux Terres rares, et se situent donc au milieu du tableau de classification périodique (figure A1.1).

Pér.	Groupe A									Groupe B								
	I	II	III	IV	V	VI	VII	VIII		I	II	III	IV	V	VI	VII	VII I	
1	H																He	
2	Li	Be											B	C	N	O	F	Ne
3	Na	Mg											Al	Si	P	S	Cl	Ar
4	K	Ca	Sc	Ti	V	Cr	Mn	Fe	Co	Ni	Cu	Zn	Ga	Ge	As	Se	Br	Kr
5	Rb	Sr	Y	Zr	Nb	Mo	Tc	Ru	Rh	Pd	Ag	Cd	In	Sn	Sb	Te	I	Xe
6	Cs	Ba	L	Hf	Ta	W	Re	Os	Ir	Pt	Au	Hg	Tl	Pb	Bi	Po	At	Rn
7	Fr	Ra	A	Ku	Ha													

Lanthanides (L)	La	Ce	Pr	Nd	Pm	Sm	Eu	Gd	Tb	Dy	Ho	Er	Tm	Yb	Lu
-----------------	----	----	----	----	----	----	----	----	----	----	----	----	----	----	----

Actinides (A)	Ac	Th	Pa	U	Np	Pu	Am	Cm	Bk	Cf	Es	Fm	Md	No	Lw
---------------	----	----	----	---	----	----	----	----	----	----	----	----	----	----	----

Figure A1.1 - Situation des nucléides de fission (en gras) dans le tableau périodique de Mendéléiev : les masses vont de celle du krypton à celles du milieu des lanthanides.

Nucléides	Période	Nucléides	Période
$^{129}\text{I}$	15.900.000 ans	$^{242}\text{Cm}$	153 jours
$^{237}\text{Np}$	2.140.000 ans	$^{58}\text{Co}$	70,8 jours
$^{135}\text{Cs}$	2.000.000 ans	$^{95}\text{Zr}$	65 jours
$^{99}\text{Tc}$	210.000 ans	$^{95}\text{Tc}$	60 jours
$^{239}\text{Pu}$	24.390 ans	$^{91}\text{Y}$	58 jours
$^{243}\text{Am}$	7.370 ans	$^{89}\text{Sr}$	50,8 jours
$^{240}\text{Pu}$	6.600 ans	$^{59}\text{Fe}$	45 jours
$^{241}\text{Am}$	433 ans	$^{103}\text{Ru}$	39,7 jours
$^{242\text{m}}\text{Am}$	152 ans	$^{95}\text{Nb}$	35 jours
$^{238}\text{Pu}$	87,7 ans	$^{141}\text{Ce}$	33 jours
$^{137}\text{Cs}$	30,15 ans	$^{86}\text{Rb}$	18,7 jours
$^{90}\text{Sr}$	28,9 ans	$^{143}\text{Pr}$	13,6 jours
$^{244}\text{Cm}$	18,1 ans	$^{140}\text{Ba}$	12,8 jours
$^{241}\text{Pu}$	14,4 ans	$^{131}\text{I}$	8,02 jours
$^3\text{H}$	12 ans	$^{132}\text{Te}$	77 heures
$^{85}\text{Kr}$	10,7 ans	$^{140}\text{La}$	40,2 heures
$^{60}\text{Co}$	5,27 ans	$^{239}\text{Np}$	2,35 jours
$^{155}\text{Eu}$	5,0 ans	$^{242}\text{Am}$	16 heures
$^{125}\text{Sb}$	2,8 ans	$^{24}\text{Na}$	15 heures
$^{147}\text{Pm}$	2,6 ans	$^{99\text{m}}\text{Tc}$	6 heures
$^{134}\text{Cs}$	2,1 ans	$^{56}\text{Mn}$	2,6 heures
$^{106}\text{Ru}$	373 jours	$^{132}\text{I}$	2,2 heures
$^{144}\text{Ce}$	0,78 an	$^{140}\text{Ba}$	18 minutes
$^{54}\text{Mn}$	312 jours	$^{106}\text{Rh}$	30 sec
$^{110\text{m}}\text{Ag}$	250 jours	$^{140}\text{Xe}$	16 sec

On remarquera que les éléments qui ont un comportement neutre ( $^{140}\text{Xe}$ ,  $^{131}\text{I}$ ,  $^{132}\text{I}$ ) ou anionique ( $^{131}\text{I}$  et  $^{132}\text{I}$  également, ainsi que  $^{99\text{m}}\text{Tc}$ ,  $^{106}\text{Rh}$ ,  $^{132}\text{Te}$ ) ont des périodes courtes. En d'autre termes ils disparaissent d'eux-mêmes relativement vite de l'environnement, le plus durable étant  $^{106}\text{Ru}$ . Par ailleurs les isotopes à vie longue  $^{129}\text{I}$  et  $^{85}\text{Kr}$ , ne sont produits qu'en quantité très faible : ils ne figurent pas dans les principaux nucléides répertoriés tableau A1.2, ni dans ceux qui ont été analysés lors du passage du nuage de Tchernobyl (cf. figure A3.3.).

Tableau A1.1 - Périodes (durée de demi-vie) des principaux radionucléides.

### A1.1.3.2. Les chaînes de désintégration

Les nucléides ainsi formés sont très instables, car les noyaux correspondants ont un nombre de neutrons beaucoup plus élevé que les isotopes stables naturels. Par exemple, le produit de fission à 36 protons et dont la masse est de 89, est par définition un krypton (dont le nombre atomique est 36) ; il se désigne sous le symbole  $^{89}\text{Kr}$ . Il possède 53 neutrons (soit 89-36), alors que le krypton naturel n'en possède que 47 ou 48. De tels nucléides surchargés en neutrons évoluent par une succession de désintégration  $\beta$  qui transforment certains neutrons en protons. Le numéro

atomique du noyau (nombre de protons) augmente donc, ce qui correspond à une sorte de "dérive" au travers du tableau de Mendéleïev, vers des nombres atomiques croissants (figure A1.1).

On désigne par *période* le temps nécessaire pour que la moitié des atomes d'un radioélément donné, se désintègre : celles des principaux radionucléides sont données tableau A1.1. Le plus souvent ces périodes augmentent du début de la chaîne radioactive vers la fin de cette chaîne, ce qui traduit une stabilité croissante des noyaux au fur et à mesure qu'ils se rapprochent des formes stables naturelles. Par exemple, les périodes étant écrites en italiques, on connaît les chaînes suivantes (Weaver *et al.*, 1963) :

$^{140}\text{Xe}$  (16 sec.)-->  $^{140}\text{Cs}$  (66 sec.)-->  $^{140}\text{Ba}$  (13 j.)-->  $^{140}\text{La}$  (40 h.)-->  $^{140}\text{Ce}$  (stable)

$^{141}\text{Xe}$  (1,7 sec.)-->  $^{141}\text{Cs}$  (25 sec.)-->  $^{141}\text{Ba}$  (18 mn.)-->  $^{141}\text{La}$  (4 h.)-->  $^{141}\text{Ce}$  (33 j.)-->  $^{141}\text{Pr}$   
(stable)

La forme stable finale est un *élément* dont la masse atomique naturelle est voisine de celle du noyau initial. Ainsi la chaîne de désintégration  $\beta$  de  $^{140}\text{Xe}$  (un xénon) aboutit à un élément stable  $^{140}\text{Ce}$  : c'est un des isotopes du cérium, élément dont la masse naturelle est de 140,1 (et qui correspond à un mélange d'isotopes de 136 à 142). On pourrait multiplier les exemples : de façon semblable, le produit de fission  $^{132}\text{Sn}$  donne naissance à une chaîne radioactive dont le terme est un xénon, la masse atomique du xénon naturel étant de 131,3. Ainsi, *un produit de fission évolue par transformations successives vers un élément différent, mais dont la masse atomique est très voisine de celle du noyau initial.*

Dans le cas d'une explosion (et à moindre titre dans le cas d'une fuite sur un réacteur), les nucléides les plus radioactifs disparaissent très vite car la source qui les a vu naître n'est pas renouvelée. Ceux qui sont responsables de l'essentiel des pollutions radioactives, sont initialement ceux dont les périodes vont de quelques heures à quelques semaines : à proximité immédiate du réacteur de Tchernobyl comme quelques jours plus tard en Europe occidentale (IPSN, 1986 ; von Gunten *et al.*, 1987), on a relevé essentiellement  $^{132}\text{Te}$  (77 h.),  $^{132}\text{I}$  (2,3 h.),  $^{131}\text{I}$  (8 j.),  $^{140}\text{La}$  (40 h.),  $^{141}\text{Ce}$  (33 j.),  $^{103}\text{Ru}$  (40 j.), et à moindre titre  $^{134}\text{Cs}$  (2 ans) et  $^{137}\text{Cs}$  (30 ans.).

## A1.2. LES EMISSIONS DE RADIONUCLÉIDES ET LA QUESTION DU TERME-SOURCE

Après ce bref rappel qualitatif, il nous faut examiner les questions quantitatives. Globalement, on a pu faire une estimation de la quantité de radionucléides émis par les essais nucléaires militaires, et la comparer avec celle correspondant aux principaux accidents intervenus sur ces réacteurs, Windscale en Angleterre (1957), Harrisburg (Three Mile Island) aux Etats-Unis (1979) et Tchernobyl (1986). Cette comparaison est donnée tableau A1.2.

La lecture de ce tableau est instructive à plusieurs titres. Tout d'abord on remarque que la contamination globale provenant des essais militaires, serait supérieure de deux ordres de grandeur à celle de Tchernobyl. Ensuite, l'accident de Three Mile Island, traité sans doute de façon très médiatique, aurait induit une pollution beaucoup plus faible que celle de Windscale, laquelle n'est pas restée dans la mémoire collective. Ceci n'est toutefois pas le propos de notre étude, et ce qui nous intéresse est la nature et la quantité des divers radionucléides émis.

*Contamination des eaux souterraines par des éléments radioactifs*

Nucléides		Périodes	Explosions nucléaires	Accidents sur réacteurs		
Symboles	Noms			Winscale	Harrisburg	Tchernobyl
<sup>133</sup> Xe	Xénon	5,7 j.	?	?	?	<i>3,7.10<sup>3</sup></i>
<sup>132</sup> Te	Tellure	77 h.		4,4.10 <sup>-1</sup>		<i>3,2.10<sup>2</sup></i>
<sup>131</sup> I	Iode	8 j.	9,0.10 <sup>5</sup>	7,4.10 <sup>-1</sup>	6.10 <sup>-4</sup>	<i>4,4.10<sup>2</sup></i>
<sup>140</sup> Ba	Barium	13 j.	1,0.10 <sup>6</sup>	?	---	<i>1,8.10<sup>2</sup></i>
<sup>95</sup> Zr	Zirconium	66 j.	2,0.10 <sup>5</sup>	?	---	<i>1,6.10<sup>2</sup></i>
<sup>103</sup> Ru	Ruthénium	40 j.	3,3.10 <sup>5</sup>	?	---	<i>1,4.10<sup>2</sup></i>
<sup>99</sup> Mo	Molybdène	66,5 h.	5,2.10 <sup>6</sup>	?	---	<i>1,3.10<sup>2</sup></i>
<sup>141</sup> Ce	Cérium	33 j.	3,5.10 <sup>5</sup>	?	---	<i>1,2.10<sup>2</sup></i>
<sup>144</sup> Ce	Cérium	0,78 an	4,1.10 <sup>4</sup>	3,0.10 <sup>-3</sup>	---	<i>1,1.10<sup>2</sup></i>
<sup>89</sup> Sr	Strontium	.	1,3.10 <sup>5</sup>	3,0.10 <sup>-3</sup>	---	<i>9,1.10<sup>1</sup></i>
<sup>140</sup> La	Lanthane	40 h..	?	---	---	<i>8,9.10<sup>1</sup></i>
<sup>143</sup> Pr	Praséodyme	.	?	---	---	<i>9,1.10<sup>1</sup></i>
<sup>133m</sup> Xe	Xénon	2,3 j.	?			<i>8,1.10<sup>1</sup></i>
<sup>143</sup> Ce	Cérium		?			<i>7,8.10<sup>1</sup></i>
<sup>106</sup> Ru	Ruthénium	1 an	1,7.10 <sup>4</sup>	3,0.10 <sup>-3</sup>	---	<i>6,7.10<sup>1</sup></i>
<sup>105</sup> Rh	Rhodium			?		<i>4,8.10<sup>1</sup></i>
<sup>137</sup> Cs	Césium	30 ans	1,3.10 <sup>3</sup>	4,4.10 <sup>-1</sup>	---	<i>4,8.10<sup>1</sup></i>
<sup>85</sup> Kr	Krypton			?		<i>3,0.10<sup>1</sup></i>
<sup>134</sup> Cs	Césium		?	2,2.10 <sup>-4</sup>	---	<i>2,4.10<sup>1</sup></i>
<sup>90</sup> Sr	Strontium	28 ans	8,5.10 <sup>2</sup>	7,4.10 <sup>-5</sup>	---	<i>8,9</i>

On a complété le tableau de K. Haberer par des chiffres *en italiques*, qui sont ceux donnés par l'IPSN (1986) ; pour les éléments cités par K. Haberer, (<sup>131</sup>I, <sup>140</sup>Ba, etc.) l'IPSN donne des valeurs légèrement plus faibles, en général d'un tiers environ. Il est probable que ceci vient d'une correction faite sur des données fournies par les Soviétiques (IPSN, 1986, tableau 6-1), correction que n'a peut-être pas faite K. Haberer.

\* Les rejets en <sup>137</sup>Cs et <sup>90</sup>Sr de Tchernobyl seraient, selon cette source, de 4,8 10<sup>16</sup> et 8,9 10<sup>15</sup> Bq, soit respectivement 1,3 et 0,24 millions de curies. Selon un rapport récent (IPSN, 1995), il est possible que ces chiffres soient très sous-estimés. On comparera ce chiffre avec la valeur de 1 600 curies attribuées par Stead (1963, 1969) à la radioactivité en <sup>137</sup>Cs et <sup>90</sup>Sr induite par un tir souterrain de 10 Kt de puissance.

\* On remarquera que selon ce tableau, les rejets consécutifs aux tirs militaires sont bien supérieurs à ceux de pollutions accidentelles comme Tchernobyl. On ne peut que remarquer la contradiction avec le fait que les tirs nucléaires ne nécessitent pas beaucoup de matière fissile (cf. § 6.2.1). La seule explication résiderait dans l'existence de nombreux tirs à fission nucléaire de forte puissance (plusieurs Mt par exemple), ce que nous n'avons pas vérifié. Par ailleurs, beaucoup d'explosions militaires ont été souterraines, si bien que la comparaison avec des accidents "aériens" perd de sa justification.

Tableau A1.2. - Rejets estimés (en 10<sup>15</sup> Bq) selon Haberer (1987, tableaux 1 et 3), des essais militaires nucléaires ("explosions"), des accidents de Winscale, Harrisburg (Three Miles Island), et Tchernobyl.

### A1.2.1. L'évaluation du terme-source

Quelque soit le cas considéré, essais nucléaires ou accidents intervenus sur réacteurs, il semble que *les radionucléides émis soient qualitativement, en gros les mêmes*. Cela se conçoit si l'on imagine que le fonctionnement d'une explosion nucléaire est fondamentalement identique à celui d'un réacteur, à la différence près que la fission n'y est pas freinée. Les données du tableau I.2 correspondent en effet à ce qui est décrit dans la littérature, non plus à propos de réacteurs, mais à propos de retombées radioactives consécutives à des explosions. Ainsi, d'un point de vue théorique, Mamuro *et al.* (1969) citent Weaver *et al.* (1963) et mentionnent neuf chaînes radioactives (sans doute les principales) pour la fission de  $^{235}\text{U}$  sous l'effet des neutrons thermiques. Ces chaînes, qui se font avec conservation (en première approximation) de la masse initiale, concernent les masses 95, 97, 99, 103, 131, 132, 133, 140 et 141 : on les retrouve effectivement en tête du tableau A1.2.

Par ailleurs les mesures faites en Europe occidentale peu après l'accident de Tchernobyl, vont dans le même sens. Selon Cannizaro *et al.* (1994) les principales activités dosées à Palerme (Sicile) ont été par ordre décroissant, celles de  $^{103}\text{Ru}$ ,  $^{131}\text{I}$ ,  $^{106}\text{Rh}$ ,  $^{129}\text{Te}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{132}\text{Te}$ , et  $^{140}\text{La}$ . De son côté l'IPSN a pris en compte, pour le calcul des doses reçues en France, les mêmes nucléides (sauf  $^{106}\text{Rh}$  et  $^{129}\text{Te}$ ) en y ajoutant  $^{106}\text{Ru}$ ,  $^{132}\text{Te}$ ,  $^{136}\text{Te}$ ,  $^{140}\text{Ba}$ ,  $^{140}\text{La}$  et  $^{99}\text{Mo}$ .

