

**FLUX DES RADIONUCLÉIDES
DANS LES PRODUCTIONS AGRICOLES
SUITE À UN ACCIDENT NUCLÉAIRE :
CONTRE-MESURES ET
TECHNIQUES DE RÉHABILITATION**

par

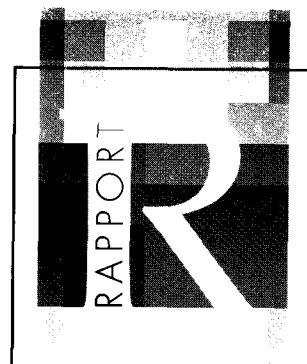
André JOUVE

INSTITUT DE PROTECTION ET DE SÛRETÉ NUCLÉAIRE

DÉPARTEMENT DE PROTECTION
DE L'ENVIRONNEMENT

SERVICE D'ÉTUDES ET DE RECHERCHES SUR LES
TRANSFERTS DANS L'ENVIRONNEMENT

CEA / Cadarache



DIRECTION DE L'INFORMATION
SCIENTIFIQUE ET TECHNIQUE

**RAPPORT
CEA-R-5742**



GIF-SUR-YVETTE CEDEX FRANCE

97000820

**"FLUX DES RADIONUCLÉIDES DANS LES PRODUCTIONS AGRICOLES SUITE À UN ACCIDENT NUCLÉAIRE :
CONTRE-MESURES ET TECHNIQUES DE RÉHABILITATION "**

Sommaire - Cette thèse traite des conséquences radiologiques d'un accident nucléaire par la contamination radioactive de la chaîne alimentaire et des moyens à mettre en oeuvre pour réduire les flux de radionucléides ou décontaminer les terrains agricoles. Après un bref rappel du contexte et des concepts de radioprotection qui s'appliquent au cas des accidents nucléaires, ce travail recense les données actuelles sur les mécanismes de flux des radionucléides dans les sols et du sol vers les plantes. Le travail de recherche de cette thèse porte à la fois sur la prédiction des flux de radionucléides et sur les remèdes possibles : la mesure de la disponibilité des radionucléides dans la solution du sol, son utilisation dans une formulation mathématique quantifiant le transfert sol-plante du césium et du strontium, et les perspectives offertes par une technique innovante de décontamination des sols. Les résultats obtenus montrent qu'il est possible de prévoir à 30% près, la contamination d'une culture sur la base de 4 paramètres : le coefficient de distribution des radionucléides entre le sol et la solution du sol K_d , la teneur du sol en analogues chimiques du césium et du strontium que sont, respectivement, le potassium et le calcium, le pH du sol et une constante caractéristique de l'espèce végétale considérée. Cependant, il en ressort en général des études de transfert sol-plante que la réduction des flux de radionucléides n'est pas une voie très prometteuse de diminution de l'exposition radiologique en cas d'accident nucléaire. Le travail réalisé montre qu'il est plus efficace de s'attaquer à la source de contamination des plantes, c'est-à-dire décontaminer les sols. La technique proposée de décapage des sols à l'aide d'une déplaqueuse à gazon se présente comme la plus avantageuse des techniques étudiées pour une application à la décontamination des prairies de tourbières.

1997 - Commissariat à l'Energie Atomique - France

**"FLUXES OF RADIONUCLIDES IN THE AGRICULTURAL PRODUCTION AFTER A NUCLEAR ACCIDENT :
COUNTERMEASURES AND DECONTAMINATION TECHNIQUES"**

Summary - This thesis deals with the radiological consequences of a nuclear accident through the radioactive contamination of the food chain and the subsequent countermeasures for decreasing the fluxes of radionuclides and decontaminating agricultural lands. After a brief summary of the radioprotection ground and context in case of a nuclear accident, this work surveys existing data on the fluxes of radionuclides in soils and from soil to plants. The research work focuses on both the prediction of the fluxes of radionuclides and possible countermeasures : the measurement of the bioavailability of radionuclides in the soil solution, its use in a mathematical expression to quantify the soil-to-plant transfer of caesium and strontium, and the perspectives of an innovative technique of soil decontamination. The obtained results show that based on 4 coefficients, it is possible to predict crop contamination within a 30% confidence interval : the liquid solid distribution coefficient of radionuclides K_d , the amount of chemical analogues of caesium and strontium, i.e. potassium and calcium, respectively, soil pH and a constant characterising the plant species that is considered. However, it generally appears from soil to plant transfer studies that the reduction of the fluxes of radionuclides is not a promising way of radiological exposure mitigation after a nuclear accident. The work performed shows that it is more efficient to tackle the source of the contamination, i.e. decontaminate the soil. The proposed technique of soil scraping using a turf harvester appears to be the most advantageous among the tested options. for the decontamination of peat-bog meadows.

1997 - Commissariat à l'Energie Atomique - France



97000820

UNIVERSITÉ DE PROVENCE AIX MARSEILLE 1

Thèse

**Présentée à l'Université d'Aix-Marseille 1
pour l'obtention du titre de
Docteur de l'Université de Provence
mention Sciences,**

Spécialité : Chimie de l'environnement et santé

**FLUX DES RADIONUCLEIDES DANS LES PRODUCTIONS AGRICOLES
SUITE A UN ACCIDENT NUCLEAIRE : CONTRE-MESURES ET
TECHNIQUES DE REHABILITATION**

Par

JOUVE André

Soutenue le 17 septembre 1996, devant le jury d'examen composé de :

Jacques Rey, Professeur, Directeur de thèse, Université de Provence

Jean-Claude Landry, Professeur, Service de l'Ecotoxicologie Cantonal, Genève

Henri Métivier, Docteur ès Sciences, IPSN, rapporteur

François Bréchignac, Docteur ès Sciences, IPSN

Claude Rousset, Professeur, Université de Provence

Gérasimos Arapis, Professeur Associé, Université d'Agriculture d'Athènes, Grèce, rapporteur

Laboratoire de Chimie de l'Environnement, Université de Provence.

Département de Protection de l'Environnement, Institut de Protection et de Sûreté Nucléaire (IPSN)

- Rapport CEA-R-5742 -

CEA Cadarache
Institut de Protection et de Sûreté Nucléaire
Département de Protection de l'Environnement
Service d'Etudes et de Recherches sur les Transferts de l'Environnement

**FLUX DES RADIONUCLÉIDES DANS LES PRODUCTIONS AGRICOLES
SUITE À UN ACCIDENT NUCLÉAIRE : CONTRE-MESURES ET
TECHNIQUES DE RÉHABILITATION.**

par

André JOUVE

- Janvier 1997 -

Avant propos

Les travaux présentés dans cette thèse ont été réalisés à l'Institut de Protection et de Sûreté Nucléaire (IPSN), au sein du Département de Protection de l'Environnement et des Installations (DPEI) et du Service d'Etudes et de Recherches sur les transferts dans l'Environnement (SERE). Ce service a été dirigé successivement par André Grauby et Philippe Picat que nous tenons à remercier ici. Nos remerciements vont également à Bernard Legrand et Henri Maubert qui ont successivement dirigé le programme de Réhabilitation des Sols et des Surfaces après un Accident (RESSAC) pendant la période où se sont déroulés ces travaux.

A la faveur des changements politiques dans l'ex URSS et des programmes financés par la Commission Européenne, la possibilité a été offerte aux scientifiques européens de réaliser des expérimentations sur les terrains contaminés de Tchernobyl. Pour la partie française, cette opportunité a permis l'essai en conditions réelles des techniques de réhabilitation élaborées au sein du programme RESSAC. L'IPSN a coordonné de 1992 à 1995 le programme de collaboration expérimentale N°4 intitulé "stratégies de réhabilitation" dont le but était d'évaluer les techniques de réhabilitation et les contre-mesures les mieux adaptées à résoudre certains problèmes posés dans les régions affectées par l'accident de Tchernobyl. Ce programme rassemble plusieurs instituts de l'Union Européenne : Angleterre, Danemark, Espagne, Grèce, Irlande. Il a pour but la collaboration avec les instituts de l'ex URSS. Cette collaboration a permis un échange très fructueux, tant sur le plan scientifique que celui des relations humaines. Nos remerciements vont enfin à tous les participants de ce programme.

1. Introduction

Malgré les précautions prises en France lors de la conception, de la construction et de l'exploitation des réacteurs nucléaires, on ne peut exclure totalement l'éventualité d'accidents graves entraînant des rejets significatifs de produits radioactifs dans l'environnement. La maîtrise des conséquences d'un accident nucléaire pour l'environnement fait partie des exigences de protection et de sûreté nucléaire que s'imposent les pays ayant recours à l'énergie nucléaire. Ainsi, avant que ne survienne l'accident de Tchernobyl, le programme de Réhabilitation des Sols et des Surfaces après un Accident nucléaire (RESSAC), a été lancé en France par l'Institut de Protection et de Sûreté Nucléaire (IPSN), en 1983, en vue de la préparation aux situations accidentelles. L'accident de Tchernobyl a prouvé la nécessité de cette préparation et l'ampleur des conséquences d'un accident au niveau international, à travers notamment la commercialisation des produits alimentaires. Les instances internationales telles que la Commission Européenne ont été saisies afin d'établir des normes et des critères d'intervention. De nombreuses lacunes dans les bases scientifiques nécessaires à l'élaboration de ces normes ont fait apparaître le besoin d'un programme de collaboration qui offre l'opportunité de confronter à la réalité du terrain les modèles élaborés sur la base d'expériences en laboratoire.

Cet exercice s'est avéré profitable pour la connaissance des sciences de l'environnement. Le traitement des conséquences de l'accident de Tchernobyl a nécessité la convergence de plusieurs disciplines qui entrent dans la formation doctorale de Chimie de l'Environnement et Santé. C'est dans ce cadre qu'a été réalisée cette thèse. Parmi les disciplines enseignées dans cette formation, la radioécologie, la chimie, l'épidémiologie ainsi que la sociologie de l'environnement occupent une place importante. Si les questions touchant à la radioécologie et la chimie sont assez largement abordées dans ce document, les autres disciplines n'y sont présentes qu'en ce qui concerne la description du contexte général.

Le choix du sujet s'est donc limité aux flux des radionucléides dans les sols et les plantes, et les moyens à mettre en oeuvre pour y remédier.

La radioécologie a pour objet l'étude du transfert des radionucléides jusqu'à l'homme et les effets des rayonnements ionisants sur les écosystèmes. Elle a connu ses principaux développements à la suite des premiers essais de bombes atomiques réalisés dans l'atmosphère dont les retombées ont posé le problème du transfert des radionucléides dans les chaînes trophiques. Les propriétés nucléaires des radionucléides sont, dans l'environnement, sans incidence sur leur comportement chimique, conforme à celui de l'élément stable, lorsqu'il existe, souvent apparenté à celui des éléments majeurs dont les cycles biogéochimiques sont généralement bien établis. La plupart des radionucléides auxquels s'intéresse la radioécologie sont de faible abondance pondérale dans l'environnement et assez peu d'entre eux sont connus pour satisfaire les besoins physiologiques des êtres vivants. Les mécanismes intimes impliqués dans les flux des radionucléides sont relativement mal connus. Par exemple, un long chemin reste à parcourir quant à la connaissance de ces flux au niveau des tissus et des cellules des organismes vivants. Pour autant, la connaissance des transferts au niveau de l'interface entre le milieu vivant et le substrat qui le nourrit, l'eau et le sol, n'est pas entièrement acquise. Nous nous proposons d'apporter une contribution à l'étude de cet interface et de ses applications pour la réhabilitation des terrains contaminés.

Le sujet est cependant trop vaste pour qu'il soit traité intégralement. Aussi, limiterons nous cette étude aux flux des radionucléides dans les productions agricoles et aux techniques à mettre en oeuvre pour en atténuer les conséquences néfastes. La suite de cet exposé permettra de démontrer qu'une autre restriction s'impose naturellement quant choix des radionucléides étudiés : le césium-137 et le strontium-90.

Les réacteurs nucléaires ou les installations de retraitement sont généralement implantées dans des zones éloignées des grandes villes, bien que l'activité économique engendrée par ces installations se traduise souvent par le développement des petites agglomérations environnantes. De ce fait, en dehors des interventions à court terme, les plans d'action post accidentelle portent dans la plupart des pays sur la réhabilitation des zones où dominent les activités agricoles. Peu d'études se rapportent à la décontamination urbaine. Cependant, certains pays comme le Danemark, dont la capitale se trouve à 20 km d'une centrale nucléaire suédoise sont à l'origine des principales recherches sur la décontamination urbaine (Lehto, 1994). Les essais danois réalisés à Tchernobyl ont montré l'efficacité de certaines techniques mais surtout, que cette efficacité décroît rapidement avec l'âge de la contamination. Sans minimiser l'intérêt des recherches concernant la décontamination urbaine, la complexité et l'importance des voies d'atteinte de l'homme à travers les productions agricoles imposent la restriction du cadre de cette étude à ce seul domaine.

Un grand nombre de publications sur l'impact de l'accident de Tchernobyl est paru, à partir de 1991, en raison de l'augmentation des échanges scientifiques avec l'ex Union Soviétique. L'analyse de ces publications occupe donc une place significative dans cette thèse. L'exemple d'autres types d'accidents sera présenté à titre de comparaison, mais notre travail portera exclusivement sur les accidents de réacteurs nucléaires.

Nous décrirons dans une partie introductive, le contexte général de la protection et de la sûreté nucléaire. Le corps de ce document est formé de deux sous-ensembles : les expérimentations en laboratoire et les expérimentations in situ qui contiennent l'exposé de nos propres recherches.

2. Contexte général de la protection radiologique

Résumé

Ce chapitre décrit la façon de prendre en compte le risque d'exposition radiologique des populations, en cas d'accident nucléaire. L'évaluation de ce risque fait appel aux notions de dose et aux concepts élaborés par la Commission Internationale de Protection Radiologique (CIPR) pour les situations qui s'appliquent aux accidents nucléaires, appelées interventions. Les données relatives aux d'accidents nucléaires survenus dans le passé servent de base à la présentation succincte des conséquences d'un accident par l'exposition interne due à la contamination de la chaîne alimentaire et à l'inhalation de poussière contaminée lors de la remise en suspension du dépôt. Le césium-137 et le strontium-90 sont les deux principaux radionucléides susceptibles d'entrer durablement dans les cycles biogéochimiques en cas d'accident nucléaire. Il importe donc de connaître ces flux dans les productions agricoles qui constituent la principale voie d'exposition des populations. Le choix entre les contre-mesures agricoles et les techniques de réhabilitation sera déterminé en fonction de la nature et l'intensité de ces flux.

2.1. Risques d'exposition des populations aux rayonnements.

2.1.1. Notion de dose

Plusieurs termes recouvrent cette notion. La dose est le terme général désignant l'énergie absorbée. Suivant l'application visée, il peut être accompagné d'un qualificatif, comme dans les expressions « dose absorbée », « dose équivalente » et « dose efficace ».

2.1.1.1. Dose absorbée

La dose absorbée est la quantité d'énergie transmise par un rayonnement ionisant à une masse unitaire de matière comme un tissu. La dose absorbée est mesurée en grays [Gy], où 1 Gy est égal à 1 joule d'énergie absorbée par kilogramme de matière. On utilise souvent un sous-multiple commun du gray, à savoir le milligray [mGy], qui équivaut à 10^{-3} Gy. Les physiciens de la Commission Internationale des Unités de Radioprotection définissent le gray comme la dose absorbée en un point de la matière. Dans la pratique de la radioprotection, la dose moyenne dans un tissu ou un organe est utilisée. Le terme de dose absorbée à l'organe a récemment été introduit pour éviter la confusion entre les deux définitions.

2.1.1.2. Dose équivalente

Un gray produit des effets biologiques différents sur les tissus selon le type de rayonnement (alpha, bêta, gamma, neutrons). La dose équivalente est le produit de la « dose absorbée » dans un organe (thyroïde, par exemple) ou un tissu par un facteur représentant les divers degrés d'efficacité avec lesquels les différents types de rayonnement causent un dommage à l'organe ou au tissu. Ce facteur, dont la valeur varie entre 1 et 20 suivant le type de rayonnement, a été introduit pour permettre de comparer les effets biologiques dus aux différents types de rayonnement. La dose équivalente est exprimée en sievert [Sv]. Un sievert produit les mêmes effets biologiques, quel que soit le type de rayonnement. Elle s'exprime ainsi :

$$H_T = \sum_R W_R \cdot D_{T,R}$$

H_T = dose équivalente

$D_{T,R}$ = Dose absorbée moyenne dans le tissu ou organe T, due au rayonnement R.

W_R = Facteur de pondération du rayonnement

Le choix du terme de "dose équivalente" provient de ce que la dose délivrée par un rayonnement quelconque est calculée comme étant équivalente à celle produisant le même effet biologique que lorsqu'elle est délivrée par les rayonnements γ ou X dont le facteur de pondération est égal à 1 et qui servent de référence.

2.1.1.3. Dose efficace

La dose efficace est la somme pondérée des « équivalents de dose » délivrés aux divers organes et tissus, multipliée par le facteur de pondération propre à la sensibilité de chaque organe ou tissu aux rayonnements. Le facteur de pondération de chaque organe ou tissu exprime la part du risque de décès ou d'anomalies génétiques graves imputable à l'irradiation de cet organe ou tissu par rapport au risque total dû à l'irradiation uniforme de l'organisme entier. Cette grandeur est exprimée en sievert [Sv] selon la formule suivante :

$$E = \sum_T W_T \cdot H_T$$

E = dose efficace (Sv)

W_T = facteur de pondération pour chaque organe ou tissu T

Le facteur de pondération est compris entre 0,01 pour la peau et 0,2 pour les gonades.

Tableau 2.1 : facteurs de pondération pour les tissus

Tissus	Facteur de pondération pour les tissus W_T
Gonades	0,20
Moelle osseuse	0,12
Colon	0,12
Poumon	0,12
Estomac	0,12

2.1.2. Recommandations pour la protection des populations

Les informations présentées dans ce chapitre sont tirées du cours de radioprotection de H. Métivier publié dans le traité des techniques de l'ingénieur (1990).

2.1.2.1. Effets déterministes et stochastiques

Les effets préjudiciables dont il y a lieu de se protéger comprennent les effets somatiques lorsqu'ils se manifestent chez l'individu exposé lui-même et les effets héréditaires lorsqu'ils affectent sa descendance. Parmi les effets somatiques, les radiations ionisantes causent à la fois des effets stochastiques et déterministes, dans les tissus irradiés.

Les effets déterministes (non stochastiques) sont ceux dont la gravité varie avec la dose et pour lesquels il y a un seuil. Ce sont par exemple, la cataracte, les atteintes non malignes de la peau, l'appauvrissement cellulaire de la moelle osseuse, des dommages cellulaires dans les gonades provoquant une baisse de la fertilité, etc. Pour l'ensemble de ces transformations, la gravité de l'effet dépend de l'importance de la dose reçue et il existe une dose-seuil au dessous de laquelle on n'observe aucun effet nocif. Ces seuils sont différents selon l'effet observé.

Les effets stochastiques sont ceux pour lesquels c'est la probabilité d'apparition de l'effet et non sa gravité, qui est considérée comme une fonction, sans seuil de la dose. Ce sont par exemple les effets héréditaires et les cancers. Ainsi la gravité du cancer dépend de sa nature et non de la dose d'exposition, c'est sa fréquence qui dépendra du nombre de personnes exposées et de la dose reçue par chacun.

2.1.2.2. Le cadre conceptuel de la Protection Radiologique

Toute personne dans le monde est exposée à des rayonnements venant de sources naturelles et artificielles. Le but premier de la protection radiologique est de fournir un niveau de protection adapté à l'homme sans limiter indûment les pratiques bénéfiques.

Le système de protection radiologique, appliqué ce jour, dans le monde entier, est basé sur l'hypothèse que même de faibles doses de rayonnement peuvent produire des effets stochastiques nocifs sur la santé. Etant donné qu'il y a des seuils pour les effets déterministes, il est possible de les éviter en limitant les doses délivrées aux individus. L'objectif de la protection radiologique est donc

d'empêcher l'apparition d'effets déterministes, en maintenant les doses en dessous des seuils appropriés, et à assurer que toutes les mesures raisonnables sont prises pour limiter l'induction d'effets stochastiques à des niveaux, soit imperceptibles, soit très faibles et considérés comme acceptables.

2.1.2.3. Les activités.

La *Publication 60* de la CIPR (1993) classe les activités humaines en deux groupes:

Certaines activités humaines augmentent l'exposition aux rayonnements, soit en augmentant l'exposition des individus, soit en augmentant le nombre d'individus exposés. Ces activités sont appelées des "pratiques". C'est le cas d'une installation nucléaire.

D'autres activités humaines peuvent diminuer l'exposition totale, soit au niveau des individus, soit au niveau du nombre d'individus exposés. Ces activités sont appelées "interventions". C'est le cas de la décontamination d'un site pollué.

Les dispositions seront différentes selon qu'elles doivent être appliquées à une pratique conduisant à des expositions ou à une intervention visant à réduire les expositions. Dans le cas d'une nouvelle pratique on peut l'accepter telle quelle, l'accepter après avoir apporté des modifications, ou la rejeter catégoriquement. Les pratiques existantes peuvent être réexaminées à tout moment. On associera donc une pratique à la notion de réglementation.

2.1.2.4. Les pratiques

Le système de protection radiologique pour les pratiques existantes ou envisagées est basé sur les trois principes suivants:

Justification.

Aucune pratique ne doit être adoptée à moins qu'elle n'apporte un avantage suffisant, aux individus exposés ou à la société.

Les détecteurs d'incendie : la question peut se poser du risque de cancers associés à la fabrication et à la dissémination accidentelle potentielle des sources d'américium qui sont utilisées dans ces appareils au bénéfice immédiat de la détection précoce d'un incendie, notamment dans les locaux où la population est dense (lieux publics, salles de spectacles. etc.) Ces détecteurs, compte tenu de la comparaison des risques, sont justifiés.

Les jouets lumineux : il n'y a pas de bénéfice à procurer aux enfants des jouets radio luminescents, cette pratique n'est pas tolérée en France.

Optimisation.

Le principe d'optimisation découle directement de l'impossibilité actuelle de fonder sur des bases scientifiques incontestables l'existence ou la non-existence d'un seuil pour les effets stochastiques. Dans ce doute la CIPR a opté pour une politique de prudence qui s'est traduite par l'adoption d'une relation dose-effet linéaire sans seuil. Partant de cette relation sans seuil, il faudra que pour toute source associée à une pratique, le niveau des doses individuelles, le nombre de personnes exposées, ainsi que la probabilité de subir des expositions quand ces dernières ne sont pas certaines d'être reçues, soient maintenus aussi bas qu'il est raisonnablement possible. Ceci a un coût, c'est pourquoi on estime que cette réduction doit tenir compte des facteurs économiques et sociaux. C'est le principe ALARA: "As Low As Reasonably Achievable".

Limitation.

Si une pratique est bénéfique pour un groupe ou un Etat, (justification) si ces groupes ou Etat ont réduit le risque en limitant l'exposition (optimisation), ceci ne doit toutefois pas se faire en sacrifiant l'individu. C'est pourquoi l'exposition des individus qui résulte de la combinaison des pratiques doit être soumise à des limites de dose afin qu'aucun individu ne soit exposé à des risques radiologiques jugés inacceptables dans le cadre de ces pratiques et dans des circonstances normales.

2.1.2.5. Les interventions

Si des accidents se produisent, ils donnent lieu à des situations pour lesquelles la seule action possible est l'intervention. Dans ce cas les trois principes de justification, d'optimisation et de limitation ne s'appliquent plus. Il appartient cependant aux acteurs ayant à gérer la crise d'agir dans un concept d'optimisation adapté à la situation. La CIPR recommande que l'intervention doit faire plus de bien que de mal. La mauvaise application de ce principe a parfois été invoquée à propos du déplacement des populations touchées par l'accident de Tchernobyl (Romanenko, 1996).

Il en va de même pour l'irradiation naturelle où la décision de réduire ses éventuels effets (taux de radon dans les habitations par exemple) ne peut découler, éventuellement, que d'une décision politique optimisée en termes de Santé Publique.

2.1.3. Exposition naturelle et artificielle

Les radionucléides naturels sont d'origine cosmogénique tels que ^{14}C ou tellurique ^{40}K , ^{238}U et ^{226}Ra . Les sources de contamination par des radionucléides naturels ou artificiels peuvent avoir une origine accidentelle ou constituer l'héritage de pratiques anciennes d'utilisation de l'énergie nucléaire. De nombreux sites militaires ont été contaminés lors de la production d'armes atomiques notamment en URSS et aux Etats Unis, pays pionniers en la matière, puis lors des essais nucléaires auxquels la France, le Royaume Uni et la Chine ont pris part également. Le principal héritage de contamination sur des sites civils provient du radium et des radionucléides appartenant à la même filiation nucléaire dont la production industrielle s'est développée à partir de sa découverte au début du 20^e siècle pour les besoins médicaux ou la fabrication de peintures radio luminescentes.

Les accidents de réacteurs nucléaires, apportent de nombreux exemples de contamination de l'environnement. Peuvent s'y ajouter les rejets accidentels lors de manipulations ou le transport d'armes atomiques comme cela s'est produit à Palomares en Espagne en 1966 (Iranzo *et al.*, 1994), Thulé, au Groenland en 1968 (Lehto, 1994). L'exemple le plus récent est celui de l'abandon et la dispersion de la source d'un appareil de radiothérapie à Goiânia au Brésil (AIEA, 1989).

Aujourd'hui, les accidents de réacteurs nucléaires et la pollution résultant d'une guerre atomique ou d'un acte de terrorisme constituent la principale source potentielle de contamination non intentionnelle de l'environnement par des radionucléides artificiels (IAEA, 1989).

2.2. Les accidents nucléaires majeurs

L'expérience des accidents nucléaires passés constitue la base des réflexions et des recherches sur la préparation aux situations accidentelles; elle apporte une contribution essentielle à la mise en pratique des options de protection.

2.2.1. Accidents ayant eu un impact sur l'environnement

Les territoires contaminés, notamment dans l'ex URSS constituent un champ d'investigation de tout premier ordre pour l'étude du comportement des radionucléides en conditions naturelles. Un grand nombre d'exemples cités dans cet exposé sont issus directement d'études réalisées dans ces conditions. Il était donc nécessaire de les décrire brièvement.

2.2.1.1. Windscale (Royaume Uni) 1957

Le 10 octobre 1957, la pile n°1 de Windscale au Royaume Uni prenait feu. L'incendie du coeur de graphite a duré 18 heures et entraîné le rejet atmosphérique de produits de fission. L'iode-131 a causé le principal impact pour l'environnement. Des restrictions ont été imposées pour la consommation du lait. D'après les informations données par Chamberlain (1990), il est possible de calculer un dépôt maximal en césium-137 de 2200 Bq.m^{-2} . Cet accident a rejeté en outre 0,6 kg de plutonium (Métivier *et al.*, 1996)

2.2.1.2. Kyshtym (l'Oural) 1957

Le 29 octobre 1957, le défaut de refroidissement d'une cuve de stockage de déchets radioactifs liquides de haute activité provoquait l'évaporation de l'eau suivie de l'explosion du mélange de nitrates et d'acétates associés aux radionucléides (Trabalka et Auerbach, 1990). Le rejet total était de 740 PBq, et le rejet de $^{137}\text{Cs} + ^{90}\text{Sr} + ^{90}\text{Y}$ de 37 PBq, dont 10% seulement furent dispersés au delà du site même de l'explosion. Après la première année, l'activité des radionucléides à vie courte est devenue négligeable devant celles de $^{90}\text{Sr} + ^{90}\text{Y}$.

Les estimations du dépôt varient du simple au double selon que les auteurs se réfèrent au ^{90}Sr (Aarkrog *et al.*, 1993) ou au couple $^{90}\text{Sr} + ^{90}\text{Y}$ (Romanov *et al.*, 1991). La zone de dépôt $> 7,4 \text{ GBq.km}^{-2}$ où les populations ont été évacuées mesure $105 \times 9 \text{ km}$.

Cet accident survenu quelques jours après celui de Windscale a permis aux scientifiques de l'ex URSS la réalisation d'un grand nombre d'études radioécologiques dont une partie a fait l'objet de publications internationales en anglais à la fin des années 80. Ce site a permis l'étude des conséquences à long terme de la contamination d'écosystèmes publiées notamment par Tikhomirov (Tikhomirov *et al.*, 1990).

Les conséquences sanitaires de l'accident pour cette région de l'Oural s'ajoutent à celles de la contamination radioactive volontaire de la rivière Tetcha et du lac Karachay qui ont reçu directement

les rejets radioactifs liquides du complexe nucléaire de Mayak avant que n'apparaisse la nécessité de limiter ces rejets afin de protéger les populations vivant sur ses rives.

La rivière Tetcha a reçu directement les rejets de tous les déchets nucléaires produits par le complexe de Mayak, soit environ 2,1 EBq (57 millions de curies) (Nilsen et Haug, 1994). Les crues de la rivière ont entraîné la contamination des rives jusqu'à 50 km en aval, soit plus de 80 km². Environ 80 000 personnes ont été concernées par cette pollution.

Lorsque les rejets dans la Tetcha ont diminué, à partir de 1951, le lac Karachay a reçu le rejet des déchets de Mayak. La quantité rejetée dans ce lac est estimée à 4,4 EBq (120 millions de curies). Les craintes concernant cette contamination portent sur les fuites de radioactivité vers les nappes souterraines et vers la Tetcha, de là vers le bassin de l'Ob et les mers de Kara et Barentz. Déjà en 1967, les conditions climatiques avaient provoqué l'assèchement du lac Karachay. Des poussières radioactives avaient été aspirées par le vent et avaient contaminé une zone de 25000 km². Pour éviter que ce problème ne se reproduise, le lac Karachay est entrain d'être comblé par des blocs de béton puis recouvert de terre et de pierres.

2.2.1.3. Palomares (Espagne) 1966

Le 16 janvier 1966, deux avions de "l'US air force" se télescopaient, lors d'une opération de ravitaillement en vol, au dessus du village de Palomares dans le sud de l'Espagne. Trois des 4 bombes atomiques qui armaient le bombardier tombaient à terre, l'autre en mer. Sur les 3 bombes tombées à terre, deux perdirent leur parachute et répandirent leur contenu de matière fissile lors de l'impact avec le sol. Une superficie de 226 ha de terres agricoles et de zones incultes fut contaminée par du plutonium. Un dépôt pouvant atteindre 3.10⁶ Bq.m⁻² a pu être ramené à 10⁴ Bq.m⁻² grâce à des opérations de réhabilitation des sols (Iranzo *et al.*, 1994).

2.2.1.4. Tchernobyl (Ukraine) 1986

Le 26 avril 1986, 1850 PBq, soit 3-4% de l'inventaire du coeur du réacteur N°4 de la centrale de Tchernobyl en Ukraine, se répandaient dans l'environnement suite à une explosion suivie d'un incendie.

La taille des territoires contaminés à plus de 0,55 MBq.m⁻², c'est-à-dire où la mise en oeuvre de contre-mesures agricoles est indispensable, est de 4210 km² pour la Biélorussie, 2130 km² pour la Russie, et 820 km² pour l'Ukraine (Aarkrog *et al.*, 1993).

L'accident de Tchernobyl se caractérise par l'étendue des territoires contaminés qui concerne une extrême diversité d'écosystèmes et de cas d'études différents. L'une de ses particularités est la forme physique et chimique du rejet caractérisé notamment par la présence de particules chaudes (voir chapitre 2.3.2) et par la contamination en césium-137.

La zone d'exclusion de 10 km de rayon autour du réacteur accidenté présente des niveaux de contamination élevés par les principaux produits de fission à vie longue représentatifs du terme source d'un réacteur nucléaire. Ces niveaux permettent une détection aisée des radionucléides dans les échantillons de l'environnement vers lesquels les flux de radionucléides sont extrêmement faibles ce qui facilite les investigations.

L'accident de Tchernobyl a entraîné un rejet de ^{137}Cs estimé équivalent à 6% des activités rejetées par les essais d'armes atomiques. Pour ^{131}I et ^{90}Sr , le rejet de Tchernobyl ne représente plus que 0,1% de celui des armes (Gudiksen *et al.*, 1989).

2.2.2. Accident sans impact notable sur l'environnement

2.2.2.1. Three Mile Island (TMI) (Etats Unis) 1979.

Il n'existe qu'un seul exemple d'accident majeur de réacteur, dont les conséquences auraient pu être très graves pour l'environnement et la santé de populations, mais qui en raison de la qualité de la conception du réacteur à eau pressurisée, n'a pas eu les conséquences redoutées. Cet accident est survenu sur le réacteur n°2 de la centrale nucléaire située sur la commune de Middletown en Pennsylvanie, sur la rivière Susquehanna. Une fraction importante du cœur du réacteur a fondu, environ 30%, et l'eau du circuit primaire a transporté une certaine quantité de radioactivité dont une partie s'est échappée de l'enceinte du réacteur, car celle-ci n'a été isolée que 4 heures après le début de l'accident. Il s'agit essentiellement de produits radioactifs gazeux qui sont passés dans les bâtiments auxiliaires voisins, repris par les ventilations et finalement rejetés dans l'atmosphère environnante. Ils n'ont eu aucun effet significatif sur l'environnement. (Bourgeois *et al.*, 1995)

2.2.3. La préparation aux situations accidentelles

Dans le concept général de la sûreté nucléaire, la prise en compte des accidents repose en premier lieu sur la sûreté des installations. A cet égard, l'accident de TMI s'est traduit par des investissements supplémentaires en vue d'améliorer la maintenance et la sécurité des installations existantes ou en construction. Le but de ces améliorations est d'une part, d'abaisser la probabilité d'un accident nucléaire, et d'autre part de réduire le terme source, c'est-à-dire la quantité de radionucléides rejetés dans l'environnement, si toutefois un accident devait se produire.

C'est dans cette dernière hypothèse que sont envisagés des plans de gestion des situations accidentelles. Ces plans prévoient des séquences d'intervention élaborées sur la base des connaissances scientifiques du comportement des radionucléides dans l'environnement et de leur impact sur la santé.

Le concept de dose, permettant d'évaluer l'effet sanitaire de l'exposition aux rayonnements est utilisé pour établir les différents niveaux d'intervention. Ces niveaux peuvent être traduits en terme d'activité massique ou volumique des aliments et des produits commercialisables ou en terme de contamination surfacique des sols.

Les modèles radioécologiques permettent de prévoir, en fonction des données de contamination surfacique et de quelques paramètres écologiques, la contamination des productions agricoles. Grâce à ces modèles, il est possible de choisir les options d'intervention sans recourir systématiquement à la mesure directe d'un grand nombre d'échantillons qui demande du temps et des moyens.

Les niveaux d'intervention étant établis et les niveaux correspondants de contamination des productions agricoles étant connus, soit par le calcul, soit par la mesure, il est alors possible de choisir les actions dans la panoplie des moyens disponibles dans les plans d'intervention. Les conditions d'utilisation et les limites des moyens d'intervention font partie des données nécessaires à l'élaboration de ces plans.

Si des plans de gestions des situations accidentelles existaient déjà en URSS (Ilin, 1991) et en Europe de l'Ouest, avant l'accident de Tchernobyl, cet accident a contribué à en démontrer l'importance et la nécessité, mais aussi les imperfections. Il a permis également de valider ou d'invalidier les modèles prévisionnels.

Par exemple, les modèles de calcul de dose utilisés à Tchernobyl se sont avérés trop conservateurs et ont conduit à surévaluer d'un facteur 2 à 3 l'exposition des populations. Ceci a contribué à accroître inutilement l'anxiété des personnes concernées et à créer le doute sur la validité des données plus réalistes (Schneider et Lochard, 1992).

D'une manière plus générale, l'accident de Tchernobyl a mis en lumière certaines contradictions entre les concepts scientifiques et leur application sur le terrain.

2.3. Le terme source d'un accident nucléaire

Les radionucléides produits dans un réacteur nucléaire appartiennent à deux catégories : les produits de fission de masse comprise entre 80 et 160 et les produits d'activation résultant de la capture d'un neutron. Les transuraniens tels que les Pu-238 à 242 appartiennent à cette dernière catégorie (IAEA, 1974).

La production permanente de radionucléides lors du fonctionnement du réacteur entretient un équilibre avec la disparition des radionucléides à vie courte tandis que les radionucléides à vie longue s'accumulent dans le réacteur. La radioactivité de ces derniers s'accroît avec la durée d'utilisation de la matière fissile. Leur importance radiologique découle de leur longue période radioactive ou de leur abondance dans le terme source.

Si l'accident se produit sur une installation de stockage de produits de fission comme ce fut le cas à Kyshtym, certains radionucléides à vie courte peuvent avoir disparu, d'autres, comme les isotopes radioactifs du césium, peuvent être éliminés par les procédés chimiques de séparation du combustible réutilisable comme le plutonium, qui n'est présent qu'à l'état de traces dans le terme source de l'accident de Kyshtym.

2.3.1. Les produits de condensation

Une partie des produits de fission composant le terme source d'un réacteur nucléaire a une température d'ébullition bien inférieure à celle atteinte lors de la fusion du cœur. C'est le cas du césium et de l'iode dont les vapeurs condensent pour former des particules de diamètre médian voisin de 0,1 μm . Ces résultats ont été obtenus en Allemagne dans le cadre du programme SASCHA qui consistait à chauffer à environ 2000°C un échantillon de combustible irradié (Albrecht, 1987a; Albrecht, 1987b).

Dans des conditions expérimentales assez différentes, les résultats obtenus par l'IPSN dans le cadre du programme RESSAC indiquent un diamètre médian de 1 μm (Rongier, 1989). Le transport atmosphérique des particules de si petite taille est très efficace. Cela explique l'abondance majoritaire du césium dans les dépôts affectant les zones éloignées du site de Tchernobyl. Les formes chimiques du césium et de l'iode sont principalement CsI, CsOH et Cs_2CO_3 . Les résultats de l'IPSN s'accordent sur ce point avec ceux du programme SASCHA. Ces trois formes du césium : l'iodure, l'hydroxyde et le carbonate de césium sont solubles dans l'eau, comme le vérifient les résultats du programme RESSAC (Rapport, 1991).

2.3.2. Les particules chaudes

Elles sont constituées de fragments de matériaux comportant des radionucléides qui leur confèrent une très haute activité spécifique. Parmi les premières particules chaudes décrites dans la littérature se trouvent celles observées dans les retombées des essais d'armes atomiques, notamment dans le désert du Nevada aux Etats Unis. Elles étaient constituées de fines billes de métal fondu provenant de la tour métallique supportant la bombe ainsi que des structures de la bombe elle-même, et de silice fondue provenant du sol. Des particules chaudes formées de combustible enrichi ont été retrouvées après la

chute du satellite à énergie nucléaire Cosmos 954, dans le nord du Canada, en 1978 (Sandalls *et al.*, 1993).

Les particules chaudes de Tchernobyl comportent des formes issues de la condensation des vapeurs métalliques des produits de fission et des structures du réacteur. Mais l'une des formes prédominantes en terme de rejet est constituée de fragments de combustible, pouvant être partiellement fondu et appauvri en produits de fission volatils tels que le césium.

En raison de leur grande taille relative, les particules chaudes se sont déposées essentiellement dans la zone des 10-30 km autour du réacteur où elles constituent 50% du dépôt (Lostchilov *et al.*, 1991). Il a été observé jusqu'à 10^5 particules par m^2 dans la zone de restriction des 30 km (Sandalls *et al.*, 1993). Les particules chaudes à base de combustible d'uranium sont insolubles dans l'eau et dans les solvants à pH neutre, mais se délitent avec le temps et libèrent sous forme soluble les radionucléides qu'elles contiennent.

2.3.3. Les radionucléides significatifs en terme d'exposition des populations

2.3.3.1. Inventaire

Le terme source d'un accident nucléaire comprend une vingtaine de radionucléides de demi-vies variables. Trois d'entre eux sont classés pour leur importance radiologique : ^{137}Cs , ^{131}I , ^{90}Sr et à un moindre niveau d'importance : ^{134}Cs , ^{106}Ru (Rapport, 1986; IAEA, 1989).

Des modèles permettent de prévoir le rejet en cas d'accident aboutissant à la rupture de l'enceinte d'un réacteur à eau pressurisée (REP) par exemple, de 1300 MW. Pour un tel scénario hypothétique, le rejet serait de 100% de l'inventaire du coeur du réacteur en iode, césium, tellure et respectivement de 0,2 et 0,02% pour les strontium et plutonium (Albrecht, 1987a; Albrecht, 1987b; Neeb, 1990).

Pour un scénario équivalent mais un réacteur différent, le rejet lors de l'accident de Tchernobyl a été évalué à 20% de césium, iode et tellure et 2-6% de strontium, baryum, plutonium (IAEA, 1991). L'importance du rejet de ces derniers éléments s'explique par l'entraînement mécanique de fragments de combustible par la combustion du graphite composant le réacteur de Tchernobyl. L'explosion qui a précédé l'incendie a entraîné la dispersion partielle du combustible dont une fraction importante n'a pas fondu. Cela explique que seulement 20% du césium présent dans le réacteur ait été émis dans l'environnement par rapport aux prévisions des modèles. Le césium, l'iode et le tellure sont donc les principaux éléments rejetés.

L'iode-131 est transféré rapidement dans le lait et s'accumule dans la glande thyroïde. Sa courte période radioactive en fait un radionucléide ne nécessitant pas l'application de contre-mesures agricoles au-delà de 2 mois après le rejet accidentel.

Parmi les radionucléides abondants dans le terme source, seul le césium possède un radionucléide à vie longue : le césium 137 ($T_{1/2} = 30$ ans) qui reste donc le principal radionucléide susceptible d'entrer durablement dans un cycle biogéochimique.

Cependant, les accidents nucléaires passés ont montré, qu'en dépit des prévisions, le strontium pouvait avoir un impact non négligeable sur l'environnement et la santé des hommes (Romanov *et al.*, 1990).

Plusieurs raisons l'expliquent:

- bien qu'il soit moins volatile que le césium et donc émis en quantité moins importante en cas d'accident sur un réacteur nucléaire, le strontium est un produit de fission à vie longue aussi abondant que le césium dans l'inventaire du coeur du réacteur.
- il est difficile de prédire avec une certitude absolue le scénario d'un accident et donc de postuler sur l'improbabilité d'un rejet de strontium,
- le strontium a un flux biogéochimique 10 à 20 fois plus important que celui du césium (Coughtrey et Thorne, 1983b).

De plus, la difficulté de mesurer le strontium-90 est un facteur aggravant son impact sanitaire. Il s'agit en effet d'un émetteur β^- pur dont la détection nécessite une séparation radiochimique des autres émetteurs (Tormos *et al.*, 1995). Par conséquent, ce radionucléide fait l'objet de contrôles moins systématiques que le césium-137 émetteur γ facile à détecter. Le strontium-90 peut de ce fait nuire insidieusement ce qui justifie d'autant plus de connaître parfaitement ses flux biogéochimiques.

Le césium-137 et le strontium-90 sont donc les deux principaux radionucléides à prendre en compte dans l'étude des flux biogéochimiques des radionucléides en cas d'accident nucléaire. Par conséquent, la suite de ce travail se limitera à ces deux radionucléides.

2.3.3.2. Emissions radioactives

Le césium-137, émetteur β^- , se désintègre pour former essentiellement du baryum-137 métastable de demie vie $\cong 2,5$ mn, dont la désintégration produit du ^{137}Ba stable en émettant un photon de 661 keV (Lagoutine, *et al.*, 1975). Par abus de langage, le ^{137}Cs est considéré comme un émetteur γ .

Cette propriété de transition γ de son descendant confère au césium son importance dosimétrique par irradiation externe, et explique son omniprésence parmi les radionucléides détectés dans l'environnement par spectrométrie γ . Il ne faut pas pour autant négliger son émission β^- à 511 keV qui intervient essentiellement au niveau de la dose par irradiation interne, mais aussi dans la difficulté de mesurer les émetteurs β^- en mélange avec le césium, tels que ^{90}Sr .

Le strontium-90 se désintègre par l'émission β^- à 546 keV vers le niveau fondamental de l'yttrium-90, de demi vie $\cong 64$ h, qui se désintègre à son tour essentiellement par une émission β^- à 2284 keV.

Ce couple de radionucléides n'émet pas de rayonnement γ réellement exploitable pour la détection. Le comptage se fait après séparation chimique des autres émetteurs β^- tels que le césium, ce qui limite le nombre de mesures et, par voie de conséquence, le nombre d'études consacrées au strontium. Conscients de cette limite et de l'enjeu que représente la détection du strontium en cas d'accident nucléaire et pour les études de sites contaminés, nous avons développé (Tormos *et al.*, 1995) une méthode rapide de mesure du strontium-90 qui intègre les principaux développements actuels en radiochimie et en scintillation liquide.

Tableau 2.2 : Rejets des accidents nucléaires passés et hypothèses pour les réacteurs à eau pressurisée (REP)

Accident	^{137}Cs (TBq)
Windscale (1957)	22
Kyshtym (1957)	20♣
Tchernobyl (1986)	$3,80 \times 10^4$
Scénario hypothétique S3/10 (Femandjian et al., 1983)	$1,05 \times 10^2$
♣ Rejet majoritaire de ^{90}Sr , cette activité correspond approximativement au rapport $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs} = 150$ estimé par la plupart des auteurs cités dans (Romanov <i>et al.</i> , 1991). Rapport Cs/Pu = 50 à Tchernobyl à proximité du site et 5000 dans la région de Briansk, située à 200 km de Tchernobyl.	

2.3.4. Demi-vie radioécologique

La demi-vie radioécologique est le temps au bout duquel la moitié de l'activité d'un radionucléide n'entre plus dans le flux aboutissant à la voie d'exposition considérée. La raison de cette "disparition" est liée à la demi-vie physique et à la migration hors du compartiment considéré sous l'action des différents vecteurs : eau, air, exportations par les consommateurs primaires ou les pratiques agricoles. Les quelques exemples donnés au tableau 3 illustrent la variabilité de ce paramètre.

Tableau 2.3 : quelques exemples de demi-vies radioécologiques

Système biologique ou écosystème	$T_{1/2}$ effective	Référence
Dépôt sur les arbres, terme source Tchernobyl, printemps pluvieux	2 semaines	(Tikhomirov et Shcheglov, 1990)
Dépôt sur les arbres, terme source Kyshtym, automne sec	6 semaines	(Tikhomirov et Shcheglov, 1990)
^{90}Sr 5 premiers cm de sol	9 ans	(Kulikov, Molchanova, et Kravayeva, 1990)
^{90}Sr Chernozem lessivé, 0-2 cm	5 ans	(Romanov <i>et al.</i> , 1990)
^{90}Sr Chernozem lessivé, 0-5 cm	19 ans	(Romanov <i>et al.</i> , 1990)
^{90}Sr podzol, 0-2 cm	2 ans	(Romanov <i>et al.</i> , 1990)
^{90}Sr podzol, 0-5 cm	2 ans	(Romanov <i>et al.</i> , 1990)
^{90}Sr Cours d'eau	120-190 j	(Romanov <i>et al.</i> , 1990)
^{90}Sr Lacs, terme source Kyshtym	5-6 ans	(Romanov <i>et al.</i> , 1990)
^{137}Cs , environnement	14 ans	(IAEA, 1991)
^{90}Sr , environnement	10 ans	(IAEA, 1991)

2.4. Conséquences radiologiques

Elles résultent de l'irradiation externe et de l'irradiation interne consécutive à l'ingestion ou l'inhalation de radionucléides. L'inhalation joue un rôle prépondérant dans les mois qui suivent le dépôt pour devenir négligeable au bout d'un an ou deux (Jacob, 1994).

2.4.1. L'irradiation externe

L'irradiation externe provient des radionucléides présents dans les matériaux qui entourent la cible du rayonnement. Dans le cas d'un accident nucléaire, elle peut résulter de l'immersion des organismes dans le panache d'aérosols radioactifs, les dépôts sur les surfaces environnantes, dont notamment le sol, et sur l'organisme lui-même. Le dépôt sur les organismes peut entraîner une irradiation externe très importante du tissu épidermique, voire des tissus sous-jacents par les particules β . En dehors de ce cas, seuls les rayonnements γ ou les neutrons sont suffisamment pénétrants pour provoquer l'irradiation des tissus profonds. Par exemple, le dépôt de radionucléides sur les feuilles de pin sylvestre de la "Forêt Rousse" à Tchernobyl a entraîné la mort des tissus végétaux par irradiation externe.

Le dépôt sur le sol et les surfaces verticales des habitations sont les principales sources d'irradiation externe. L'irradiation décroît lorsque les radionucléides pénètrent dans le sol car la couche pénétrée s'oppose au passage du rayonnement vers la surface du sol. (Figure 2.1)

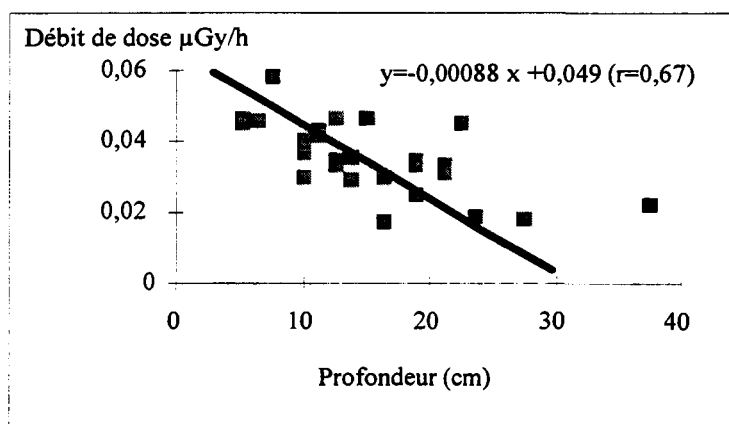


Figure 2.1: débit de dose absorbée à 1 m du sol pour un dépôt de ^{137}Cs égal à 1 Ci.km^{-2} et profondeur de pénétration du césium dans le sol à Halch, Biélorussie, 1994, mesures effectuées dans le cadre du programme ECP/4.

2.4.2. L'irradiation interne

2.4.2.1. Par ingestion

L'ingestion de radionucléides peut contribuer de manière importante à la dose d'irradiation reçue après un dépôt. Plusieurs facteurs influencent l'importance de l'ingestion. Ils se répartissent en 5 catégories : la nature du dépôt, et les caractéristiques de l'écosystème définies par les facteurs de transferts, les contre-mesures, les systèmes de production alimentaire et les habitudes alimentaires.

Les contre-mesures seront adaptées en fonction de l'importance relative de ces facteurs qu'il est donc nécessaire d'étudier. Par exemple, les études réalisées à Tchernobyl ont montré que la nourriture produite dans une ferme privée était de 3 à 10 fois plus contaminée que celle produite dans une ferme collective (Report, 1994). Le système de production a donc une influence sur la contamination des aliments soit parce que les contre-mesures élémentaires ne sont pas appliquées dans les fermes privées, soit parce que la productivité de la terre, beaucoup plus élevée que dans les fermes collectives, se traduit par une exportation plus importante de sels minéraux que suivent les radionucléides.

La nourriture issue des écosystèmes naturels, comme les champignons ou la pâture des vaches privées dans les herbages forestiers et les rives de cours d'eau, contribue fortement à la dose par ingestion.

Pour les populations non mycophages, 70-80% de l'ingestion de ^{137}Cs provient du lait et de la viande, alors qu'elle n'est que de 20-30% pour les populations mycophages. L'ingestion de césium par les populations mycophages est pour 60-80 % imputable aux champignons (Figure 2.2).

La chaîne alimentaire aquatique est considérée comme une source mineure d'exposition de l'homme aux rejets atmosphériques radioactifs en raison de l'adsorption des radionucléides sur les sédiments et les matières en suspension qui a pour effet de retarder et atténuer la bio-concentration ou l'incorporation directe par les poissons comestibles. Cependant, cette tendance générale ne se vérifie pas dans les milieux oligotrophes où la bio-concentration des radionucléides est accrue (Report, 1994).

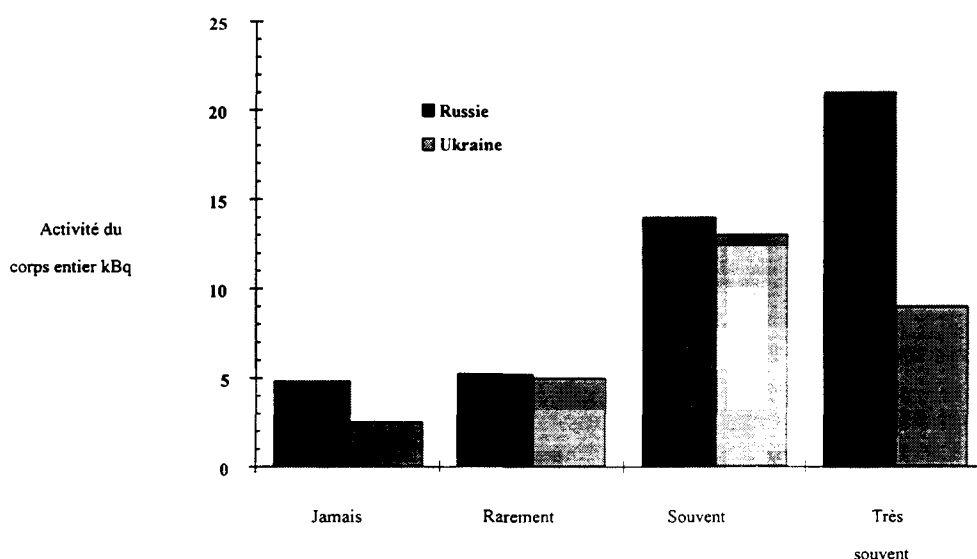


Figure 2.2 : ^{137}Cs mesuré par antropogammamétrie chez les personnes vivant dans les zones contaminées en Russie et en Ukraine et fréquence de consommation des champignons. D'après Strand, (1994)

2.4.2.2. Par inhalation

L'exposition aux rayonnements par inhalation est l'une des voies d'atteinte les plus insidieuses en cas d'accident nucléaire, car s'il est possible d'imposer des restrictions à l'ingestion de nourriture contaminée ou au séjour sur les zones où l'irradiation externe est trop importante, la ventilation

pulmonaire, et donc l'inhalation, ne peuvent faire l'objet de restrictions. Il est par ailleurs difficile de contrôler de façon très efficace la pureté de l'air que l'on respire. Alors que la dose par ingestion de certains radionucléides comme le plutonium est généralement assez faible en raison d'un facteur de transfert gastrointestinal très faible, l'inhalation représente le risque principal d'exposition pour ce radionucléide.

Les facteurs de dose dépendants de l'âge peuvent prendre des valeurs très différentes selon le radionucléide associé au terme source d'un accident nucléaire.

Tableau 2.4 : exemple de facteurs de dose au poumon par inhalation de radionucléides sous forme d'aérosols d'un diamètre médian de $1\mu\text{m}$ et de forme chimique à assimilation rapide, chez l'Homme adulte. D'après (CIPR, 1996).

Radionucléide	Facteur de dose dépendant de l'âge (Sv.Bq^{-1})
^{90}Sr	$6,2 \times 10^{-10}$
^{137}Cs	$4,3 \times 10^{-9}$
^{240}Pu	7×10^{-6}

2.4.2.3. La remise en suspension

La remise en suspension est le phénomène inverse de la sédimentation et du dépôt de la contamination atmosphérique, sous l'action du vent ou d'actions technogéniques telles que, par exemple, le labour ou la circulation de véhicules. La remise en suspension est due à toute particule dispersable dans l'atmosphère. Mais lorsque le dépôt a subi une dissolution par a pluie il devient tributaire des matériaux auxquels il s'est associé, comme par exemple les particules de sol ou de végétaux contaminés, à l'exception des particules chaudes insolubles qui peuvent subir isolément la remise en suspension. Le facteur de remise en suspension (K), exprimé en m^{-1} , est défini comme le rapport entre l'activité surfacique du sol et l'activité volumique de l'air mesurée à une hauteur de référence. (Iranzo *et al.*, 1994). Les principales mesures à Tchernobyl ont été effectuées à 1 m de hauteur, et l'activité du sol mesurée sur une épaisseur de 5 cm (Garger, 1994).

Le facteur de remise en suspension est fonction d'un grand nombre de paramètres dont les plus importants sont la taille des particules, la nature de la surface émettrice représentée notamment par le type de sol et son humidité, la vitesse du vent, la distance entre le point d'émission et le point de mesure.

La plupart des travaux sur la remise en suspension se réfèrent aux deux situations distinctes que sont les flux de radionucléides du sol vers l'atmosphère en conditions naturelles et ceux survenant en situation dite technogénique de production d'aérosols, c'est-à-dire lors du travail du sol à l'aide d'engins agricoles.

Un exemple de conditions naturelles particulières est représenté par l'accident de Palomares en Espagne où sévit un climat méditerranéen propice à la remise en suspension. Les données obtenues ont montré que K est compris entre 10^{-7} et 10^{-9} m^{-1} et décroît avec le temps avec une constante de décroissance exponentielle de - 0,00976 (Iranzo *et al.*, 1994).

Ces résultats sont cependant en bon accord avec ceux obtenus à Tchernobyl avec un climat différent où des mesures de remise en suspension ont été faites en 1986 (Garger, 1994) et en 1993 (Jacob, 1994) en un même lieu : Zapolie, village voisin de la ville de Tchernobyl. Les constantes de décroissance exponentielle calculées à partir des observations de ces deux auteurs relatives à ^{137}Cs sont de - 0,00966 pour un vent de $1,3 \text{ m.s}^{-1}$ et de pour un vent de 4 m.s^{-1} .

La comparaison de ces données n'est possible qu'en admettant l'analogie de comportement des poussières marquées par des radionucléides différents. Peu de données contredisent cette hypothèse pour des radionucléides au comportement très différent quant à la migration dans le sol (Garger, 1994). Le césium à Tchernobyl et le plutonium à Palomares n'entrent pas dans cette catégorie. La comparaison des données concernant ces deux accidents est donc valide.

Pour évaluer grossièrement la contribution de la remise en suspension en conditions naturelles sur la capacité d'un écosystème à s'auto-décontaminer, il est possible de calculer grossièrement le flux annuel de radionucléides vers l'atmosphère. Pour le césium, une valeur de K égale à $3 \cdot 10^{-10} \text{ m}^{-1}$ et un vent soufflant à $1,3 \text{ m s}^{-1}$ 75 jours par an, le calcul montre que l'auto-épuration du sol vers l'atmosphère représente 10% de la décroissance radioactive, soit au total une perte d'environ 0,25% par an (Garger, 1994).

En comparaison de la décroissance radioactive, la remise en suspension n'a donc pas une importance majeure pour l'auto épuration des terrains contaminés. Par contre, elle peut avoir des conséquences plus sensibles lors du transport des radionucléides par le vent et le dépôt sur des zones non contaminées. Les études conduites par une équipe suédoise, simultanément à Tchernobyl et en Suède, ont montré une coïncidence entre la contamination atmosphérique en Suède et dans les zones fortement contaminées de Tchernobyl lors des actions technogéniques. Les prélèvements suédois effectués en fonction de la direction des vents renforcent l'hypothèse selon laquelle la zone de Tchernobyl serait la source de la contamination (Jacob, 1994).

Les facteurs de remise en suspension technogéniques sont beaucoup plus élevés que ceux observés en conditions naturelles. Les mesures faites en 1993 à Zapolie montrent que K est respectivement égal à $3,5 \cdot 10^{-4}$, $1,3 \cdot 10^{-3}$ et $8,3 \cdot 10^{-3}$ pour le hersage avec un tracteur léger, un tracteur lourd, et à l'arrière d'un tracteur traînant une remorque. Cependant, la contamination atmosphérique diminue rapidement avec la distance selon une fonction exponentielle affectée d'un exposant d'environ -1,8 à -0,5 pour, respectivement, une distance longue et une distance courte (70-100 m). A une distance de 50-140 m, la contamination des plantes par le dépôt de poussière dépasse cependant la contamination absorbée par les racines. Le calcul de l'activité en ^{137}Cs déposée dans les zones éloignées de la source à la suite d'actions technogéniques donne une activité de $0,2 \text{ Bq m}^{-2}.\text{J}^{-1}$, pour une contamination atmosphérique au point d'émission de $0,76 \text{ Bq.m}^{-3}$, une vitesse de dépôt de $0,04 \text{ m.s}^{-1}$ et un facteur 5000 pour l'appauvrissement du panache à longue distance (Jacob, 1994).

L'impact dosimétrique de la remise en suspension a été calculé en appliquant un modèle simplifié et en admettant que les particules inhalées sont insolubles. Cette hypothèse paraît réaliste pour l'inhalation de particules chaudes, ou de particules de sol qui sont connues pour retenir les radionucléides fortement fixés. Les doses au poumon pour le conducteur de tracteur à l'intérieur d'une cabine seraient de 0,05 et $0,5 \text{ nSv h}^{-1}$, respectivement, pour ^{137}Cs et les actinides. Pour un travail de 10 h par jour pendant les 4 mois que dure la saison des labours, la dose serait respectivement de 40 et 400 nSv an^{-1} . Cette contribution à la dose totale est négligeable par rapport à l'irradiation externe supérieure à 1 mSv an^{-1} dans cette zone (Jacob, 1994).

Une étude spécifique de la contamination atmosphérique dans la cabine d'un tracteur a montré que, pour l'année 1988 et des particules d'un diamètre médian de $1 \mu\text{m}$ contenant 28 radionucléides

d'activités proportionnelles à une concentration atmosphérique en césium de 770 mBq m^{-3} , la dose par inhalation serait de 1 mSv (Kashparov *et al.*, 1994).

Les quelques exemples ci-dessus montrent que la remise en suspension est une voie d'atteinte très importante dans la période qui suit l'accident, mais qu'elle devient négligeable au bout de quelques années. Cependant, la remise en suspension peut présenter un risque d'exposition important si la source est très contaminée, comme ce fut le cas sur les berges du lac Karachay (§ 2212).

2.4.3. Les facteurs de dose

Pour chacune des voies d'atteinte : l'ingestion, l'irradiation externe ou l'inhalation, les facteurs de dose permettent de calculer les équivalents de dose engagés sur 50 ou 70 ans selon que le calcul concerne l'adulte ou l'enfant (Quinault, 1989). De plus, les récentes recommandations de la CIPR préconisent l'emploi de facteurs de dose dépendants de l'âge (CIPR, 1995).

Dans la phase dite de réhabilitation telle que définie au chapitre 2.5, le césium contribue principalement à la dose à travers les voies d'atteinte par ingestion et irradiation. Le strontium ne contribue qu'à la dose par ingestion.

2.4.4. Les radionucléides les plus importants

La contribution des divers radionucléides à la dose effective engagée jusqu'à 70 ans peut être déduite des évaluations de dose réalisées à la suite de l'accident de Tchernobyl par l'UNSCEAR (tableau 2.5), (United Nation Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, IAEA, 1991). Le césium-137 est le principal radionucléide à prendre en compte pour son effet sur la dose.

Tableau 2.5 : contribution relative des radionucléides à la dose engagée jusqu'à 70 ans pour le terme source de l'accident de Tchernobyl.