Des différences sensibles apparaissent toutefois si l'on s'attache non plus à la nature des radionucléides produits, mais à leurs proportions mutuelles. Ces différences sont imputables au mode de gestion et à la conception des réacteurs, au degré de confinement en cas d'accident, à une ségrégation lors du transport aérien, aussi bien les accidents survenus sur centrales que les explosions nucléaires.

#### A1.2.1.1. Les variations dues à la gestion ou à la conception des réacteurs

Selon la façon dont les réactions de fission sont contrôlées, les radioéléments produits sont plus ou moins abondants. Ainsi l'IPSN (1986), tentant une évaluation des nucléides présents dans le cœur du réacteur à Tchernobyl, donne des *proportions légèrement différentes* selon que cette estimation est fondée sur un fonctionnement de type REP (réacteur à eau pressurisée), ou RBMK (réacteur de type soviétique). Le même organisme a estimé que dans le cœur d'un réacteur (que ce soit REP ou RBMK), les produits de fission les plus abondants sont, à côté du xénon  $^{133}\text{Xe}$ , le zirconium ( $^{95}\text{Zr}$ ), des terres rares (cériums  $^{141}\text{Ce}$  et  $^{143}\text{Ce}$ , lanthane  $^{140}\text{La}$ ), le baryum ( $^{140}\text{Ba}$ ) et le molybdène ( $^{99}\text{Mo}$ ), avant le tellure  $^{132}\text{Te}$  et l'iode  $^{131}\text{I}$ . On doit y ajouter un produit d'activation, le neptunium ( $^{239}\text{Np}$ ).

D'après Haberer (1987), le cœur du réacteur de Three Mile Island contenait une activité en strontium  $^{89}\text{Sr}$  et en cérium  $^{144}\text{Ce}$  qui était plus de deux fois supérieure à celle des produits plus volatils comme  $^{131}\text{I}$  et  $^{132}\text{Te}$ . A Tchernobyl la proportion n'aurait pas été du simple au double, mais de 1 à 1,3 environ. Il n'y a donc pas, de ce point de vue, de différence majeure entre les inventaires du cœur des deux réacteurs au moment des accidents survenus.

En conséquence, s'il existe des variations dans la proportion des radionucléides produits en fonction des différents types de réacteurs, *elles ne paraissent pas très importantes*.

### A1.2.1.2. L'influence du confinement sur l'émission des produits de fission

Il en va autrement du degré de confinement, qui joue aussi bien pour des accidents sur réacteurs que pour des explosions nucléaires.

Pour les réacteurs nucléaires, Haberer (1987) a proposé, en cas de fusion du coeur dans une installation de type REP (Druckwasserreaktor), une estimation fondée sur le degré de gravité des accidents et l'importance des fuites vers l'extérieur (tableau A1.3).

Classe	Type	Proportion du coeur du réacteur libérée (en %)						
		Kr, Xe	Br, I	Rb, Cs	Te, Sb	Sr, Ba	Ru, Rh, Co, Mo, Tc	TR, Zr, Nb, Act.
1	Explosion	100	79,0	50,0	35,0	7,0	38,0	0,26
2	Fuite 30 cm	100	40,0	29,0	19,0	3,2	1,7	0,26
3	Fuite 8 cm	100	6,3	4,4	4,0	0,5	0,3	0,05
4	Fuite 2,5 cm	100	1,5	0,5	0,5	0,1	0,04	0,01
Accid. Tchernobyl		100	20	10-13	15	4,0 - 5,6	2,3 - 2,9	2,3 - 3,2
Accid. Windscale			12	7,5	7,5	0,02	0,7	0,03

TR : Terres rares, Act. : actinides. L'IPSN (1986) a donné des chiffres peu différents pour Tchernobyl (la source de documentation était manifestement la même, c'est-à-dire soviétique). Des hypothèses récentes (IPSN, 1995) font allusion à des proportions nettement plus élevées, jusqu'à 50 % pour les iodes, 40 % pour les césiums, peut-être même 95 % pour <sup>106</sup>Ru et 65 % pour <sup>137</sup>Cs. On remarquera que de tels chiffres sont beaucoup plus proches du type 1 d'Haberer (première ligne), qui correspond effectivement à une explosion, que ceux du présent tableau A1.3.

Note : L'accident hypothétique pris en compte dans une étude de l'IPSN (1987) à propos de la centrale de Nogent-sur-Seine, correspondrait à des rejets théoriques dont le type (I >> Ru >> Sr) pourrait peut-être se rapprocher (pour ce qui est du terme-source) du type Windscale ; cf. tableau A1.2.

Pour Tchernobyl, cette estimation est probablement fondée sur une source soviétique. Pour ce qui est de la proportion d'éléments rejetés à partir du coeur du réacteur accidenté, elle recoupe celle de l'IPSN (1986). On voit que l'accident survenu à la centrale ukrainienne s'apparente, toujours pour ce qui est du spectre des éléments, à celle d'une fuite très importante du système de confinement sur un réacteur de type REP. Il est clair que, selon le degré de gravité d'un accident survenant sur une centrale, et donc du défaut de confinement, les nucléides émis le sont en proportion très variable de leur quantité initiale dans le coeur du réacteur. Au point de vue contamination de l'environnement, cette variation paraît oblitérer largement celle qui découle initialement du mode d'exploitation des réacteurs.

Tableau A1.3 - Proportion des éléments du coeur d'un réacteur (à eau pressurisée, REP) libérés en cas d'incident majeur avec fusion du coeur (Haberer, 1987).

Pour les tirs nucléaires souterrains, Stead (1963) affirme qu'en cas d'explosions cratérisantes, les nucléides "volatils" ( $^3\text{H}$ ,  $^{85}\text{Kr}$ ,  $^{89}\text{Sr}$ ,  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{131}\text{I}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{140}\text{Ba}$ ), seraient émis en plus grande quantité que les "réfractaires" ( $^{95}\text{Zr}$ ,  $^{95}\text{Nb}$ ,  $^{144}\text{Ce}$  et autres Terres rares). Par volatils il faut entendre ceux qui peuvent constituer des gaz à température ordinaire, comme le tritium  $^3\text{H}$ , le krypton  $^{85}\text{Kr}$ , ou l'iode  $^{131}\text{I}$  ; et ceux qui sont gazeux jusqu'à une température peu élevée, comme Ru (Dupuis, 1970), sans doute aussi Te. On doit y ajouter ceux dont les précurseurs dans les chaînes radioactives (de quelques secondes à quelques heures) sont eux aussi des gaz, en l'occurrence les kryptons  $^{89}\text{Kr}$  et  $^{90}\text{Kr}$  pour  $^{89}\text{Sr}$  et  $^{90}\text{Sr}$ , et les xénons  $^{137}\text{Xe}$  et  $^{140}\text{Xe}$  pour  $^{137}\text{Cs}$  et  $^{140}\text{Ba}$ . On conçoit naturellement que ce soient ces radionucléides qui s'échappent le plus facilement, même pour des conditions de confinement sévères, et ce d'autant plus qu'accidents comme explosions correspondent à des températures très élevées (ce qui accroît encore la volatilité). Il est également compréhensible que ce soient eux qui migrent le plus loin. *A contrario* il est évident qu'en cas d'explosion aérienne, tous les produits de fission sont indistinctement disséminés dans l'atmosphère.

Une vérification se trouve dans Barthoux *et al.*, (1970), qui relate le cas d'une explosion saharienne ayant comporté une échappée accidentelle. Dans l'atmosphère les isotopes réfractaires  $^{95}\text{Zr}$  et  $^{95}\text{Nb}$  sont en faible proportion, alors qu'à l'endroit de l'explosion ils sont plus abondants que les volatils  $^{131}\text{I}$  et  $^{132}\text{Te}$  (figure A1.2).

Il est d'autre part intéressant de comparer le pronostic de Stead (op. cit.) avec le tableau A1.3. On s'aperçoit qu'en cas de confinement partiel, que ce soit pour un accident sur réacteur ou pour une explosion nucléaire, les nucléides dits "réfractaires" comme zirconium et Terres rares sont bien moins dispersés dans l'environnement que les gaz ou les nucléides dits "volatils". Le rapport de l'IPSN (1986) sur l'accident de Tchernobyl fait du reste état de "l'effet de filtration des matériaux déversés" sur le réacteur détruit, et constate que les aérosols émis ont été "généralement enrichis en espèces volatiles par rapport au combustible dans le coeur".

Pour notre propos il est donc clair que la nature du terme-source, susceptible d'intervenir ultérieurement dans la pollution des nappes souterraines, dépend fortement du degré de confinement initial, que ce soit pour une explosion nucléaire ou pour un accident de réacteur.

#### A1.2.1.3. L'influence du transport

Une différenciation supplémentaire intervient lors du transport des radionucléides dans l'atmosphère. Holloway *et al.* (1974) ont constaté que certains nucléides comme  $^{91}\text{Y}$  et  $^{143}\text{Pr}$  (Terres rares) sont enrichis sur les particules dépassant quelques microns en diamètre, d'autres sur des particules plus petites inférieures au micron ( $^{89}\text{Sr}$  et  $^{140}\text{Ba}$  - aérosols dans la pluie). Lors du passage des retombées de Tchernobyl sur l'Italie du Sud, Cannizaro *et al.* (1994) attribuent quelques rares mesures isolées de radioactivité attribuable aux nucléides "réfractaires" ( $^{95}\text{Nb}$ ,  $^{95}\text{Zr}$ ,  $^{141}\text{Ce}$ ,  $^{144}\text{Ce}$ ), à la sorption de ces derniers sur des particules. Les trois derniers de ces nucléides sont par ailleurs ceux qui représentaient l'essentiel de la radioactivité *au sol*, à 1 km du réacteur de Tchernobyl, 12 jours après l'explosion, alors que *dans l'air* les activités dominantes étaient celles de  $^{131}\text{I}$ ,  $^{103}\text{Ru}$ , et  $^{132}\text{Te}$  (IPSN, 1986). Il semble donc que les "réfractaires" soient liés à des particules de dimension plus forte que les "volatils", et en tous cas qu'ils migrent moins loin que ces derniers. On pourra à nouveau consulter la figure A1.2 à ce sujet.

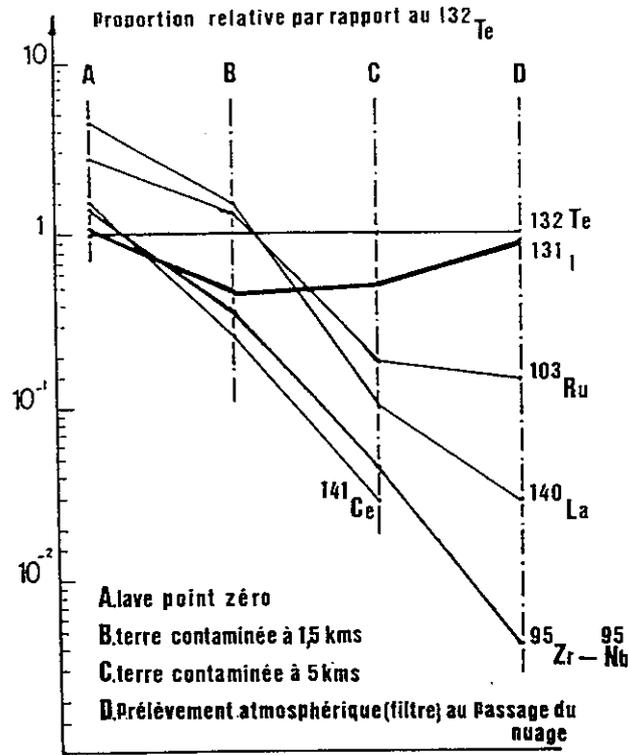


Figure A1.2 - Schéma de répartition des éléments réfractaires ( $^{95}\text{Nb}$ ,  $^{95}\text{Zr}$ ) et volatils ( $^{131}\text{I}$ ,  $^{103}\text{Ru}$ , et  $^{132}\text{Te}$ ) dans l'environnement d'une explosion non confinée (Barthoux *et al.*, 1970).

En bref, on peut résumer ainsi les faits précédents : lors du transport dans l'atmosphère tout se passe comme si la partition entre nucléides "volatils" ( $^{131}\text{I}$ ,  $^{103}\text{Ru}$ ,  $^{132}\text{Te}$ ,  $^{89}\text{Sr}$ ,  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{140}\text{Ba}$ ) et nucléides "réfractaires" ( $^{95}\text{Nb}$ ,  $^{95}\text{Zr}$ , isotopes variés des Terres rares cérium, yttrium, praséodyme, lanthane) se trouvait encore renforcée par rapport à celle du terme-source originel.

### A1.2.2. Conclusion

On pourrait adopter dans un *but mnémotechnique* une image simplifiée, voire volontairement simpliste, pour rendre compte des observations décrites ci-dessus. Cette image serait une *analogie granulométrique (ou gravimétrique)* qui permet de schématiser le comportement des nucléides à chaque stade de leur dispersion dans l'environnement. On remarquera qu'une telle distinction généralise en fait les observations de Holloway *et al.* (1974 ; cf. *supra*). Dans cette hypothèse les "réfractaires" correspondraient aux nucléides "retenus" dans des fragments de taille relativement grosse (les aérosols atteignent quelques microns), les "volatils" seraient liés à des particules plus petites, ou constitueraient de simples molécules (gaz, qu'ils soient inertes ou non).

Chimiquement les "réfractaires" sont des éléments à valence 3 (yttrium, Terres rares), 4 (zirconium) ou 5 (niobium). Les particules auxquelles ils seraient théoriquement liés seraient d'autant mieux retenues, et leur dissémination faible, que les processus initiaux de confinement, ou de filtrage, sont efficaces. C'est par exemple le cas 4 mentionné tableau A1.3 (première colonne en partant de la droite), dans lequel la proportion de nucléides "réfractaires" rejetés ne constituent que 0,01 % de la quantité présente dans le combustible. Lors du transport dans l'air, ces particules auraient tendance à retomber relativement vite, et c'est pour cela qu'elles auraient constitué l'essentiel de la radioactivité au sol quelques jours après l'accident de Tchernobyl. Elles auraient également tendance à migrer moins loin que les "volatils", et c'est pour cela que les mesures faites en Italie (Cannizaro *et al.*, op. cit.) n'auraient relevé qu'une activité faible et discontinue, attribuée précisément à des particules isolées très radioactives ou "particules chaudes" (hot particles).

### A1.3. REFERENCES

BARTHOUX A., CLUCHET J., GERARD R., HUBERT M. (1970) - Applications scientifiques et industrielles des explosifs nucléaires : problèmes de sécurité. B. I. S. T. du CEA, n° 149, pp. 53-68.

CANNIZARO F., GRECO G., RANELI M., SPITALE M.C., TOMARCHIO E. (1994) - Determination of Radionuclide Concentrations in the Air of Palermo from the Chernobyl Accident to December 1992. *Nucl. Geophys.*, vol. 8 n° 4, pp. 373-388.

DUPUIS M. (1970) - Distribution et évolution des radioéléments après une explosion nucléaire. B. I. S. T. du CEA, vol. 149, pp. 41-52.

GAVINI M.B. (1978) - Radionuclide ratios in wet and dry deposition samples from June 1976 through december 1977. *Earth and Planetary Science Letters*, vol. 41 pp. 228-232.

HABERER K. (1987) - Umweltradioaktivität und Trinkwasserversorgung. *Wasser Abwasser*, 128 (7), pp. 396-403

HOFFMAN D.C., DANIELS W.R., WOLFSBERG K., THOMPSON J.L., RUNDBERG R.S., FRASER S.L., DANIELS K.S. (1984) - A review of radionuclide migration from an underground nuclear explosion at the Nevada test site. IAEA, Vienne, Radioactive Waste Management pp. 241- 256.

HOLLOWAY R.W., SUMERLIN N.G., BECK J.N., KURODA P.K. (1974) - The Ratios of Fission Pairs With Similar Half-Lives in the Atmosphere. *Journ. of Geophys. Research*, vol. 79, n° 30, pp. 4453-4459.

IPSN (1986) - L'accident de Tchernobyl - révision 3. Rapport IPSN 2/86 (document provisoire),

IPSN (1987) - Etude de la contamination des eaux de la Seine due aux retombées atmosphériques suite à un accident grave sur le site de Nogent. Rapport interne, avril 1987.

IPSN (1995) - Tchernobyl 9 ans après. Dossier de presse, IPSN, 30 p.

KRUGER P. (1970) - Hydrologic transport of radionuclides from nuclear craters and quarries. U. S. Army Engineer Cratering Group, Livermore, California, 119 p.