Radionucléide	Contribution à la dose en %	
	0-4 ans	4-70 ans
^{134}Cs	38-43	2-3
^{137}Cs	45-51	93-96
^{90}Sr	2-8	1-4
$^{106}\text{Ru} + ^{103}\text{Ru}$	5-6	négligeable

2.5. Contre-mesures agricoles et techniques de réhabilitation

2.5.1. Les phases d'un accident nucléaire

Les autorités internationales ont identifié 3 phases d'accident : la phase initiale qui inclut la période antérieure à l'accident, l'imminence du rejet ayant été reconnue, la phase intermédiaire consécutive au rejet durant laquelle des actions de protection du public sont à entreprendre, et la phase de réhabilitation lorsque un retour à des conditions normales peut être envisagé (IAEA, 1985).

En France, la gestion des situations de crise est déterminée par le plan ORSEC-Risque Technologique, dont une antenne spécifique aux accidents nucléaires : le plan ORSEC-RAD comprend 3 plans d'urgence : le plan d'urgence interne (PUI) qui s'applique sur le site, le plan particulier d'intervention (PPI) pour les interventions en dehors du site, et le plan d'action post accidentel (PPA) qui traite des mesures à prendre en vue de rétablir une vie normale dans la zone contaminée.

Schneider et Lochard (1992) proposent de dissocier en deux phases les PPA pour tenir compte de l'acceptabilité par le public des contraintes et des niveaux d'exposition supérieurs aux limites admises pour le fonctionnement normal des installations nucléaires. Il semblerait que la première phase durant laquelle les personnes concernées sont en mesure "d'accepter" ne soit pas extensible au delà de quelques semaines.

En raison de la décroissance radioactive, 3 mois après un accident nucléaire, l'activité déposée sur le sol n'est plus que d'environ 10% de l'activité initiale (Lehto, 1994). Hormis les interventions d'urgence, il ne semble pas nécessaire d'entreprendre d'opérations de décontamination avant le terme de cette période. Ce temps peut être utilement consacré à acquérir les données nécessaires au choix des interventions post accidentelles.

Dans la littérature (IAEA, 1991), le terme de contre-mesure est employé pour désigner les actions visant à réduire la contamination des productions agricoles destinées à l'alimentation. Cette nomenclature associe sous une même appellation des actions visant à enlever une partie du sol contaminé et des actions visant à modifier les flux de radionucléides, sans modifier la source. Pour la clarté de cet exposé, les modifications de flux de radionucléides seront appelées contre-mesures et les modifications de source : techniques de réhabilitation.

Par exemple, une action telle que le labour profond qui consiste à mettre hors de portée des racines la couche de sol contaminée sera considérée comme une modification de la source dans la mesure où cette technique de réhabilitation n'a pas d'action sur le flux. L'expression qui permet de quantifier le flux de radionucléides à l'équilibre entre le sol et la plante s'appelle le facteur de transfert sol-plante, défini comme le rapport entre l'activité massique de la plante et celle de la couche de sol accessible aux racines. Le labour profond va diminuer la contamination du sol et de la plante sans modifier le facteur de transfert. Il s'agit donc bien d'une technique de réhabilitation¹.

Bien que la combinaison des techniques de réhabilitation et des contre-mesures offre un éventail d'options assez large pour mettre en pratique le principe d'optimisation des interventions, les critères

¹La langue anglaise dans les publications scientifiques utilise les termes de "cleanup" ou de "restoration" pour désigner la réhabilitation, alors que le terme plus ambigu de "remediation" peut inclure les contre-mesures. L'utilisation du terme "countermeasure" s'est beaucoup développée en Europe après l'accident de Tchernobyl, alors que le terme de "cleanup" est très utilisé aux Etats Unis.

de choix relèvent dans la plupart des cas de considérations politiques et de la pression de l'opinion publique qui dépassent souvent la compétence des experts.

2.5.2. Les contre-mesures agricoles

La modification des flux de radionucléides peut intervenir au niveau : des productions végétales, des productions animales ou des transformations agro-alimentaires. Les principaux mécanismes d'action des contre-mesures sont: la dilution des radionucléides, l'échange d'ion, la formation de composés insolubles, la modification des conditions physiques et chimiques du milieu. Tous les mécanismes ne sont pas expliqués avec précision; beaucoup de contre-mesures sont mises en oeuvre sur la base d'observations empiriques. A ce titre, la prise en compte des pratiques locales peut aboutir à la modification des systèmes de production permettant une utilisation judicieuse des variations de flux.

Ainsi, par exemple à Tchernobyl, l'élevage laitier dans les structures collectives produit du lait moins contaminé que l'élevage privé. La vache "privée", assure la production domestique de lait pour les populations rurales. Elle va paître des herbages non cultivés situés en zones forestières, classées par la terminologie radioécologique dans les écosystèmes semi-naturels, où les flux de radionucléides sont naturellement plus élevés que dans les milieux artificiels tels que les prairies cultivées (Jouve, 1995).

2.5.3. La réhabilitation des sols.

La modification de la source peut s'avérer inévitable lorsque cette dernière présente un danger immédiat d'irradiation externe. Ce fut le cas notamment aux abords du réacteur accidenté de Tchernobyl où les sols ont dû être décapés (IAEA, 1987b).

Par exemple, le labour est une technique très efficace pour atténuer l'irradiation externe en interposant une couche de sol qui absorbe le rayonnement entre la couche enfouie de sol contaminé et la surface où repose la cible du rayonnement. Il a été largement utilisé à Tchernobyl car il fait appel à des outils existants tels que les charrues, de mise en oeuvre peu onéreuse (Lehto, 1994).

Par contre, les techniques de décapage des sols ont été peu utilisées car elles produisent en général de grosses quantités de déchets de sol contaminé. La description de techniques nouvelles en ce domaine fera l'objet d'un développement plus important dans la deuxième partie de cet exposé.

3. Expérimentations en laboratoire

Résumé

Lors d'un accident nucléaire, les radionucléides se déposent sur le sol et la végétation. Le dépôt sur le sol va évoluer en fonction du type de sol et constituer le point de départ d'un flux de polluant vers la production agricole. La contamination directe de la production agricole est la conséquence du dépôt sur la végétation qui est une voie prépondérante d'exposition des populations dans les premiers mois après l'accident. La voie racinaire devient ensuite prépondérante. La mobilité des radionucléides dans le sol va déterminer le transfert racinaire et ses conséquences pour la contamination de la chaîne alimentaire. Les méthodes d'évaluation de la disponibilité des radionucléides pour les plantes rendent compte de façon imparfaite des différentes interactions des radionucléides avec le sol. Les formulations existantes du transfert sol-plante ne permettent pas une utilisation optimisée de la notion de facteur de transfert. Le travail réalisé a donc consisté à mettre au point une méthode de mesure de la disponibilité des radionucléides dans le sol et à en proposer l'utilisation pratique dans une nouvelle formulation du facteur de transfert, basée sur l'analyse statistique d'observations expérimentales en laboratoire.

3.1. Bases radioécologiques : partie bibliographique

3.1.1. Le transfert dans les sols.

3.1.1.1. Les principales caractéristiques des sols et leur influence sur le transfert des radionucléides

Sans céder à la simplification abusive des nombreux facteurs qui caractérisent les sols, une première approche peut consister à les séparer en deux catégories : les sols "organiques" et les sols à faible teneur en matière organique. Plus difficile est le choix d'une frontière entre sol organique et minéral mais il semble qu'en ce qui concerne le comportement du césium et du strontium un changement significatif soit observable au delà de 5 à 10% de matière organique (Frissel et Koster, 1986).

Frissel propose une gamme de valeurs dites standards s'établissant entre 4 et 10% pour comparer les sols utilisés pour les études de transfert aux plantes. Les études du site contaminé de Tchernobyl ont confirmé que les sols de tourbière ont un comportement particulier. Ces sols sont peu pourvus en minéraux argileux et contiennent des acides humiques et fulviques issus de la dégradation de la matière organique qui neutralisent la charge des cations et s'opposent ainsi à leur sorption sur les minéraux argileux. Il en résulte une grande mobilité de Cs et Sr (Konoplev *et al.*, 1992).

La quantité et surtout la qualité des minéraux argileux jouent un rôle essentiel dans les interactions des radionucléides avec les sols. Les argiles sont porteuses de charges négatives équilibrées le plus souvent par les ions Na^+ , K^+ , Ca^{++} ou Mg^{++} . Le césium et le strontium sont sorbés sur les argiles essentiellement par un processus d'échange d'ions. Le strontium comme le calcium et le magnésium ne sont pas sorbés sélectivement : leur échange sur les minéraux peut être décrit par la loi d'action de masse (Sawhney, 1972).

Par contre, le césium comme le potassium et l'ammonium sont sorbés sélectivement : cette propriété est due à leur faible énergie d'hydratation. Ces cations peuvent en effet perdre tout ou partie de leurs molécules d'eau d'hydratation pour pénétrer entre les feuillets des argiles sur des sites situés en position externe. Ces sites appelés "Frayed Edge Sites" (FES) (Cremers *et al.*, 1988) subissent une déshydratation qui induit un resserrement sur l'ion déshydraté. Ce phénomène se produit sur les argiles gonflantes telles que la vermiculite ou la montmorillonite. L'équidistance de base de feuillets passe ainsi de 20 à 10,8 Å qui est l'espace idéal pour retenir fermement le césium dans la structure. Selon la charge du feuillet, l'espace se resserre à 12 Å induisant une sorption moins sélective comme dans le cas de la montmorillonite.

Un espace de 10 Å, propice à la fixation du césium existe sur l'illite, argile non gonflante, dominante dans beaucoup de sols (Cremers *et al.*, 1988). La sélectivité de l'échange de césium est d'autant plus marquée pour cette argile qu'elle a une faible capacité d'échange cationique. La très grande affinité du césium pour l'illite a été interprétée comme une fixation irréversible. Il semblerait cependant qu'il s'agisse d'un équilibre d'échange d'ion, thermodynamiquement réversible (Cornell, 1993).

Certains auteurs ont montré que la quantité de césium extractible du sol dépend de la méthodologie utilisée pour la mesurer. La méthode dite "Infinite bath" (Valcke et Cremers, 1992) qui consiste à échanger le césium en milieu NH_4^+ en présence d'hexacyanoferrate de potassium permet d'extraire

du sol la fraction de césium considérée comme fixée par les autres méthodes (Krivokhatskii *et al.*, 1994). Le cyanoferrate de potassium ou bleu de Prusse est un adsorbant sélectif du césium.

Lorsqu'un excès de bleu de Prusse est introduit dans le milieu d'extraction, il épuise en césium la phase liquide, comme si cette dernière était renouvelée en permanence. Les conditions ainsi établies se rapprochent des conditions naturelles en ce qui concerne les limites de flux du césium. Elles s'en éloignent, notamment, quant à la force ionique du milieu.

De récentes investigations sur les sols de Tchernobyl (Rauret, 1994) ont montré qu'il est possible d'extraire environ deux fois plus de césium avec la méthode dite "infinite bath" que la quantité représentée par la somme des fractions hydrosolubles et échangeables déterminées par les méthodes classiques (tableau 3.1).

Tableau 3.1 : pourcentages de ^{137}Cs extrait du sol par différentes méthodes.

Lieu de prélèvement	Type de sol	Distance du point de rejet	"infinite bath"	Hydrosoluble + échangeable	Acide chlorhydrique 6N	Résidu après acide nitrique 8N + H_2O_2
Chistogalovka	Podzol	5 km N-ouest	77	42 (3)	80 (28)	2 (15)
Poleskoe	Podzol	60 km ouest	60 (20)	47 (9)	85 (60)	1 (10)
Bragin	Tourbe	150 km N-est	62 (6)	27 (<1)	55 (10)	0 (10)
Vetka	Podzol	150 km N-est	86 (32)	55 (18)	90 (78)	0 (5)
Novozybkov	Podzol	200 km N-est	85 (37)	53 (19)	90 (78)	0 (5)
Komsomoletz	Tourbe	200 km N-est	78 (12)	42 (1)	65 (8)	0 (20)

Les valeurs entre parenthèses représentent ^{137}Cs provenant de l'accident de Tchernobyl, et à l'extérieur des parenthèses ^{137}Cs ajouté sous forme soluble. Les temps de résidence du césium dans le sol sont respectivement de 6 ans et 4 jours pour les valeurs entre parenthèse et les valeurs à l'extérieur des parenthèses. D'après les données extraites de (Rauret, 1994).

Ces investigations montrent en outre que le césium de Tchernobyl est environ trois fois moins mobile que le césium ajouté. Cela est dû à la rétrogradation du césium dans les feuillets des argiles, notamment dans les sols prélevés à 150 et 200 km du point de rejet qui ont reçu un dépôt constitué essentiellement de formes solubles. Dans ces sols, la présence de particules chaudes ne peut pas être tenue pour responsable de la séquestration du césium.

Cependant, la rétrogradation n'est sans doute pas le seul phénomène impliqué dans la fixation du césium, car la différence entre le césium de Tchernobyl et celui ajouté sous forme soluble est encore plus importante dans la tourbe. En effet, si la fixation intervient seulement sur la fraction minérale, il est assez paradoxal que dans les sols organiques, la teneur en césium du résidu d'attaque nitrique peroxydante soit supérieure ou égale à celle des sols minéraux.

Cette observation est vraie à l'exception du sol prélevé à 5 km du point de rejet, dont le résidu contient plus de césium, probablement associé à des particules chaudes résistantes aux attaques réalisées. La présence de particules chaudes dans les sols organiques est peu probable car ils ont été prélevés loin du point de rejet.

Par contre, l'existence de matière organique résistante à l'attaque peroxydante est mentionnée dans la littérature (Shand *et al.*, 1994). Une part importante du césium des horizons organiques serait en effet absorbée par des structures biologiques telles que les hyphes de champignon (Thiry et Mittenaeere, 1993). Le césium présent dans ces structures est associé au cycle du carbone. Il est à ce titre

potentiellement plus disponible que ne le laisse supposer l'interprétation hâtive des résultats d'extractions séquentielles.

Il ressort de cette analyse que la rétrogradation du césium dans les feuillets argileux n'est pas le seul mécanisme s'opposant à sa mobilité et que les méthodes actuelles de spéciation des radionucléides ne donnent pas une image très fidèle de leur bio-disponibilité. L'interprétation des résultats qui en découle peut conduire à surestimer le caractère irréversible de l'échange de césium sur les sols.

3.1.1.2. *Le coefficient de distribution*

La plupart des modèles de transfert des radionucléides dans les sols reposent sur l'invariabilité des coefficients dits "de distribution", hypothèse très controversée. Il est en effet très improbable que l'ensemble des interactions thermodynamiques et cinétiques impliqués dans l'échange d'ions puisse être représenté par un équilibre indépendant défini par le coefficient de distribution K_d , simple rapport des concentrations d'un soluté entre un solide et le milieu liquide environnant.

Laudelout (AIEA, 1986) a écrit que les modèles reposant sur cette notion n'ont aucun pouvoir prédictif car elle englobe beaucoup de phénomènes primordiaux, mal compris et non quantifiés tels que la concentration du soluté étudié et celles des autres espèces en solution, l'état de dispersion du solide *etc.* Ce même auteur propose d'avoir recours à des paramètres plus fondamentaux et constants, c'est-à-dire indépendants des conditions expérimentales.

Ces recommandations ont été suivies pour l'élaboration d'un modèle de migration des radionucléides dans le cadre du programme RESSAC. Ce modèle (CATHY1) (Harry, 1989) d'écoulement convectif-dispersif prenait en compte les transferts de soluté entre l'eau mobile s'écoulant dans le milieu poreux et l'eau immobile piégée dans les micro-cavités du sol inaccessibles à l'écoulement. Cependant, l'acquisition des paramètres nécessaires à l'utilisation de ce modèle s'est avérée impraticable. Pour respecter les délais impartis à la remise des résultats, cette approche a été abandonnée pour un modèle plus simple (CATHY2), basé sur la notion incontournable de K_d .

Mais les expériences réalisées pour l'élaboration de CATHY1 ont permis de mettre en évidence l'importance du taux de saturation des sols en eau sur la mesure de K_d . Le rôle de l'humidité du sol dans les interactions d'échange ionique était déjà pris en compte dans la méthode utilisée par Mubarak et Olsen, (Mubarak et Olsen, 1976).

La migration verticale

La migration verticale d'un soluté dans un sol est communément décrite (Maubert *et al.*, 1986; Tompkins *et al.*, 1994) par l'équation suivante :

$$\theta \cdot \frac{\delta C}{\delta t} + \rho \frac{\delta S}{\delta t} = D \cdot \theta \cdot \frac{\delta^2 C}{\delta z^2} - u \cdot \theta \cdot \frac{\delta C}{\delta z}$$

θ = humidité moyenne

ρ = densité apparente du sol

u = vitesse de l'eau dans les pores ($\text{mm} \cdot \text{s}^{-1}$)

D = coefficient de diffusion ($\text{mm}^2 \cdot \text{s}^{-1}$)

C = concentration dans la phase liquide $\text{Bq} \cdot \text{l}^{-1}$

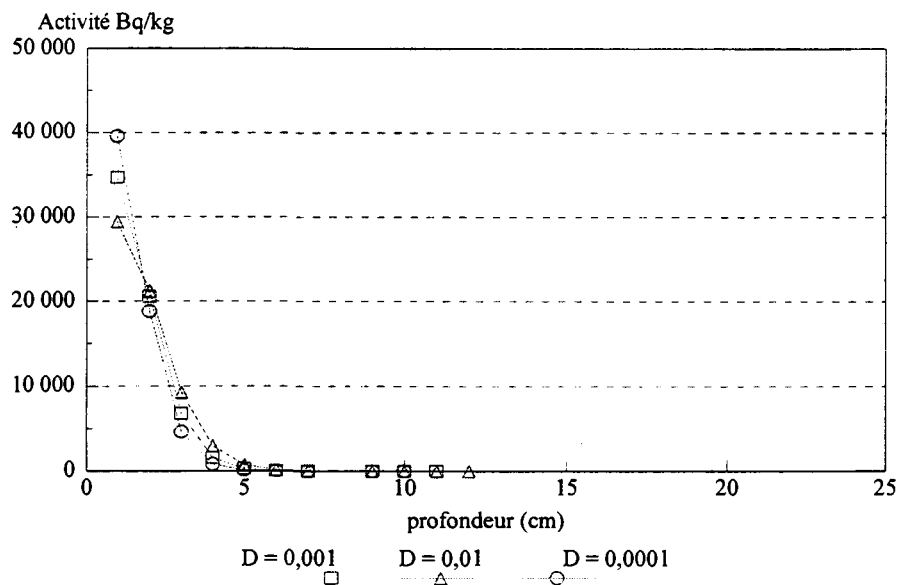
S = concentration dans la phase solide $\text{Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$

$S = K_d \cdot C$

K_d = coefficient de partage ($\text{l} \cdot \text{kg}^{-1}$)

z = profondeur (mm)

Pour des sols ou des radionucléides différents, les variables K_d et D sont susceptibles de prendre des valeurs très différentes. En comparaison, les autres variables comme par exemple l'humidité du sol, fluctuent dans des proportions assez faibles en conditions normales, et d'après les observations exposées au paragraphe précédent ont déjà une répercussion sur la variable K_d . A l'aide du programme Cathy 2 écrit par Maubert, nous avons étudié la sensibilité des variables K_d et D . Les résultats montrent qu'une variation d'un facteur 100 de l'une de ces deux variables a une grosse influence sur la profondeur de migration s'agissant de K_d alors que D a une influence négligeable (figure 3.1). La migration verticale a été étudiée par de nombreux auteurs (Brey *et al.*, 1994; Bunzl *et al.*, 1994; Schimmack *et al.*, 1994; Shand *et al.*, 1994; Shenber et Eriksson, 1993; Varskog *et al.*, 1994).



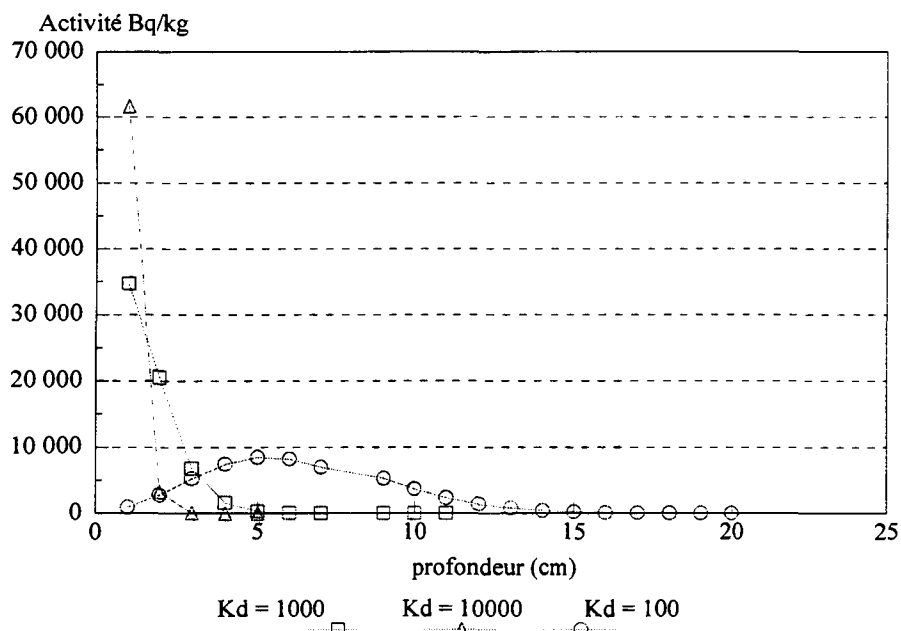


Figure 3.1 : Influence des paramètres D (a) et Kd (b) sur la migration du césium dans le profil vertical d'un sol, calculée à l'aide du programme Cathy2.

Les résultats du calcul de migration à l'aide de l'équation ci-dessus ont été comparés aux profils de migration observés en Allemagne suite à l'accident de Tchernobyl et du dépôt consécutif aux essais atmosphériques de bombes atomiques (Kirchner et Baumgartner, 1992). Pour ces deux types de pollutions, ce modèle reproduit fidèlement l'évolution des concentrations en radionucléides dans le profil du sol en fonction du temps, mais ne rend pas compte de la migration d'une faible partie de la contamination en dessous de l'horizon le plus bas considéré par le modèle. L'auteur de cette constatation invoque la responsabilité d'une migration éventuelle dans les pores créés par les vers de terre ainsi que celle d'un profil non homogène d'humidité du sol.

Il semble d'après certains auteurs (Brey *et al.*, 1994), que la migration des radionucléides sous forme de particules colloïdales joue aussi un rôle qui n'est pas pris en compte par le modèle. Brey a observé la présence de radionucléides associés à des particules de diamètre compris entre 0,01 et 0,2 μm présentes dans l'eau collectée à la base d'un lysimètre. L'analyse semi quantitative au microscope électronique à balayage (SEM) indique que ces particules sont composées de calcium, magnésium et silice et d'éléments de faible masse atomique supposés appartenir à des sphérules d'acides humiques.

3.1.2. Le transfert foliaire

3.1.2.1. L'interception par les végétaux.

L'interception par les végétaux peut être définie comme la fraction du dépôt retenue par les plantes couvrant le sol. Elle revêt une importance particulière pour la contamination directe des récoltes telles que les légumes verts dont les parties comestibles peuvent intercepter directement la contamination.

Même dans des régions éloignées du point de rejet, le dépôt direct peut se traduire par des activités proches des niveaux d'intervention.

Dans la zone proche du point de rejet, l'interception par les végétaux peut avoir un rôle important dans la décontamination du sol si l'enlèvement de la végétation intervient assez tôt avant que la fraction du dépôt retenue par la végétation ne soit lessivée par la pluie ou remise en suspension par le vent.

L'efficacité d'interception est indépendante du radionucléide considéré (Aarkrog, 1992; Jouve et Li, 1986), mais elle dépend de la nature du dépôt et de la densité du couvert végétal. L'interception va conditionner l'activité déposée sur les feuilles des plantes cultivées dont dépend en partie la contamination indirecte des organes comestibles. L'autre facteur important est la translocation des radionucléides des feuilles vers les organes comestibles. Aarkrog a montré que la fraction de ^{137}Cs transférée au grain d'orge est de 5% du dépôt initial lorsque celui-ci intervient 3 mois avant la récolte et de 36% lorsqu'il intervient 1 mois avant la récolte. Dans des conditions très différentes, représentées par un dépôt d'aérosols sec, suivi de plusieurs pluies responsables du lessivage du césium soluble, la translocation du césium au grain de blé n'était plus que de 3% du dépôt intercepté (Madoz *et al.*, 1996).

Une formulation du facteur d'interception a été proposée pour l'herbe (Chamberlain, 1970) en fonction de la biomasse végétale recouvrant le sol :

$$f = 1 - e^{-\mu R}$$

f = facteur d'interception

R = biomasse recouvrant le sol ($\text{kg} \cdot \text{m}^{-2}$ (poids sec))

μ = 2.78

La biomasse recouvrant le sol évolue en fonction de la saison. Le facteur d'interception est donc une composante importante du facteur de saisonnalité défini par Aarkrog par la formule suivante :

$$S \equiv RSD = \frac{\sqrt{\frac{\sum_{i=1}^{12} (I_m - I_{iap})^2}{(12-1)}}}{I_m}$$

Où (i) est le mois du dépôt d'un radionucléide (p) sur une plante (a) de I_{iap} $\text{Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$. Le facteur de saisonnalité S est l'écart type relatif (RSD) des concentrations mensuelles par rapport à la moyenne annuelle I_m . Cette formulation n'a d'intérêt que pour illustrer le consensus sur l'importance de la saisonnalité pour le transfert foliaire. Dans l'optique d'une utilisation opérationnelle, il serait nécessaire d'établir les valeurs mensuelles de I_{iap} pour les principales plantes cultivées et les principaux éléments du terme source, dont notamment les radionucléides à vie courte puisque le transfert foliaire intervient immédiatement après le dépôt. Cette démarche serait d'autant plus irréaliste que les valeurs obtenues ne pourraient être utilisées que pour une latitude donnée. En effet, l'accident de Tchernobyl a montré que le facteur de transfert foliaire de ^{137}Cs au grain de céréale variait de 10^{-4} à $10^{-2} \text{ m}^2 \cdot \text{kg}^{-1}$ entre, respectivement, le 60^e et le 40^e degrés de latitude nord, en fonction des différents stade de développement des céréales (Aarkrog, 1992).

La formule de Chamberlain qui exprime le facteur d'interception en fonction de la biomasse apparaît donc beaucoup plus adaptée à une utilisation opérationnelle que celle d'Aarkrog. Elle a été utilisée dans le cadre du programme RESSAC pour les principales plantes cultivées autour des sites nucléaires français, avec un coefficient S , représentatif de la fraction maximale d'interception du dépôt (Anonyme, 1991) (Tableau 3.2).

$$f = S \times (1 - e^{-\mu R})$$

Tableau 3.2 : Coefficients S et μ relatifs à l'interception des aérosols secs par les végétaux

Culture	S	μ (m ² .kg ⁻¹ (poids sec)
Blé	0,7	10,63
Mais	0,9	5,55
Tournesol	0,7	5,50
Lin	0,8	9,06
Luzerne	0,8	16,27
Prairie	0,9	8,01
Pomme de terre	0,7	17,30
Choux Salade Betterave	0,5	31,38
Pois Haricot	0,5	25,66

Pour faire un exposé assez complet sur l'interception des radionucléides par les végétaux, il convient d'évoquer le cas des arbres qui peuvent intercepter très efficacement le dépôt en cas d'accident nucléaire (Lehto, 1994) et contribuer à l'irradiation externe des personnes exposées à un séjour prolongé à hauteur du feuillage, lorsque, en particulier, les arbres sont plantés en bordure des habitations en face des fenêtres. Les recommandations publiées par Lehto prévoient l'abattage pur et simple des arbres. Une méthode moins traumatisante, de défoliation non létale, sera présentée plus loin dans ce document.

Le rôle particulier des arbres pour intercepter les radionucléides a été observé à Tchernobyl où le dépôt sur le sol mesuré à l'issue de la période de rétention par la canopée, était 2-5 fois plus élevé en bordure de forêt qu'au milieu, sur une largeur de 50 m (Tikhomirov et Shcheglov, 1990) (Tableau 3.3).

Tableau 3.3 : Interception des radionucléides par la végétation à la suite d'un dépôt, d'après (Tikhomirov et Shcheglov, 1990)

Végétation	Interception en %
Forêt de pins de 25 ans, recouvrement ♦ : 0,8	70-90
Conifères et feuillus, 50-60 ans, recouvrement : 0,7-0,9	60-90
Feuillus en hiver	20-30
Végétation herbacée	25
♦ Recouvrement = % de la surface du sol couvert par la végétation	

3.1.2.2. La rétention des radionucléides par les végétaux

La rétention des radionucléides sur la végétation dépend bien évidemment des événements climatiques qui suivent le dépôt, et notamment de la pluie. Le lavage à l'eau des végétaux observé

notamment pour l'utilisation des légumes contaminés lors de l'accident de Tchernobyl, a montré qu'il était possible d'enlever 2/3 à 3/4 du dépôt (Rapport, 1987).

Une pluie de 1 mm par semaine pendant une période de 4 à 9 semaines sur de l'herbe contaminée par ^{89}Sr s'est traduite par une période de rétention de 13 ± 6 jours sans tenir compte de la période radioactive de ce radionucléide qui n'est que de 53 jours (Martin, 1964). Le calcul de la constante de décroissance d'après l'expression $\gamma = e^{-kt}$ où (γ) représente la fraction de dépôt restant sur la plante, (k) la constante de décroissance et (t) le temps écoulé entre le dépôt et la récolte, montre que cette période de rétention correspond à une valeur de k égale à 0,054. La valeur de la constante calculée pour une expérience similaire réalisée au Danemark avec ^{89}Sr (Aarkrog, 1972) est de 0,037. La vérification des calculs montre en fait une bonne concordance des résultats en supposant que la valeur obtenue par Aarkrog inclut la décroissance radioactive.

D'après Aarkrog, le césium est mieux retenu sur les plantes que le strontium, tout au moins pour la partie résiduelle du dépôt. Par contre, le strontium fraîchement déposé est mieux retenu que le césium (Madoz *et al.*, 1996), ce qui laisse supposer que ce dernier radionucléide, lorsqu'il est bien retenu, doit se trouver incorporé par les cellules ou les tissus végétaux.

L'étude de l'influence de la pluie sur la rétention de ^{137}Cs par la litière recouvrant les sols forestiers a montré, indirectement, que la biomasse végétale retient bien le césium lors d'une pluie de 14 mm appliquée à raison de 2 mm.h^{-1} , mais que la rétention n'est plus que de 70% lorsque la même quantité d'eau est apportée à raison de 30 mm.h^{-1} (Schimmack *et al.*, 1994).

Les pertes par la végétation en l'absence de pluie ou de dilution par la croissance rapide des plantes, ont été étudiées dans le désert du Nevada à la suite des essais américains de bombes atomiques dans l'atmosphère. Les pertes ont été attribuées à l'effet mécanique d'abrasion par le vent et la perte naturelle d'éléments cuticulaires. La période effective de rétention observée dans ces conditions pour ^{90}Sr est comprise entre 22,6 et 152 jours, les pertes diminuant avec le temps.

Des essais en conditions contrôlées ont montré que même en l'absence de vent, la végétation perd une partie de l'activité déposée sur les feuilles. Ce phénomène a été attribué à la desquamation de la cuticule (Martin, 1964).