MAMURO T., MATSUNAMI T., FUJITA A., YOSHIKAWA K. (1969) - Radionuclide Fractionation in Fallout Particles from a Land Surface Burst. *Journ. of Geophys. Research*, vol. 74, n° 6, pp. 1374- 1387.

NOSKIN V.E., GATROUSIS C. (1974) - Fallout  $^{240}\text{Pu}$  and  $^{239}\text{Pu}$  in Atlantic marine samples. *Earth and Planetary Science Letters*, vol. 22 pp. 111-117.

STEAD F.W. (1963) - Tritium Distribution in Ground Water around Large Underground Fusion Explosions. *Science*, vol. 142, pp. 1163-1165.

STEAD F.W. (1969) - Groundwater Contamination. *In* : Education for peaceful uses of nuclear explosives. Tucson, Ariz., pp. 205-219.

VON GUNTEN H., WABER U.E., KRAEHENBUEHL U. (1987) - the reactor accident at Chernobyl : a possibility to test colloid-controlled transport of radionuclides in a shallow aquifer. *Journ. of Contam. Hydrology*, vol. 2 pp. 237-247.

WEAVER L.E., STROM P.O., KILLEEN P.A. (1963) - Estimated chain and independent fission yields for several neutron-induced fission processes. U. S. Naval Radiological Defense Laboratory Technical Report USNRDL-TR-633.

## **ANNEXE 2**

### **RAPPELS SOMMAIRES SUR LA MIGRATION DES ELEMENTS EN SOLUTION DANS LE MILIEU GEOLOGIQUE**

## A2.1. LES PHENOMENES DE SORPTION-DESORPTION

Les radioéléments sont en général à des concentrations suffisamment faibles en solution, pour que leur migration soit régie par des question de sorption/désorption plus que par des questions de précipitation/solubilisation.

### A2.1.1. Les principes de base

Le milieu géologique est essentiellement constitué de silico-aluminates ou de carbonates, en d'autres termes des composés riches en oxygène. Chimiquement, ces composés sont des *adsorbants polaires*, c'est-à-dire que leur interaction avec des solutés dépendent de la polarité (du signe) des ces derniers. En d'autres termes, le comportement des éléments présents en solution, vis-à-vis des roches-hôtes, dépend de la charge électrique qui leur est associée.

L'eau est aussi un solvant polaire, caractère également lié à la présence d'oxygène dans la molécule mais aussi à une certaine dissymétrie de cette dernière. En effet par rapport à l'atome d'oxygène, les deux atomes d'hydrogène sont localisés d'un même côté, si bien que globalement la molécule d'eau présente un pôle positif (vers les deux atomes d'hydrogène, dont l'ion est  $H^+$ ) et un pôle négatif à l'opposé (vers l'atome d'oxygène, dont l'ion est  $O^{2-}$ ). Il s'en suit que *dans un aquifère*, un ion en solution sera attiré de façon électrostatique et selon sa charge, soit par l'eau seule, soit par l'eau ainsi que par la matrice. Le premier cas correspond aux ions *négatifs*, attirés par le pôle  $H^+$  de la molécule d'eau mais repoussés par les charges négatives liées aux ions oxygène de la matrice. Le second correspond aux ions *positifs*, attirés à la fois par le pôle négatif de l'eau (côté  $O^{2-}$ ) et par les oxygènes des carbonates ou des silicoaluminates.

Un tel schéma, dans lequel le comportement en solution d'un élément est régi par les caractéristiques électriques et physiques (rayon ionique) de l'ion correspondant, est parfois invoqué (Kühn *et al.*, 1973) même s'il comporte parfois quelques exceptions.

### A2.1.2. Le comportement des éléments dans un aquifère

Le premier cas correspond à la famille que les hydrogéologues désignent sous le nom de traceurs parfaits, ce qui veut dire que leur comportement est celui de l'eau (en l'occurrence, de la molécule d'eau). Compte tenu de ce qui vient d'être dit, on ne s'étonnera pas d'y trouver les ions chlorure ( $Cl^-$ ), iodure ( $I^-$ ), nitrates ( $NO_3^-$ ), sulfates ( $SO_4^{2-}$ )... Au contraire, le second cas est celui des éléments dits "sorbants", dont la mobilité est moindre que celle de l'eau à cause de leur affinité pour la matrice :  $K^+$ ,  $Sr^{2+}$ ...

#### A2.1.2.1. Les aspects qualitatifs

On remarque que les ions dont il est question peuvent être simples ( $I^-$ ) ou complexes ( $SO_4^{2-}$ ). or, on sait que selon les conditions ambiantes, un élément peut se trouver en solution sous une forme dominante constituée d'ions négatifs, positifs, ou de complexes neutres. C'est le cas de l'azote ( $NH_4^+$  ou  $NO_3^-$ ) mais aussi, chez les radionucléides, du plutonium ( $Pu^{3+}$  ou  $Pu(OH)_4^0$  neutre) par exemple. D'une manière générale, l'abondance des ions positifs est favorisée par celle des ions  $H^+$ , c'est-à-dire par les pH acides. Au contraire les ions négatifs sont favorisés par l'abondance des charges négatives, à savoir les pH basiques ( $OH^-$ ) et les milieux riches en électrons

(environnements réducteurs). Par conséquent, il est clair que le caractère sorbant ou non d'un élément, dépendra en partie des caractéristiques (pH, Eh) du milieu où il se trouve. Par ailleurs, il ne faut pas oublier que la nature des ions formés (la spéciation) dépend de la formation, ou non, de complexes : en particulier, la présence de matières organiques est susceptible d'influencer notablement la migration des éléments. Dans l'ensemble toutefois, les éléments qui forment le plus souvent des ions simples ( $\text{Na}^+$ ,  $\text{Cl}^-$ ) auront toujours le même comportement.

On constate que les deux catégories distinguées, traceurs parfaits et ions sorbants, correspondent à des régions bien particulières du tableau de Mendeleiev. Les ions peu ou pas sorbés (négatifs) se situent dans la *partie droite* des groupes A et B (figure A2.1), tandis que les ions plus ou moins sorbés se situent dans la partie gauche de ces mêmes deux groupes. Ceci nous permettra plus loin une approche théorique du caractère sorbant des radionucléides.

#### A2.1.2.2. Les aspects quantitatifs - le coefficient $K_d$ et le coefficient de retard

Sur un plan très général, les équations de transport et de rétention des solutés dans des milieux poreux ont été établies depuis longtemps, en vue de décrire les phénomènes chromatographiques. Ce n'est que plus tard qu'elles ont été utilisées pour *calculer le pouvoir de rétention des milieux géologiques*. En fait, l'hydrogéologie a bénéficié de développements mathématiques faits antérieurement en vue d'applications bien différentes.

La manière usuelle pour définir ce pouvoir de rétention est de faire appel à la notion de *coefficient de sorption*  $K_d$ , que l'on peut présenter de deux manières. La première est de considérer qu'il s'agit d'un coefficient de partage empirique entre solides et solutions : elle ne permet pas, à cause de certaines limitations, une utilisation dans les modèles hydrodynamiques de transport. La seconde est plus mathématique, elle s'intègre bien sous certaines conditions aux modèles numériques, et c'est à elle que l'on fait généralement appel. Ce qui suit est inspiré de l'exposé fait dans l'ouvrage de Marsily (1986) sur l'hydrogéologie quantitative : il ne s'agit donc pas d'un travail original, mais de simples rappels que l'on doit consentir en tant que de besoin.

##### *Le modèle mathématique*

Le modèle mathématique le plus simple pour décrire le mouvement d'une solution dans un milieu poreux, ainsi que la rétention par la matrice, est le "piston avec échange". Il revient à ajouter dans l'équation de transport (modèle de "piston") décrivant la propagation du soluté, un terme supplémentaire d'échange représentant la sorption (appelé *terme de retard*).

Pér.	Groupe A									Groupe B								
	I	II	III	IV	V	VI	VII	VIII		I	II	III	IV	V	VI	VII	VII I	
1	H																He	
2	Li	Be										B	C	N	O	F	Ne	
3	Na	Mg										Al	Si	P	S	Cl	Ar	
4	K	Ca	Sc	Ti	V	Cr	Mn	Fe	Co	Ni	Cu	Zn	Ga	Ge	As	Se	Br	Kr
5	Rb	Sr	Y	Zr	Nb	Mo	Tc	Ru	Rh	Pd	Ag	Cd	In	Sn	Sb	Te	I	Xe
6	Cs	Ba	L	Hf	Ta	W	Re	Os	Ir	Pt	Au	Hg	Tl	Pb	Bi	Po	At	Rn
7	Fr	Ra	A	Ku	Ha													

Lanthanides (L)	La	Ce	Pr	Nd	Pm	Sm	Eu	Gd	Tb	Dy	Ho	Er	Tm	Yb	Lu
-----------------	----	----	----	----	----	----	----	----	----	----	----	----	----	----	----

Actinides (A)	Ac	Th	Pa	U	Np	Pu	Am	Cm	Bk	Cf	Es	Fm	Md	No	Lw
---------------	----	----	----	---	----	----	----	----	----	----	----	----	----	----	----

Il s'agit d'un milieu à pH voisin de la neutralité (5-8) et dans des conditions redox oxydantes analogues à celles des eaux superficielles.

Toutefois on se souviendra que certains éléments, classés ici comme dans l'ensemble non sorbants à cause des ions complexes  $MO_x^{y-}$  qu'ils forment, sont cependant connus pour s'adsorber sur des phases particulières comme les hydroxydes de fer  $Fe(OH)_3$  plus ou moins amorphes : c'est le cas notamment du tungstène (W) et de l'arsenic (As).

Figure A2.1 - Place des éléments sorbants (à comportement cationique), et des éléments non sorbants (à comportement anionique, en gras) dans le milieu géologique, en fonction de leur situation dans le tableau périodique de Mendéléiev.

L'équation de base du transport, dans laquelle C est la concentration d'un soluté, U la vitesse de Darcy, D le coefficient de dispersion,  $\omega$  la porosité et t le temps, s'écrit :

$$\text{div}(D\text{grad } C - CU) = \omega \cdot \partial C / \partial t$$

Lors d'échanges entre fluide et phase solide (sorption ou désorption), pour un élément donné, la variation instantanée de masse par unité de volume est notée Q :

$$\text{div}(D\text{grad } C - CU) = \omega \cdot \partial C / \partial t + Q$$

On désigne usuellement par F, grandeur sans dimension, la concentration de l'élément en question dans la phase solide. La proportion de cette phase dans un volume quelconque étant  $(1-\omega)$ , on a  $Q = (1-\omega)\rho_s \partial F / \partial t$  ; le terme  $\rho_s$  (masse spécifique de la phase solide) intervient à cause de la différence d'unités entre Q (masse volumique) et F (sans dimension). Pour notre propos, cette variation Q concernera des phénomènes d'adsorption - désorption, et non des phénomènes de précipitation - dissolution, pour lesquels la notion de coefficient de sorption ne s'applique en principe pas. En effet on peut poser comme hypothèse que, dans les processus d'adsorption - désorption, la concentration F dans le solide est à *chaque instant* proportionnelle à la concentration C du soluté (en masse par unité de volume) :

$$F = K_d \cdot C$$

On fait de plus l'hypothèse que  $K_d$  n'est pas fonction du temps (ce qui revient à faire l'hypothèse d'un équilibre local en tout point du système), et donc

$$\partial F / \partial t = K_d \partial C / \partial t$$

Dans ces conditions l'équation de transport devient :

$$\text{div}(D\text{grad } C - CU) = \omega \cdot \partial C / \partial t + (1-\omega)\rho_s K_d \partial C / \partial t$$

et l'on voit que le terme de retard s'écrit  $(1-\omega)\rho_s K_d \partial C / \partial t$ . En mettant  $\omega \cdot \partial C / \partial t$  en facteur, l'équation de transport s'écrit :

$$\text{div}(D\text{grad } C - CU) = \omega \cdot (1 + (1-\omega)\rho_s / \omega) K_d \partial C / \partial t$$

Si on compare cette expression à l'équation donnée plus haut :

$$\text{div}(D\text{grad } C - CU) = \omega \cdot \partial C / \partial t$$

on voit que les deux expressions sont identiques à un facteur près, qui est  $(1 + ((1-\omega)\rho_s / \omega)K_d)$ . Pour ce motif, il est d'usage de désigner ce facteur sous le nom de coefficient de retard, noté R. En effet, la prise en compte des échanges ne modifie l'équation du transport que par une homothétie dans l'échelle des temps, la variable t (temps) se trouvant simplement divisée par le facteur R.

### *Les conditions de validité du modèle*

Il est très important de souligner que ces expressions ne sont valables que sous les hypothèses d'une sorption *entièrement réversible, instantanée, et linéaire*. Si la sorption *n'est pas totalement réversible*, alors il faut tenir compte d'un coefficient d'adsorption  $K_d(ad)$  et d'un coefficient de désorption  $K_d(dés)$ . Il n'y a pas de solution analytique à l'équation de transport correspondante et le calcul doit être fait par incréments successifs. L'hypothèse d'une sorption partiellement réversible est dangereuse du point de vue des calculs de sûreté, car l'irréversibilité partielle apparente peut être en fait une désorption (donc un relargage dans l'environnement) à cinétique très lente (de Marsily, 1986, p. 256-257). On risque donc en postulant une sorption partiellement réversible, de surestimer le pouvoir de rétention des terrains.

D'autre part, *si la sorption n'est pas instantanée*, le rapport entre les concentrations F et C varie avec le temps t, et on ne peut dériver l'expression  $F = K_d.C$  (indépendante de t) comme ci-dessus. En fait initialement du moins, les réactions de sorption se font avec une cinétique rapide (de l'ordre de quelques minutes). Les équations de transport impliquant une sorption instantanée ne sont pas incorrectes pour des phénomènes de percolation dans les milieux géologiques, qui se déroulent sur quelques jours ou quelques mois. Enfin *si la sorption n'est pas linéaire*, par exemple si elle est de la forme d'un isotherme de Freundlich ( $F = m + n.CP$ ), l'expression du transport comme de la rétention sont différentes de celles données plus haut.

Selon Rochon (1978), tous ces cas de figure auraient été étudiés et auraient fait l'objet d'une solution mathématique quelconque, sauf celui d'une sorption non réversible et se faisant avec une cinétique du second ordre ou plus. On trouvera également dans Rochon *et al.* (1980) ainsi que Jakob *et al.* (1990) des modèles pour une sorption irréversible, ou réversible mais non linéaire, et dans de Marsily (1986 p. 259) la modélisation d'une sorption non instantanée. Pour tenir implicitement compte de ces questions de réversibilité, certains auteurs utilisent la notation  $R_d$  (qui n'est pas un coefficient de retard), pour désigner un coefficient de partage n'impliquant pas un équilibre, alors qu'un  $K_d$  l'impliquerait (Erdal *et al.*, 1980).

On retiendra donc que *le fait d'estimer le pouvoir de rétention des terrains par un coefficient de partage (ou de rétention) nommé  $K_d$ , correspond à une extrême simplification des phénomènes* pouvant de produire. On ne s'étonnera donc pas si dans un certain nombre de cas (§ A3.3) il y a une très grande différence entre les valeurs attribuées au  $K_d$  suite aux expériences de laboratoire, et les retards effectivement constatés sur le terrain.

### *Les applications pratiques*

Généralement, on utilise la relation liant le retard R au coefficient de partage  $K_d$  :

$$R = 1 + (1-\omega)\rho_s K_d / \omega$$

Dans un volume donné,  $\omega$  étant la porosité (ou la proportion de vides) et  $\rho_s$  la masse spécifique, le rapport  $(1-\omega)\rho_s / \omega$  représente *le rapport solides / vides*, et sa dimension est celle d'une masse spécifique : il se chiffre par exemple en mg/l. La dimension du  $K_d$  est inverse, on l'évalue couramment en ml/g. Pour fixer les esprits, on retiendra que pour une porosité de 20 % ( $\omega = 0,2$ ) et  $\rho_s$  de l'ordre de 2,5, ce rapport est d'environ 10 : en d'autres termes et abstraction faite des questions d'unités, on obtiendrait la valeur du facteur de retard en multipliant par 10 environ la

valeur attribuée au  $K_d$ . Un élément pour lequel  $K_d$  est grand aura un retard important, c'est-à-dire qu'il sera fortement sorbé et retenu dans les terrains. Au contraire, un élément migrant à la même vitesse que l'eau ("traceur parfait") et dont le retard sera donc de 1, aura un  $K_d$  nul.