3.1.2.3. La translocation

La translocation des radionucléides est définie comme le passage de l'activité déposée sur les feuilles dans le milieu systémique de la plante, jusqu'aux organes comestibles. Elle est exprimée généralement en pourcentage de l'activité déposée sur les feuilles (Aarkrog, 1972). Cet auteur a trouvé que le pourcentage de césium transféré au grain de céréales (seigle, avoine, orge, blé) est compris entre 3 et 27 % pour ^{134}Cs et entre 1 et 10% pour ^{89}Sr . Nos propres observations à partir d'expériences en serre pour le haricot vert donnent respectivement 6 et 12% pour ^{85}Sr et ^{134}Cs . Pour le blé et l'orge après le dépôt de ^{137}Cs lors de l'accident de Tchernobyl mesuré en France à Venelles (Bouches du Rhône), le pourcentage de translocation au grain était respectivement de 2 et 7% (Jouve et Li, 1986). Ces valeurs sont à comparer à celles observées par Aarkrog pour les mêmes céréales respectivement égales à 4 et 13%, mais à une latitude différente.

Il ressort de cet ensemble de données que le transfert foliaire du strontium est toujours significativement plus faible que celui du césium, et que le flux des radionucléides par la voie foliaire peut atteindre des proportions assez élevées. Cette tendance s'inverse dans le cas du transfert sol-plante par voie racinaire.

3.1.3. Le transfert sol-plantes des radionucléides

Le transfert sol-plante des radionucléides dépend d'un grand nombre de paramètres environnementaux à prendre en compte pour choisir une valeur utilisable dans un calcul d'impact dosimétrique. La diversité des conditions du milieu étudié ne peut être représentée par ce facteur, tel qu'il est défini, par le simple rapport de l'activité dans la plante à celle du sol.

Cette diversité a conduit à l'adoption de catalogues de valeurs admises internationalement (IAEA, 1994b; Tikhomirov et Shcheglov, 1990; Wang *et al.* 1993) sans que le choix d'une valeur adaptée à un cas particulier soit facilité par l'existence d'une méthodologie. La pratique actuelle aboutit souvent à l'adoption d'une valeur par défaut choisie sur la base d'un ou deux paramètres décrivant avec plus ou moins de pertinence les conditions du milieu. Cette valeur est souvent majorante pour tenir compte des incertitudes, mais cette approche est peu compatible avec le principe d'optimisation des interventions recommandé par la CIPR.

Le besoin d'améliorer la formulation utilisée pour quantifier le transfert sol-plante est apparu à de nombreux auteurs (Frissel et Koster, 1986; Frissel et Koster, 1987; Jouve *et al.* 1989; Maubert *et al.*, 1986). Il s'est concrétisé par l'organisation d'un groupe de travail sur ce sujet au sein de l'Union Internationale des Radioécologistes (UIR). Les travaux de ce groupe ont mis en évidence l'importance de certains paramètres liés aux conditions expérimentales, aux types de sols et à la solubilité du dépôt.

Lors des études d'impact des retombées des essais d'armes atomiques dans l'atmosphère, puis par la suite, lors des études de transfert des radionucléides en situation accidentelle, la question de la solubilité du dépôt s'est posée. L'accident de Tchernobyl, qui a rejeté dans l'environnement des radionucléides sous forme de particules chaudes insolubles dans l'eau, a relancé les recherches sur ce sujet (Burakov *et al.*, 1994; Sandalls *et al.*, 1993; Tcherkezian *et al.*, 1994).

D'autres auteurs se sont intéressés au transfert entre la solution du sol et la plante et ont mis en évidence des phénomènes d'exclusion compétitive de l'absorption des ions suivant le modèle de Michaelis-Menten (Shaw, 1992; Shaw et Bell, 1991).

Enfin, des études récentes concernent l'influence des symbioses mycorhiziennes sur le transfert des radionucléides (Entry *et al.*, 1994; Strullu, 1991).

3.1.3.1. La solubilité du terme source

Elle dépend de la présence de particules chaudes et de leur nature. Lorsqu'elles sont constituées de combustible d'uranium les particules chaudes libèrent plus ou moins lentement dans la solution du sol les radionucléides qu'elles contiennent.

Les vitesses de solubilisation de ^{137}Cs et ^{90}Sr sont identiques, mais varient en fonction du type de sol. Pour les sols de Tchernobyl, elles sont comprises entre $4.0 \cdot 10^{-4}$ et $3.6 \cdot 10^{-3} \text{ j}^{-1}$ (Bobovnikova *et al.*, 1990; Konoplev *et al.*, 1992). La rétention des radionucléides sous forme de particules chaudes est non spécifique et assez labile. Il semblerait par conséquent que le processus de libération des radionucléides soit la lyse de la matrice de combustible sous l'action des facteurs de la pédogenèse.

Les essais sur des particules chaudes reconstituées à partir de combustible usagé ont montré que la désagrégation des particules est périphérique et que les cinétiques de désagrégation sont augmentées

en milieu acide (pH 1), ou lorsque les particules ont subi un traitement thermique (500°C) (Lostchilov *et al.*, 1991).

Lotschilov a comparé la solubilité du césium de Tchernobyl à celle du césium ajouté sous forme soluble dans les sols. La représentation graphique des données sur le césium échangeable d'un terme source par rapport à l'autre (Figure 3.2) montre une assez grande dispersion des points expérimentaux, interprétable comme étant due à l'influence du type de sol sur la dégradation des particules chaudes d'une part, et sur l'échange de césium ionique, d'autre part.

Si le césium de Tchernobyl avait été aussi soluble que le césium ajouté expérimentalement, les valeurs exprimant sa solubilité auraient été égales, aux erreurs de mesure près, quel que soit le terme source considéré, et la distribution des points représentant la solubilité d'une source de césium en fonction de l'autre aurait formé une droite de pente égale à 1 passant par l'origine. Or les points sont distribués suivant une droite qui ne passe pas par l'origine. Cette droite est la droite de régression des valeurs de solubilité d'un terme source en fonction de l'autre qui donne l'écart moyen par rapport à la valeur attendue pour des termes sources identiques. L'écart entre ces deux droites correspond au déficit de césium échangeable dans les sols contaminés par des particules chaudes; ce déficit est en moyenne compris entre 5 et 10% et peut aller jusqu'à 20%.

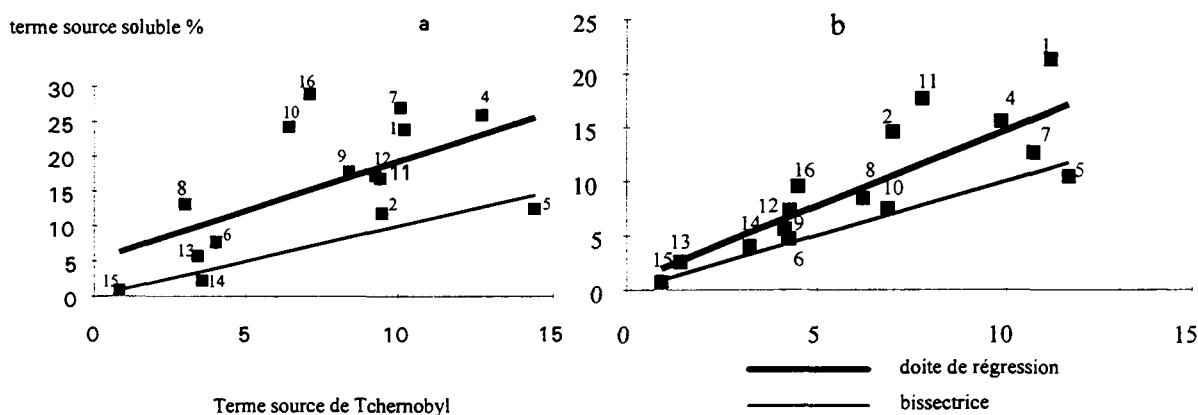


Figure 3.2 : césium-137 échangeable, a : à l'acétate d'ammonium N et b : à l'acide chlorhydrique N dans des sols contaminés par l'accident de Tchernobyl et augmentation de la fraction échangeable lors de l'ajout de césium soluble en 1988. D'après les données de Lostchilov *et al.*, (1991).

Les techniques de spéciation des radionucléides dans le sol ne rendent pas compte de la distribution des radionucléides entre les formes séquestrées dans les particules chaudes et les formes fixées sur les argiles ou les colloïdes, notamment le césium. Cependant, la présence de formes séquestrées est mise en évidence par l'augmentation dans le temps de la fraction de strontium échangeable à l'acétate d'ammonium 1M, car les cinétiques de fixation de ce radionucléide sur les argiles sont plus lentes que celles de sa lixiviation à partir des particules chaudes (Bobovnikova *et al.*, 1990).

Par contre, dès sa libération dans le sol, le césium interagit avec les charges négatives des colloïdes et passe de ce fait d'une phase immobile à une autre (Askbrant *et al.*, 1996).

3.1.3.2. La fixation sur le sol et l'échange d'ion avec la solution du sol

La solution du sol constitue l'interface entre le sol et la rhizosphère. En partant d'un terme source 100% soluble, les interactions entre le sol et la solution du sol sont quantifiables par le terme K_d introduit au chapitre 3.1.1.2, qui ne rend compte qu'imparfaitement des états du flux des radionucléides.

Comme nous l'avons vu précédemment, l'interaction des radionucléides avec le sol est un échange d'ion qui dépend essentiellement de la quantité et de la qualité de l'éluant, c'est-à-dire du mode d'écoulement de l'eau dans le sol et de la présence d'ions compétiteurs.

Les ions compétiteurs interviennent surtout dans les équilibres d'échange non spécifiques. L'importance relative de ces sites est très variable en fonction du type de sol et selon que l'échange concerne le césium ou le strontium.

Strontium

Il est admis que le strontium ne peut occuper de site spécifique. Ses réactions d'échange se limiteront aux sites accessibles aux éléments majeurs tels que Ca^{++} et Mg^{++} avec lesquels il sera en compétition. Le strontium est retenu plus efficacement par les sols organiques que par les sols à faible teneur en matière organique.

Césium

Dans le cas du césium, les ions compétiteurs interviennent dans la stabilisation des sites spécifiques. Par exemple, la sorption du césium sur une illite est plus rapide en présence de calcium qu'en présence de potassium. En effet, le calcium pénètre à l'état hydraté dans les espaces inter-foliaires alors que le potassium pénètre à l'état déshydraté ce qui induit le resserrement des feuillets. En présence de calcium, le césium dispose donc d'un espace plus important pour s'échanger sur les sites inter-foliaires (Cornell, 1993).

La compétition peut résulter d'interactions très complexes dans la stabilisation des sites d'échange. Par exemple, la présence de faibles quantités de NH_4^+ dans des solutions de Ca^{++} et Mg^{++} utilisées pour extraire K^+ se sont avérées inhiber l'extraction de ce dernier en provoquant le resserrement des feuillets (Sawhney, 1972).

Le rôle des sites spécifiques du césium a été étudié grâce au masquage des sites non spécifiques à l'aide d'argent thio-urée (AgTU) (Cremers *et al.*, 1988). En présence d'AgTU, pour un sol normalement pourvu en potassium, le coefficient de sélectivité (K_c) du césium par rapport au potassium est voisin de 1200-1400 lorsque le césium est présent à l'état de trace, ce qui correspond au scénario d'un accident nucléaire.

Parmi les cations concernés par les échanges spécifiques, le césium a la plus faible énergie d'hydratation ce qui lui confère la plus grande affinité pour les sites stabilisés par un processus de déshydratation.

Cependant, la sélectivité du césium par rapport à l'ammonium est beaucoup plus faible que par rapport au potassium (Rajec et Shaw, 1994). Le K_c de l'ammonium par rapport au potassium est compris entre 4 et 7 pour des sols très différents (Sweek *et al.*, 1989). Le pouvoir exceptionnel de compétition de l'ion NH_4^+ vis à vis du césium trouve son explication dans le fait que cet ion se rapproche le plus de Cs^+ par son rayon ionique et son énergie d'hydratation (Tableau 3.4).

Tableau 3.4 : rayons ioniques de quelques ions hydratés et déshydratés, et énergies d'hydratation.

Ion	Rayon de l'ion hydraté (nm)	Rayon de l'ion déshydraté (nm)	Energie d'hydratation (kJ.mole ⁻¹)
NH ₄ ⁺	0,213	0,148	-285
	0,212	0,138	-295
Cs ⁺	0,219	0,170	-250
Sr ⁺⁺		0,112	

La sélectivité de l'échange compense la faible proportion de sites spécifiques et la faible action de masse du césium dans les réactions d'échange. En effet, les sites spécifiques ne représentent qu'environ 1% de la capacité d'échange cationique d'un sol à faible teneur en matière organique (Cremers *et al.*, 1988). Les sols organiques ont proportionnellement encore moins de sites spécifiques (Valcke et Cremers, 1992).

La masse de césium exogène dans le sol peut être déduite de l'activité en ¹³⁷Cs dans le coeur d'un réacteur RBMK à 8500 MWj.t⁻¹ tel que celui de Tchernobyl soit 303 PBq de césium (Rapport, 1986). La masse de césium est considérée équivalente à celle d'un réacteur à eau pressurisée soit 130 kg (Fermandjian *et al.*, 1983).

Pour un dépôt de 1,5 MBq.m⁻² en ¹³⁷Cs, dilué dans une couche de sol d'environ 30 cm, soit 400 kg de sol, la concentration en césium est d'environ 8 pg.g⁻¹ de sol. Il convient d'y ajouter le césium stable naturel donné dans la littérature pour 1 µg.g⁻¹ (Coughtrey et Thorne, 1983a). Nos propres déterminations pour le sol de Cadarache donnent 3-14 µg.g⁻¹.

Par comparaison les masses de potassium et d'ammonium, prises à titre d'exemple dans une référence bibliographique (Sweek *et al.*, 1989), sont respectivement de l'ordre de 0,1 à 0,5 et 0,1 à 2,0 mg.g⁻¹.

Il ressort donc de cette analyse, que pour un sol donné, les flux de césium entre le sol et la solution du sol sont conditionnés par l'activité des ions ammonium et potassium. La prédiction de K_d pour le césium (K_d_{Cs}) doit donc se baser sur la mesure de ces ions dans la solution du sol. Plusieurs méthodes existent pour calculer K_d_{Cs}. Cremers (1989) a proposé de mesurer K_d_{Cs} dans une solution de KCl ou NH₄Cl 10⁻³ M en présence d'AgTU, et d'exprimer le résultat à l'aide de l'équation suivante:

$$\frac{1}{K_{dCs}} = \frac{m_k}{[K_{dCs}.m_k]} + \frac{m_n}{[K_{dCs}.m_n]}$$

[K_d_{Cs}.m_k] ou [K_d_{Cs}.m_n] désignent le coefficient de distribution solide liquide du césium mesuré en milieu KCl ou NH₄Cl

m_k et m_n désignent la concentration en KCl et NH₄Cl de la solution du sol en eq.1⁻¹.

Cette méthode a permis une bonne prédiction de K_d mesuré expérimentalement (Cremers *et al.*, 1989). Grauby *et al.* (1990) ont montré l'influence de l'ion ammonium sur la disponibilité du césium pour les plantes.

L'interprétation des mécanismes de transfert sol-plante serait encore assez simple si les ions compétiteurs n'avaient d'autre effet que sur le flux de radionucléides entre le sol et la solution du sol. Mais des analogies de comportement des ions compétiteurs vis à vis de Cs et Sr sont observables au niveau de l'absorption par les plantes.

3.1.3.3. La rhizosphère

La rhizosphère est l'interface entre le milieu minéral et le milieu vivant pour tous les organismes inféodés aux écosystèmes terrestres, à l'exception des bactéries autotrophes. C'est dire la diversité des adaptations qu'elle représente et la variabilité qu'elle est susceptible d'imposer aux flux de radionucléides dans le règne végétal. Nous n'évoquerons que les causes de variation les plus évidentes: la distribution des racines dans le profil de sol, les symbioses mycorhiziennes et l'absorption racinaire proprement dite.

La distribution des racines dans le profil de sol.

Sur un sol non labouré, les radionucléides déposés accidentellement migrent lentement. Si la majeure partie du dépôt reste concentrée dans la couche superficielle du sol, il semble évident que les racines situées dans cette zone seront plus contaminées que celles qui se trouvent plus en profondeur.

De même dans un champ labouré où la contamination peut être considérée comme homogène dans la zone arable, les racines sont susceptibles de pénétrer en dessous de la couche contaminée. La proportion de racines situées dans la zone contaminée va déterminer l'intensité du flux de radionucléides.

La localisation des racines est dépendante de la texture du sol qui détermine la résistance mécanique à l'exploration racinaire, mais aussi la localisation de l'eau vers laquelle se dirigent généralement les racines. Par exemple, à Tchernobyl sur les terrasses du Dniepr, l'humidité du sol en période sèche est entretenue par la condensation de la vapeur d'eau en provenance de la nappe phréatique sur la couche humifère superficielle, car il n'y a pas de remontée capillaire dans le sable grossier qui constitue la couche profonde du sol. Les racines de pin sylvestre restent donc localisées à la surface du sol où se trouve la contamination, c'est pourquoi le transfert des radionucléides aux arbres est très important (Tikhomirov, 1995).

La prise en compte de ce paramètre dans les études de transfert des radionucléides n'apparaît possible qu'à l'aide de cultures expérimentales sur lysimètres, ou dans la nature, s'il existe des terrains contaminés comme par exemple à Tchernobyl.

Les cultures en pot donnent souvent des résultats majorants, d'une part, parce que les variations de potentiel hydrique, qui ont une influence sur le K_d , y sont plus importantes que dans un lysimètre ou dans un champ, et d'autre part, parce que l'épaisseur de sol n'y est pas suffisante pour que les racines puissent éventuellement échapper à la contamination.

L'UIR propose de résoudre ce problème par l'étude statistique des variations du facteur de transfert en fonction de la distribution des racines dans le profil de sol. Cette méthode a débouché sur l'adoption de profondeurs standardisées : 10 cm pour l'herbe et 20 cm pour les cultures. Un coefficient permet de ramener la valeur observée pour une profondeur donnée à la valeur standardisée (Report, 1989).

Cette approche est intéressante, mais pour son utilisation pratique, la profondeur des racines de la culture dont il s'agit de prédire la contamination doit être connue *a priori*. Des informations existent, pour des conditions données et de façon partielle, quant au profil racinaire des principales plantes cultivées en fonction des types de sols, des pratiques culturales, des variétés et du profil hydrique des sols.

Tompkins *et al.*, (1994) ont proposé l'utilisation d'un endoscope pour évaluer la distribution des racines dans le profil de sol et aboutir à une formulation du facteur de transfert pondéré selon l'expression suivante :

$$F_{tp} = \frac{[R]_{\text{plante}}}{\sum_{i=1}^n ([R]_i \cdot f_i)}$$

F_{tp} = facteur de transfert pondéré

$[R]_{\text{plante}}$ = l'activité dans la plante,

$[R]_i$ = l'activité du sol dans la couche i

$f_i = \frac{\text{abondance de racines dans la } i^{\text{ème}} \text{ couche}}{\text{abondance de racines dans le profil entier}}$

Même si, comme il semble raisonnable de le penser, ce paramètre n'explique pas toute la variabilité des facteurs de transfert, l'étude statistique de sa variation apporterait une information concrète sur la nécessité et la façon de le prendre en compte dans les modèles, par rapport aux autres causes de variabilité comme, par exemple, l'existence de mycorhizes.

Les symbioses mycorhiziennes

De nombreux auteurs se sont intéressés à la contamination des champignons suite à l'accident de Tchernobyl. Il ressort de ces études que les champignons accumulent très efficacement le césium notamment. Les facteurs de transfert du césium (F_{tCs}) définis par l'équation suivante :

$$F_{tCs} = \frac{\text{Activité du champignon (Bq.g}^{-1}\text{ de poids sec)}}{\text{Activité de la couche de sol contenant le mycelium (Bq.g}^{-1}\text{ de poids sec)}}$$

sont compris entre 5,5 et 13 pour les champignons dont le mycélium est situé dans la couche de litière située entre 0 et 5 cm. La plupart des mycorhizes appartiennent à cette catégorie. L'auteur de cette constatation conclut que les mycorhizes ayant des facteurs de transfert souvent plus élevés que les autres espèces de champignons, elles peuvent jouer un rôle important dans les flux de radionucléides au sein des écosystèmes forestiers (Nelin et Nylén, 1994; Wirth *et al.*, 1994; Yoshida et Muramatsu, 1994).

Les mycorhizes contiendraient jusqu'à 30% du césium contenu dans les 5 premiers cm de sol. Outre le formidable potentiel exploratoire du mycélium, les mycorhizes seraient capables de dissoudre les minéraux présents sous forme particulaire comme les fragments de combustible d'uranium. Les rapports Cs/K chez les différentes espèces de mycorhizes sont variables, mais peuvent être égaux à 20, ce qui indique une absorption sélective du césium (Olsen *et al.*, 1989). En comparaison, les F_t pour les plantes supérieures sont compris entre 0,016 et 0,112 pour les légumineuses comme le trèfle et le lupin qui sont connues pour avoir les F_t les plus élevés (Alexakhin, 1993).

Dans le sol organique des forêts, le strontium est beaucoup moins absorbé par les mycorhizes que le césium. Il a cependant été observé lors d'études en laboratoire que des plantules de pin inoculées par des mycorhizes prélevaient trois fois plus de strontium que les plantules non inoculées (Entry *et al.*, 1994).

Le rôle des mycorhizes dans la nutrition minérale des plantes cultivées a été très étudié (Entry *et al.*, 1994; Gianinazzi-Pearson et Gianinazzi, 1985; Guo *et al.*, 1993; Strullu, 1991), mais les données concernant le transfert des radionucléides sont encore partielles.

Il ressort de ces observations, que les mycorhizes, lorsqu'elles sont présentes dans le sol, constituent la principale interface entre la solution du sol et les plantes pour le flux des radionucléides. Mais elles font surtout partie de la stratégie inventée par la nature pour s'assurer la conquête des substrats oligotrophes, comme les sols squelettiques à Tchernobyl.

Cette stratégie sied particulièrement à l'absorption des radionucléides pondéralement peu abondants dans le sol. Mais à notre connaissance, il existe peu de données concernant l'importance de ce paramètre pour les champs cultivés, et encore moins, sur la façon de le prendre en compte dans la modélisation des flux.

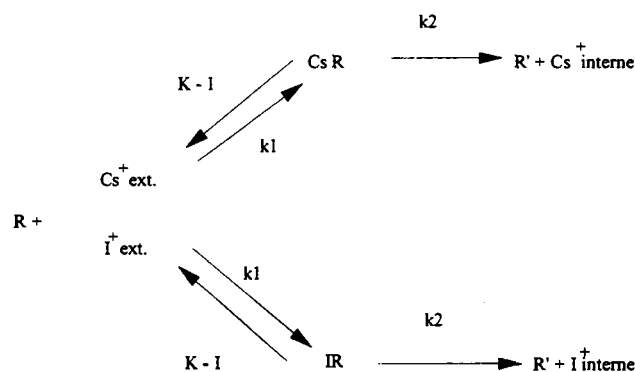
L'absorption racinaire

Les études à partir de cultures en solution ont montré que les cinétiques d'absorption racinaire du césium sont correctement décrites par le modèle biochimique de Michaelis-Menten (Shaw et Bell, 1989):

$$(v/S)t = \frac{V_{\max}}{K_m + S} \times t$$

v = vitesse d'absorption racinaire du césium
 S = concentration en césium dans la solution
 t = durée de l'absorption
 $(v/S)t$ = facteur de transfert solution-plante
 $V_{\max}$ = vitesse maximale d'absorption du césium
 K_m = constante de Michaelis.

En présence d'un analogue chimique I^+ qui inhibe la réaction, K_m est défini comme l'équilibre des constantes cinétiques suivant la réaction ci-dessous. Dans le cas du césium I^+ peut être K^+ ou NH_4^+ , R est un transporteur produit par le métabolisme de la plante qui change de forme en libérant son substrat pour devenir R' (figure 3.3).



D'après Shaw et Bell, (1991)

Figure 3.3 : description schématique du transport compétitif du césium à travers la membrane cellulaire.

$$K_m = \frac{k_{-1} + k_2}{k_1} \text{ dans le cas de Cs.}$$

La prise en compte de la constante de Michaelis-Menten, en présence d'un inhibiteur, dans l'expression du facteur de transfert s'écrit : (Shaw, 1992; Shaw et Bell, 1991)

$$F_t = \frac{C_{\max}}{[I^+] + K_m}$$

où $C_{\max}$, concentration maximale dans la plante, remplace $V_{\max}$ pour un état stationnaire correspondant aux conditions de l'expérience. Les valeurs prédictives du facteur de transfert solution-plante calculées à l'aide de cette expression sont très proches des valeurs obtenues expérimentalement pour le blé de printemps (figure 3.4) (Shaw, 1992).

Le facteur de transfert de Cs diminue de façon non linéaire avec l'augmentation de Cs^+ et NH_4^+ . Cependant, la diminution est moins importante en présence de NH_4^+ . Cette observation confirme nos propres résultats selon lesquels l'ajout de NH_4^+ dans le sol ne se traduit pas par une diminution de Ft_{Cs} assez sensible, pour compenser une diminution très importante de K_d . La résultante des variations de ces deux paramètres antagonistes est une augmentation du facteur de transfert sol plante dont la mise en évidence n'est possible qu'à l'aide d'expériences sur des sols contaminés (Grauby *et al.*, 1989).

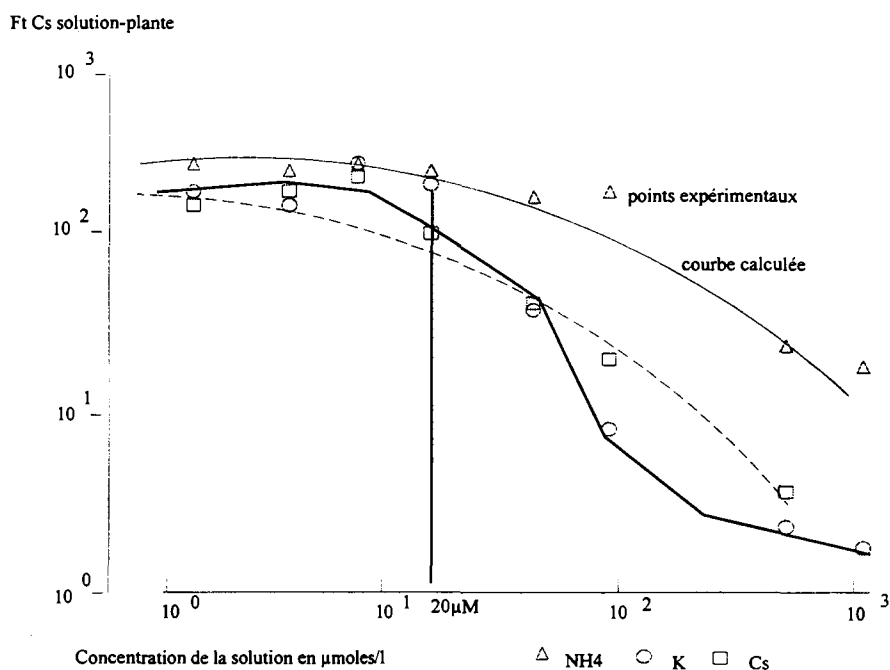


Figure 3.4 : facteurs de transfert de ^{137}Cs à l'épiblaste de blé en présence de NH_4^+ , K^+ , Cs^+ dans la solution. Données extraites de (Shaw, 1992).

Par contre l'ajout de K^+ se traduit par une diminution très importante de Ft_{Cs} . Un élément d'explication peut être avancé d'après la figure 3.4 qui montre une diminution brutale de Ft_{Cs} au delà d'une concentration en K^+ de 20 μM. Il semble que ce seuil de concentration corresponde au déclenchement d'une absorption sélective de K^+ que le modèle de Michaelis-Menten ne parvient pas à expliquer.

Or un calcul grossier à partir des données de la littérature (Cremers *et al.*, 1989), montre que les concentrations de K^+ dans la solution du sol sont de l'ordre de la millimole par litre, c'est-à-dire 1000

fois plus que le seuil évoqué ci-dessus. Il n'est donc pas interdit de penser que l'absorption sélective de K^+ soit le mécanisme prévalent dans les conditions naturelles.

L'absorption compétitive des ions K^+ , NH_4^+ et Cs^+ par les cellules végétales a été observée chez les micro-algues et les cyanobactéries (Avery *et al.*, 1991; Avery *et al.*, 1992a). L'absorption de K^+ chez ces organismes dépend de deux systèmes, l'un à faible affinité, l'autre à haute affinité, sous le contrôle de la concentration en K^+ du milieu de culture.

La comparaison des K_m pour K^+ et Cs^+ (Avery *et al.*, 1992b) indique une meilleure efficacité de l'absorption de Cs^+ pour le système à faible affinité pour K^+ . Ce modèle d'absorption de K^+ aide à la compréhension du phénomène d'absorption compétitive du césium par l'épiblaste de blé, qui, d'après les observations ci-dessus (figure 3.4), dépend de la concentration en K^+ .

De plus, il a été observé que l'absorption de Cs^+ chez la cyanobactérie *Anabaena variabilis* partage un système commun avec NH_4^+ . En effet, la souche mutante dépourvue du système de transport de NH_4^+ absorbe moins de Cs^+ que la souche sauvage.

3.1.4. Conclusion sur le transfert des radionucléides dans les productions agricoles

Lors du dépôt de radionucléides sur les plantes et les sols, l'interception, l'absorption par voie foliaire et le transfert aux organes comestibles est une voie prépondérante de contamination de la chaîne alimentaire pour le césium notamment. Le transfert du strontium s'opère de préférence par la voie racinaire. Cette dernière voie de transfert est pour les cultures annuelles la principale cause de l'impact sanitaire d'un accident nucléaire par l'ingestion de radionucléides au delà d'un an après l'accident.

Par rapport au délai de mise en place des systèmes de contrôle et de contre-mesure après un accident nucléaire, le transfert sol-plante des radionucléides est donc un paramètre clé. Or, le facteur de transfert sol-plante utilisé pour quantifier le flux de radionucléides par la voie racinaire est une grandeur extrêmement variable. L'une des cause de variabilité se situe au niveau du flux de radionucléides entre le sol et la solution du sol déterminé, notamment par le coefficient de distribution K_d . Une autre cause réside dans l'absorption compétitive des ions par les racines des plantes.

Les calculs d'optimisation des interventions et des contre-mesures à mettre en oeuvre en cas d'accident nucléaire ne peuvent se baser sur des données dont les fluctuations ne sont pas expliquées. C'est pourquoi un effort de recherche a été entrepris à l'IPSN pour, entre autre, étudier les causes de variation des facteurs de transfert sol-plantes, dans le cadre du programme RESSAC. Une partie de ces travaux fait l'objet du travail présenté ci-après.

3.2. Techniques mises en oeuvre

3.2.1. Etude des causes de variation du facteur de transfert sol-plante de Cs et Sr.

3.2.1.1. Les sols étudiés

Les sols étudiés ont été choisis parmi les types les plus fréquemment rencontrés autour des sites nucléaires français dans un rayon de 25 km. Quatre classes de sols ont été retenues : les sols podzolisés (38% de la surface cultivée autour des sites nucléaires), les sols brunifiés (26%), les sols calcimagnésiques (15%) les sols peu évolués alluviaux (10%). Des profils représentatifs de ces classes ont été choisis sur les différents sites en tenant compte des flux d'eau parcourant ces sols dans les conditions climatiques auxquelles ils sont soumis. Le croisement des classes de sols et des régimes hydriques a permis d'obtenir 11 profils à partir desquels l'horizon correspondant à la couche labourable a été utilisé dans nos expériences (tableau 3.5). Mais la classification pédologique des sols est basée sur des caractères agronomiques en relation avec la nutrition des plantes qui ne sont pas forcément adaptés à l'étude du transfert des radionucléides. C'est pourquoi il est apparu nécessaire de compléter le choix basé sur la classification existante par une approche complémentaire.