Dans la réalité les choses sont parfois un peu plus complexes. Ainsi Letay (1993) signale pour l'iode, qui est en principe un traceur parfait, un  $K_d$  très faible mais non nul (cf. § A3.1). De leur côté Kaufman et Orlob (1956) ainsi que Thomas et Swoboda (1970), ont décrit des cas où la migration d'anions se ferait *plus vite* que celle de l'eau : le facteur de retard serait donc  $< 1$ . Ce phénomène, nommé exclusion d'anions, se produirait dans des milieux poreux (sols par exemple) à argiles smectitiques : "...Anion exclusion is due to the negative surface charge on aluminosilicates which repels anions, thereby effectively constricting the pores and making the intragranular porosity of the mineral unavailable to negatively charged species" (Hoffman *et al.*, 1984). Cet exemple est toutefois un peu anecdotique, et dans la plupart des cas (ainsi que des milieux étudiés) les anions comme chlore ou nitrates sont considérés comme des espèces migrant exactement comme l'eau. Il est très possible qu'il ne s'agisse pas là d'un problème électrostatique, mais d'un autre phénomène, l'échange du tritium  $^3\text{H}$  avec l'eau interfoliaire des feuillets argileux.

La notion selon laquelle une sorption instantanée et réversible modifie l'équation du transport que par une homotétie dans l'échelle des temps (cf. ci-dessus), est très intéressante dans l'optique d'une *estimation du relargage*. Elle signifie en effet que tout se passe comme si, pour un élément sorbant, la migration se faisait selon un rythme beaucoup plus lent que pour un élément non sorbant. Mais pour des raisons de bilan de masse, et pour une même quantité initiale, il est évident que le pic de concentration sera diminué dans les mêmes proportions. En d'autres termes, plus un élément est sorbant et plus il diffusera lentement dans le milieu, mais aussi plus le pic (qui apparaîtra avec retard) sera faible.

## A2.2. LE CAS DES RADIONUCLEIDES

Nous avons vu § A2.1.2.1 que les propriétés de sorption des éléments pouvaient être en gros prévues qualitativement d'après leur position dans le tableau de Mendeleiev, et par ailleurs en annexe I que les radionucléides susceptibles d'induire des contaminations radioactives sont très nombreux. Qu'en est-il donc de leurs propriétés de sorption?

### A2.2.1. Le comportement qualitatif des différentes familles

Les radionucléides susceptibles de contaminer le milieu naturel sont, tout d'abord le *tritium* résultant de la fusion nucléaire, ensuite les *produits d'activation* des matériaux employés, du milieu naturel ainsi que de l'uranium ou du plutonium utilisés comme combustible ou comme explosif, et enfin les *produits de fission*. Le cas du *tritium* est simple, puisqu'il est le type même du traceur parfait et que sa migration est celle de l'eau. Dans les produits d'activation du milieu géologique ou des matériaux, seuls  $^{59}\text{Fe}$  et  $^{60}\text{Co}$  ont une durée assez longue pour mériter notre attention,  $^{14}\text{C}$  n'étant par ailleurs produit qu'en quantité très faible. En dehors de ces deux isotopes, il ne reste donc à envisager que le comportement des transuraniens résultant de l'activation du combustible, et celui des produits de fission. La plupart des *produits d'activation* des silicates ou carbonates, qui forment l'essentiel du milieu géologique, forment des ions positifs : ce sont  $^{24}\text{Na}$ ,  $^{28}\text{Al}$ ,  $^{31}\text{Si}$ ,  $^{32}\text{P}$ ,  $^{42}\text{K}$ ,  $^{45}\text{Ca}$ ,  $^{55}\text{Fe}$ ,  $^{56}\text{Mn}$ ,  $^{24}\text{Na}$ . Ils migreront donc très peu, de plus

ce sont des nucléides à période courte de quelques heures à quelques jours, sauf  $^{55}\text{Fe}$  (2,3 ans ; Dupuis, 1970).

#### A2.2.1.1. Les produits d'activation des matériaux $^{59}\text{Fe}$ et $^{60}\text{Co}$

Le comportement géochimique du fer et du cobalt est bien connu : s'il n'y a pas de complexes organiques le fer n'existe pratiquement en solution que sous forme ferreuse ( $\text{Fe}^{\text{II}}$ ). L'origine des deux isotopes  $^{59}\text{Fe}$  et  $^{60}\text{Co}$  étant un milieu aéré, la migration sera sous forme de  $\text{Fe}^{3+}$  et  $\text{Co}^{2+}$ . Ces deux ions étant positifs devraient théoriquement être sorbés par les terrains.

#### A2.2.1.2. Les produits d'activation des combustibles ou des explosifs : les transuraniens

Les nucléides formés sont les isotopes du neptunium, du plutonium, de l'américium et du curium. Ces éléments, qui appartiennent à un même groupe (cf. figure II.1), celui des actinides, ont des propriétés chimiques assez voisines. Ils forment des ions positifs, soit simples ( $\text{Am}^{3+}$ ,  $\text{Pu}^{4+}$ ...) soit complexes ( $\text{NpO}_2^+$ ,  $\text{PuO}_2^{2+}$ ...). Ils devraient donc être plus ou moins sorbés et retenus dans les terrains traversés. On retiendra que Np et Pu sont susceptibles d'avoir plusieurs valences dans l'environnement, et donc que l'intensité de leur rétention dépendra des conditions d'oxydo-réduction régnant dans le milieu.

#### A2.2.1.3. Les produits de fission

On a dit plus haut que les produits de fission vont approximativement des masses 80 à 160. Ceci correspond aux masses de la période 5, à laquelle il faut donc ajouter la fin de la période 4 (isobares du krypton) et le début de la période 6. On trouvera successivement pour les principaux radionucléides, par masses croissantes :

- un gaz rare  $^{85}\text{Kr}$ , qui n'étant pas chargé n'aura pas d'interaction avec la matrice des aquifères, et devrait migrer de façon identique à celle de l'eau et du tritium,
- des isotopes formant des ions positifs et ayant donc théoriquement des propriétés sorbantes, de masses 85 à 97 ( $^{86}\text{Rb}$ ,  $^{85}\text{Sr}$ ,  $^{89}\text{Sr}$ ,  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{91}\text{Y}$ ,  $^{95}\text{Zr}$ ,  $^{97}\text{Zr}$ ),
- des isotopes formant des ions complexes négatifs de type  $\text{MoO}_4^-$ ,  $\text{TcO}_4^-$ ,  $\text{RuO}_4^{2-}$ , à savoir  $^{99}\text{Mo}$ ,  $^{99}\text{Tc}$ ,  $^{99\text{m}}\text{Tc}$ ,  $^{103}\text{Ru}$ ,  $^{106}\text{Ru}$ ,  $^{106}\text{Rh}$ . Ces complexes négatifs ne seront pas sorbés et les isotopes correspondants ne seront pas sorbés ou "retardés" lors de leur migration dans les terrains.
- l'isotope  $^{110\text{m}}\text{Ag}$ , présent dans le milieu naturel sous forme  $\text{Ag}^+$  et donc susceptible d'être sorbé,
- les isotopes d'éléments formant des ions simples ou complexes négatifs, Te et I ( $^{131}\text{Te}$ ,  $^{132}\text{Te}$ ,  $^{131}\text{I}$ ,  $^{132}\text{I}$ ,  $^{133}\text{I}$ ), non sorbants,
- les isotopes du xénon, gaz rare susceptible de migrer en solution comme le krypton ( $^{131}\text{Xe}$ ,  $^{133}\text{Xe}$ ).

- les isotopes de masse 134 à 160, correspondant à des alcalins ( $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ), des alcalino-terreux ( $^{140}\text{Ba}$ ) ou à des Terres rares ( $^{140}\text{La}$ ,  $^{141}\text{Ce}$ ,  $^{144}\text{Ce}$ ,  $^{147}\text{Pm}$ ), tous à charge positive en solution et donc plus ou moins fortement sorbés.

Dans le détail les choses sont un peu plus complexes. Ainsi le tellure serait présent, dans les conditions de pH - Eh du milieu naturel, sous forme  $\text{HTeO}_3^-$  en conditions oxydantes, mais sous forme de tellure natif en milieu réducteur (Dyachkova et Khodakovskiy, 1968, in Zemanne et Leutwein, 1972) : en cela la chimie du tellure rappelle celle du soufre (cf. figure A2.1). En conditions oxydantes le tellure serait sous forme mobile, mais pourrait théoriquement précipiter et donc ne plus être mobile, dans des conditions réductrices.

### A2.2.2. Les mesures en laboratoire et les déterminations des coefficients $K_d$

Les propriétés de sorption de nombreux radionucléides ont été mesurées en laboratoire, notamment pour les plus anciennes dans le cadre du programme américain d'essais souterrains à but pacifique. Les principaux éléments mesurés ont été Sr, Cs, Ru, et Ce (Hoffman *et al.*, 1984 ; Kruger, 1970). Stead (1963, 1969) a pris argument des valeurs de  $K_d$  mesurées à propos de  $^{90}\text{Sr}$ , pour avancer qu'une explosion nucléaire souterraine n'induirait qu'une contamination des eaux assez limitée.

Plus récemment Letay (1993) cite des travaux français et donne des valeurs de  $K_d$  pour  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{85}\text{Sr}$ ,  $^{110\text{m}}\text{Ag}$ ,  $^{125}\text{Sb}$ , et  $^{137}\text{Cs}$ . Les éléments correspondants sont effectivement classés ci-dessus dans les éléments sorbants, sur des bases théoriques. Le fait curieux est qu'un coefficient  $K_d$  a aussi été déterminé pour  $^{131}\text{I}$ , alors qu'en principe il devrait être nul si l'on considère l'iode comme un traceur parfait : en fait la valeur trouvée n'est pas nulle, mais elle est cependant de deux ordres de grandeur plus faible que celle des cinq autres radionucléides.

Nous verrons au § A3.5 qu'il y a des discordances fréquentes entre les valeurs des coefficients  $K_d$ , et les faits de terrain. Il peut y avoir plusieurs raisons à cela, problèmes d'effet d'échelle, sorption non linéaire ou non réversible, phénomènes de précipitation/dissolution venant perturber les phénomènes de sorption/désorption, etc. Il convient de retenir que la notion de  $K_d$  est très simplificatrice, voire simpliste. Malgré tout les ordres de grandeur semblent respectés : dans l'ensemble tous les auteurs donnent une valeur du coefficient de partage de Cs supérieure à celle de Sr, lesquelles sont toutes deux bien supérieures à celle de l'iode.

### A3.3. REFERENCES

DUPUIS M. (1970) - Distribution et évolution des radioéléments après une explosion nucléaire. B. I. S. T. du CEA, vol. 149, pp. 41-52.

DYACHKOVA I.B., KHODAKOVSKIY J.L. (1968) - Thermodynamic equilibria in the systems S-H<sub>2</sub>O, Se-H<sub>2</sub>O, Te-H<sub>2</sub>O, in the 25-300 ° temperature range and their geochemical interpretation. Cited after *Geochemistry International*, vol. 5, p. 1108.

ERDAL B.R., BAYHURST B.P., CROWE B.M., DANIELS W.R., HOFFMAN D.C., LAWRENCE F.O., SMYTH J.R., THOMPSON J.L., WOLFSBERG K. (1980) - Laboratory studies of radionuclide transport in geologic media. *In* Underground Disposal of Radioactive Wastes, IAEA- NEA Symposium, Otaniemi , 2-6 July 1979, Vol II, pp. 367-384.

HOFFMAN D.C., DANIELS W. R., WOLFSBERG K., THOMPSON J. L., RUNDBERG R. S., FRASER S. L., DANIELS K. S. (1984) - A review of radionuclide migration from an underground nuclear explosion at the Nevada test site. IAEA, Vienne, Radioactive Waste Management pp. 241- 256.

KAUFMAN W. J., ORLOB G. T. (1956) - An Evaluation of Grounwater tracers. *Trans. Am. Geophys. Union*, vol. 37, p. 297.

KRUGER P. (1970) - Hydrologic transport of radionuclides from nuclear craters ans quarries. U. S. Army Engineer Cratering Group, Livermore, California, 119 p.

KUEHN W., HANDL J., SCHAETZLER (1973) - Transport of  $^{131}\text{I}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{106}\text{Ru}$ ,  $^{144}\text{Ce}$  and  $^{154}\text{Mn}$  in an undisturbed soil under natural environmental conditions. *In* Environmental Behaviour of radionuclides released in the nuclear industry, IAEA, Vienne, pp. 347-361.

JAKOB A., HADERMAN J., ROESEL F. (1990) - Radionuclide chain transport with matrix diffusion and non-linear sorption. NAGRA Technical Report 90-13, 64 p.

LETAY M. (1993) - Le forage d'eau. Réalisation, entretien, réhabilitation. Masson éd., Paris, 379 p.

MARSILY G. de (1986) - Quantitative Hydrogeology. Groundwater Hydrology for Engineers. Academic Press, Inc., Harcourt Brace Jovanovich, Publishers, 440 p.

ROCHON J. (1978) - Propagation de substances miscibles en interaction physico-chimique avec le substrat. Approche simplifiée pour l'interaction en hydrogéologie. Thèse Inst. Polytechn. Grenoble, 239 p., inédit.

ROCHON J., RANCON D., GOURMEL J. P. (1980) - Recherche en laboratoire sur la rétention et le transfert de produits de fission et de transuraniens dans les milieux poreux. Colloque International sur l'évacuation des déchets radioactifs dans le sol, Otaniemi, 2-6 Juillet 1979.

STEAD F. W. (1963) - Tritium Distribution in Ground Water around Large Underground Fusion Explosions. *Science*, vol. 142, pp. 1163-1165.

STEAD F. W. (1969) - Groundwater Contamination. *In* : Education for peaceful uses of nuclear explosives. Tucson, Ariz., pp. 205-219.

THOMAS G. W., SWOBODA A. R. ( 1970) - Anion Exclusion Effects on Chloride Movement in Soils. *Soil Science*, vol. 110, p. 163.

WEDEPOHL K. H. (1972) - Handbook of Geochemistry. Wedepohl ed., Springer-Verlag Berlin.

ZEMANN J., LEUTWEIN (1972) - Tellurium. *In* Handbook of Geochemistry, vol. II/3, Wedepohl ed., Springer-Verlag Berlin.

## **ANNEXE 3**

### **EXEMPLES CONCRETS DE MIGRATION OU DE RETENTION DE RADIONUCLEIDES**

Après le tour d'horizon théorique exposé en annexe II, nous pouvons nous attacher aux observations effectivement faites dans la réalité, et voir dans quelle mesure elles correspondent au comportement théorique prédit. On distinguera les mesures consécutives aux explosions aériennes, aux essais souterrains, à des questions de pollutions accidentelles, et les expériences de traçages faites dans le cadre d'études hydrogéologiques ou bien en vue de la sécurité des stockages nucléaires. Enfin, on comparera les observations de terrains aux coefficients de retard déterminés expérimentalement au laboratoire.

### **A3.1. LES MESURES FAITES APRES LES TIRS NUCLEAIRES DE SURFACE**

Nous disposons de données qui concernent les radionucléides présents d'une part dans les sols, et d'autre part dans les eaux de surface et les aquifères.

#### **A3.1.1. La rétention des radionucléides dans les sols**

"...La bombe au plutonium *Fatman* a explosé 500 m au-dessus de Nagasaki. Une demi-heure après une grande quantité de produits de fission et de plutonium non fissionné, a atteint le sol sous la forme d'une pluie noire, dans la banlieue est de Nagasaki, à 3 km de l'hypocentre". Mahara et Miyahara (1984) évoquent ainsi la contamination radioactive du secteur de travail qu'ils ont choisi à Nishiyama près de Nagasaki, et sur lequel ils ont échantillonné des sols sur 2 m de profondeur.

Le résultat est donné figure A3.1. L'essentiel de la radioactivité de Pu, et la totalité de celle de Cs, est restée concentrée dans les 30 premiers centimètres du sol. On a pu calculer que la *vitesse apparente de migration* du césium et de 97 % du plutonium, a été de l'ordre de 1,25 mm/an vers la profondeur, alors que la quantité d'eau infiltrée est de 2,5 m/an. Ceci correspondrait donc pour Cs et pour 97 % de Pu, à un facteur de retard de 2 000. Il n'est pas impossible que la faible fraction de Pu qui s'est infiltrée jusqu'à 2 m de profondeur, corresponde à une spéciation différente de celle qui est restée en surface : aucune mesure en ce sens n'a toutefois été faite.