Une deuxième approche a consisté à affiner le choix sur la base des résultats d'une expérience préliminaire de transfert sol-plante. Le facteur de transfert est défini par la relation suivante :

$$F_t = \frac{\text{Activité dans la plante (Bq.kg}^{-1} \text{ de poids sec)}}{\text{Activité dans le sol (Bq.kg}^{-1} \text{ de poids sec)}}$$

La réduction du nombre de sols à étudier pour la suite des expérimentations a été guidée par la volonté de limiter la quantité de radioactivité à manipuler. Les facteurs de transferts sol-plante ayant des valeurs relativement faibles, une activité assez élevée doit être introduite dans le sol pour mesurer aisément la radioactivité des plantes. Pour une productivité de 0,1 g de plante par g de sol, il a été nécessaire de contaminer les sols à raison de 300 Bq.g⁻¹.

Lorsque dans une région de France, des sites nucléaires voisins comportaient des sols qui présentaient une similitude de réponse quant au facteur de transfert du césium, un seul profil a été retenu par région. L'objectif poursuivi était l'obtention d'une gamme de sols assez différents, tant sur le plan des caractères agronomiques que de la réponse obtenue pour le facteur de transfert, et une répartition géographique des sites représentés la plus large possible, sans excéder le nombre de 5 profils différents.

Tableau 3.5 : caractéristiques des sols étudiés

Site	Tricastin	Tricastin	St Alban	Crus	Callenon	Callenon	Callenon	Frammarville	Frammarville	Bellerive	Bellerive
Sol N°	2	3	5	6	8	8	10	16	17	19	20
Eléments totaux (g.kg ⁻¹)											
Sable	286	380	701	732	164	314	221	294	314	265	859
Argile	235	207	93	159	390	215	420	182	177	296	70
Calcaire	450	207	0	0	0	250	240	0	0	460	0
MO*	23	34	21	14	99	53	23	81	18	87	14
pH eau	8,1	7,9	6,7	7,5	7,0	8,0	8,0	4,7	5,4	7,8	6,7
Elements échangeables à l'acétate d'ammonium (meq.kg ⁻¹)											
Ca	380	409	380	164	263	433	455	23	20	450	43
Mg	10	9	8	5	44	21	13	10	9	12	1
K	1,3	3,5	1,8	2,6	5,5	10,3	8,9	3,4	3,7	7,5	0,6
Na	1,1	0,9	0,5	0,7	1,6	1,6	1,3	3,4	1,7	1,3	0,4
CEC**	79	120	71	131	258	228	230	116	75	169	25
Anions hydrosolubles (mg.kg ⁻¹)											
SO ₄	13	10	7	5	20	8	2	2	3	16	1
PO ₄	1	1	1	1	1	1	2	1	1	1	1
HCO ₃	397	397	244	244	366	580	458	183	183	153	122
Cl	<5	<5	<5	<5	<5	<5	<5	<5	<5	<5	<5
* MO = Matière organique ** CEC = Capacité d'échange cationique											

3.2.1.2. Techniques d'analyse

Détection des rayonnements

La technique utilisée est la spectrométrie γ germanium. Elle permet l'identification qualitative et quantitative des radionucléides dans un échantillon à l'état brut, c'est-à-dire sans séparation chimique de ses constituants. La seule contrainte est de préparer des échantillons de densité et de volume homogènes et constants. Des échantillons de plantes ou de sol secs sont homogénéisés par broyage et disposés dans un récipient de même volume que celui contenant l'étalon de radioactivité.

Le principe de la mesure consiste à utiliser les propriétés du germanium pur, sous forme d'un cylindre métallique de volume variable très souvent égal à 50 cm³. Porté à la température de 78 K par contact avec de l'azote liquide et soumis à une très haute tension (>4 kV), ce solide délivre une impulsion électrique s'il est traversé par un rayonnement ionisant d'énergie comprise entre environ 0,1 et 2 MeV. Dans cette gamme d'énergies, l'impulsion électrique délivrée est de hauteur proportionnelle à l'énergie du rayonnement incident. L'énergie du rayonnement étant une caractéristique du radionucléide émetteur, il est donc possible de faire son analyse qualitative. L'identification de l'émetteur est d'autant plus précise que le germanium a comme particularité, par rapport aux autres détecteurs (Si, NaI, CsI), de délivrer des impulsions très différentes pour des rayonnements incidents d'énergie moyenne peu différente (2 keV), ce qui permet l'analyse de radionucléides d'énergies très voisines et la mesure de mélanges très complexes. L'analyse des hauteurs d'impulsion est faite à l'aide d'un convertisseur électronique, après amplification du signal électrique. Le résultat de l'analyse est un spectre de raie représentant le nombre d'impulsions en ordonnée et leur énergie en abscisse (figure 3.5). Le nombre d'impulsions est proportionnel à l'activité de l'émetteur.

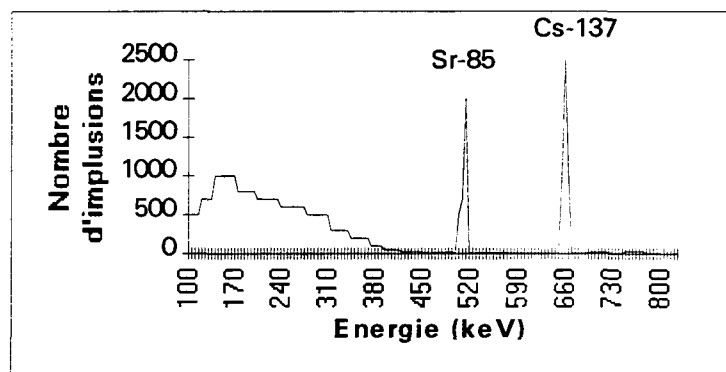


Figure 3.5 : exemple de spectre de raie γ

De nos jours, le système d'acquisition auquel est raccordé le détecteur a la taille d'une carte de crédit et s'adapte à la plupart des micro-ordinateurs qui permettent l'automatisation des fonctions de calibration, de réglage de la chaîne d'analyse, de stockage, et de présentation des résultats.

Le système doit subir une calibration en énergie qui consiste à stocker dans l'ordinateur le spectre de raies d'une source composite de radionucléides émetteurs γ d'énergies différentes se répartissant sur la gamme à étudier. L'opérateur doit affecter à chaque raie du spectre obtenu la valeur de l'énergie qui lui correspond. La machine est alors capable de comparer au spectre enregistré le spectre inconnu dont la forme aura préalablement été lissée par un algorithme de déconvolution procédant par interpolation. L'identification des radionucléides est automatisée grâce à l'introduction dans l'ordinateur d'une base de données comportant le nom des radionucléides et les énergies correspondantes, fournie et mise à jour par les fabricants de matériel.

L'analyse quantitative nécessite une calibration en activité. Une source homogène, de composition, de densité et d'activités connues, est introduite dans un volume déterminé appelé "géométrie de comptage" et placée sur le détecteur pour l'obtention d'un spectre. L'opérateur doit entrer au clavier de l'ordinateur les valeurs d'activité à la date de l'étalonnage ainsi que le volume et la masse de l'échantillon. Le rendement de comptage est défini par le rapport entre le nombre d'impulsions enregistrées par le spectromètre γ et le nombre de désintégrations nucléaires qui se produisent dans l'échantillon. L'activité d'un radionucléide est définie comme le nombre de désintégrations par seconde. L'activité mesurée est donc égale à :

$$A = \frac{n}{t} \times \frac{1}{R}$$

A = activité (Bq = nombre de désintégrations par seconde)

n = taux de comptage (nombre d'impulsions)

t = temps (s)

R = rendement de comptage $\left(\frac{\text{nombre d'impulsions par seconde}}{\text{nombre de désintégrations par seconde}} \right)$

Le rendement de comptage en césium-137 avec la géométrie de comptage utilisée est de 2%. Le rayonnement électromagnétique qui accompagne la désintégration d'un noyau d'atome se propage de façon anisotrope. Le rendement de comptage intègre donc la probabilité qu'a un rayonnement

d'interagir avec le détecteur. Cette probabilité dépend de la position de la source par rapport au détecteur et du volume du détecteur (figure 3.6).

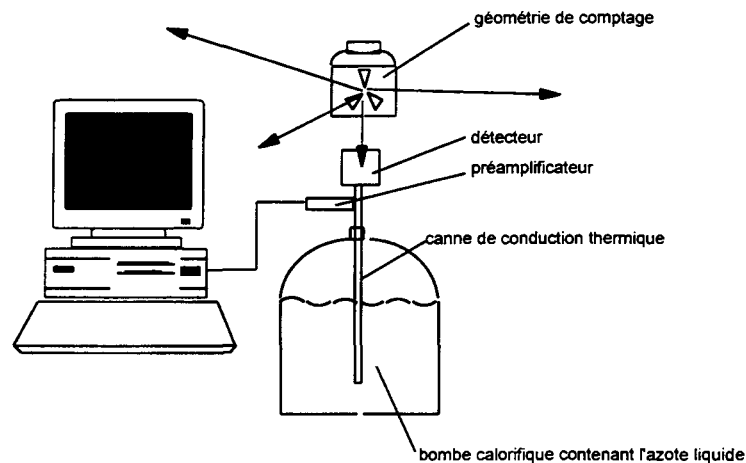


Figure 3.6 : représentation schématique d'une chaîne de comptage et du rendement de comptage

Le matériel de mesure utilisé est constitué d'un détecteur au germanium pur, de 10% d'efficacité relative relié à un spectromètre (INTERTECHNIQUE). L'échantillon à mesurer est placé sous une cloche recouverte d'un blindage en plomb de basse activité de 5 cm d'épaisseur (LEMER-CMCA/12). Dans ces conditions, le seuil de détection est d'environ 0,5 Bq par échantillon.

Analyse des cations échangeables

Les cations échangeables K^+ , Ca^{++} , Mg^{++} , Zn^{++} ont été déterminés dans notre laboratoire. La détermination est faite sur un extrait à l'acétate d'ammonium. Un volume de 25 cm³ d'une solution d'acétate d'ammonium 1 M, (pH 7) est mis en contact avec 10 g de sol sec tamisé à 2 mm. Le mélange est mis en mouvement par un agitateur magnétique pendant 1 heure à la température ambiante puis centrifugé à 15000 g pendant 5mn. Le surnageant est filtré sur une membrane en acétate de cellulose de 0,45 µm de porosité. L'analyse des ions est faite par spectrométrie d'absorption atomique (Philips PU/9100) à flamme oxyacétylénique en proportion stoechiométrique.

Analyses courantes

Le pH, la teneur en matière organique, les analyses granulométriques et les analyses minéralogiques ont été effectuées par un laboratoire spécialisé, selon les méthodes standardisées (Bonneau et Souchier, 1979).

Mesure du taux de saturation du sol

Le sol est séché à l'air, tamisé à 2 mm, puis disposé pour emplir à ras bord une boîte de Pétri de 50 mm de diamètre, puis pesé pour connaître le poids sec avoisinant généralement les 10 g. Il est ensuite humecté par de l'eau distillée apportée à l'aide d'une pipette jusqu'à ce qu'apparaissent inondées les micro-dépressions laissées à la surface du sol lors de sa mise en place dans les boîtes de Pétri. La quantité d'eau nécessaire à cette opération correspond à 100% de saturation.

3.2.1.3. Contamination des sols

Les radionucléides importants en radioécologie sont le césium-137 et le strontium-90, mais le choix des traceurs utilisés dans nos expériences, ^{134}Cs et ^{85}Sr , a été motivé par des impératifs expérimentaux. En effet, le césium naturel contient 100% de césium-133. Cet isotope stable se trouve donc à l'état pur dans la nature. Il a de plus une section efficace d'activation neutronique assez élevée ce qui facilite l'irradiation en pile du sel choisi et permet d'obtenir la quantité désirée et garantie de ^{134}Cs . Il est ainsi possible de disposer de sources de césium de radioactivité spécifique équivalente à celle du césium rejeté lors d'un accident nucléaire.

Le strontium n'a qu'un seul isotope émetteur γ : ^{85}Sr . Bien qu'il soit difficile et cher d'obtenir des sources de ^{85}Sr de radioactivité désirée, le choix de ce radionucléide a été dicté par la facilité de le mesurer au moyen de la spectrométrie γ .

Contamination du sol pour étudier le facteur de transfert

La procédure utilisée consiste à disposer le sol dans un conteneur en polyéthylène de $0,8 \times 0,8$ m sur une épaisseur de 1 à 2 cm, à le saturer d'eau contenant le radionucléide marqueur, puis à le laisser sécher jusqu'à pouvoir le manipuler sans provoquer l'adhérence du sol aux outils de prélèvement²

Dans l'expérience préliminaire qui portait sur les 11 échantillons de sol, une masse de 3 kg de sol a été contaminée par ^{134}Cs . Le sol a ensuite été transféré dans des pots cylindriques en polyéthylène, où ont été semés des haricots verts. Les feuilles et les tiges des plantes coupées après 3 semaines de culture sous serre ont été soumises au comptage par spectrométrie γ . La mesure de l'activité du sol a été réalisée sur un échantillon de 10g afin de calculer le facteur de transfert (Ft).

Dans les expériences suivantes portant sur 5 échantillons, une masse de sol de 10 kg a été utilisée. Le nombre de répétitions pour un même sol et une même plante était de trois dans la première expérience et de 2 dans les expériences suivantes (annexe 1).

Contamination du sol pour mesurer Kd

Un volume d'eau d'environ 20% supérieur à la saturation est utilisé pour contaminer le sol à l'aide de solutions de césium-134 et de strontium-85. L'eau distillée contenant 60 kBq de ^{134}Cs et 6 kBq de ^{85}Sr est déversée sur 10 g de sol sec placé dans une boîte en polyéthylène de 5 cm de diamètre et 5 cm de hauteur. Le sol se trouve ainsi immergé dans la solution contaminante de telle sorte que l'échantillon soit contaminé de façon homogène.

3.2.2. Mesure de l'interaction des radionucléides avec le sol à l'aide du coefficient Kd

Pour déterminer ce coefficient dans des conditions représentatives du mécanisme à décrire, à savoir, l'absorption des radionucléides par les plantes, le parti a été pris de mesurer l'activité de la solution du sol lorsque le volume de solution sur la masse de sol (V/M) correspondait à 70% de la saturation du sol en eau. Ce coefficient, défini par la relation suivante:

² Remarque : pour des raisons de radioprotection, le sol contaminé ne doit pas être complètement sec lors de sa manipulation afin d'éviter la formation de poussière susceptible d'être inhalée ou redéposée dans le laboratoire.

$$K_d = \frac{\text{Activité dans le sol (Bq.g}^{-1}\text{)}}{\text{Activité dans l'eau du sol (Bq.cm}^{-3}\text{)}}$$

est lui même dépendant d'un grand nombre de facteurs, dont notamment le rapport entre le volume de solution et la masse de sol (V/M). Ce pourcentage d'humidité du sol correspond à la réserve en eau facilement accessible par les racines des végétaux. Peu de méthodes ont été décrites comme permettant d'extraire l'eau du sol dans ces conditions. La plupart d'entre elles font appel à la force centrifuge (Davies et Davies, 1963; Mubarak et Olsen, 1976; Van Praag et Weissen, 1984). Plus nombreuses sont les méthodes de mesure de K_d en conditions saturées.

3.2.2.1. Méthode par centrifugation

La méthode de Mubarak et Olsen, (1976) a été utilisée. Cette méthode consiste à analyser la composition de la solution du sol après extraction de cette dernière par la dispersion du sol humide dans du chloroforme, de densité connue pour être supérieure à celle de l'eau. Après centrifugation, l'eau est recueillie par pipettage à la surface de la phase organique, filtrée sur une membrane en acétate de cellulose puis comptée par spectrométrie γ .

3.2.2.2. Méthode de mesure de K_d en conditions saturées.

La méthode de Benes, Stamberg, et Stegmann, (1994) a été utilisée. Le sol sec contaminé selon la procédure décrite ci avant dans ce chapitre est placé dans un flacon en polyéthylène de 60 cm³ puis mis en contact avec de l'eau distillée dans un rapport de masse égal à 1 g de sol pour 2,5 g d'eau. Après 1 heure d'agitation, l'eau est filtrée sur une membrane en acétate de cellulose de 0,45 μ m de porosité. Le filtrat est compté par spectrométrie γ

3.2.2.3. Nouvelle méthode de mesure de K_d par absorption à l'aide de résine polyacrylamide.

absorption de l'eau du sol

La recherche d'une nouvelle méthode d'extraction de la solution du sol faisant appel à d'autres forces que la force centrifuge a été guidée initialement par le souci de reproduire plus fidèlement les conditions naturelles. En effet, les forces qui gouvernent l'absorption de l'eau par les végétaux sont la pression osmotique et la tension capillaire. Or une certaine analogie peut être faite entre ce modèle naturel et les forces mises en oeuvre pour l'absorption d'eau par certains matériaux hydroabsorbants tels que les résines polyacrylamides : les forces d'imbibition entraînent un flux d'eau par l'attraction électrostatique exercée entre les charges négatives du polymère et les pôles positifs des molécules d'eau.

Après évaporation de l'eau contaminante, le sol est remué à l'aide d'une spatule métallique afin de casser la croûte de battance et d'homogénéiser l'échantillon. Cette opération doit être faite sous hotte aspirante pour éviter l'inhalation par l'opérateur de poussière de sol contaminé. Le sol est ensuite réhumecté à 70% de la saturation, puis recouvert d'une membrane en acétate de cellulose de 47 mm de diamètre et de 0,45 μ m de porosité. Cette membrane constitue l'interface entre le sol et le polymère hydroabsorbant placé au dessus. Dans les conditions de l'expérience, la porosité de la membrane semble avoir peu d'importance sur le résultat car des membranes de porosité de 0,01 et 0,25 μ m se sont avérées donner des résultats similaires à celles de 0,45 μ m. Cette dernière porosité est habituellement considérée par les radioécologistes comme permettant d'isoler la fraction soluble d'une solution contenant des radionucléides, définition assez arbitraire.

Le polymère hydroabsorbant est constitué de résine polyacrylamide anionique réticulée, dont la charge électrique est neutralisée par du sodium. Il se présente sous forme de grains anguleux de 2 à 3 mm de longueur maximale, intercalés entre deux couches de papier pour former des plaques de 25 cm largeur et de 2 à 3 m de longueur qui sont généralement utilisées en horticulture comme substrat de culture hydroponique (SODETRA, 06, La Gaude, France). Un disque de 2 cm de diamètre est découpé dans ces plaques à l'aide d'un emporte pièce. Les disques sont choisis pour contenir une répartition de grains de polyacrylamide la plus homogène possible, pesés, puis placés sur le sol au dessus de la membrane d'acétate de cellulose. Un disque de plomb de 5 mm d'épaisseur et 2 cm de diamètre est placé au dessus de l'absorbant pour presser le polymère sur le filtre afin d'assurer un contact étroit avec le sol. La boîte de polyéthylène contenant ce dispositif est ensuite fermée à l'aide d'un couvercle pour éviter la perte d'eau par évaporation (annexe 2).

Comptage de l'eau absorbée

Après un temps de contact d'environ 16 heures, les disques de polyacrylamide sont retirés du sol, pesés et placés au centre d'une boîte de comptage en polychlorure de vinyle de 4 cm de diamètre et 1 cm d'épaisseur, munie d'un couvercle scellé par de la colle, afin d'éviter l'ouverture accidentelle de la boîte et la contamination éventuelle du détecteur. La masse d'eau extraite du sol déterminée par différence de pesée correspond à environ 80% de l'eau introduite dans le sol. La mesure par spectrométrie γ nécessite environ 1 heure par échantillon, temps généralement suffisant pour limiter l'erreur sur le taux de comptage à moins de 10%.

comparaison avec les méthodes existantes

Cette nouvelle méthode de mesure de K_d en conditions insaturées a été comparée aux méthodes existantes :

- la méthode dite "Immiscible displacement of the soil solution" par centrifugation (Mubarak et Olsen, 1976)
- la méthode dite "batch", en conditions saturées (Benes, Stamberg, et Stegmann, 1994).

3.2.3. Analyse des corrélations du facteur de transfert.

Cette expérience a été faite à partir d'une culture de ray-grass semé sur les sols précédemment sélectionnés. Le marquage des sols et la culture des plantes ont été réalisés selon la procédure décrite ci-avant dans ce chapitre.

L'analyse des corrélations est le résultat d'un calcul de régression linéaire effectué à l'aide du logiciel Systat (Systat Inc.) La régression linéaire a été utilisée pour estimer la relation existant entre le facteur de transfert (F_t) appelé variable à expliquer, et chacune des variables caractéristiques du type de sol pour lequel F_t a été calculé, appelées variables explicatives. Dans cette expérience, le paramètre de régression utilisé est le coefficient de détermination R^2 .

Rappel :

Le coefficient de détermination R^2 est défini par la relation suivante (Scherrer, 1984) :

$$R^2 = \frac{\text{Dispersion expliquée par la régression}}{\text{Dispersion expliquée par la régression} + \text{dispersion due aux erreurs}}$$

R^2 est compris entre 0 et 1. Lorsque $R^2 = 1$, la dispersion due aux erreurs est nulle et les deux variables sont parfaitement liées l'une à l'autre. Lorsque $R^2 = 0$, la dispersion expliquée par la

régression est nulle. $R^2 = 0,5$, signifie que 50% de la variation d'un paramètre est expliqué par la variation de l'autre paramètre.

3.2.4. Expériences de transfert sol-plante de Cs et Sr aux principales plantes cultivées autour des sites nucléaires français.

Une liste des principales plantes cultivées autour des sites nucléaires français a été déterminée par une enquête sur l'occupation des sols réalisée dans le cadre du programme RESSAC (Rapport, 1991). L'un des buts était de disposer de valeurs de références du facteur de transfert sol-plante pour les plans d'intervention en cas d'accident nucléaire, afin de modéliser l'impact de la contamination éventuelle de ces plantes sur la dose par ingestion, d'identifier les voies critiques d'atteinte des populations et de prévoir les mesures pour y remédier.

Pour ce faire, 9 plantes : le ray-grass, le blé, le maïs, la pomme de terre, le tournesol, le colza, le haricot, la carotte ont été cultivées en serre selon la procédure décrite ci-avant, dans des pots contenant 10 kg de sol appartenant aux 5 types précédemment sélectionnés. En raison des contraintes relatives au niveau de radioactivité manipulable lors d'une même expérience, deux essais seulement ont été réalisés par plante et par sol. Pour des raisons pratiques, notamment de disponibilité des sources de ^{85}Sr dont la période courte n'a pas toujours permis un approvisionnement constant, certaines plantes ont été cultivées sur des sols contaminés par le mélange de ^{134}Cs et ^{85}Sr , d'autres sur des sols contaminés par ^{85}Sr seul. Autant que possible, le facteur de transfert de Cs et Sr a été calculé pour différents organes des plantes cultivées, la partie comestible et la partie végétative, feuille ou tige.

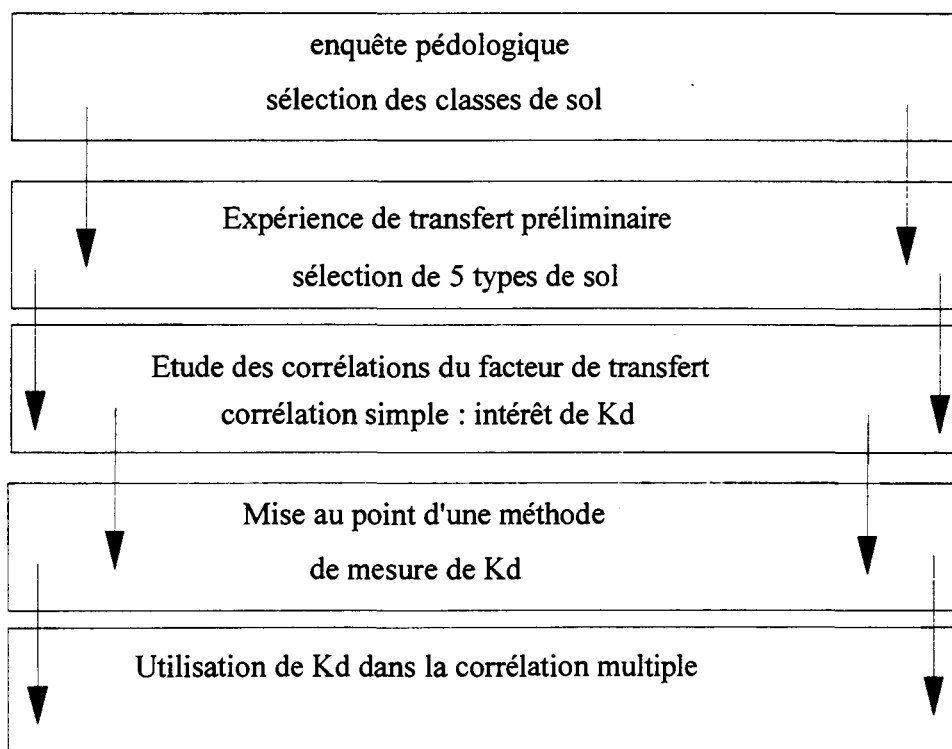


Figure 3.7 : schéma récapitulatif des expériences réalisées

3.3. Résultats obtenus : expérimentations en laboratoire

3.3.1. Expérience préliminaire de transfert sol-plante

Les 11 sols étudiés se répartissent en 3 catégories quant à leur comportement vis à vis du facteur de transfert sol-plante du césium au haricot. Le sol n°2, sol alluvial calcaire de la vallée du Rhône prélevé à proximité du site de Tricastin, se caractérise par un facteur de transfert très faible ($<0,001$) qui l'individualise nettement. Ce sol méritait donc d'être retenu dans la gamme de sols à étudier pour la suite des expérimentations (figure 3.8). Vient ensuite une série de sols : n° 3, 6, 8, 9, 10, 17, 19 pour lesquels les facteurs de transfert sont assez voisins tout en étant assez faibles (0,001-0,002). Le choix de deux sols dans cette catégorie a été guidé essentiellement par la répartition géographique des sites représentés : Cruas dans l'Ardèche et Cattenom dans la Moselle. Une troisième série est représentée par des sols pour lesquels le facteur de transfert diffère beaucoup des autres par des valeurs élevées (0,007-0,013). Les deux sols les plus éloignés l'un de l'autre par le facteur de transfert et la situation géographique ont été choisis : Saint Alban (Isère) n°5 et Belleville (Loiret) n°20.

Il est important de remarquer que les sols ayant des facteurs de transfert très faibles ont tous des teneurs en argile assez élevées ($>15\%$), alors que les sols ayant un facteur de transfert élevé ont des teneurs en argile relativement faible ($<10\%$), à l'exception du sol sol N° 16 qui se caractérise par un pH très faible (pH4,7). Il apparaît donc que plusieurs paramètres caractérisant le type de sol peuvent expliquer la variabilité du facteur de transfert. Afin de dégager les paramètres les plus significatifs à prendre en compte dans la modélisation prédictive des flux de radionucléides du sol vers les plantes, l'analyse systématique des corrélations du facteur de transfert s'est avérée nécessaire, sur la base d'une nouvelle expérience.

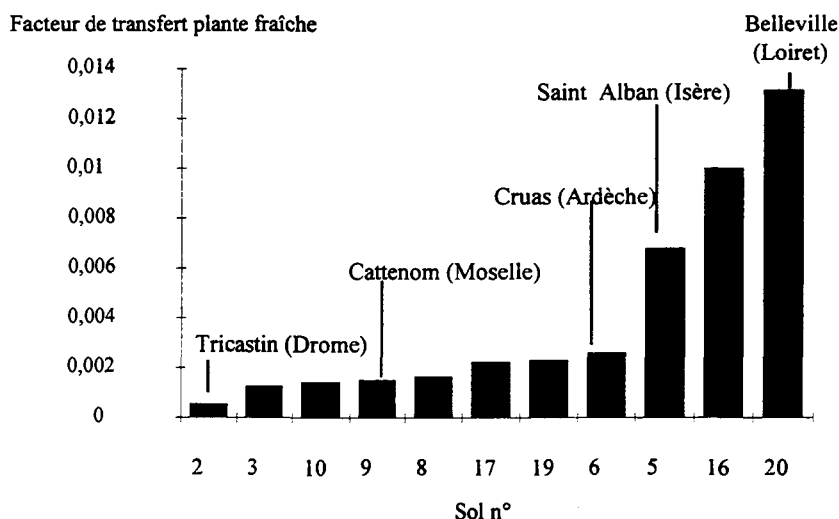


Figure 3.8 : facteur de transfert sol-plante du césium-134 aux tiges et aux feuilles de haricot vert. Nom des sites de prélèvement des échantillons choisis pour la suite des expérimentations.

3.3.2. Influence des paramètres liés au type de sol

3.3.2.1. Césium

Les facteurs de transfert de ^{134}Cs et ^{85}Sr ou leur logarithme népérien constituent les observations dont on souhaite expliquer les fluctuations. Les statisticiens utilisent le terme de "variables à expliquer" pour désigner les observations. Les paramètres qui caractérisent les sols, c'est-à-dire essentiellement les résultats d'analyse présentés au tableau 3.5 sont appelées "variables explicatives".

Le logarithme népérien ($\ln$) du facteur de transfert de ^{134}Cs (Ft_{Cs}) est généralement mieux corrélé que Ft_{Cs} comme le montrent les valeurs de R^2 (Tableau 3.6). Les variables qui expliquent le mieux Ft_{Cs} sont K^+ échangeable et la proportion d'illite dans le sol. Cependant, la relation entre Ft_{Cs} et la teneur en illite dans le sol ne s'établit pas dans le sens attendu car le signe positif de la pente de la droite de régression indique que Ft_{Cs} augmente lorsque la teneur en illite augmente.

Tableau 3.6 : "variables explicatives" du facteur de transfert (Ft) ou $\ln\text{Ft}$ de ^{134}Cs et ^{85}Sr au ray-grass et valeurs du coefficient de détermination R^2 .

Variable explicative	Ft_{Cs}	$\ln\text{Ft}_{\text{Cs}}$	Ft_{Sr}	$\ln\text{Ft}_{\text{Sr}}$
K^+ échangeable	0,34	-0,59	0,64	-0,52
pH	0,25	-0,29	0,52	-0,20
Matière organique	0,03	-0,12	0,29	-0,35
Ca^{++} échangeable	0,36	-0,45	0,79	-0,49
Sable	0,30	+0,46	0,71	+0,50
Limon	0,25	-0,41	0,61	-0,48
Argile	0,35	-0,49	0,77	-0,44
Montmorillonite	0,11	-0,06	0,10	-0,00
Vermiculite	0,09	-0,10	0,21	-0,55
Kaolinite	0,00	-0,02	0,17	-0,27
Illite	0,52	+0,58	0,83	+0,50
Quartz	0,07	-0,15	0,14	-0,00
Capacité d'échange cationique	0,31	-0,36	0,71	-0,79
Zinc total	0,35	-0,36	0,41	-0,52
Mg^{++}	0,21	-0,31	0,53	-0,67
Humidité du sol à saturation	0,14	-0,18	0,48	-0,66
Le signe affectant certains coefficients est le signe de la pente de la droite de régression. Il n'est donné, à titre indicatif, que pour ($\ln\text{Ft}$)				

Cette observation n'est pas cohérente avec le mécanisme présumé d'interaction du césium avec l'illite qui est connue pour piéger le césium dans le sol et devrait par conséquent se traduire normalement par une diminution de Ft_{Cs} . Il est probable que la présence d'illite qui est une argile à faible capacité d'échange cationique se traduise au contraire par une faible rétention de césium, qui est probablement retenu de façon plus sélective par l'illite, mais en quantité plus faible que sur les autres argiles. La régression entre la capacité d'échange cationique et l'illite indique une assez bonne corrélation ($R^2 = 0,57$) et une pente négative qui tendrait à vérifier l'hypothèse de la faible capacité des sols pourvus en illite.

La relation entre Ft_{Cs} et K^+ échangeable peut s'expliquer de deux manières :

- K^+ échangeable traduit la capacité d'échange pour l'ion potassium analogue du césium. Si le césium dispose d'un grand nombre de sites de fixation sur le sol, il sera moins abondant dans la solution du sol ce qui se traduit par un Ft_{Cs} faible comme l'indique la pente négative de la droite de régression

- Si la capacité d'échange de K^+ est élevée, la réserve en K^+ dans le sol et la solution du sol est élevée. Or K^+ peut avoir un rôle antagoniste de l'absorption de Cs par le ray-grass qui se traduit par une pente négative de la droite de régression.

3.3.2.2. Strontium

A la différence de Ft_{Cs} , le facteur de transfert du strontium, (Ft_{Sr}) est mieux corrélé aux paramètres décrivant le type de sol que le logarithme népérien du facteur de transfert ($\ln Ft$). Cette différence n'est pas surprenante étant donné que Ft_{Cs} et Ft_{Sr} ont des valeurs très différentes : 0,004-0,27 et 2-25 respectivement. De plus, l'amplitude de variation de Ft_{Cs} est bien supérieure à celle de Ft_{Sr} . La régression entre Ft_{Cs} et $\ln Ft_{Sr}$ montre que ces deux variables ont une distribution log-normale, avec un coefficient de détermination R^2 égal à 0,74.

Les variables caractérisant le type de sol qui expliquent plus de 70% des variations de Ft_{Sr} sont celles qui traduisent indirectement la capacité d'échange cationique : Ca^{++} échangeable, la teneur en sable, la teneur en argile, la teneur en illite et la capacité d'échange cationique elle-même.

Il semble donc que l'échange d'ion occupe une place prépondérante dans les mécanismes explicatifs des variations de Ft_{Cs} et Ft_{Sr} . L'échange d'ion est supposé intervenir dans la libération de Cs^+ et Sr^{++} dans la solution du sol, c'est-à-dire dans la disponibilité des radionucléides pour les plantes. A ce stade de l'étude des corrélations du facteur de transfert, la question se pose de pouvoir éventuellement disposer d'un paramètre pour mesurer la disponibilité des radionucléides pour les plantes.

3.3.3. Comparaison des 3 méthodes de mesure de K_d .

La comparaison des 3 méthodes est basée sur la valeur prédictive de K_d pour le transfert sol-plante des radionucléides. Les valeurs de K_d pour les 3 méthodes et les 5 types de sols retenus ont été utilisées dans un calcul de régression linéaire exprimant les facteurs de transfert (Ft) de ^{134}Cs et ^{85}Sr au haricot en fonction de K_d (figure 3.9). Les paramètres statistiques indiquent que le K_d du césium est généralement assez mal corrélé au facteur de transfert. La corrélation de K_d de ^{134}Cs mesuré avec la méthode par absorption donne cependant le coefficient de détermination le plus élevé. Le K_d du strontium mesuré par cette dernière méthode est assez bien corrélé au facteur de transfert et donne le meilleur coefficient de corrélation parmi les méthodes testées. (Tableau 3.7). Il n'est cependant pas possible de vérifier l'hypothèse de normalité des distributions de K_d et Ft en raison du petit nombre d'observations. Dans ce cas, l'utilisation d'un coefficient de corrélation de rang (ρ) est plus appropriée. Le coefficient de corrélation non paramétrique de Spearman (Scherrer, 1984) est égal à 0,8 pour la relation de Ft et de K_d de ^{134}Cs mesuré par les méthodes "Batch" et Absorption et de 0,9 pour la méthode par centrifugation. Pour ^{85}Sr , ρ est égal à 0,6 et 0,8 pour les méthodes "Batch" et Absorption, respectivement. Pour que l'hypothèse d'indépendance des variables Ft et K_d puisse être rejetée, il faut que ρ soit $\geq 0,8$ avec une probabilité de 95%. Les résultats obtenus ne remplissent pas cette condition pour la méthode "Batch" qui apparaît donc inutilisable pour établir une corrélation entre K_d et Ft pour le strontium. En l'absence de résultats concernant le K_d de ^{85}Sr mesuré avec la méthode par centrifugation, il n'est pas possible de conclure définitivement à la supériorité de la

méthode par absorption à l'aide de polyacrylamide. Cette méthode présente cependant comme avantage une grande facilité de mise en oeuvre par rapport à la méthode par centrifugation qui a donc motivé son adoption pour la suite des expérimentations. Des recherches ultérieures ont confirmé la supériorité de la méthode par absorption sur les méthodes par centrifugation quant à la valeur prédictive du facteur de transfert étudié pour d'autres types de sols.

Dans le meilleur des cas, le coefficient de détermination (tableau 3.5) de la régression de Ft_{Cs} et K_d est de 0,46. Cette valeur indique que K_d n'explique que 46% des variations de Ft_{Cs} au haricot. Les résultats de l'expérience précédente, relative à l'étude des corrélations de Ft_{Cs} à l'herbe, ont montré que d'autres variables expliquaient à elles seules jusqu'à 59% de la variation de Ft . Ce résultat suggère que la variation de Ft_{Cs} est le résultat de l'influence de plusieurs variables. D'après les données de la littérature, les variables exprimant la capacité d'échange cationique du sol peuvent expliquer la variabilité du facteur de transfert (§3.1.1.1). Pour identifier les variables explicatives d'un paramètre étudié tels que par exemple Ft_{Cs} il est possible d'utiliser la régression linéaire multiple.

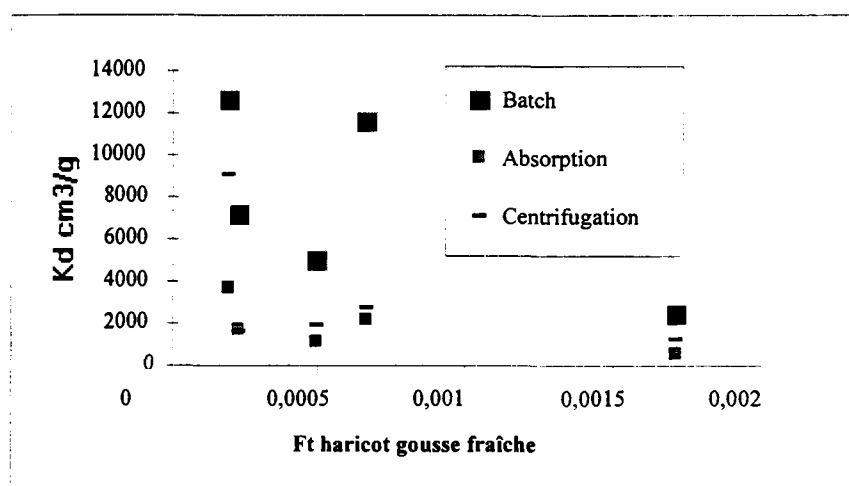


Figure 3.9 : facteur de transfert de ^{134}Cs au haricot et K_d mesuré par différentes méthodes.

Tableau 3.7 : paramètres statistiques de la régression linéaire exprimant le facteur de transfert (Ft) de ^{134}Cs et ^{85}Sr au haricot en fonction du coefficient de distribution K_d .

Méthode	Batch		Absorption		Centrifugation
	^{134}Cs	^{85}Sr	^{134}Cs	^{85}Sr	^{134}Cs
Pente	-4649096	-74,43	-1279343	-57,20	-2492088
Ordonnée à l'origine	10856	120,14	2744	46,70	4988
Coefficient de détermination r^2	0,44	0,46	0,46	0,78	0,22

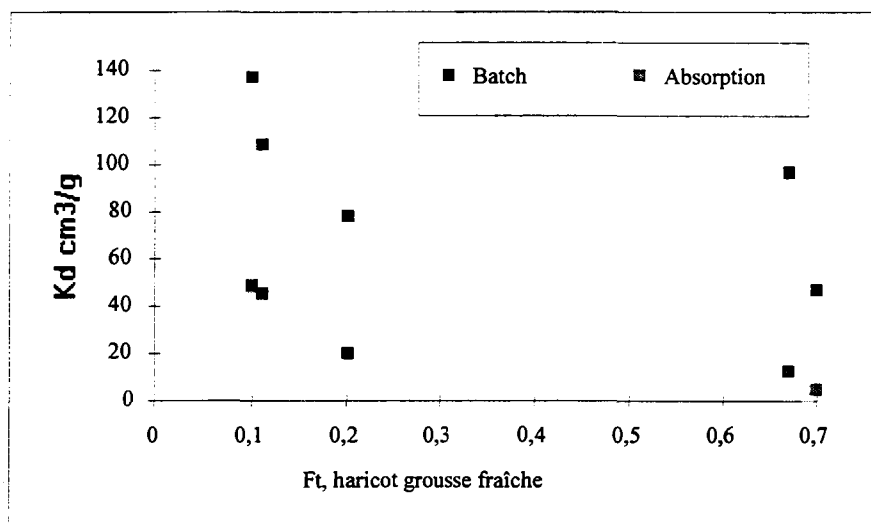


Figure 3.10 : facteur de transfert de ^{85}Sr au haricot et Kd mesuré par différentes méthodes.

Il est important de noter que Kd mesuré par la nouvelle méthode à l'aide d'un polyacrylamide a des valeurs généralement plus faibles que Kd mesuré par les autres méthodes (Figure 3.9 et 3.10). Cela signifie que lorsque la méthode utilisée se rapproche des conditions dans lesquelles les plantes absorbent l'eau et les sels minéraux, la quantité extraite est plus importante qu'avec des méthodes plus énergiques telles que la dilution ou la centrifugation. Cette observation peut conduire à s'interroger sur la validité des méthodes de spéciation des radionucléides dans le sol basées sur des traitements peu respectueux des équilibres naturels, telles que par exemple les extractions séquentielles à l'aide d'acides forts. Cette constatation nous a amené à choisir la nouvelle méthode pour la suite des expérimentations.

3.3.3.1. Régression multiple

Lors de l'expérience précédente, sur l'étude des corrélations du facteur de transfert, un calcul de régression multiple a été effectué entre LnFt_{CS} à l'herbe cultivée, avec comme variable supplémentaire Kd mesuré par la méthode par absorption.

La corrélation multiple permet d'identifier le groupe de variables qui explique le mieux LnFt_{CS} à l'aide de l'estimation donnée par le coefficient de détermination (Tableau 3.8).

Tableau 3.8 : coefficients de la régression multiple des variables explicatives de LnFt_{CS} et coefficients de détermination.

Coefficient de détermination	0,382	0,593	0,656	0,890	0,808	0,836	0,885	0,913
Kd	-0,084	0,006	0,035	0,067	-0,335		-0,073	
K^+		-0,334	-0,303	-0,409	0,067	-0,280	-0,493	-0,469
Ca^{++}			-0,003	0,007		0,007		
Illite				0,069	0,033	0,061		
Mat. Organ.							0,095	0,091
Sable								0,004
Constante	-2,233	-1,810	-1,789	-6,352	-3,958	-5,702	-2,991	-6,490

Les cases du tableau sont vides lorsqu'une variable n'a pas été utilisée dans le calcul de régression multiple. Le coefficient affectant la variable identifiée dans la première colonne du tableau est donné dans le cas contraire.

Plusieurs modèles associant 3 variables permettent d'expliquer plus de 88% de la variation de Ft_{Cs} . Le logarithme népérien de la variable à expliquer, $LnFt_{Cs}$, ayant été introduit dans le calcul de régression, ce modèle est de la forme :

$$y = e^{(ax + bw + Cz + constante)}$$

où

$$y = Ft_{Cs}$$

b, c = les variables explicatives telles que Kd, K, ou la teneur en matière organique

w, z = les coefficients affectant ces variables.

Le signe des coefficients affectant les variables donne une indication de la pertinence du modèle. En effet, lorsque par exemple le coefficient affectant la variable Kd a un coefficient positif, le modèle de régression multiple considéré n'est pas une bonne représentation de la réalité puisque les résultats expérimentaux montrent que Ft_{Cs} diminue lorsque Kd augmente ce qui correspond à une pente négative de la droite de régression reliant ces deux variables. Ainsi, deux modèles seulement permettent d'ajuster des coefficients dont le signe corresponde aux observations expérimentales :

- celui associant Kd, K et le pourcentage d'illite dans le sol
- celui associant Kd, K, et la teneur en matière organique

Cependant, le modèle obtenu dans cette expérience a été déterminé en utilisant l'option de calcul automatique de régression linéaire pas à pas ascendante (Scherrer, 1984) qui consiste à ajouter successivement les variables qui maximisent le coefficient de détermination qui est recalculé à chaque étape. Ainsi le modèle associant K, et les teneurs du sol en sable et matière organique permet d'expliquer plus de 90% des variations de Ft_{Cs} .

Néanmoins, un choix basé uniquement sur un critère mathématique ne peut pas se substituer complètement à la démarche du chercheur pour établir la pertinence du choix des variables prédictives car le choix de l'échantillon sur lequel porte l'analyse statistique peut introduire un biais que le modèle mathématique ne peut pas détecter, alors que le chercheur peut interpréter les résultats sur la base d'observations qui débordent le seul cas étudié.

Par exemple, dans le cas présent, l'introduction de la variable sable peut s'expliquer par le fait que l'un des sols utilisés contient plus de 75 % de sable grossier ce qui a pour conséquence d'élargir la distribution de la variable "sable", condition favorable à une bonne corrélation de cette variable. Or, il est probable que pour une variation plus faible des teneurs en sable dans l'échantillon sur lequel porte l'analyse statistique, la variable sable n'aurait pas été introduite. Cette situation pourrait se présenter à Tchernobyl où tous les sols ont des teneurs en sable très élevées. La variation des teneurs en sable d'un lot d'échantillons de sol prélevés sur ce site ne permettrait probablement pas d'obtenir une bonne corrélation entre la teneur en sable et Ft_{Cs} .

Il semble donc que la variable Kd, qui, comme la teneur en sable, traduit la capacité d'échange du césium sur le sol, soit mieux adaptée à un modèle générique que celui utilisant la teneur en sable.

3.3.3.2. Conclusion

L'analyse des corrélations du facteur de transfert du césium à l'herbe montre que deux modèles décrivent convenablement les observations expérimentales à l'aide des variables " K^+ échangeable" et "teneur en matière organique". A ces deux variables communes aux deux modèles s'ajoutent, les variables " K_d " dans l'un des modèles (figure 3.11), et "teneur en sable" dans l'autre. Ces deux dernières variables sont étroitement reliées. En effet le coefficient de détermination de la régression linéaire entre " K_d " et "sable" est de 0,78. Elle traduisent toutes deux la disponibilité du césium dans la solution du sol. La distribution des résidus des deux modèles est à peu près identique (figure 3.12 et 3.13) ce qui satisfait l'une des conditions d'application de la régression multiple. Cependant la distribution oblique des résidus indique que les deux modèles sont encore entachés d'erreurs importantes probablement dues aux erreurs expérimentales. Une autre limite à l'analyse des corrélations est le nombre restreint d'observations. L'opportunité de faire une analyse sur un plus grand nombre d'observations s'est présentée lors de l'étude du facteur de transfert pour les principales plantes cultivées autour des sites nucléaires français.

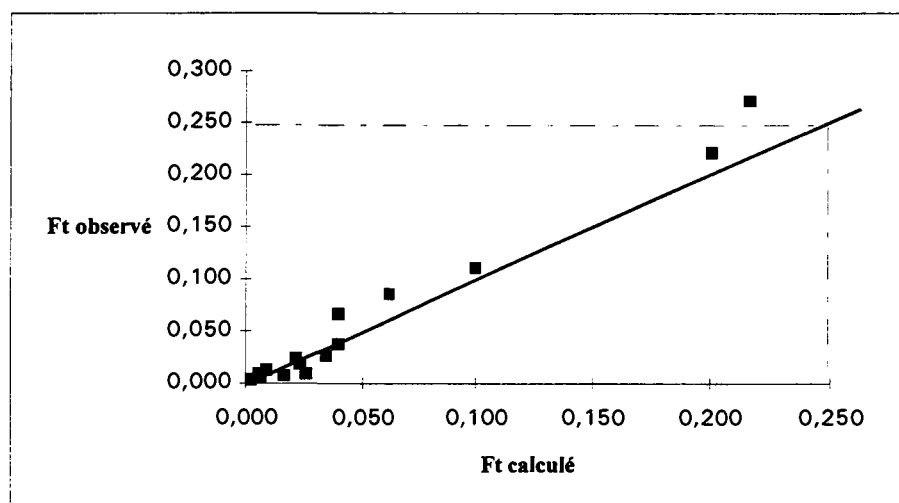


Figure 3.11 : facteur de transfert du césium à l'herbe, valeurs calculées par le modèle à trois variables (K_d , MO, K^+) et valeurs observées.

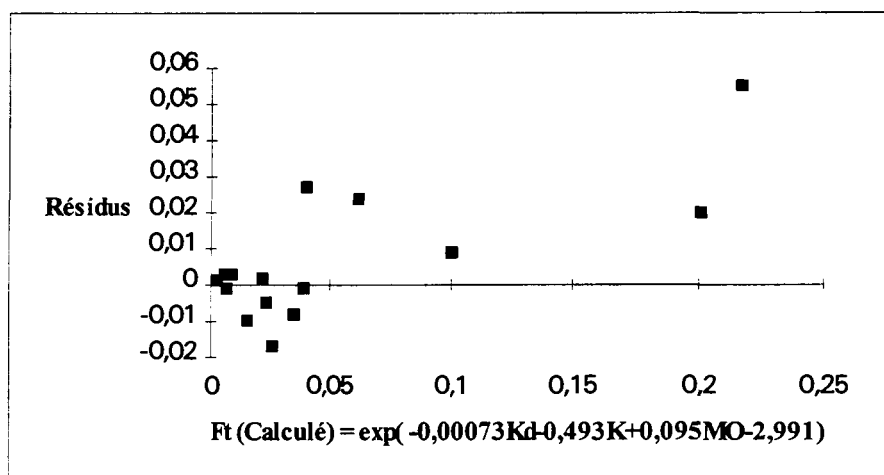


Figure 3.12 : facteur de transfert du césium à l'herbe et résidus du modèle à trois variables (Kd, MO, K⁺). Les résidus sont égaux à la différence entre valeurs calculées et valeurs observées de FtCs.

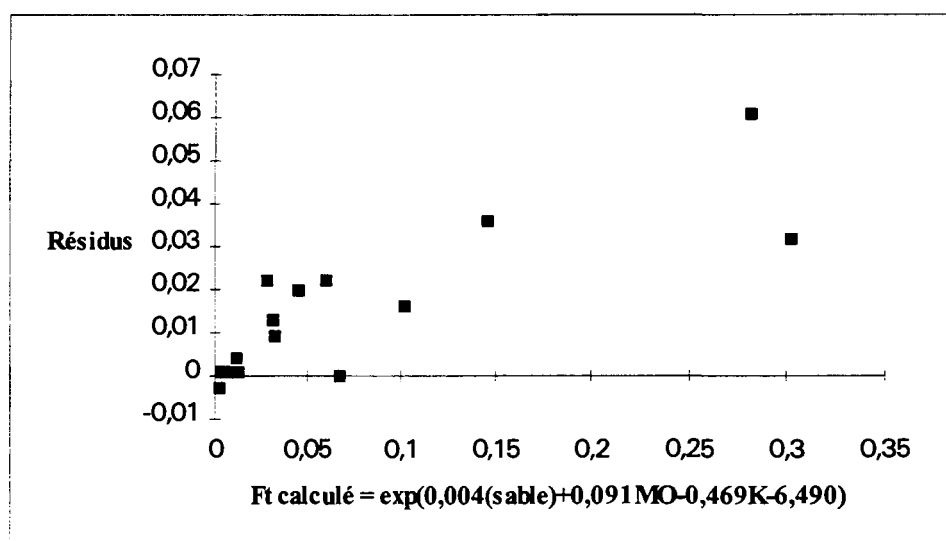


Figure 3.13 : facteur de transfert du césium à l'herbe et résidus du modèle à trois variables (Sable, MO, K⁺). Les résidus sont égaux à la différence entre valeurs calculées et valeurs observées de FtCs.

3.3.4. Essai de modélisation du transfert sol-plante de Cs et Sr.

Les résultats montrent une assez grande dispersion des facteurs de transfert du césium en fonction du type de sol et en fonction des espèces et des tissus végétaux (Figures 3.14 et 3.15).

3.3.4.1. Césium

Distribution de Ft_{Cs} en fonction des espèces et des tissus végétaux

Le facteur de transfert moyen pour chaque espèce végétale semble assez bien lié au type de production : céréale, tubercule ou oléagineux. Cette dernière catégorie semble en particulier prélever davantage de césium que les céréales. La partie végétative des différentes espèces a un Ft plus élevé que les organes de réserve. Par exemple, la gousse de haricot contient moins de strontium que la feuille. Il faut noter cependant que la comparaison de la contamination des différents organes végétaux n'est possible que lorsque le facteur de transfert est calculé pour une même teneur en eau de l'échantillon en tenant compte du fait que Ft calculé pour un tissu frais est plus faible que pour un tissu sec.

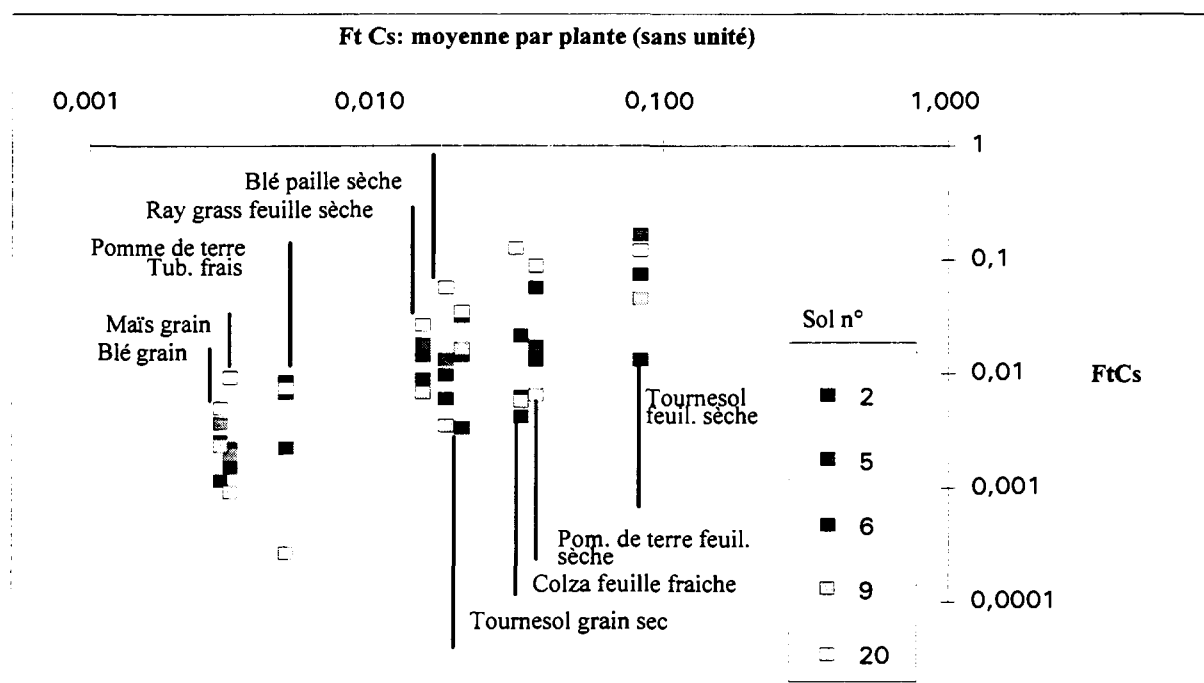


Figure 3.14 : facteur de transfert moyen du césium aux différentes plantes et distribution des valeurs observées pour chaque type de sol.

Distribution en fonction des types de sols

Bien que les valeurs moyennes de Ft pour chaque plante soient très différentes, l'ordre dans lequel les sols peuvent être classés par rapport au facteur de transfert de Cs et Sr est en général assez constant quel que soit le type de plante (figure 3.14). Il est possible d'interpréter cette observation comme une indication de la prépondérance des facteurs liés au type de sol dans la variabilité du transfert sol-plante. Un corollaire de ce postulat pourrait être qu'il existe une bonne corrélation des facteurs de transfert aux différentes plantes sur les différents sols pris deux à deux. Pour tester cette hypothèse, un calcul de régression linéaire des facteurs de transfert a été effectué pour toutes les combinaisons possibles de deux sols. La matrice des coefficients de détermination R^2 met en évidence le comportement singulier du sol n°2, alluvial calcaire de Tricastin. Ainsi, le coefficient de

détermination est supérieur à 0,70 pour les combinaisons des sols 5, 6, 9 ou 20 alors qu'il ne dépasse pas 0,46 pour toutes les combinaisons avec le sol 2 (Tableau 3.9). Il semble donc que sur le sol n°2, les différentes plantes n'absorbent pas le césium de la même façon que sur les autres sols.

L'une des caractéristiques de ce sol est sa teneur très élevée en calcaire actif (150g.kg^{-1}). La plupart des autres sols en sont dépourvus à l'exception du sol n°9 qui en contient 88g.kg^{-1} (tableau 3.5). Or ce paramètre est très important pour l'adaptation des espèces végétales à leur substrat.

En admettant que les sols à forte teneur en calcaire actif soient un cas particulier pour lequel un modèle générique n'est pas applicable, nous ferons l'hypothèse que les variations de Ft_{Cs} pour chaque plante par rapport à sa valeur moyenne ne dépend que du type de sol.

Tableau 3.9 : coefficient de détermination R^2 de la régression linéaire des facteurs de transfert pour 8 plantes entre les différents types de sols.

Sol n°	2	5	6	9	20
2	1,00	0,46	0,34	0,30	0,44
5	0,46	1,00	0,95	0,91	0,92
6	0,34	0,95	1,00	0,97	0,79
9	0,30	0,91	0,97	1,00	0,70
20	0,44	0,92	0,79	0,70	1,00

Afin de pouvoir disposer d'un nombre d'observations suffisant pour l'étude des corrélations de Ft_{Cs} aux différentes plantes, un calcul de régression multiple a été effectué en utilisant comme variable à expliquer Ft_{Cs} divisé par sa valeur moyenne pour chaque plante. Comme dans l'expérience précédente consacrée à l'étude des corrélations de Ft_{Cs} à l'herbe, le logarithme népérien de Ft_{Cs} est mieux corrélé aux variables explicatives que Ft_{Cs} . Ainsi, la variable introduite dans le calcul de régression est égale à :

$$\text{Ln} \left(\frac{Ft_{Cs}}{\overline{Ft_{Cs}}} \right)$$

où $\overline{Ft_{Cs}} = Ft_{Cs}$ moyen pour chaque plante

Le calcul de régression est effectué pour deux séries d'observations : l'une avec le sol n°2, l'autre sans. Les coefficients de détermination obtenus, sont respectivement de 0,51 et 0,59 avec et sans le sol n°2, pour un modèle incluant les variables "K⁺échangeable", "Kd" et "Mn hydrosoluble". Cette dernière variable explique à elle seule 43% de la variation de Ft_{Cs} alors que "Kd" n'en explique que 38 %. La bonne corrélation de cette variable avec Ft_{Cs} semble imputable à un phénomène de multi-colinéarité, c'est-à-dire se rapportant à une situation où plusieurs variables indépendantes sont reliées. L'analyse des corrélations de la variable Mn montre qu'en effet la teneur en Mn dans le sol est liée au pH, à la teneur en calcium échangeable et à la teneur en sable. Parmi ces variables, le pH semble le paramètre le mieux adapté à une interprétation globale de l'influence des autres paramètres.

3.3.4.2. Strontium

La distribution des Ft en fonction du type de sol est similaire à celle du césium (figure 3.15). La même démarche que celle adoptée pour Ft_{Cs} a été utilisée pour Ft_{Sr} . La régression linéaire multiple avec Ft_{Sr} comme variable à expliquer donne un coefficient de détermination R^2 égal à 0,50 alors que

R^2 est égal à 0,66 lorsque LnFtSr est introduit dans la régression. Ce résultat diffère de celui obtenu dans l'expérience de transfert à l'herbe. Les variables explicatives sont "Kd", "Ca échangeable" et "pH".

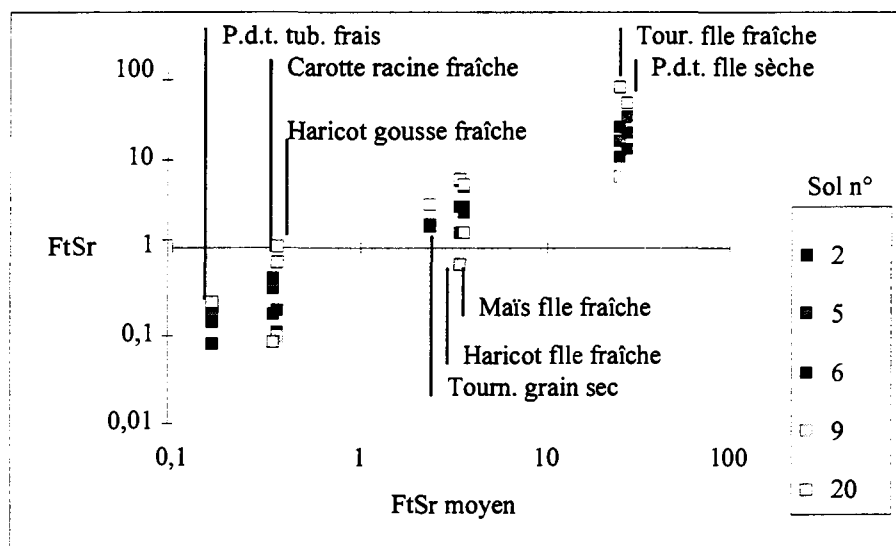


Figure 3.15 : facteur de transfert moyen du strontium aux différentes plantes et distribution des valeurs observées pour chaque type de sol.

3.3.4.3. Modèle générique

Sur la base des résultats obtenus quant aux corrélations de Ft_{Cs} et Ft_{Sr} , un modèle générique semble utilisable pour prédire et expliquer, au moins en partie, les variations du facteur de transfert sol-plante. Ce modèle s'inspire de la formulation proposée par l'Union Internationale de Radioécologie (UIR). Il en diffère cependant quant au choix des paramètres. L'UIR utilise en particulier la profondeur de la couche de sol, car les observations qui ont permis son élaboration portent à la fois sur des facteurs de transfert observés au champ et en laboratoire. Nous avons vu au chapitre 3.1.3.3 que ce paramètre avait de l'importance. Il n'est cependant pas nécessaire d'en tenir compte ici, puisque toutes les observations sont issues d'expériences en laboratoire. De plus, le modèle de l'UIR prend en compte la teneur en matière organique, car il découle d'observations dont la plupart sont issues d'expériences réalisées en Europe du Nord où les sols sont généralement bien pourvus en matière organique, ce qui n'est pas le cas des sols retenus pour cette étude.