#### **A3.1.2. Les nappes souterraines et leur faible contamination**

Aurand *et al.* (1972) ont considéré un autre élément, le strontium, et ont étudié la contamination des eaux souterraines par  $^{90}\text{Sr}$  consécutive aux tirs nucléaires effectués dans l'atmosphère. Pour ce faire ils ont comparé les concentrations moyennes dans les précipitations, les eaux de surface, les nappes karstiques ou les nappes en aquifères homogènes. Il s'avère que *la concentration en  $^{90}\text{Sr}$  dans les eaux des nappes karstiques est 10 à 100 fois plus faible que dans les eaux de surface* ; de plus dans les aquifères poreux, les concentrations sont 3 à 5 fois plus faibles que dans les aquifères karstiques. Le fait que ces données soient un peu anciennes n'enlève rien à leur intérêt (tableau A3.1) :

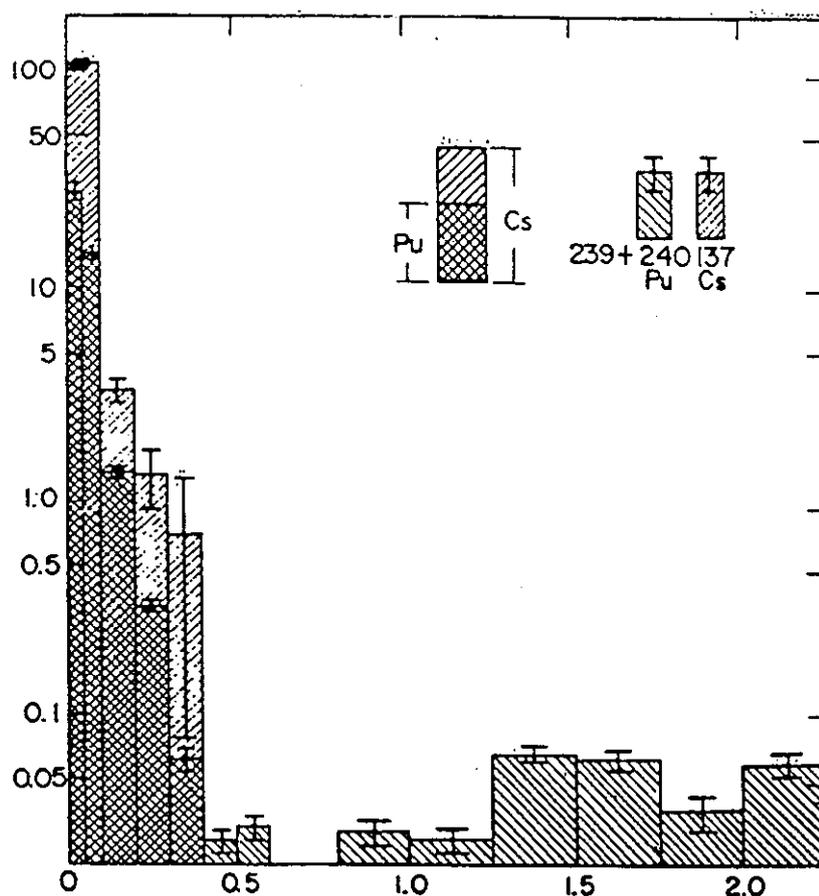


Figure A3.1 - Concentrations résiduelles en Cs et Pu dans un sol près de Nagasaki (Mahara et Miyahara, 1984).

N.B. : La profondeur est en ordonnées (en mètres, avec une échelle inversée), l'activité en Bq/kg de sol sec, en abscisses (avec une échelle lognormale). La décroissance régulière suggère que les deux éléments ont été retenus dans les sols : s'il y avait eu lessivage, les teneurs seraient plus faibles en surface et plus fortes vers la profondeur. On comparera cette répartition des concentrations avec celle des figures A3.5 et A4.1, qui sont semblables. *L'exemple de Nagasaki est certainement le plus probant*, car il représente une durée de presque 40 ans après la contamination, alors que les deux autres correspondent à des laps de temps respectifs de quelques mois et de six ans après l'introduction de la pollution.

Années	Pluies	Eaux de surface	Nappe alluviale	Aquifères karstiques	Aquifères poreux
1963	1,12	4,7 10 <sup>-2</sup>	1,3 10 <sup>-2</sup>	0,37 10 <sup>-2</sup>	---
1964	0,61	5,5 10 <sup>-2</sup>	2,7 10 <sup>-2</sup>	0,28 10 <sup>-2</sup>	0,07 10 <sup>-2</sup>
1965	0,26	4,9 10 <sup>-2</sup>	1,5 10 <sup>-2</sup>	0,17 10 <sup>-2</sup>	0,03 10 <sup>-2</sup>
1966	0,12	4,2 10 <sup>-2</sup>	1,6 10 <sup>-2</sup>	0,03 10 <sup>-2</sup>	0,01 10 <sup>-2</sup>
1967	0,08	2,2 10 <sup>-2</sup>	1,4 10 <sup>-2</sup>	0,002 10 <sup>-2</sup>	0,0004 10 <sup>-2</sup>

Les données originelles sont en pCi/l, elles ont été converties en Bq/l (1 pCi = 3,7 10<sup>-2</sup> Bq). On voit que par rapport au seuil de recommandation de l'Organisation Mondiale de la Santé (OMS, 1994) de 1 Bq/l, ces concentrations sont très faibles. En fait les mesures ont été faites non pas dans une optique de santé, mais pour utiliser <sup>90</sup>Sr comme traceur en hydrogéologie.

Tableau A3.1 - Moyennes annuelles des concentrations (Bq/l) en <sup>90</sup>Sr dans les eaux de surface et dans les eaux souterraines en Allemagne (Aurand *et al.*, 1972, p. 308).

La différence de concentration entre les pluies d'une part, les eaux de surface d'autre part, indique probablement un phénomène de mélange entre eaux de ruissellement (aux concentrations en <sup>90</sup>Sr sans doute voisines de celles des pluies) et les exutoires des nappes souterraines, aux concentrations plus faibles. Cependant ce phénomène de mélange ne peut expliquer à lui seul la baisse constatée des concentrations, car cela supposerait que les nappes représentent 70 à 95 % des débits des cours d'eau. Une telle proportion est vraisemblable à l'étiage, mais ne l'est pas pour une moyenne annuelle : on doit donc rechercher une autre explication.

Il est évident que globalement, c'est une rétention de <sup>90</sup>Sr par les matrices solides dans lesquelles les eaux percolent, qui conduit à une diminution des concentrations. Cette fixation est nette dans les nappes alluviales, ou plus exactement ce qu'Aurand *et al.* (op. cit.) on appelle "Uferfiltrat", c'est-à-dire "eaux filtrées par les berges". La même raison peut être invoquée pour les eaux des nappes plus profondes, y compris karstiques, ce qui est un peu une surprise. Mais le bilan est clair : le flux annuel en <sup>90</sup>Sr, évalué à l'exutoire d'un karst jurassique, est de l'ordre du millième de celui apporté par les pluies sur l'ensemble du bassin versant. On ne sait pas toutefois si la rétention se fait au niveau du sol lors de l'infiltration, ou se produit peu à peu dans le karst.

### A3.2. LES MESURES FAITES APRES DES EXPLOSIONS SOUTERRAINES

Les expériences décrites concernent des explosions de faible puissance, 5 à 20 kt ; le terme source représenterait 1.500 Ci en <sup>90</sup>Sr ainsi qu'en <sup>137</sup>Cs, pour un tir de 10 kt (Stead, 1969). Les mesures réalisées après les tirs permettent d'obtenir des informations sur la migration des différents radionucléides dans les nappes souterraines. Des paramètres importants comme la température, pH et Eh ne sont souvent malheureusement pas donnés.

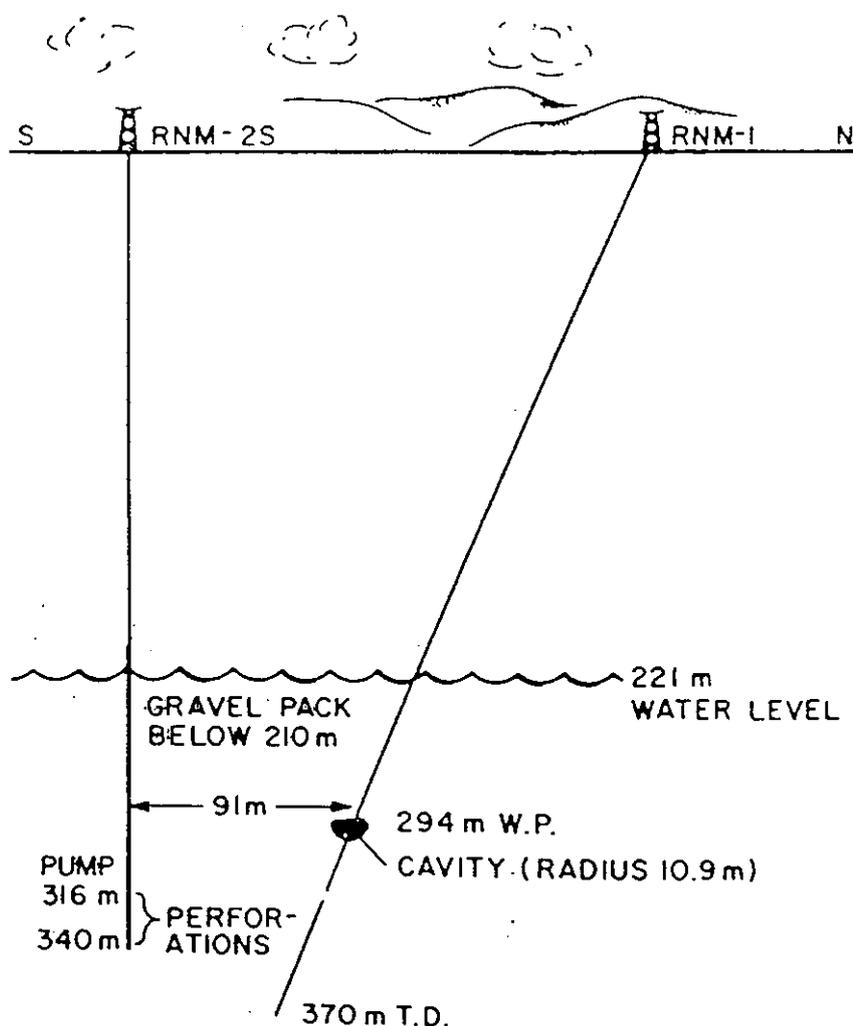


Figure A3.2 - Schéma du dispositif de pompage sur le site de Cambric au Nevada (Etats-Unis) après une explosion souterraine (Hoffman *et al.*, 1984).

N.B. : Les eaux pompées dans le puits RNM-2S ont montré des concentrations en  $^3\text{H}$ ,  $^{85}\text{Kr}$  et  $^{106}\text{Ru}$ , telles que ces derniers éléments ont manifestement migré depuis la cavité visée par le forage RNM-1 à la même vitesse que l'eau : ils ne sont donc pas sorbés dans les terrains. La ligne ondulée représente le niveau hydrostatique, les profondeurs sont en mètres.

Sur le site de Cambric dans le Nevada, Hoffman *et al.* (1984) ont procédé à des pompages à distance (91 m) du lieu d'une explosion souterraine et déterminé les radionucléides présents dans le fluide. Ils ont conclu que la sorption a retenu tous les radioéléments produits sur le site de l'explosion, lorsque ces éléments sont en solution sous forme d'espèces cationiques (ions *positifs*), ce qui empêche leur migration. Les seuls éléments susceptibles de se déplacer de façon sensible sont ceux qui existent sous forme de complexes ou d'atomes neutres (comme l'iode, et les gaz rares comme  $^{85}\text{Kr}$ ), ou de complexes anioniques (*négatifs*). Ce dernier cas est celui de  $^{106}\text{Ru}$ , décrit sur le même site par Coles et Ramspott (1982). La conclusion est que le ruthénium a migré comme le tritium, probablement sous forme  $\text{RuO}_4^{2-}$ .

Dans le même ordre d'idée et pour les essais souterrains soviétiques, Izrael et Rovinski (1970, *in* Krüger 1970) ont attaché beaucoup d'importance à la distinction entre espèces anioniques et cationiques dans les milieux géologiques, à la suite d'explosions souterraines. Ils ont ainsi établi que  $^{90}\text{Sr}$  et  $^{137}\text{Cs}$  sont entièrement ou presque sous forme cationique, tandis que  $^{125}\text{Sb}$  et  $^{106}\text{Ru}$  seraient surtout sous forme anionique. Les renseignements sur la rétention des éléments correspondants ne sont pas fournis, mais la distinction faite implique qu'on aurait constaté une réelle mobilité pour ces deux derniers nucléides. Ceci confirme tout à fait les constatations ultérieures de Coles et Ramspott (*op. cit.*) sur  $^{106}\text{Ru}$ .

D'un point de vue quantitatif, les affirmations de Stead (1963, 1969) selon laquelle un tir nucléaire souterrain ne produirait à moyen terme qu'une contamination limitée (*cf.* A2.2.2), ont de notre point de vue une conséquence intéressante. Il s'agit de l'éventualité d'une contamination des nappes captives profondes, par des nappes plus superficielles polluées, à cause de forages non étanches. On voit mal comment ceci pourrait vraiment constituer un danger, le terme-source constitué par une explosion *in-situ* étant certainement plus important que les infiltrations le long de défauts d'étanchéité.

### A3.3. LES CONTAMINATIONS RESULTANT DE POLLUTIONS ACCIDENTELLES

Elles sont d'origine diverses, et proviennent aussi bien de fuites sur sites de stockage que d'accidents survenus à des réacteurs.

#### A3.3.1. Les pollutions autour de sites de stockage

Des sols près du site de stockage de Rocky Flats près de Golden (Colorado) aux Etats-Unis, ont été pollués dans les années 60 par du plutonium et de l'américium suite à des fuites dans les barils utilisés comme récipients. La dispersion s'est faite sous l'effet du vent, qui a emmené des particules contaminées.

Les mesures récentes faites en fonction de la profondeur des sols (Litaor *et al.*, 1994) montrent que la radioactivité est inverse de la granulométrie, ce qui est typique des phénomènes de sorption (le rapport surface/volume croît lorsque la dimension des particules décroît). Par ailleurs, 90 % de l'activité en plutonium et en américium sont concentrés dans les premiers 12 cm du sol, ce qui rappelle l'exemple de Nagasaki donné plus haut (figures A3.1 et A3.3). La pluviométrie étant loin d'être nulle, on constate que la mise en solution de  $^{239+240}\text{Pu}$  et  $^{241}\text{Am}$  a été extrêmement faible et que les radionucléides sont restés piégés à la surface du sol. Leur migration est en partie

purement physique par déplacement de particules le long des trous laissés par les racines, et sous l'action des vers de terre.

### A3.3.2. Les pollutions par accidents sur réacteurs

Le plus important est celui de Tchernobyl, l'accident de Windscale en 1957 étant de plus faible ampleur et peu souvent étudié, celui de Three Mile Island encore plus faible (cf. annexe 1, tableau A1.1).

A Tchernobyl même, un rapport de l'IPSN (1986) affirme que la nappe phréatique sous le réacteur accidenté est polluée, mais ne donne pas de détails sur cette pollution et sur la nature des radionucléides dissous. En Europe occidentale, la contamination induite par les retombées radioactives a fait l'objet d'études dont certaines sont très détaillées (Friedmann *et al.*, 1986 ; Haberer, 1987 ; von Gunten *et al.*, 1988). Nous citerons dans le même ordre d'idée une étude théorique réalisée pour le compte du Ministère de l'Environnement ; elle a montré qu'en cas d'accident sur une centrale nucléaire l'eau de la Seine (et donc celle de champs captants adjacents) risquait *théoriquement* de dépasser la limite de potabilité pendant 8 jours. S'il s'agit d'une durée courte, et si la pérennité de la ressource (qui est renouvelable) n'est pas menacée, le risque est donc bien réel.

#### A3.3.2.1. La contamination des nappes alluviales à partir des cours d'eau : l'exemple de Glattfelden (Canton de Zurich, Suisse)

Sur un site analogue à celui d'un champ captant, c'est-à-dire dans une nappe phréatique située à proximité immédiate d'une rivière, on a pu mettre en évidence la différence de mobilité des radionucléides lors de leur infiltration (von Gunten *et al.*, 1988). Les mesures ont été faites à Glattfelden dans le canton de Zurich, dans la nappe alluviale de la rivière Glatt, et dans la rivière elle-même. Les analyses ont été faites à 2,5 et 5 m des berges, ce qui correspond, compte tenu d'une vitesse d'infiltration des eaux de la rivière vers la nappe de 2 à 4 m/j, à un temps de parcours de l'ordre de 1 ou 2 jours. Le tableau A3.2 donne les activités mesurées sur les eaux filtrées de la rivière d'une part, de la nappe d'autre part.

	Nucléides				
	<sup>131</sup> I	<sup>132</sup> Te	<sup>103</sup> Ru	<sup>134</sup> Cs	<sup>137</sup> Cs
Rivière 4 Mai	7,0	10,9	1,1	0,4	0,8
Nappe 5 Mai	7,4	2,9	0,8	---	---
Rivière 12 Mai	10,7	7,0	1,6	0,7	1,1
Nappe 13 Mai	12,8	---	1,2	---	---

Tableau A3.2 - Activité (en Bq/l) des eaux de la rivière Glatt et de la nappe alluviale adjacente, le point de prélèvement dans la nappe correspondant environ à un trajet de 1 jour depuis la rivière. D'après von Gunten *et al.* (1987).

On remarque que l'activité de  $^{131}\text{I}$  et  $^{103}\text{Ru}$  dans la nappe n'est pratiquement pas modifiée par rapport à celle de la rivière, alors que celle de  $^{132}\text{Te}$  est fortement diminuée et que celle de  $^{134}\text{Cs}$  et  $^{137}\text{Cs}$  a complètement disparu (Von Gunten *et al.*, 1988). Ceci met en évidence l'effet de filtre des berges de la rivière et de la matrice de l'aquifère, pour le tellure comme pour les césiums.

Par ailleurs, on a déterminé la part de la radioactivité liée aux colloïdes et particules en suspension, et liée à des substances dissoutes (non retenues sur des filtres à 0,05  $\mu$ ). Il apparaît que le ratio activité "dissoute"/activité "particulaire", est beaucoup plus élevé dans l'eau de la nappe que dans celle de la rivière (tableau A3.3). Cela signifie que les particules et les colloïdes sont filtrés par la matrice de l'aquifère et par les berges. L'absence complète de césium dans les eaux de nappe laisse penser que cet élément est entièrement sorbé dans la matrice des berges.

Des essais de spéciation ont été tentés pour l'iode, par précipitation de  $\text{Pb}(\text{IO}_3)_2$ . La conclusion est que 90 % de l'iode est sous forme  $\text{I}^-$  et le reste sous forme d'iodate. A partir du comportement des divers éléments lors de l'infiltration dans l'aquifère, Von Gunten *et al.* (op. cit.) suggèrent que Ru serait surtout sous forme de ruthénate, Cs sous forme d'ions  $\text{Cs}^+$ , et Te sous forme de tellurate. Cette dernière opinion est surprenante : en effet, les conditions régnant dans la nappe, à savoir un pH de 7,4 et une pression partielle d'oxygène de 30  $\mu\text{mole/l}$  (soit Eh # 250 mV), sont celles où la forme stable serait plutôt  $\text{HTeO}_3^-$ . Les tellurates ne sont théoriquement stables que dans les milieux extrêmement oxydants, ce qui n'est pas le cas ici.

*Remarque* : Ici le tellure a un comportement sorbant, bien qu'on le suppose sous forme de complexe anionique. Il est possible que ce fait soit dû à une fixation sur des oxydes de fer.

	Nucléides				
	$^{131}\text{I}$	$^{132}\text{Te}$	$^{103}\text{Ru}$	$^{134}\text{Cs}$	$^{137}\text{Cs}$
Rivière 4 Mai	7,8	10,9	5,5	4,5	4,8
Nappe 5 Mai	185	58	40	---	---
Rivière 12 Mai	11,9	6,0	4,7	non déf.	5,2
Nappe 13 Mai	128	---	> 600	---	---

Tableau A3.3 - Ratio activité "dissoute"/activité "particulaire" dans les eaux de la rivière Glatt et dans la nappe adjacente (eaux filtrées à 0,05 m ; Von Gunten *et al.*, 1988).

### A3.3.2.2. La contamination des cours d'eau, des sédiments et des nappes phréatiques en Bavière

Peu après le passage des retombées de Tchernobyl en Bavière, des mesures de contrôle systématiques ont porté sur la radioactivité des précipitations (ce qui constitue une détermination du terme-source), des eaux des rivières ou des fleuves, des lacs, des sédiments de fond ou de berges, et des eaux souterraines, avec détermination des radionucléides correspondants (Friedmann *et al.*, 1986).

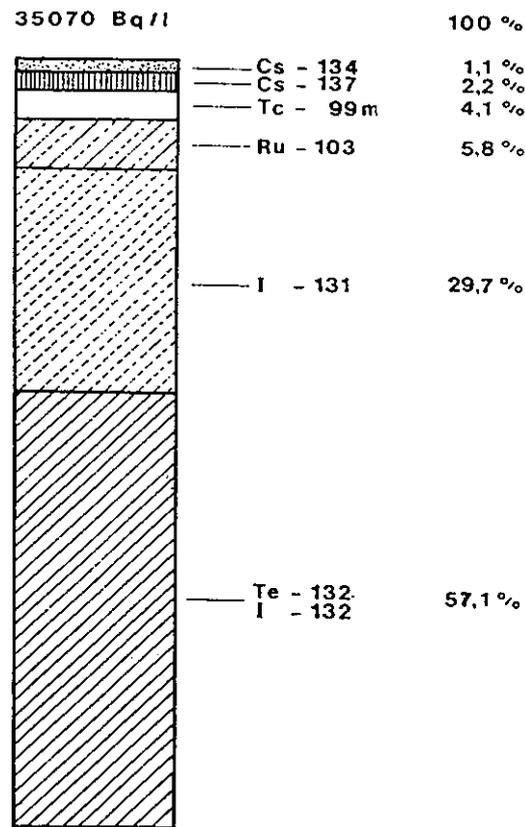


Figure A3.3 - Radioéléments présents dans les pluies le 30 Avril 1986 à Munich (Allemagne) après l'accident de Tchernobyl ; le total de l'activité dans les eaux de pluie a culminé à 35.000 Bq/l. (Friedmann *et al.*, 1986)

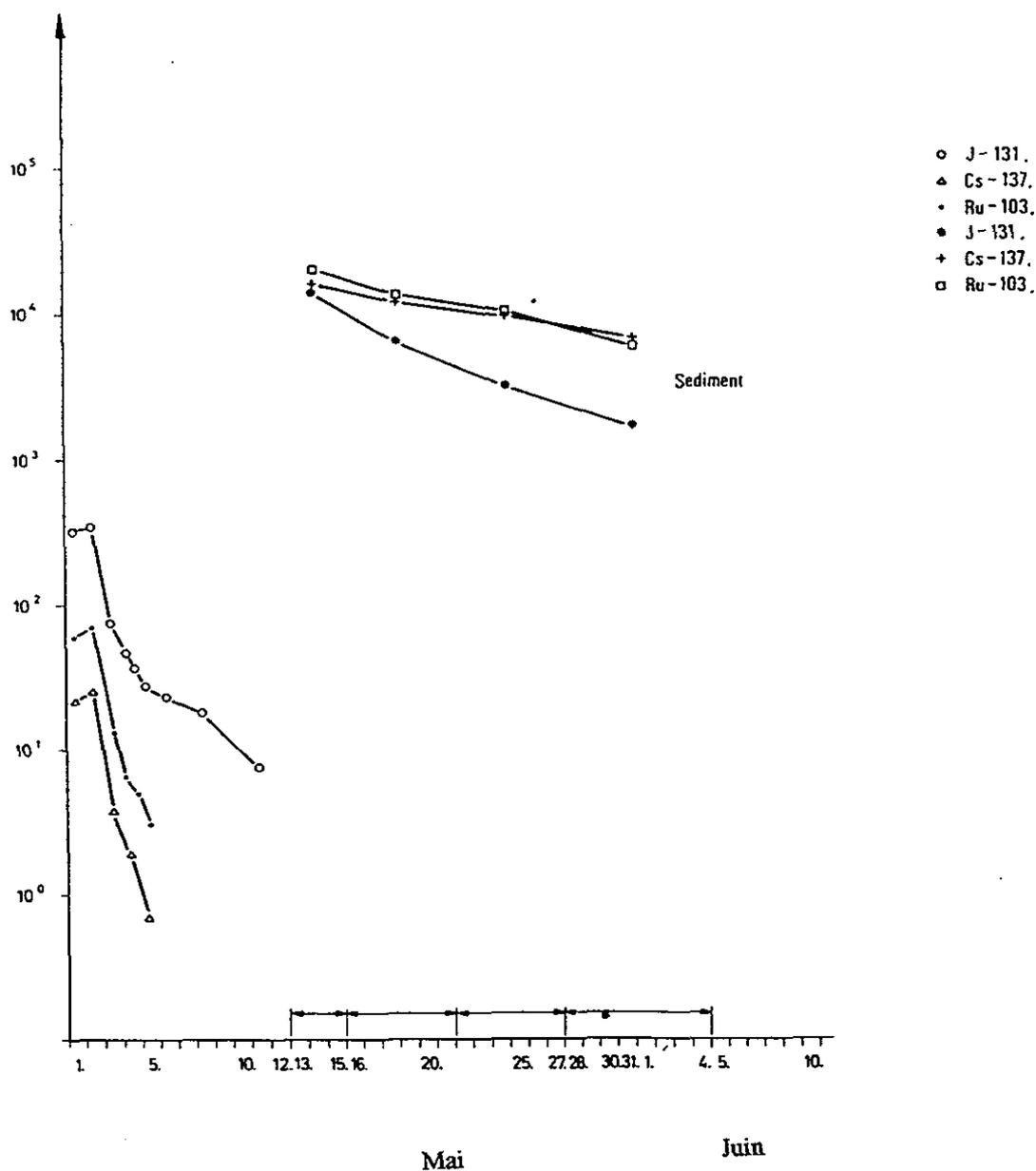


Figure A3.4 - Décroissance des concentrations en radioéléments dans les eaux (en Bq/l, en bas à gauche) et dans les sédiments du Danube (en Bq/kg, en haut à droite), à la suite de l'accident de Tchernobyl (Friedmann *et al.*, 1986).

N.B. : La décroissance de <sup>137</sup>Cs dans les sédiments est trop rapide pour qu'on l'attribue à la décroissance radioactive (la période est de 30 ans), il s'agit donc d'un relargage. Ce relargage n'a pas empêché les eaux de revenir très vite à des concentrations inférieures au seuil analytique.

Les flèches en haut de la barre d'abscisse représentent les durées d'échantillonnage : les échantillons d'eau sont des échantillons instantanés, les échantillons de sédiments sont des échantillons composites pris sur une durée de plusieurs jours.

### Le terme source : les précipitations

La radioactivité des pluies a dépassé 1.000 Bq/l avec un pic à 35.000 Bq/l. La figure A3.3 montre la proportion des radionucléides présents le 30 Avril 1986 : on voit que la radioactivité est surtout due aux isotopes de l'iode, ainsi qu'au ruthénium et au tellure. Il en résulte que dans les citernes recueillant l'eau de pluie pour l'alimentation de sites isolés, l'activité a parfois approché les limites de potabilité, à savoir 250 Bq/l pour  $^{131}\text{I}$  en regard de la norme de crise fixée par la Commission Européenne, de 400 Bq/l.

### Les eaux de surface (rivières et fleuves)

La radioactivité du Danube, du Main et des eaux de divers lacs a atteint de 100 à 300 Bq/l entre le 2 et le 6 Mai 1986, le pic étant en général situé le 2 Mai. L'activité est essentiellement celle de  $^{131}\text{I}$ , tandis que  $^{137}\text{Cs}$  a aussi été mesuré probablement pour des raisons de sécurité. La radioactivité a ensuite décliné progressivement jusqu'à atteindre quelques Bq/l seulement au bout de deux à trois semaines.

### Les sédiments de lacs, de rivières et les boues des réseaux d'eaux pluviales

La radioactivité y a été beaucoup plus forte, jusqu'à 30.000-50.000 Bq/l dans les sédiments du Danube et de la Regen. Elle est due non seulement à  $^{131}\text{I}$ , mais aussi à  $^{137}\text{Cs}$  et  $^{103}\text{Ru}$ . Compte tenu des différences de périodes, l'activité de  $^{131}\text{I}$  décroît très vite et celle de  $^{137}\text{Cs}$  ainsi que de  $^{103}\text{Ru}$  est devenue peu à peu prédominante (figure A3.4). La nature exacte de la fixation des radioéléments sur ces fines ou sur ces boues, reste inconnue. Si pour Cs on peut invoquer un phénomène de sorption, pour l'iode c'est beaucoup moins évident. Il s'agit sans doute en partie de particules atmosphériques décantées et sédimentées (les concentrations en radionucléides dans ces particules atmosphériques n'ont pas été déterminées). C'est pourquoi nous parlerons plus loin de phénomène de relargage *sensu lato*, dans la mesure où il ne s'agit manifestement pas uniquement de processus de sorption-désorption.

Dans les boues des réseaux d'eaux pluviales et dans celle des stations d'épuration, les niveaux de radioactivité ont été bien supérieurs. Ils ont été en effet comparables à ceux des sols d'Union Soviétique, atteints par les retombées de Tchernobyl, dans les zones où la question de l'évacuation des populations s'est posée. Des coupes de sol (annexe 4, figure A4.1) montrent en effet en Russie, des activités superficielles en  $^{137}\text{Cs}$  de 6 000 pCi/g soit 220 000 Bq/kg. En comparaison les boues activées (Belebtschlamm) des stations d'épuration de Bavière ont atteint 170 000 Bq/kg en  $^{137}\text{Cs}$ , alors qu'en même temps les radionucléides à durée de vie plus courte se montaient à 100 000 Bq/kg ( $^{131}\text{I}$ ,  $^{140}\text{La}$  et  $^{140}\text{Ba}$ ).

### Les nappes souterraines

Dans les diverses nappes, phréatiques ou souterraines, la radioactivité est toujours restée à un niveau inférieur à 0,1 % de celle des précipitations, soit quelques Bq/l ou quelques fractions de Bq/l. Ceci conforte tout à fait l'opinion de Haberer (1987) qui donne un ratio identique de 0,1 % entre radioactivité des eaux souterraines et radioactivité des précipitations, ratio peut-être du reste fondé sur les mêmes données de Friedmann *et al.* (op. cit.).

### L'évolution des concentrations en radionucléides dans les eaux de surface et dans les eaux souterraines

Les concentrations des radionucléides dans les eaux des fleuves et rivières sont rapidement redevenues négligeables. Or pendant ce temps, l'activité des sédiments est restée à un niveau élevé, avec une décroissance relativement lente (figure A3.4). A la différence de  $^{131}\text{I}$ , pour  $^{137}\text{Cs}$  dont la période est de 30 ans, on ne peut invoquer la décroissance radioactive pour expliquer la diminution des concentrations. Il s'agit de toute évidence d'un phénomène de *relargage* sensu lato, c'est-à-dire d'un échange dans le sens des sédiments vers les eaux. Malgré ce relargage, les concentrations dans les eaux restent extrêmement faibles, ce qui signifie que ce relargage n'a pas affecté pas de façon significative les concentrations dans les eaux de surface. Toutefois, des mesures plus précises seraient nécessaires : l'Organisation Mondiale de la Santé (OMS) recommande une radioactivité b inférieure à 1 Bq/l ; or les mesures semblent avoir été faites avec un seuil analytique de 1 à 3 Bq/l.

Pour ce qui est des eaux souterraines, on a constaté vers la fin Juin et la fin Juillet 1986 l'apparition de très faibles activité en  $^{103}\text{Ru}$  ( $\ll 1$  Bq/l) puis  $^{137}\text{Cs}$  (0,2 Bq/l). Si pour Cs on peut parler de retard et de relargage, puisqu'il y aurait eu un décalage d'un mois par rapport à l'apparition du petit pic en  $^{103}\text{Ru}$ , il en va différemment pour ce dernier. Le délai de deux mois entre la contamination des eaux de surface et son apparition peut fort bien être attribué au temps de transit dans la zone non saturée, entre la surface et les nappes phréatiques.

#### A3.3.2.3. Remarque sur les niveaux de concentration des radionucléides, et la question du terme-source

Les données fournies ci-dessus sur les niveaux de concentration des radionucléides, doivent être considérées de façon plutôt qualitative : en effet, plusieurs facteurs sont susceptibles de modifier ces niveaux. Il y a notamment l'intensité de l'accident qui donne naissance à l'émission de radionucléides, la position des lieux de mesure, et les conditions météorologiques qui sont susceptibles de modifier considérablement le panache de dispersion. En particulier et en cas d'absence d'inversion de température, l'air plus froid en altitude pourrait agir comme un couvercle en limitant la dissémination du panache (IPSN, 1986). Il serait donc erroné de penser que les valeurs mentionnées ici, de mêmes que celles de l'annexe 4, ont un caractère "reproductible". Il est tout à fait possible qu'en cas d'accident plus grave, et de conditions météorologiques particulières (pas d'inversion de température près du sol, fortes pluies au moment de l'émission des radionucléides, peu de vent), ces valeurs soient beaucoup plus fortes surtout au voisinage de la source des émissions.

#### A3.3.3. Conclusion

Des observations qui viennent d'être mentionnées, il faut retenir plusieurs points.