Par contre, le modèle de l'UIR ne prend pas en compte la teneur du sol en analogue chimique des radionucléides : K^+ pour le césium et Ca^{++} pour le strontium. Il est probable que cette lacune provienne de l'introduction d'un trop grand nombre de paramètres liés aux conditions expérimentales, comme la profondeur de sol, qui masquent l'influence des paramètres liés au type de sol, objet de notre étude. Il est notoire que les expériences en laboratoire permettent une approche analytique plus fine que les expériences in-situ, les paramètres induisant la variabilité des résultats étant moins nombreux.

En se limitant à la prise en compte des seuls paramètres liés à la composition de la solution du sol, la formulation ci-après a permis de mettre en évidence l'influence de facteurs ignorés des formulations existantes, alors que d'autres études portant sur l'absorption racinaire (chapitre 3.1.3.3) en avaient souligné l'importance.

La formulation ci-après a été adoptée :

$$F_t = F_{t_m} \times e^{(a \times \text{pH} + b \times K_d + c \times A_n + \text{cste})}$$

F_t = facteur de transfert

F_{t_m} = moyenne arithmétique du facteur de transfert pour chaque plante et chaque radionucléide (Bq/kg de plante sèche / Bq/kg de sol sec) (tableau 3.10)

b, c = coefficients de régression (tableau 3.10)

pH = pH (eau) du sol

K_d = coefficient de distribution mesuré selon la méthode par absorption.

A_n = analogue chimique : potassium pour Cs et calcium pour Sr, mg.l⁻¹ de la solution du sol (20g de sol sec, 50 ml d'eau distillée)

Cste = constante

Tableau 3.10 : Coefficients de régression des équations modélisant les transferts sol-plante du césium et du strontium

a) Coefficients de la régression

Coefficient	Césium	Strontium
a (pH)	-3,14 .10 ⁻¹	-4,30 .10 ⁻¹
b (K_d)	-4,10 .10 ⁻⁴	-1,90 .10 ⁻²
c (A_n)	-4,60 .10 ⁻³	-7,20 .10 ⁻³
Constante	4,24	3,67

b) F_{t_m} pour les principales cultures autour des sites nucléaires français

Haricot gousse sèche	4,33 .10 ⁻³	2,27
Pomme de terre tubercule frais	7,32 .10 ⁻³	3,58 .10 ⁻¹
Blé grain sec	2,43 .10 ⁻³	1,31
Herbe feuille sèche	1,06 .10 ⁻²	6,25
Maïs feuille sèche	1,53 .10 ⁻³	3,48
Tournesol graine sèche	1,60 .10 ⁻²	2,62
Betterave pulpe sèche	1,17 .10 ⁻³	
Colza feuille sèche	9,73 .10 ⁻²	

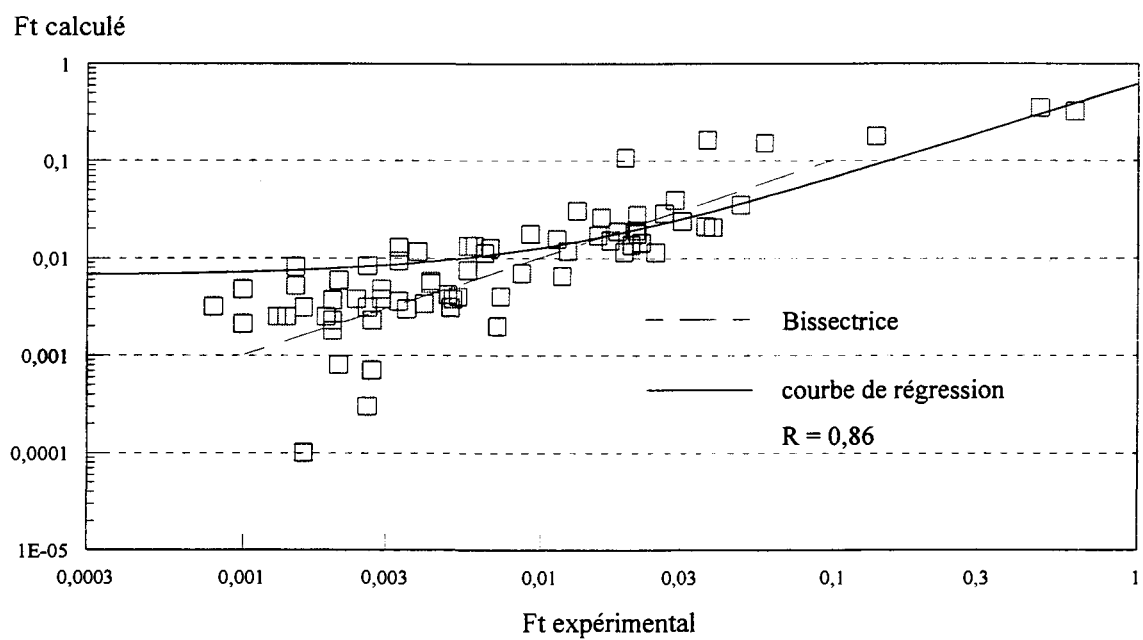


Figure 3.16 : facteur de transfert de ^{134}Cs , distribution des valeurs calculées en fonction des valeurs expérimentales

3.4. Discussion : application du modèle de transfert sol-plante

3.4.1. Application du modèle

Cette modélisation empirique est bien évidemment entachée du biais relatif à l'échantillonnage des observations, ici en l'occurrence, les sols les plus fréquemment rencontrés autour des sites nucléaires français. La distribution des valeurs calculées de Ft_{Cs} en fonctions des valeurs expérimentales issues de l'échantillon étudié montre une assez faible dispersion (figure 3.16).

Mais la qualité prédictive d'un modèle statistique s'évalue aux résultats obtenus pour des conditions indépendantes de l'échantillon de référence. Un tel échantillon est disponible dans la littérature (Cremers *et al.*, 1989) pour des sols de Grande Bretagne. Il a permis de calculer Ft_{Cs} à l'aide de l'équation ci-dessus et de comparer les résultats aux valeurs observées par les auteurs de cette publication.

Les résultats (Tableau 3.11) montrent que le modèle utilisé sans la variable NH_4^+ n'est pas parfaitement adapté à l'échantillon de sols anglais. En effet, les Ft calculés pour les sols PR-1, PR-2 et DP, qui ont une teneur relativement élevée en NH_4^+ , ont des valeurs trop faibles par rapport à Ft observé. Puisque d'après les observations ci-avant, NH_4^+ augmente le facteur de transfert sol-plante, il est possible d'introduire la variable NH_4^+ dans le modèle en l'affectant du même coefficient que la variable K^+ de même dimension, mais de signe contraire. Le résultat se trouve sensiblement amélioré par l'ajout de cette variable.

Tableau 3.11 : comparaison des facteurs de transfert de ^{137}Cs à l'herbe observés et calculés.

Référence du sol	NH_4^+ de la solution du sol ($mg.kg^{-1}$)	K^+ de la solution du sol ($mg.kg^{-1}$)	K_d ($ml.g^{-1}$)	Ft_{Cs} calculé sans NH_4^+	Ft_{Cs} calculé avec NH_4^+	Ft_{Cs} observé
ABE-1	5,58	4,29	480	0,066	0,066	0,063
ABE-2	4,86	8,58	1503	0,042	0,043	0,012
PBE	5,22	10,14	1070	0,050	0,051	0,031
PG	16,2	9,36	318	0,069	0,074	0,054
PR-1	28,98	15,6	61	0,074	0,085	0,114
PR-2	22,32	19,5	28	0,074	0,082	0,107
DP	71,64	35,1	51	0,068	0,095	0,143
IPR	5,58	3,12	145	0,076	0,078	0,077

Les paramètres de calcul et les facteurs de transfert observés sont issus des travaux de Cremers, 1989. En l'absence de valeur pour le pH, une valeur constante égale à 7 est utilisée (sols organiques).

La distribution des valeurs calculées en fonction des valeurs observées montre une très bonne corrélation ($r=0,95$). La distribution des résidus en fonction des valeurs observées de Ft_{Cs} indique que l'erreur moyenne est inférieure à 30% (figure 3.17).

Il est important de souligner que le calcul a été effectué à pH constant puisque la littérature ne donne pas les valeurs de pH. Or, il est possible de calculer qu'une variation de 4 unités pH se traduit par une variation d'environ un facteur 3, 5 de Ft_{Cs} (figure 3.18). Le sol est en général un milieu relativement

tamponné, et il se peut que la gamme de variation du pH des sols anglais ne soit pas trop étendue, si bien que le calcul à pH constant donne malgré tout des résultats satisfaisants.

Une autre explication peut reposer sur le fait que l'équilibre des espèces $\text{NH}_4^+/\text{NH}_3$ dépend du pH, pris par conséquent indirectement en compte par la variable NH_4^+ .

Il ressort de cet ensemble de données que l'absorption radicaire des radionucléides ne doit pas être considérée indépendamment de celle de leurs analogues chimiques. L'application du modèle des corrélations statistiques aux données de la littérature montre la pertinence du choix des paramètres descriptifs du facteur de transfert. Ces paramètres décrivent la disponibilité des radionucléides pour les plantes et l'influence des ions compétiteurs des radionucléides. La discussion qui précède a montré qu'il est possible d'introduire dans une formulation empirique des paramètres choisis sur la base d'un raisonnement descriptif permettant de rationaliser les observations statistiques. Ainsi, l'amélioration de la qualité prédictive de la formulation de Ft_{Cs} grâce à l'introduction de la variable NH_4^+ démontre la complémentarité entre modèle empirique et modèle systématique.

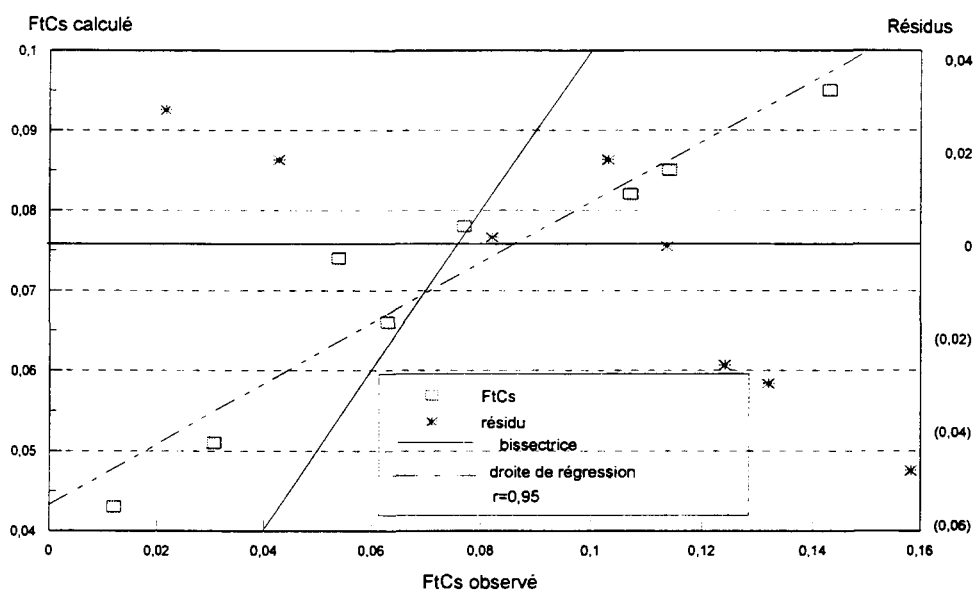


Figure 3.17 : facteur de transfert sol-plante de ^{137}Cs (Ft_{Cs}) à l'herbe, en Grande Bretagne, distribution des valeurs calculées, en fonction des valeurs observées et distribution des résidus (Ft_{Cs} calculé - Ft_{Cs} observé) en fonction de Ft_{Cs} observé.

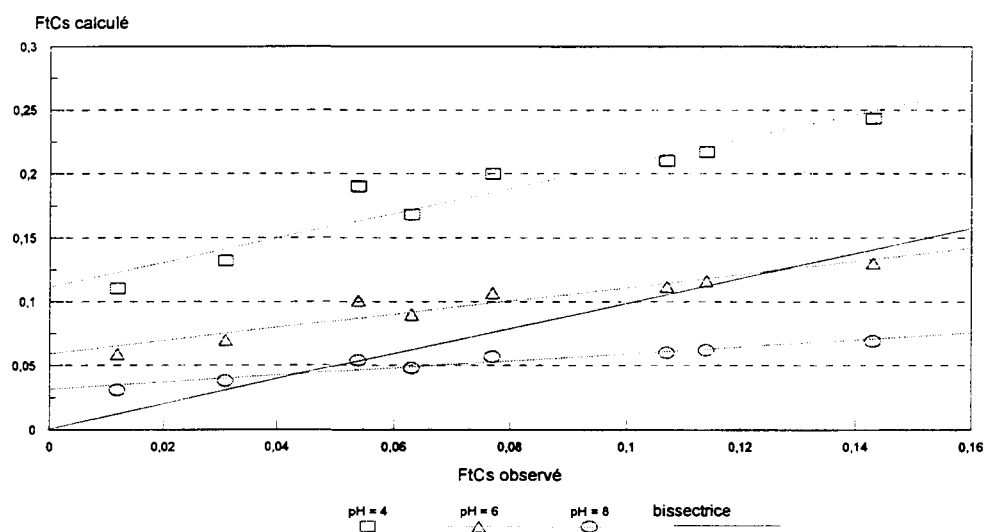


Figure 3.18 : Facteur de transfert calculé et observé : influence de pH sur la valeur de Ft_{Cs} calculée.

3.4.2. Conclusion

3.4.2.1. Mécanismes de transfert sol-plante

La démarche adoptée dans ce travail avait pour objectif de répondre aux besoins opérationnels de choix des paramètres de flux des radionucléides en cas d'accident nucléaire. Mais à la lumière des résultats obtenus lors de l'analyse des corrélations du facteur de transfert et des données tirées de la littérature, il est possible de proposer une représentation schématique des flux de radionucléides du sol vers la production agricole végétale. (figure 3.19)

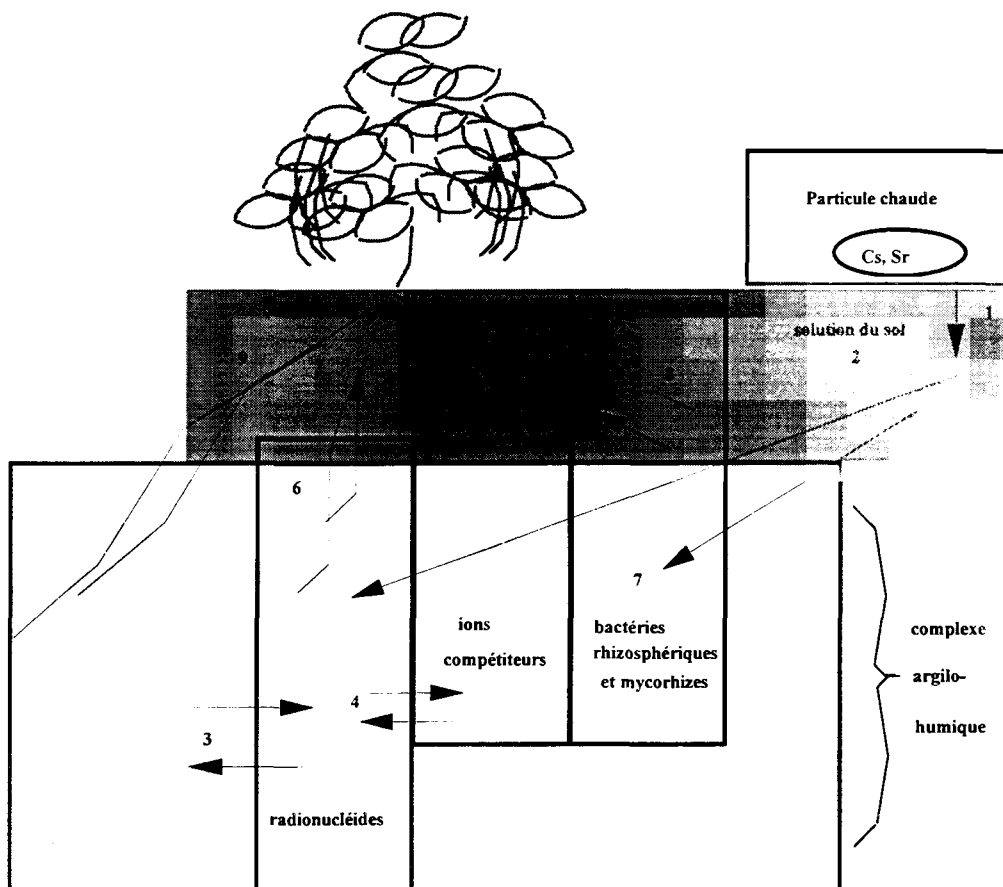


Figure 3.19. représentation schématique du flux des radionucléides entre le sol et les végétaux.

Le système représenté par le sol et les plantes qui y poussent peut être découpé en 3 compartiments : la matrice solide du sol, constituée du complexe argilo humique, la solution du sol et le compartiment récepteur qu'est la plante. Ces 3 compartiments sont en interaction avec les réactifs du milieu naturel que sont les radionucléides, les ions compétiteurs et les composants du milieu vivant représentés notamment par les champignons symbiotiques ou mycorhizes et les bactéries rizosphériques.

Les paramètres qui gouvernent les flux de radionucléides entre ces 3 compartiments et les réactifs du milieu naturel sont nombreux. Pour ne citer que les principaux, nous en retiendrons 9 qui semblent jouer un rôle important : 1 la solubilité du terme source, 2 le régime hydrique

du sol, 3 la fixation sur le sol, 4 les compétitions entre les radionucléides et leurs analogues chimiques, 5 l'absorption compétitive, 6 l'absorption radiculaire, 7 l'immobilisation des radionucléides dans le mycélium des champignons, 8 transfert mycorhize-plante, 9 la distribution des racines dans le profil de sol. Le modèle des corrélations englobe les paramètres 1 à 6. Le terme K_d décrit les variations liées aux trois premiers paramètres alors que la prise en compte des analogues chimiques des radionucléides peut traduire l'influence de l'un des phénomènes 4 à 6.

La solution du sol est le compartiment central de ce modèle de flux. Les radionucléides déposés sur le sol sous forme de particules chaudes insolubles ou sous forme d'un dépôt sec de composés solubles doivent subir une solubilisation (1) avant d'être redistribués dans le compartiment de stockage que constitue le complexe argilo-humique. L'échange entre ces deux compartiments faisant intervenir les réactifs du milieu naturel que sont les ions compétiteurs, les radionucléides et les mycorhizes, est fortement dépendant de l'humidité du sol (2). Les radionucléides ont une grande affinité pour l'argile (3) et sont donc peu représentés dans la solution du sol. Les ions compétiteurs ont pour l'argile moins d'affinité que les radionucléides mais interagissent comme eux avec ce compartiment. Par conséquent la fixation des radionucléides sur l'argile n'est possible qu'à concurrence de la place laissée par les ions compétiteurs (4). L'influence des ions compétiteurs s'exerce aussi au niveau de l'absorption radiculaire des radionucléides par un effet de dilution ionique (5)(6).

L'absorption des radionucléides par le mycélium des champignons est une réalité qu'il convient de prendre en compte (7). Ce phénomène a probablement d'autant plus d'importance que les champignons sont adaptés à l'absorption de substrats organiques sur lesquels sont fixés les radionucléides. Les symbioses mycorhiziennes par lesquelles le champignon fournit à la plante de l'eau et des sels minéraux en échange des produits de la photosynthèse élaborés par la plante constituent une voie probablement importante du flux des radionucléides vers le règne végétal (8). Il ne faut pas pour autant ignorer l'aptitude des plantes à se nourrir elles mêmes par le développement plus ou moins important des racines qui peuvent dans certains cas pousser en dessous de la zone contaminée (9). L'étude de ces trois derniers mécanismes de flux des radionucléides déborde les objectifs de ce travail mais demeure un sujet qui mérite de futures recherches.

3.4.2.2. Ce qu'il reste à étudier.

A partir des résultats décrits ici, il apparaît que les mécanismes responsables de la variabilité du transfert sol plante des radionucléides les plus étudiés sont ceux relatifs à la solubilisation des radionucléides, les ions compétiteurs, le potentiel hydrique, et la dilution ionique. Il reste à étudier plus en profondeur les points suivants :

Exclusion compétitive des radionucléides : des méthodologies d'étude existent pour les mécanismes d'exclusion compétitive des éléments nutritifs indispensables aux plantes, mais peu d'études concernent des éléments tels que le césium pondéralement présents dans la nature en proportions proches des seuils de détection par les méthodes non nucléaires. Cependant, le césium a dans la nature des isotopes stables à des concentrations bien supérieures à celles déposées lors de pollutions radioactives. A ce titre, le césium ne peut être considéré comme un xénobiotique. La question peut donc se poser de l'existence éventuelle d'enzymes spécifiques à l'absorption, voire à l'utilisation de cet élément, comme il en existe pour un grand nombre d'éléments. Si des mécanismes d'absorption spécifique de césium peuvent être démontrés, la découverte de l'adaptation éventuelle de certains végétaux à l'utilisation de césium comme elle

existe pour les oligo-éléments constituerait un grand pas dans la connaissance du flux des radionucléides vers les productions végétales.

La rhizosphère : un point important concerne la partie cachée du fonctionnement des plantes que représentent les racines et en particulier leur répartition dans le profil de sol contaminé. En effet, il n'existe pas à notre connaissance un recueil de données sur le profil radiculaire des principales plantes cultivées en fonction des différents types de sols et de leur régime hydrique. Une approche réaliste de ce sujet pourrait se présenter sous la forme de corrélations du profil radiculaire à des paramètres facilement accessibles tels que la texture et le potentiel hydrique du sol ou la biomasse épigée de la culture considérée.

Un recueil de ces données pour les principales plantes cultivées autour des sites nucléaires français serait fort utile à l'interprétation des flux de radionucléides à travers la rhizosphère. Pour l'obtenir, les techniques de traçage radioactif, bien connues des radioécologistes, seraient utilisables sur le terrain ou dans des lysimètres.

Après injection d'un émetteur, de préférence à vie courte, dans la plante à étudier, la radioactivité des racines serait mesurée en introduisant dans le profil vertical du sol une sonde γ collimatée pour ne recevoir que les émissions provenant d'une tranche de sol déterminée. Cette mesure répétée pour un incrément de hauteurs donnerait un profil de radioactivité qui rendrait compte de la densité de racine en fonction de la profondeur, en supposant une concentration homogène du traceur dans la plante, ce qui est parfaitement réalisable par le choix d'un traceur approprié.

Les symbioses mycorhiziennes : les mycorhizes ont fait l'objet de nombreuses études en vue d'accroître les performances agronomiques des plantes cultivées. Mais l'aptitude remarquable des champignons à absorber le césium pose question. En particulier, il n'est pas possible de dire si les facteurs de transfert très élevés observés pour les champignons sont liés au potentiel exploratoire du mycélium ou si les tissus mycéliens ont une capacité d'absorption différente de celle des tissus des plantes supérieures. L'une des particularités des champignons est qu'ils se nourrissent de matière organiques dissoute à laquelle le césium peut s'associer.

Outre le rôle potentiel des champignons dans les flux de radionucléides vers les plantes supérieures grâce aux mycorhizes, ils peuvent aussi immobiliser les radionucléides dans la biomasse mycélienne. L'immobilisation du césium peut-être aussi le fait des bactéries rizosphériques.

Les questions posées font apparaître de grandes lacunes quant à la compréhension de la rhizosphère dans son ensemble, véritable interface entre le sol et la plante, qui ne se limite pas aux seules racines des végétaux. Une description exhaustive des transferts racinaires doit donc tenir compte de la rhizosphère et évaluer l'importance de ce compartiment par rapport aux autres causes de variabilité des facteurs de transfert.

D'une manière générale, ces études peuvent avoir des applications dans la gestion des sites contaminés, d'une part pour en faciliter la caractérisation grâce à l'amélioration des modèles de prévision des flux, et d'autre part par l'élaboration de techniques de réhabilitation comme par exemple, celles basées sur la phytodécontamination des sols.

3.4.2.3. Conséquences en terme de contre-mesures agricoles et techniques de réhabilitation

Bien que les plantes constituent le système le mieux adapté à l'absorption de l'eau et des sels minéraux présents dans le sol, il faut reconnaître à la vue des résultats présentés dans ce chapitre relatifs aux seules plantes cultivées, que les facteurs de transferts ont des valeurs très faibles et qu'il est donc illusoire, en l'état actuel de la connaissance, de penser décontaminer les sols en cultivant des plantes.

Plutôt que de chercher à extraire la contamination du sol, une autre voie peut consister à diminuer le flux de radionucléides vers la production végétale. Les résultats montrent que la teneur du sol en potassium est une variable explicative du facteur de transfert, affectée d'un coefficient négatif, indiquant sa diminution pour une augmentation de la teneur du sol en potassium. A ce titre, l'ajout de potassium dans le sol peut faire partie de la panoplie de moyens utilisables pour éviter des doses.

K_d est aussi une variable explicative du facteur de transfert. Elle caractérise une partie de la mobilité des radionucléides dans le sol et en particulier leur migration verticale. Les valeurs de K_d pour le césium sont en général très élevées indiquant une très faible mobilité du césium et par là même une migration très lente. C'est pourquoi le césium reste fixé à la surface du sol, condition favorable à la mise oeuvre de techniques visant à décaper le sol. La suite de cet exposé montrera comment, parmi les techniques applicables à la réhabilitation, le décapage des sols donne des résultats encourageants.

4. Expérimentations in situ.

Résumé

Deux possibilités sont offertes pour minimiser le risque radiologique en cas d'accident nucléaire : les contre-mesures qui permettent d'agir sur le flux de radionucléides dans la chaîne alimentaire et les techniques de réhabilitation qui visent à enlever la majeure partie de la source de contamination contenue dans le sol, sur les plantes ou dans les produits alimentaires, comme le lait. Les contre-mesures les plus utilisées à Tchernobyl étaient basées sur l'apport d'engrais pour réduire le flux de césium. La principale action de réhabilitation a été le labour des champs contaminés pour, notamment, mettre hors de portée des racines la couche de sol contaminé. Après avoir décrit les techniques existantes, ce chapitre présente une nouvelle option de réhabilitation, plus performante que celles existantes : le décapage des sols à l'aide d'une déplaqueuse à gazon. Cette technique apparaît comme la plus avantageuse des options envisagées pour la réhabilitation des prairies permanentes sur sol de tourbière.

4.1. Données disponibles sur le site de Tchernobyl

Pour atténuer l'irradiation externe ainsi que les doses résultant de la contamination de la chaîne alimentaire, certaines interventions peuvent s'avérer très efficaces si elles sont appliquées dans les jours ou les semaines qui suivent le dépôt. Ces actions restent cependant limitées aux zones de dépôt faible, car en raison de la désintégration des radionucléides à vie courte, l'irradiation externe est très importante dans les trois mois suivant le dépôt. Elle aura diminué d'un facteur 10 au bout de 3 mois (Lehto, 1994). C'est pourquoi, la plupart des techniques de réhabilitation et de contre-mesures mises en oeuvre à Tchernobyl ont été des actions tardives (IAEA, 1991). De plus, la caractérisation de la contamination prend du temps, et la cartographie des dépôts est un préalable à toute intervention optimisée.

La littérature rapporte quelques exemples d'actions applicables dans des délais brefs : la fixation du dépôt et la récolte de la végétation. Les autres actions présentées ci-après peuvent faire l'objet d'une planification dans le temps. C'est notamment le cas des contre-mesures agricoles basées sur l'emploi d'engrais ou d'amendements

4.1.1. Contre-mesures agricoles

Les engrais utilisés sont composés des éléments majeurs pour la nutrition minérale des végétaux, N, P, K, en proportions et solubilités variables. L'emploi des engrais est en outre souvent associé à des pratiques agricoles telles que le chaulage, l'épandage de fumier et le labour.

Après l'accident de Tchernobyl, de nombreuses études ont été consacrées à l'emploi des engrais et amendements pour réduire le flux des radionucléides dans les productions agricoles (Alexakhin, 1993; Goncharova *et al.*, 1994; Grauby, *et al.*, 1989; Konoplev, *et al.*, 1992; Lembrechts, *et al.*, 1989; Nisbet *et al.*, 1994; Prister *et al.*, 1992). La plupart des résultats présentés ci-après sont issus d'une compilation des données d'expériences réalisées à Tchernobyl dans le cadre du programme sur les conséquences de l'accident de Tchernobyl financé par la Commission Européenne. Les rapports provisoires relatifs à ces travaux ont été diffusés par la Commission Européenne afin que les données soient utilisées par les différents groupes de travail dont le groupe ECP/4 auquel nous avons participé.

Les mécanismes invoqués pour expliquer la diminution du transfert ont été décrits ci-avant dans ce document. Ce sont la dilution des radionucléides dans l'ensemble des ions alcalins et alcalino-terreux, l'absorption compétitive des ions de la solution du sol par les plantes, ainsi que l'accroissement de la production de biomasse consécutive à l'action positive des engrais sur le taux de matière sèche.

Ce dernier effet est mis en évidence d'une part, lors de l'apport d'engrais phosphorique dans le sol, dont l'action n'est pas imputable à une éventuelle analogie chimique avec Cs et Sr, et d'autre part, lors de l'application d'engrais foliaires (Goncharova, *et al.*, 1994).

4.1.1.1. Engrais à base de potassium

L'influence négative du potassium sur le transfert de Cs a été discutée dans ce document à propos de la modélisation du transfert racinaire. Le calcul à l'aide de ce modèle permet de prédire approximativement la diminution du facteur de transfert observée à Tchernobyl.

Pour l'apport de $150 \text{ kg} \cdot \text{ha}^{-1}$ de potassium, qui correspond grossièrement à $150 \text{ mg} \cdot \text{l}^{-1}$ de K^+ dans la solution du sol, la diminution calculée du facteur de transfert est de 48%, soit une valeur encadrée par les valeurs observés à Tchernobyl de 28 à 61 % (Rauret, 1994).

Par contre, le modèle n'est plus applicable lorsque les ajouts de potassium dépassent trop largement les doses habituellement rencontrées dans les sols. Dans ce cas, le coefficient d'atténuation utilisé dans le modèle conduit à surestimer le résultat d'un facteur 5. L'ajustement de ce coefficient ayant été obtenu sur la base des teneurs en potassium couramment rencontrées dans les sols, celui ci n'est pas adapté au delà de $200 \text{ mg} \cdot \text{l}^{-1}$ de K^+ .

Les expérimentations portant sur les ajouts de potassium en excès ont permis de mettre en évidence deux effets contradictoires de K^+ sur Ft_{Cs} . Dans les sols à faible capacité d'échange cationique, Ft_{Cs} diminue lors de l'ajout de K^+ dans le sol, puis augmente à nouveau à partir d'un seuil de concentration en K^+ dans le sol qui dépend de la capacité d'échange cationique. Dans les sols à faible capacité d'échange cationique ($50 \text{ meq} \cdot \text{kg}^{-1}$), la quantité de potassium nécessaire à la désorption du césium est faible et ne permet pas une dilution suffisante du césium dans la solution du sol pour provoquer une diminution de l'absorption du césium par la plante. La résultante de ces deux effets antagonistes du potassium penche donc en faveur d'une augmentation du facteur de transfert (Grauby, *et al.*, 1989).

Cet effet de seuil lié à la réserve du sol en charges négatives désigne l'échange entre K^+ et Cs^+ dans la solution du sol comme le mécanisme responsable de l'augmentation de Ft_{Cs} . L'accroissement de l'activité en ^{137}Cs dans la solution lors de l'ajout de potassium dans différents types de sols a été observé dans une étude récente. Elle serait égale à un facteur 1,4 à 3,8. Dans le même temps, l'augmentation de la teneur en K^+ atteindrait un facteur 113 à 358 par rapport à la concentration de référence (Nisbet, *et al.*, 1994).