Dans le cas d'une nappe alluviale, analogue à celui de Glattfelden en Suisse, la pollution est très rapide et l'effet de filtre des berges ne joue pas pour des radionucléides tels que  $^{131}\text{I}$  et  $^{103}\text{Ru}$ . Par conséquent, dans une situation analogue à celle simulée par l'IPSN (1987 ; in Ministère de l'Environnement, rapport de 1994), à savoir une contamination des eaux de la Seine dépassant les normes de crise fixées par la Commission Européenne (400 Bq/l pour  $^{131}\text{I}$ ), il en serait de même pour les nappes alluviales et les champs captants associés.

En revanche l'effet de filtre existe pour le césium, ce qui pourrait poser un problème à long terme. Les éléments radioactifs retenus par les berges sont dans l'ensemble à durée de vie plus longue ; ils migreront lentement vers les points de basse charge hydraulique, et feront donc l'objet d'un *relargage* vers les puits d'exploitation lorsque la pollution des cours d'eau aura disparu. Il est tout à fait possible d'empêcher ce dernier scénario en maintenant les puits des champs captants en charge par rapport au niveau hydrostatique des cours d'eau.

Le *comportement du ruthénium* mérite attention. Son niveau d'activité dans les retombées serait en gros du même ordre pour  $^{103}\text{Ru}$  et  $^{106}\text{Ru}$  que pour  $^{137}\text{Cs}$  (cf. tableaux A1.2 et A3.1, et figure A3.3). Mais à la différence de ce dernier, c'est un élément au comportement anionique et non sorbant. Il devrait donc migrer comme l'eau. La période de  $^{106}\text{Ru}$  étant de 1 an, et la durée de transit dans la zone non saturée étant souvent nettement inférieure, il n'y aurait ni rétention dans les sols comme pour ces deux éléments, ni décroissance radioactive rapide comme pour l'iode. On peut donc légitimement se demander s'il n'y a pas une possibilité de pollution d'assez longue durée (quelques années) des nappes superficielles par  $^{106}\text{Ru}$  : cf. § 6.3.3.

#### A3.4. LES EXPERIENCES DE TERRAIN

Les travaux réalisés non pas au laboratoire mais en vraie grandeur sur le terrain, peuvent être ventilés en expériences d'injection et de traçage, et essais de percolations in-situ dans les sols.

##### A3.4.1 - Les traçages

En Suède, Byegard *et al.* (1991) ont procédé à une expérience de traçage en terrain cristallin le long d'une zone de fracture. Ils ont injecté des isotopes d'éléments sorbants (ions positifs) comme  $^{58}\text{Co}$  et  $^{86}\text{Rb}$ , et des radioéléments sous forme d'ions négatifs,  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  et  $^{131}\text{I}$  (respectivement sous forme  $\text{TcO}_4^-$  et  $\text{I}^-$ ). Le seul isotope récupéré a été  $^{131}\text{I}$ , les autres ayant été entièrement fixés dans les terrains traversés. Pour Co et Rb, cela confirme le pronostic précédent donné en annexe II, fondé sur des considérations théoriques. En ce qui concerne Tc, les auteurs de l'expérience ont supposé qu'il a été réduit à l'état tétravalent (le milieu est réducteur en profondeur). Le complexe anionique non sorbant  $\text{TcO}_4^-$  aurait été détruit, ce qui aurait conduit à la rétention de Tc dans les terrains. On remarquera que cette réduction évoque celle du tellure (de  $\text{HTeO}_3^-$  en Te natif) envisagée plus haut.

##### A3.4.2 - Les essais de percolation in-situ dans les sols

Plusieurs séries d'expériences ont été réalisées. Elles sont à notre avis moins significatives que les observations consécutives à des pollutions accidentelles, car elles concernent un laps de temps beaucoup plus court, en général de quelques mois seulement contre plusieurs années pour les contaminations fortuites. Néanmoins on ne peut les passer sous silence.

Ainsi Saas et Grauby (1973) donnent la coupe de trois sols différents dans lequel on a fait percoler deux solutions contenant  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{54}\text{Mn}$ , et  $^{60}\text{Co}$  (figure A3.5). L'une des solutions est de l'eau distillée, l'autre une eau de surface (fleuve non précisé). On voit que pour Cs la

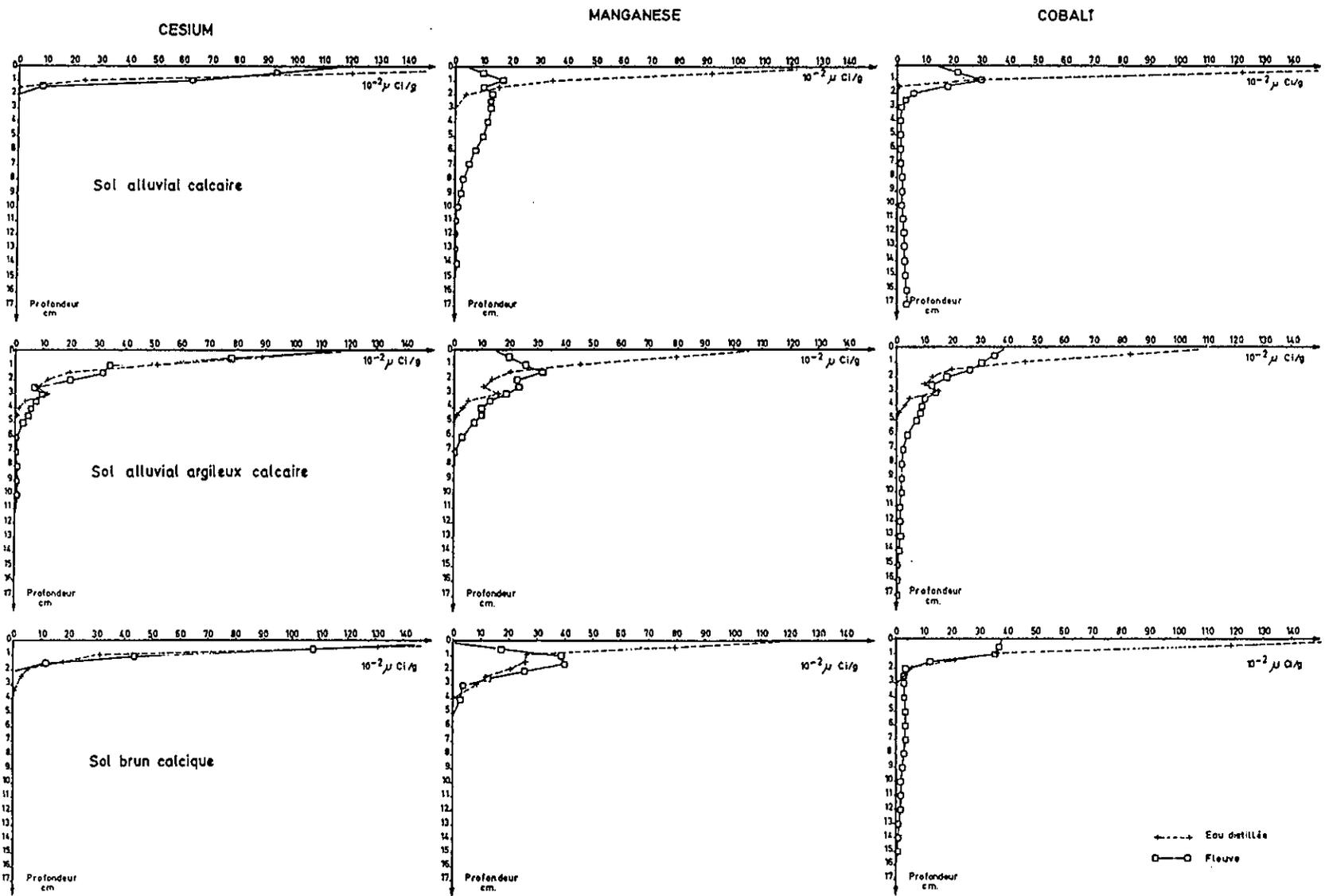


Figure A3.5 - Concentrations en  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{54}\text{Mn}$ , et  $^{60}\text{Co}$  dans trois sols, après percolation des radioéléments dissous dans de l'eau distillée et dans une eau de rivière (Saas et Grauby, 1973).

répartition des concentrations est tout-à-fait semblable à celle observée à Nagasaki (figure A3.1), tandis que pour Mn et Co il en va différemment. Il est clair d'autre part que la fixation superficielle de ces deux derniers éléments est sensiblement modérée par les impuretés contenues dans les eaux fluviales, sans doute les matières organiques. D'autre part, la nature précise du sol ne semble pas avoir une grosse importance, étant entendu qu'il s'agit à chaque fois de sols à composante calcaire (c'est-à-dire sans doute à pH voisin de 7).

De la même manière, Kühn *et al.* (1973) on étudié en Allemagne la percolation in-situ de  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{106}\text{Ru}$ ,  $^{54}\text{Mn}$  et  $^{144}\text{Ce}$ . Plus de 99 % de la radioactivité est restée concentrée sur les premiers 30 cm de sol, malgré une infiltration étalée sur 10 mois et comprenant les fortes pluies d'hiver. En revanche  $^{131}\text{I}$  s'est infiltrée plus profondément. Ceci confirme *globalement* la différence de comportement entre les espèces anioniques comme l'iode, et les espèces cationiques comme césium, manganèse ou fer. Dans le cas présent  $^{106}\text{Ru}$  aurait une migration ressemblant plus à celle de Cs qu'à celle de l'iode, ce qui n'est pas le cas de l'exemple donné plus haut § A3.3.2.1 pour  $^{103}\text{Ru}$ .

### A3.5. DES DIVERGENCES ENTRE MESURES DE LABORATOIRE ET MESURES DE TERRAIN

Dans plusieurs cas des divergences ont été relevées entre les propriétés de sorption définies au laboratoire, représentées par les coefficients  $K_d$ , et les mesures effectives de retards sur le terrain.

Ainsi Stead (1966, *in* Kruger 1970 p. 58), sur le site de Gnome aux Etats-Unis, aurait constaté un facteur de retard de 20 pour  $^{90}\text{Sr}$  dans des dolomites, ce qui correspondrait à un  $K_d$  de l'ordre de 2 (en  $\text{cm}^3/\text{g}$ ). Or, le  $K_d$  déterminé au laboratoire aurait été de 500 ; dans un article antérieur, Stead (1963) signale toutefois des valeurs bien moins élevées de 5 à 14, avec pour moyenne 10. Quoiqu'il en soit, il est clair que les mesures de laboratoire ont conduit à une *surestimation* du retard correspondant sur le terrain. On rapprochera ces valeurs du  $K_d$  mesuré dans la dolomite avec celle déterminées pour  $^{85}\text{Sr}$  dans un carbonate, en l'occurrence de la craie, soit  $2,9 \text{ cm}^3/\text{g}$  (ou  $2,9 \cdot 10^{-3} \text{ m}^3/\text{kg}$ , Detay, 1993, p. 278). Ce dernier chiffre correspond bien au retard effectivement constaté sur le terrain à propos du site de Gnome, dans un milieu assez similaire.

Sur le site de Cambrie, Coles et Ramspott (1982) ont étudié la mobilité de  $^{106}\text{Ru}$ . Bien qu'elle soit réelle, les  $K_d$  mesurés en laboratoires sont très élevés (10 à 8 000), ce qui devrait correspondre à une rétention totale. La divergence entre les mesures expérimentales et les faits de terrain est discutée, sans qu'aucune explication ne puisse être proposée.

### A3.6. CONCLUSION

Les exemples de contaminations qui viennent d'être décrits, s'inscrivent assez bien dans le cadre théorique des migrations d'éléments tel qu'il a été exposé annexe 2. Ces exemples sont toutefois peu nombreux ; aussi croyons-nous préférable, au moins d'un point de vue conceptuel, de se référer au modèle donné dans l'annexe en question, si l'on souhaite avoir une vue rapide sur le potentiel de sorption et de migration des radioéléments. Une synthèse des coefficients  $K_d$  correspondants pourrait certes être faite, mais d'une part il s'agirait d'un travail extrêmement

important (la littérature est très abondante), et d'autre part une critique approfondie serait nécessaire. Ceci sort du cadre de la présente étude.

### A3.7. REFERENCES

AURAND K., MATTHESS G., WOLTER R. (1972) - (Fallout-Strontium-90 als Markierungsstoff bei Grundwasseruntersuchungen. *Geol. Jahrbuch*, vol. C2, pp. 303-313

BYEGARD J., SKARNEMARK G., SKALBERG M. (1991) - Radioactive tracer study performed in a dipole geometry in a highly conductive fracture zone. *In Scientific Basis for Nuclear Waste Management XIV, Mat. Res. Soc., Symp. Proc., Volume 212, pp. 677-684.*

COLES D.G., RAMSPOTT L.D. (1982) - Migration of Ruthenium-106 in a Nevada Test Site Aquifer: Discrepancy Between field and Laboratory Results. *Science*, vol. 215, pp. 1235-1237.

DETAY (1993) - Le forage d'eau - Réalisation, entretien, réhabilitation. Masson, Paris, 379 p.

FRIEDMANN L., AMANN W., LUX D. (1986) - Radioaktive Belastung des Wassers in Bayern nach dem Reaktorunfall in Tschernobyl. *Wasser/abwasser*, vol. 127, H. 12, pp. 604-613.

HABERER K. (1987) - Umweltradioaktivität und Trinkwasserversorgung. *Wasser Abwasser*, 128 (7), pp. 396-403.

HOFFMAN D.C., DANIELS W.R., WOLFSBERG K., THOMPSON J.L., RUNDBERG R.S., FRASER S.L., DANIELS K.S. (1984) - A review of radionuclide migration from an underground nuclear explosion at the Nevada test site. IAEA, Vienne, Radioactive Waste Management pp. 241-256.

IPSN (1986) - L'accident de Tchernobyl - révision 3. Rapport IPSN 2/86 (document provisoire).

IPSN (1987) - Etude de la contamination des eaux de la Seine due aux retombées atmosphériques suite à un accident grave sur le site de Nogent. Rapport interne, avril 1987.

IPSN (1995) - Tchernobyl 9 ans après. Dossier de presse, IPSN, 30 p.

IZRAEL, Yu.A., ROVINSKI F.Ya . (1970) - Use of Radionuclides from Peaceful Nuclear Explosions in Hydrology. Paper SM129/59 in Proceedings, Isotope Geology (IAEA, Vienne) pp. 83-94.

KRUGER P. (1970) - Hydrologic transport of radionuclides from nuclear craters and quarries. U. S. Army Engineer Cratering Group, Livermore, California, 119 p.

KUEHN W., HANDL J., SCHAETZLER (1973) - Transport of  $^{131}\text{I}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{106}\text{Ru}$ ,  $^{144}\text{Ce}$  and  $^{154}\text{Mn}$  in an undisturbed soil under natural environmental conditions. *In Environmental Behaviour of radionuclides released in the nuclear industry*, IAEA, Vienne, pp. 347-361.

LITAOR I., THOMPSON M.L., BARTH G.R., MOLZER P.C. (1994) - Heavy metals in the Environment. Plutonium-239 and Americium -241 in Soils East of Rocky Flats, Colorado. *J. Environ. Qual.*, vol. 23 pp. 1231-1239.

MAHARAY., MIYAHARAS. (1984) - Residual Plutonium in Soil of Nagasaki. *Journ. of Geophys. Research*, vol. 89, n° 89, pp. 7931-7936.

Ministère de l'Environnement (1994) - Actualisation et développement de l'étude "Contamination des réseaux d'alimentation en eau potable". Rapport final, Oct. 1994, 113 p.

OMS (1994) - Directives de qualité pour l'eau de boisson. 2e édition. Vol.1, Recommandations. Organisation Mondiale de la Santé, Genève, 202 p.

SAAS A., GRAUBY A. (1973) - mécanismes de transfert dans les sols cultivés des radionucléides rejetés par les centrales électro-nucléaires dans le système fleuve-sol irrigué sol- nappe. *In Environmental Behaviour of Radionuclides released in the nuclear industry*, IAEA, Vienne, pp.255-268.

STEAD F.W. (1963) - Tritium Distribution in Ground Water around Large Underground Fusion Explosions. *Science*, vol. 142, pp. 1163-1165.

STEAD F.W. (1966) - Hydrologic Considerations, chapter II *in* "Safety Involving Detonation of Nuclear Devices", Nevada Operations Office, las Vegas, Rept. NVO-28.

STEAD F.W. (1969) - Groundwater Contamination. *In* : Education for peaceful uses of nuclear explosives. Tucson, Ariz., pp. 205-219.

VON GUNTEN H., WABER U.E., KRAEHENBUEHL U. (1987) - the reactor accident at Chernobyl : a possibility to test colloïd-controlled transport of radionuclides in a shallow aquifer. *Journ. of Contam. Hydrology*, vol. 2 pp. 237-247.

**ANNEXE 4**

**LA CONTAMINATION EN  $^{137}\text{CS}$  ET EN  $^{90}\text{SR}$  DES NAPPES  
SOUTERRAINES EN RUSSIE AU SUD DE MOSCOU**

Récemment est paru un article de Dubinchuk *et al.* (1993) sur la contamination des nappes souterraines en Russie à la suite de l'accident de Tchernobyl, consigné par onze auteurs et avec des remerciements pour dix-sept autres. Il s'agit donc manifestement d'un travail très important, à la fois par le nombre des contributeurs, son caractère récent et par la gravité de l'accident auquel il se réfère. A ce titre, il nous a semblé judicieux de lui consacrer une annexe entière, bien qu'il ne s'agisse pas d'une situation de crise, mais pourrait-on dire d'une situation de post-crise. Nous comparons ci-dessous les données publiées avec celles provenant d'autres sources, au moyen de renvois appropriés.

#### A4.1. LA POLLUTION DES SOLS

La zone contaminée a été déterminée par radiométrie aéroportée : les sols à radioactivité dépassant 1 Ci/km<sup>2</sup> en <sup>137</sup>Cs s'étendent sur plus de 120.000 km<sup>2</sup> en Ukraine, Russie et Biélorussie. A titre de comparaison, l'activité dans certains points de la zone d'exclusion à quelques kilomètres autour du réacteur détruit dépassait, début Mai 1986, une valeur de 10<sup>7</sup> Bq/m<sup>2</sup> pour ce même <sup>137</sup>Cs (270 mCi/m<sup>2</sup> ; IPSN, 1986, soit 270 Ci/km<sup>2</sup>).

La zone étudiée en détail pour la répartition de <sup>137</sup>Cs dans les sols, est une des plus contaminée du territoire russe. Elle est localisée à la frontière de la Biélorussie, à 200 km au NE de Tchernobyl (région de Vyshkov-Novozybkov). Bien qu'on en dispose pas de corrélation entre activité de surface et répartition verticale des concentrations dans les sols, il est probable qu'elle se situe dans la zone de 15-40 Ci/km<sup>2</sup> pour la radioactivité de <sup>137</sup>Cs (le travail en question donne, dans son tableau VII, une modélisation relative à des sols à 20-35 Ci/km<sup>2</sup>). Le secteur étudié est donc dans l'ensemble un peu moins contaminé que les alentours de Tchernobyl.

Les concentrations relevées dans les sols atteignent 10.000 pCi/g soit 370.000 Bq/kg : elles sont donc comparables à certaines des boues de stations d'épuration relevées en Bavière lors du passage du "nuage" radioactif (cf. § A3.3.2.2). L'examen de leur répartition verticale montre (figure A4.1) un schéma déjà observé (figures A3.1 et A3.5), à savoir une diminution très rapide des concentrations en <sup>137</sup>Cs et <sup>134</sup>Cs vers la profondeur : selon les auteurs russe, ce schéma de distribution est de type *log-normal*. Il est attribué à l'existence d'une fraction du césium migrant rapidement, pour une raison ignorée ; cette fraction ne représenterait qu'une faible part du stock total, à peine quelques pour cent.

Si l'on compare ces chiffres avec ceux de la figure A3.1, à savoir un maximum de 100 Bq/kg à Nagasaki, on s'aperçoit que la pollution superficielle résultant de l'explosion de la centrale ukrainienne serait *plusieurs milliers de fois supérieure* à celle (résiduelle) de la bombe atomique Fatman. L'explication d'une telle différence ne peut être cherchée dans la décroissance radioactive de <sup>137</sup>Cs : la période étant de 30 ans, la diminution correspondante n'est que d'un facteur 3 environ sur le laps de temps 1945-1990. Il faut probablement la chercher dans le fait que la quantité de matière fissile est beaucoup plus faible dans un explosif nucléaire, que dans un réacteur : il faut théoriquement 1 kg de matière entièrement fissionnée pour produire une puissance de 17 kt (Boué, 1970), alors que le réacteur de Tchernobyl contenait environ 3 600 kg d'oxyde d'uranium fissile (IPSN, 1995). Une autre explication est que la dispersion mécanique des produits de fission est sans doute bien supérieure dans le cas d'une explosion nucléaire, la hauteur du panache et surtout la température étant alors sans commune mesure avec celles d'une explosion thermique comme à Tchernobyl.

## A4.2. LA POLLUTION DES NAPPES SOUTERRAINES AU SUD DE MOSCOU

L'étude a porté sur une région située à quelques centaines de kilomètres au NE du lieu de l'accident, entre Moscou et les frontières biélorusse et ukrainienne.

### A4.2.1. Une pollution présente relativement faible

Les eaux de diverses origine, rivières, lacs, sources, nappes souterraines, ont été analysées. Les seules données publiées portent sur le césium, avec ses deux isotopes  $^{137}\text{Cs}$  et  $^{134}\text{Cs}$  : les concentrations ont été mesurées avant et après filtration (césium "dissous"), ce qui par différence permet d'évaluer la radioactivité liée aux colloïdes. Il s'agit donc d'une étude qui, s'intéressant aux radionucléides à vie longue, a pour objectif d'apprécier une évolution à long terme.

Le dosage de  $^{134}\text{Cs}$  est probablement destiné à identifier l'origine des pollutions constatées : ce radionucléide est à vie courte, et son utilité est de pouvoir remonter à la date de la contamination d'après le rapport  $^{137}\text{Cs}/^{134}\text{Cs}$ , le rapport de ces deux isotopes dans les rejets accidentels de Tchernobyl étant connu. Ce besoin d'identification n'est pas inutile, car les concentrations en  $^{137}\text{Cs}$  sont plutôt faibles, et certaines auraient pu être attribuée aux tirs nucléaires atmosphériques : la valeur la plus forte signalée est de 70 pCi/l soit 2,6 Bq/l. Dans l'ensemble 60 % des concentrations en  $^{137}\text{Cs}$  sont inférieures à 2,7 pCi/l soit 0,1 Bq/l. Il n'y a pas lieu de faire une distinction entre eaux souterraines et eaux de surface, car compte tenu du laps de temps écoulé depuis l'accident, les eaux de surface représentent (au moins à l'étiage) l'exutoire des eaux souterraines.

L'essentiel de l'activité en césium est sous forme dissoute, et non particulaire. On retrouve donc ce qui a été observé en Suisse dans une nappe alluviale (cf. § A3.3.2.1). Cependant l'aquifère karstique de la région de Tula présente une activité en césium liée à une forme non dissoute (donc colloïdale), ce qui est dû au caractère légèrement turbide des eaux de karsts.

Le point important à souligner est la légère augmentation, depuis 1989, de certaines concentrations : de moins de 0,007 Bq/l (0,2 pCi/l) elles sont passées à 0,07-0,14 Bq/l (2-4 pCi/l)

### A4.2.2. Vulnérabilité des nappes et modélisation

On comparera utilement les valeurs données plus haut avec le pic signalé en Bavière dans les eaux souterraines quelques semaines après la contamination des eaux de surface, soit 0,2 Bq/l (cf. § A3.3.2.2). Dans les deux cas l'ordre de grandeur est le même, avec ceci près qu'en Bavière il s'agit d'un phénomène observé peu de temps après la contamination de surface, alors qu'en Russie les mesures sont postérieures de quelques années (campagnes d'été de 1989-1992). Aucune information n'est donnée dans ce dernier cas, sur l'évolution des concentrations avec le temps.

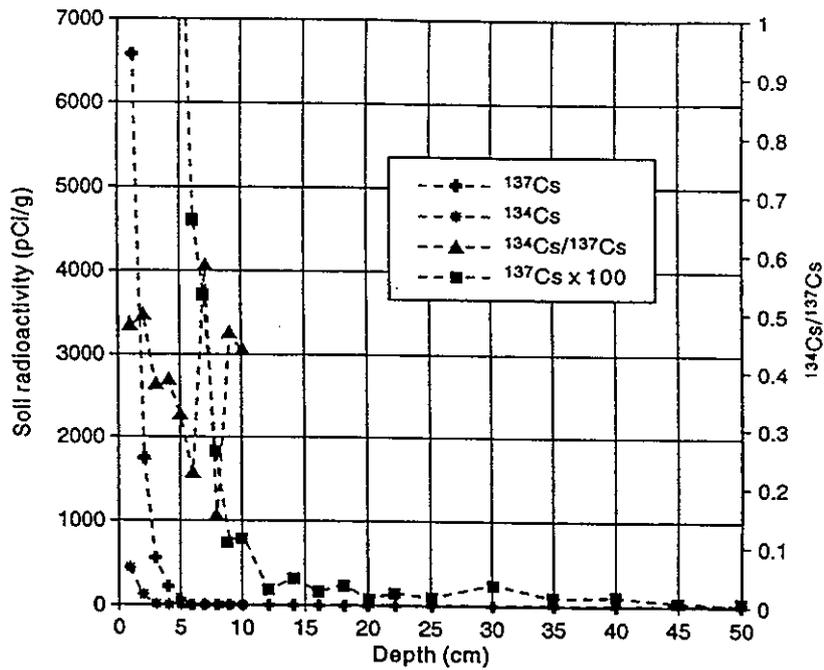


FIG. 2. Caesium-134 and caesium-137 in the soil profile (Vyshkov, forest, 1992).

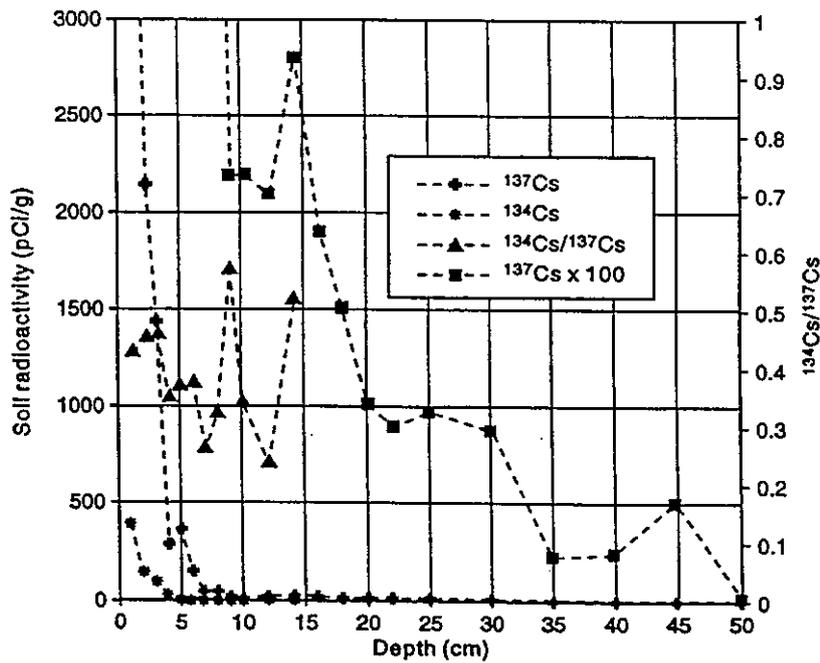


Figure A4.1 - Répartition des concentrations en  $^{137}\text{Cs}$  et  $^{134}\text{Cs}$  sur le site de Vyshkov-Novozybkov (Russie ; Dubinchuk *et al.*, 1993), à la suite de la pollution due à l'accident de Tchernobyl. On comparera ce schéma de répartition avec ceux des figures A3.1 et A3.5, très similaires.

Le souci majeur affiché est de prévoir l'évolution des concentrations en radioéléments dans les nappes souterraines. Si les concentrations actuelles paraissent faibles, les Russes craignent manifestement une augmentation de la pollution, par relargage à partir du sol des radioéléments contenus. Pour ce faire, ils ont mis au point un programme de définition de la vulnérabilité des nappes, réalisé un bilan hydrologique complet de la région avec notamment la détermination des temps de résidence (dans les aquifères et dans la zone non saturée), ainsi qu'une modélisation mathématique.

Pour cette dernière trois modèles ont été utilisés, le modèle à piston dispersif (cf.A2.1.2.2), un modèle de mélange parfait, et un modèle dit logarithmique. Un algorithme a été établi, en supposant que l'interaction entre solutés et matrice correspond à une sorption linéaire telle que l'on puisse calculer un coefficient de retard R (cf. A2.1.2.2). La zone non saturée est divisée en plusieurs plans horizontaux, caractérisés chacun par un temps de résidence donné. Connaissant le niveau de contamination en surface, ceci permet de calculer *in fine* une concentration prévisionnelle pour chaque radioélément dans la nappe superficielle, en tenant compte de la décroissance radioactive. Le taux de vulnérabilité  $\zeta$  de la nappe est défini comme le rapport entre cette concentration prévisionnelle calculée, et une concentration admissible fixée par les normes en vigueur.

Le modèle a été utilisé pour prévoir la migration de  $^{137}\text{Cs}$  et  $^{90}\text{Sr}$  dans la zone non saturée. La conclusion est qu'en certains endroits la vulnérabilité  $\zeta$  peut dépasser 1, c'est-à-dire les concentrations en radioéléments dans les nappes superficielles *pourraient (à terme) dépasser la concentration maximale admissible*. Cela se produirait au bout de 10-30 ans dans le cas d'une contamination de surface très importante ( $100 \text{ Ci/km}^2$  ou  $3,7 \cdot 10^{12} \text{ Bq/km}^2$  pour  $^{137}\text{Cs}$  et  $10 \text{ Ci/km}^2$  ou  $3,7 \cdot 10^{11} \text{ Bq/km}^2$  pour  $^{90}\text{Sr}$ ). On a retenu comme concentrations maximale admissibles  $1\,000 \text{ pCi/l}$  ( $37 \text{ Bq/l}$ ) pour  $^{137}\text{Cs}$  et  $100 \text{ pCi/l}$  ( $3,7 \text{ Bq/l}$ ) pour  $^{90}\text{Sr}$ . Des telles normes sont nettement supérieures au seuil d'alerte de l'OMS soit  $1 \text{ Bq/l}$ , mais de l'ordre de grandeur de la dose de référence de  $0,1$  millisievert par an fixée par ce même organisme (OMS, 1994) soit respectivement  $10 \text{ Bq/l}$  pour  $^{137}\text{Cs}$  et  $5 \text{ Bq/l}$  pour  $^{90}\text{Sr}$ .

On remarquera que l'approche faite est presque entièrement de type hydrologique (physique), et qu'elle ne fait intervenir aucun processus chimique hors du processus de sorption. En particulier, quelque attention devrait être apportée à la *spéciation* du strontium et du césium. On voit par exemple qu'il existe des complexes neutres comme  $\text{SrCO}_3^\circ$  : ces espèces non chargées seront non sorbantes, et il est possible qu'elles soient la cause de la fraction à "migration rapide" invoquée pour rendre compte, notamment, des traces de radioéléments déjà présentes dans les eaux souterraines.

#### A4.3. CONCLUSION

Le point essentiel à retenir a été l'attention portée à la présence de radioéléments dans les eaux souterraines. Malgré un niveau de contamination élevé des sols, les concentrations en  $^{137}\text{Cs}$  dans les nappes souterraines sont très faibles : on retrouve donc ce qui a été observé en Bavière, et il y a là un bon recoupement. Cependant il semble que le niveau de ces concentrations soit en légère augmentation, et l'effort de modélisation montre qu'il existe pour l'avenir (ou qu'il a existé) une crainte certaine d'une contamination plus forte.

L'article de Dubinchuk *et al.* (1993) est un des plus intéressants et l'un des plus complets qui aie été consacré à la pollution radioactive des nappes. Ce travail n'est pas tout à fait exhaustif dans la mesure où il représente plutôt un résumé étendu de travaux, dont beaucoup sont restés inédits. Néanmoins la question du risque de contamination des nappes y été abordé avec beaucoup de rigueur.

#### A4.4. REFERENCES

BOUE P. (1970) - Quelques aspects physiques des explosifs nucléaires. B. I. S. T. du CEA, vol. 149, pp. 3-8.

DUBINCHUK V.T., POLYAKOV V.A., KARASEV B.V., KORNIENKO N.D., CHUBAROV V.N., FERRONSKY V.I., ROMANOV V.V., BREZGUNOV V.S., ESIKOV A.D., KIKICHEV Ch.G., KARPICHEV Yu.A. (1993) - Field and laboratoty nuclear techniques in radionuclide transport studies: methodology, technology and case studies in the territory of the russian federation exposed to radioactive contamination due to the Chernobyl accident. In *Isotopes techniques in the study of past and current environmental changes in the hydrosphere and the atmosphere*, IAEA, Vienne, pp. 101-146.

IPSN (1986) - L'accident de Tchernobyl - révision 3. Rapport IPSN 2/86 (document provisoire).

IPSN (1995) - Tchernobyl 9 ans après. Dossier de presse, IPSN, 30 p.

OMS (1994) - Directives de qualité pour l'eau de boisson. 2e édition. Vol.1, Recommandations. Organisation Mondiale de la Santé, Genève, 202 p.