4.1.1.2. Engrais à base de calcium

Le chaulage est une technique couramment utilisée en agriculture pour augmenter le pH des sols acides. La variable pH est très bien corrélée à la concentration en calcium échangeable dans le sol (§ 3.3.2).

Les principaux résultats disponibles concernant l'influence du chaulage sur le transfert de ^{137}Cs , car ils ont été obtenus en Russie dans une zone peu contaminée par ^{90}Sr . Il montrent que l'apport de CaCO_3 est synergique de l'effet des engrais sur Ft_{Cs} (Rauret, 1994).

Nos propres expérimentations (Grauby, *et al.*, 1989) ont porté sur l'effet du chaulage sur le transfert du strontium. Le facteur de transfert de ^{85}Sr au haricot vert est réduit respectivement de 0,9, 1,5, 1,8, fois par l'ajout de $25 \text{ g} \cdot \text{kg}^{-1}$ de CaCO_3 dans : un sol calcaire, un sol sableux non calcaire, et de la terre de bruyère.

Ces résultats montrent que l'efficacité du calcium pour réduire le transfert du strontium est fonction de la teneur initiale du sol en calcium. Le seuil de concentration en calcium dans la solution du sol au dessus duquel un apport supplémentaire de calcium est inutile a été évalué à $50 \text{ me} \cdot \text{kg}^{-1}$ (Nisbet, *et al.*, 1994).

Cette valeur correspond approximativement à la concentration en calcium échangeable dans le sol sableux non calcaire des expérimentations évoquées ci-dessus ($44 \text{ me} \cdot \text{kg}^{-1}$) qui confirme donc un effet du calcium en dessous de ce seuil.

Les données extraites de Prister et al. (1992) montrent l'influence du type de sol sur l'efficacité du chaulage associé à l'apport d'engrais ternaire N, P, K. Le facteur de réduction de la contamination de l'herbe en ^{137}Cs est compris entre environ 2 et 16 selon qu'il est appliqué respectivement sur un podzol ou sur un Chernozem. Cependant, le Chernozem est un sol assez peu représenté à Tchernobyl et la réduction de Ft_{Cs} suite à l'apport de calcium dans le sol se situe le plus souvent aux alentours d'un facteur 2.

4.1.1.3. Engrais à base de phosphore

L'application d'engrais à base de phosphore est recommandée comme contre-mesure spécifique de la contamination par ^{90}Sr (IAEA, 1994a). Le mode d'action invoqué pour le phosphore est la formation de phosphates de strontium peu solubles. Un facteur de réduction pouvant atteindre 10 a été avancé.

Dans le concept strictement agronomique de la fertilisation des sols, la fumure phosphorique est en général associée à l'apport des autres éléments, même si, dans la pratique des contre-mesures, les dosages peuvent s'écarter des recommandations habituelles.

La formation de phosphates insolubles qui explique un effet sur Ft_{Sr} ne peut être invoquée pour Ft_{Cs} . La dilution des radionucléides par un accroissement de la matière sèche des plantes a été présentée comme le phénomène susceptible d'expliquer l'effet de la fumure phosphorique sur le transfert des radionucléides (Goncharova, *et al.*, 1994). Bien que l'effet observé lors des essais réalisés à Tchernobyl ne soit pas spectaculaire, il faut reconnaître une certaine corrélation entre l'accroissement de la matière sèche et la diminution du transfert de Cs et Sr (Rauret, 1994).

L'effet de l'ion ammonium qui se traduit par une augmentation du transfert du césium est à présent bien connu (Grauby, *et al.*, 1989; Nisbet, *et al.*, 1994). Le strontium est beaucoup moins sensible que le césium aux apports d'ammonium dans le sol.

En raison de ses propriétés ioniques proches de celles du césium (rayon de l'ion déshydraté et énergie d'hydratation, Tableau 3.2), l'ammonium s'échange mieux avec le césium que les autres cations sur les sites argileux.

Nisbet (1994) a trouvé que l'ajout de sulfate d'ammonium dans différents sols entraînait une augmentation du rapport Cs^+/K^+ dans la solution du sol plus importante que celle de $\text{Sr}^{++}/\text{Ca}^{++}$. Ces observations sont en accord avec la théorie de l'échange sélectif évoquée au chapitre 3.1.3.2.

4.1.1.4. Pulvérisation d'engrais foliaires

La pulvérisation d'engrais foliaire est utilisée en agriculture en complément de la fertilisation par le sol pour faire face aux besoins urgents de certaines cultures comme les arbres fruitiers. Elle est surtout utilisée pour l'apport de micro-éléments pour combattre les carences.

L'azote est cependant un macro élément assez bien absorbé par voie foliaire, sous forme d'urée. Bien que les feuilles des végétaux ne soient pas le tissu le mieux adapté à l'absorption des ions, notamment en raison de l'existence d'une cuticule cireuse hydrophobe, force est de constater que pour certains ions, tels que le césium, l'absorption est plus efficace par voie foliaire que par voie racinaire.

Les recherches sur l'utilisation des engrais comme contre-mesure ont conduit certains auteurs à étudier les possibilités d'apport d'ions compétiteurs des radionucléides par voie foliaire, pour éviter

les apports d'engrais dans le sol générateurs de déséquilibres ioniques pour la solution du sol (Grauby, *et al.*, 1989).

Ces essais ont porté sur la pulvérisation de différents sels de K^+ , P, Ca^{++} et Mg^{++} sur des plantes de haricot vert cultivées en pot. Ils ont permis de constater que la pulvérisation d'une solution de nitrate de potassium à $1,5 \text{ g.l}^{-1}$ à raison de 20 ml par plante permettait d'obtenir une réduction du transfert radiculaire du césium d'un facteur 2. L'application foliaire de seulement 6 kg.ha^{-1} de KN_0_3 au lieu de centaines de kg dans le sol permet d'obtenir un effet similaire à celui de l'apport d'engrais dans le sol. Compte tenu des faibles masses de potassium mises en oeuvre lors de l'application de K par voie foliaire, le risque d'excès de potassium dans le sol, responsable de l'augmentation du transfert, n'est pas à redouter.

D'autres auteurs ont pu expérimenter à Tchernobyl la pulvérisation foliaire de Cu, Mg et Mn sur des pommes de terre et constater une diminution de Ft_{Cs} d'un facteur 1,4, 1,5 et 1,6 respectivement (Goncharova, *et al.*, 1994). Le mécanisme d'action de ce traitement invoqué par Goncharova est une modification de la translocation de Cs au niveau du tubercule.

4.1.1.5. Amendements organiques

L'apport d'amendement organique est destiné à réduire Ft_{Sr} par adsorption du strontium sur la matière organique. Une réduction d'un facteur 5 de Ft_{Sr} est annoncée par l'AIEA (IAEA, 1994a).

D'autres auteurs (Lembrechts, 1993) font référence à une réduction d'un facteur 7 de Ft_{Sr} par l'amendement avec de la tourbe de sphaigne portant le taux de matière organique du sol de 1 à 15%.

L'effet contraire peut s'exercer sur Ft_{Cs} . Cependant, les récentes investigations sur les sols de Tchernobyl ont montré un effet sur la diminution de Ft_{Cs} (Rauret, 1994).

La diminution du Ft_{Cs} observée lors de l'apport de fumier sur le sol de tourbière prouve que le mécanisme par lequel le fumier agit sur le facteur de transfert n'est probablement pas lié à l'augmentation de la teneur en matière organique dans le sol puisque ce sol est déjà constitué de matière organique. Par contre, le fumier contient du potassium en quantité non négligeable.

D'après les données de la littérature (Lembrechts, 1993), il est possible de calculer que l'apport de 50 t.ha^{-1} de fumier équivaut à l'ajout de 117 kg de K^+ , soit l'équivalent d'une fumure potassique.

Par souci d'exhaustivité, nous mentionnerons l'emploi d'un amendement très utilisé à Tchernobyl, désigné par nos collègues de l'ex Union Soviétique sous l'appellation de "sapropel", qui d'après certains auteurs a donné de bons résultats avec un facteur de réduction pouvant atteindre 3 et 4,5 sur le lupin et la betterave fourragère, respectivement (Prister *et al.*, 1993).

Le sapropel est extrait du fond des lacs naturels. Il est composé de débris végétaux (30% de la matière sèche) issus de la décomposition anaérobie et de sédiment. Il contient $1,9 \text{ g.k}^{-1}$ de K^+ échangeable. Il est employé à raison de 100 t.ha^{-1} , soit un apport de 190 kg.ha^{-1} de K^+ , ce qui explique son efficacité à réduire Ft_{Cs} .

4.1.1.6. Alumino silicates naturels : zéolites, bentonite, diatomites

Les aluminosilicates sont porteurs de charges électriques négatives qui leur confèrent des propriétés de sorption vis à vis des cations pouvant dans certains cas présenter une certaine spécificité pour les radionucléides. Par exemple, la clinoptilolite est une zéolite riche en silice, réputée pour son affinité pour le césium et le strontium. Elle est utilisée pour le traitement des déchets nucléaires liquides contenant du césium (Mikhail, 1981).

Les résultats disponibles montrent une efficacité assez aléatoire. Par exemple, l'effet du traitement à base de 50 t.ha⁻¹ de zéolite montrent que lorsqu'un effet bénéfique est observable, celui-ci n'est pas très important. Les recommandations de l'AIEA ne sont pas très favorables à l'emploi de cette contre-mesure en raison de sa faible efficacité et de son coût comparativement élevé (IAEA, 1994a).

Les essais effectués en Ukraine, dans la zone interdite de Tchernobyl sur l'effet de la bentonite ou de la clinoptilolite en association avec l'apport de fumier donnent des résultats assez décevants. Le seul effet positif est obtenu lors de l'apport de fumier. La contamination des plantes cultivées sur les sols traités par des zéolites est souvent aussi élevée, voire plus élevée que celle des sols non traités. Une diminution de la contamination d'environ 50% est cependant observable sur la tourbe (Rauret, 1994).

La clinoptilolite s'est avérée intéressante dans une autre étude réalisée en Angleterre sur des prairies permanentes où elle a permis d'obtenir les meilleurs résultats comparatifs avec les autres traitements représentés par l'apport de potassium, de bentonite ou de bleu de Prusse (Jones *et al.*, 1994).

4.1.1.7. Bleu de Prusse

Le nom de Bleu de Prusse est donné au composé formant une solution colloïdale de formule générale:



Les solutions colloïdales formées par ce complexe sont constituées de particules cristallines dont la taille est comprise entre 5 et 500 µm selon le mode de fabrication. Ces particules ne passent pas à travers les membranes biologiques.

La sélectivité de l'échange des alcalins sur ce complexe augmente avec le rayon ionique et s'établit dans l'ordre suivant : Na < K < Rb < Cs. Les K_d de ces ions sur l'AFCF sont respectivement de 1 : 10 : 10³ : 10⁴. Le césium-ferrique-cyanoferrate(II) (CsFCF) a une solubilité colloïdale plus faible que celle des autres ions qui favorise sa sélectivité (Giese, 1988).

La production industrielle de bleu de Prusse est réalisée à partir du ferrocyanure d'ammonium qui donne donc un produit commercial stabilisé par l'ammonium et contenant des impuretés de NH₄Cl. Les doses d'emploi sont de 2 g.m⁻² ce qui revient à apporter 3,6 kg.ha⁻¹ d'ammonium. Cette quantité est faible en comparaison de celle apportée lors d'une fertilisation azotée. Il semble donc que le risque d'augmentation de Ft_{Cs} due à l'ammonium apporté avec l'AFCF soit négligeable.

D'autres formes d'hexacyanoferrates (HCF) sont disponibles à un coût 10 fois moindre qu'AFCF comme notamment KHCF utilisé couramment comme anti-agglomérant dans le sel de cuisine. Ce composé aurait l'avantage d'apporter au sol du potassium au lieu de l'ammonium. Il existe également

des HCF stabilisées par Fe, Co, Zn, Ni et Mn, les plus prometteurs étant KCuHCF et KZnHCF (Hove, 1993; Jones, *et al.*, 1994)

Les premiers essais réalisés à Tchernobyl ont montré une efficacité sur la diminution de la contamination des plantes en ^{137}Cs comprise entre 20 et 75%. Par contre, l'application de bleu de Prusse se traduit par une augmentation de la contamination en strontium (Rauret, 1994).

4.1.2. Techniques de réhabilitation

4.1.2.1. La fixation du dépôt et la décontamination des sols

La remise en suspension du dépôt de radionucléides peut avoir une contribution significative à la dose par inhalation dans la période qui suit l'accident, cet effet s'atténuant rapidement avec le temps (Jacob, 1994). Des actions visant à limiter la remise en suspension ont été engagées à Tchernobyl et, d'après nos propres observations, sont toujours en vigueur à l'heure actuelle dans la zone interdite. Il s'agit, afin d'éviter la formation de poussière, d'arroser les routes avec l'eau transportée par un camion citerne.

Cette préoccupation a fait l'objet de recherches sur les produits permettant de stabiliser les sols qui ont abouti à l'établissement d'une liste assez importante de produits utilisables (Laylavoix *et al.*, 1989). Parmi ces produits se trouvent les polyacrylamides dont nous avons étudié les possibilités d'application pour la fixation de particules polluantes et la décontamination des sols (Jouve et Mary, 1992).

Le polyacrylamide utilisé est une résine anionique réticulée qui peut absorber 500 fois sa masse d'eau. Il se présente sous forme de poudre constituée de particules de polymère de granulométrie comprise entre 50 et 200 μm qui forme un gel lors de son hydratation. Cette propriété confère au polymère un pouvoir couvrant très important permettant de limiter à 12 g.m^{-2} de produit sec la quantité nécessaire pour recouvrir efficacement le sol. L'épandage est réalisé à l'aide d'un pulvérisateur de produits phytosanitaires contenant une suspension dans l'eau à 1 g.l^{-1} . Les polyacrylamides sont habituellement utilisés pour lutter contre l'érosion des sols (Wallace et Wallace, 1986).

La présence de groupements R-COO^- sur le polymère lui confère des propriétés de sorption de Cs et Sr. Cependant, cette sorption est non sélective et ne contribue pas de façon significative à réduire la mobilité de ces ions dans le sol. Des recherches ont été réalisées pour modifier ce polymère par la création de sites spécifiques de fixation de Cs et Sr (Arnaud *et al.*, 1995; Arnaud, 1995).

Par ailleurs, ce polymère présente un intérêt particulier pour ses propriétés d'adhésion aux agrégats de sol et des radionucléides qu'ils retiennent. La remise en suspension des radionucléides à partir d'un sol contaminé, puis recouvert de polyacrylamide, a été étudiée en laboratoire. La pellicule formée sur le sol permet de réduire la remise en suspension d'un facteur 25 et 85 pour un vent pouvant aller jusqu'à 10 et 20 m s^{-1} , respectivement (Mary, 1992).

Cette pellicule peut subir des cycles de dessiccation et d'hydratation sans perdre ses propriétés mécaniques. Le polymère sur le sol en cours de séchage atteint une phase maximale de pouvoir adhésif. Il est alors possible de le récolter par brossage, sous forme de grosses particules de consistance gélatineuse qui contiennent les agrégats de la couche superficielle du sol contaminé. Cette opération permet d'enlever respectivement 65 et 80 % de Sr et Cs déposés (Cardot, 1991).

Les essais réalisés à Tchernobyl en 1992 n'ont pas permis de tester l'efficacité de ce polymère en conditions naturelles, car la remise en suspension était déjà trop faible pour qu'un essai à petite échelle puisse induire une variation de l'activité atmosphérique significativement différente du bruit de fond.

La fixation du dépôt sur la végétation peut avoir un intérêt dans l'optique de la décontamination par la récolte de la végétation.

4.1.2.2. La récolte de la végétation

La plupart des revues bibliographiques présente la récolte de la végétation comme une méthode efficace de récupération du dépôt de radionucléides après un accident (IAEA, 1987a; Laylavoix, *et al.*, 1989; Lehto, 1994; Vovk *et al.*, 1993). Cependant, hormis les travaux réalisés dans la Forêt Rousse pour ensevelir les arbres tués par l'irradiation, afin notamment, de prévenir l'incendie du bois mort, il n'est pas rapporté d'exemple de mise en oeuvre systématique de cette méthode telle qu'elle est présentée en théorie. En effet, pour être efficace, la récolte de la végétation doit intervenir rapidement après le dépôt, puisque même par temps sec, la moitié du dépôt de radionucléides à vie longue tels que ^{90}Sr est perdue au bout d'une vingtaine de jours (Martin, 1964). Mais une action rapide peut s'avérer incompatible avec les niveaux d'intervention relatifs à l'irradiation externe.

Par contre, cette méthode peut s'avérer intéressante dans les zones où le dépôt n'entraîne pas une dose par irradiation externe nécessitant l'évacuation des populations. Sur la bases des données concernant l'accident de Tchernobyl, il apparaît que la récolte de l'herbe contaminée aurait permis, entre autre, de réduire les conséquences de l'accident pour les prairies de tourbière où les flux de radionucléides se sont avérés particulièrement importants pour des dépôts de $0,1 \text{ MBq.m}^{-2}$.

Or, à partir des niveaux d'intervention adoptés en ex URSS en 1991 pour ^{137}Cs dans l'herbe, établis à 7400 Bq.kg^{-1} (Avetisov, 1991), il est possible de calculer que pour une récolte de 2 kg.m^{-2} et un coefficient d'interception de 0,2 pour un dépôt humide, l'herbe n'est pas utilisable pour un dépôt supérieur à environ 74 kBq.m^{-2} . Un dépôt de cette nature a concerné un grand nombre d'exploitations agricoles dans la région de Tchernobyl. D'après les données disponibles concernant les fermes collectives en Ukraine et en Russie (Report, 1994), environ 40% des surfaces agricoles sont de type herbage et peuvent occuper couramment plus de 2000 ha. En admettant qu'une récolteuse puisse traiter 10 ha.j^{-1} , la récolte en 20 jours nécessiterait 10 machines pour chaque ferme, soit un équipement probablement supérieur à la capacité réelle des fermes collectives.

Sans entrer dans le détail de toutes les contingences liées à l'organisation des travaux agricoles en cas d'accident nucléaire, une limitation de cette contre-mesure consistant en la récolte et la destruction de l'herbe réside dans la nécessité de continuer à nourrir les animaux. Il apparaît donc que les conditions de mise en oeuvre rapide requises pour l'efficacité de cette technique de réhabilitation, limitent considérablement le champ de son application, ce qui explique qu'elle n'ait pas été utilisée à Tchernobyl.

4.1.2.3. La défoliation non létale

Si la récolte de la végétation herbacée n'est pas simple à réaliser, l'entreprise est encore plus compliquée lorsque la végétation est constituée d'arbres et d'arbustes. La défoliation non létale est apparue comme un moyen de récupérer une partie du dépôt tout en limitant la quantité de biomasse à détruire.

La défoliation non létale est utilisée aux Etats Unis pour protéger du déracinement les arbres des vergers lorsque un cyclone est annoncé (Tawil *et al.*, 1985). Son utilisation a été proposée pour récupérer le dépôt de radionucléides (Jouve *et al.*, 1994).

Nos recherches ont consisté à sélectionner des défoliants non létaux et non toxiques pour l'environnement (Jouve *et al.*, 1993) parmi les produits homologués par le Ministère de l'Agriculture. Après des essais réalisés sur des espèces forestières dans la forêt de Cadarache, deux produits ont été finalement sélectionnés pour leur efficacité à brûler les feuilles des arbres dans un délai raisonnablement court par rapport aux cinétiques de transfert foliaire des radionucléides (1 semaine). Ces produits sont le "Diméthipin" employé à 1,5-2,5 g.l⁻¹ (Uniroyal) et le "Gluphosinate Ammonium" (Roussel-Uclaf) 0,5 g.l⁻¹. Cependant la plupart du temps, ces produits provoquent le dessèchement des feuilles, sans provoquer leur chute.

Ces études ont montré que les arbres peuvent supporter une défoliation avec des produits non létaux. Dans l'état actuel de la technique, l'objectif fixé qui est de faire chuter les feuilles n'est cependant pas atteint. Ce but ne paraît pas inaccessible sachant que des produits chimiques à base d'acide abscissique sont utilisés en agriculture pour faire chuter les fruits en excès, notamment dans les vergers de pommiers. Les essais que nous avons effectués pour faire chuter les feuilles de peuplier avec ces produits n'ont pas donné de résultats positifs. Pour autant, il serait prématuré de donner un avis définitif sur cette technique avant d'avoir réalisé des recherches plus approfondies.

4.1.2.4. L'enfouissement du sol contaminé

L'enfouissement de sol contaminé est le résultat des trois techniques de réhabilitation différentes : le labour que nous qualifierons de décapage-enfouissement pour traduire l'expression anglaise plus imagée de "skim and burial ploughing" (IAEA, 1994a), le labour profond, et le labour normal.

Le labour de décapage-enfouissement

Il semble que cette technique ait été inventée en Russie dans la région de l'Oural et appliquée pour réhabiliter les sols à la suite de l'accident de Kyshtym, sans qu'il soit possible de disposer d'un document donnant plus de précision. La charrue utilisée dans l'Oural a été transportée à Tchernobyl où elle ne semble pas avoir été très utilisée. Elle ressemble à une charrue de défonçage dont le soc, de grandes dimensions, est précédé d'une lame permettant le décapage superficiel du sol qui est enfoui au fond du sillon ouvert par la charrue. Le temps nécessaire à l'enfouissement, le sillon est maintenu ouvert par des plaques d'acier prolongeant le soc. Cette technique permet de faire passer la couche d'environ 5 cm du sol superficiel en dessous d'une couche d'environ 50 cm, sans inverser cette dernière. Elle présente l'avantage de ne pas trop perturber le profil de sol et d'éviter ainsi le risque de compromettre la fertilité des sols peu profonds.

Une version moderne de cette charrue a été développée par Roed au Danemark (Lehto, 1994) et essayée à Tchernobyl en 1992 dans le cadre du programme Européen coordonné par l'IPSN. Ces essais se sont déroulés dans des conditions défavorables liées à la sécheresse du sol et à l'emploi d'un tracteur non adapté. Il n'est donc pas possible de tirer de conclusion définitive. Il semble cependant que les sols sableux de Tchernobyl se prêtent mal à la mise en oeuvre de cette technique, car il arrive assez souvent que les bords du sillon ouvert par la charrue s'effondrent avant que la couche de sol contaminé n'ait été enfouie (Maubert, 1992). Il s'ensuit une distribution aléatoire de la contamination dans le profil de sol. Ces résultats expliquent le fait que la charrue de Kyshtym n'ait pas fait l'objet d'une utilisation très intensive à Tchernobyl.

Cependant, les travaux de Roed réalisés au Danemark sur des sols argileux, de texture plus favorable, ont montré que la couche enfouie par cette technique pouvait contenir jusqu'à 95% de la contamination initialement déposée (annexe 3).

Le labour profond

Le labour profond consiste à retourner toute la couche de sol ramenant à la surface l'horizon situé à 50 cm de profondeur. Cette technique est réservée aux sols dont l'horizon fertile est au moins aussi épais que la couche labourée. Les sols répondant à ce critère sont assez souvent alluviaux, voire hydromorphes et à ce titre parcourus par un réseau de drainage que le labour profond risque d'endommager. Les labours réalisés par la suite pour l'installation des cultures doivent se limiter à une profondeur d'environ 30 cm pour ne pas ramener à la surface la couche contaminée. Des labours pouvant atteindre jusqu'à 40-45 cm ont été réalisés à Tchernobyl dans les prairies de tourbières. Dans ce cas, il s'est avéré nécessaire d'apporter de la chaux et des engrais pour restaurer les propriétés agronomiques du sol. Une diminution d'un facteur 2 à 16 de la radioactivité dans la nouvelle prairie a été observée (Prister, *et al.*, 1993).

Le labour normal

Le labour à l'aide d'une charrue classique permet d'incorporer de façon plus ou moins homogène la couche de sol contaminé dans l'épaisseur de sol arable. Il permet de modifier la source de contamination en la diluant dans le profil de sol. Cette dilution diminue l'activité spécifique du sol qui se traduit par une diminution de l'activité des récoltes. Cette pratique n'a valeur de technique de réhabilitation que pour les champs qui ne sont pas labourés habituellement comme les prairies permanentes. Elle est souvent associée à l'application d'engrais et d'amendement et se traduit par une diminution de la contamination des cultures d'un facteur 1,8 à 3,2 (Alexakhin *et al.*, 1995).

4.1.3. Conclusion sur les contre-mesures et les techniques de réhabilitation

Les contre-mesures à base d'engrais font partie d'un ensemble d'actions agronomiques qui incluent des techniques de réhabilitation basées sur le labour. Le mode d'incorporation des engrais et des radionucléides dans le sol ont une influence sur le résultat obtenu.

Parmi les engrais utilisables, le potassium semble jouer un rôle particulièrement important dans la réduction potentielle du flux de césium. L'équilibre des ions dans la solution du sol est également un facteur important c'est pourquoi l'ajout de calcium et de magnésium doit être associé à l'ajout de potassium. Le calcium et le magnésium diminuent le flux de ^{90}Sr .

Des études plus approfondies seront sans doute nécessaires pour évaluer l'importance de la fertilisation à base d'engrais phosphatés, ainsi que l'utilisation de sorbants spécifiques des radionucléides. Il semble cependant que ces produits aient un rôle à jouer en matière de contre-mesures agricoles.

L'ammonium, par ses analogies avec le césium, a une grande influence sur l'augmentation de flux de ce radionucléide du sol vers les plantes.

Les actions basées sur l'apport d'engrais et la pratique du labour normal ont été largement appliquées à Tchernobyl et ont prouvé leur efficacité dans les zones de dépôt n'excédant pas $0,55 \text{ MBq.m}^{-2}$ de ^{137}Cs . Cependant ces actions sont insuffisantes dans les zones où le dépôt est plus élevé comme dans la zone interdite. De plus l'apport d'engrais doit être renouvelé annuellement et la pérennité des moyens nécessaires à l'achat des engrais n'est pas toujours garantie. Une étude récente (Report, 1994) a rapporté que certaines fermes à Tchernobyl n'avaient plus assez d'engrais pour poursuivre les contre-mesures.

Les techniques de réhabilitation basées sur la récolte de la végétation n'ont d'intérêt que pour une application dans un bref délai après le dépôt. Il en est de même pour l'utilisation de polymères sur le sol destinés à éviter la remise en suspension du dépôt

Enfin, pour réhabiliter les prairies permanentes contaminées, le labour normal est une pratique qui a prouvé son efficacité à Tchernobyl. Elle doit cependant être associée à l'emploi des engrais. Une alternative au labour des prairies sera présentée dans le prochain chapitre : le décapage des sols à l'aide d'une déplaqueuse à gazon.

4.2. Le décapage des sols à l'aide d'une déplaqueuse à gazon.

4.2.1. Technique mise en oeuvre

4.2.1.1. Origine de la technique

La déplaqueuse à gazon est utilisée pour récolter des plaques de gazon employées pour l'aménagement d'espaces verts. Cette technique nouvelle qui assure en une seule intervention l'obtention d'une pelouse de la meilleure qualité est souvent préférée au semis direct en place, notamment dans le Sud Est de la France où le climat n'est pas très propice au développement du gazon. Un choix d'espèces et de variétés adaptées aux différentes exigences du marché est produit dans des champs appelés "gazonnières". Le semis en gazonnière est réalisé sur un sol damé pour contenir le développement racinaire dans la couche supérieure du sol. Environ 6 mois après le semis, la déplaqueuse à gazon permet de découper sur 1 cm de profondeur la couche de sol portant le gazon. Les racines qui forment un réseau très dense donnent une bonne cohésion à la plaque de gazon qui peut être manipulée et roulée comme un tapis qui sera déroulé sur le lieu d'utilisation. La dimension des plaques est en général d'environ 2 m de longueur et de 45 cm de largeur. Cette largeur a de l'importance pour obtenir une épaisseur homogène de la plaque de gazon, notamment lorsque la déplaqueuse est utilisée pour décontaminer les sols (annexe 4).

Des techniques de décapage chimique des sols faisant appel à des polymères tels que les polyacrylamides ou les polyuréthanes ont été étudiées (Rapport, 1991). En particulier, des recherches ont été faites sur la possibilité de cultiver sur le sol des algues pour produire des polysaccharides dont les propriétés de sorption ont été établies (Cardot, 1991). Or, si des algues existent et peuvent se développer sur le sol, les plantes supérieures sont plus efficaces que les algues pour recouvrir les sols dans les conditions pédoclimatiques qui nous intéressent. Pour cultiver des algues sur les sols, il aurait fallu lutter contre la concurrence des plantes supérieures. Au contraire, le parti a été pris d'utiliser les plantes supérieures et notamment les graminées qui sont des espèces pionnières pour la conquête des sols et dont le système racinaire est généralement très ramifié.

L'absorption racinaire des radionucléides n'a pas semblé à priori une voie prometteuse à court terme compte tenu de l'obstacle que constitue le très faible facteur de transfert sol-plante, même lorsque les racines des plantes sont mises en contact avec la couche de sol contaminé. Pour vérifier cette hypothèse une expérience très simple a été réalisée.

Une caisse de sol de $0,8 \times 0,8 \times 0,05$ m a été contaminée par un dépôt de ^{134}Cs et ^{85}Sr épandu sur le sol au moyen d'un aérographe afin de simuler un dépôt accidentel. Un tapis de gazon a été cultivé sur un substrat absorbant (filtre à air en matière synthétique, annexe 5) imbibé de solution nutritive. Au bout de trois semaines, le gazon a produit une trame de racines très dense. Le tapis végétal ainsi constitué a été déposé sur le sol contaminé. Au bout d'un mois, la radioactivité de l'herbe a été comptée. L'herbe avait absorbé moins de 3% du dépôt en ^{134}Cs et ^{85}Sr .

Au moment de retirer le tapis végétal du sol pour le mettre dans le fût de déchets nucléaires incinérables, il n'était plus possible de le séparer du sol qui devait aller dans le fût de déchets nucléaires compressibles, car les racines du gazon s'étaient développées dans le sol et avaient fabriqué une plaque de gazon comme celle produites dans les gazonnières, emportant avec elle la contamination du sol.

Un contrat passé avec une entreprise de production de gazon en plaque a permis d'étudier les conditions d'application de cette technique pour la décontamination de sols.

La préparation des sols en vue du décapage

Le décapage du sol avec une déplaqueuse à gazon requiert l'installation préalable d'une couverture végétale à base de plantes gazonnantes. Le marché offre un grand choix d'espèces et de variétés adaptées aux différents climats et conditions de sol. La plupart des espèces adaptées sont des graminées fourragères dont il existe des stocks importants chez les négociants de produits pour l'approvisionnement agricole. Nos propres essais réalisés à Cadarache ont porté sur une variété de paturin adapté aux climats secs (Jouve *et al.*, 1991; Jouve, *et al.*, 1993).

L'hydrosemiss a été utilisé lors de ces essais pour semer le gazon sans perturber la surface du sol susceptible d'être contaminée. Cette technique est couramment employée pour engazonner les zones inaccessibles comme les talus en surplomb des routes. Elle consiste à projeter sur le sol une suspension aqueuse contenant des graines, un adhésif constitué de carboxyméthyl cellulose ou de polyacrylamide, des engrais et de la tourbe destinée à enrober les graines.

Dans nos essais, l'hydrosemiss a été appliqué sur le sol préparé pour représenter les différents états de surface sur lesquels un dépôt radioactif peut survenir en cas d'accident nucléaire.

L'état de surface des champs cultivés varie en fonction de la saison au cours de laquelle peut survenir le dépôt. Selon l'avancement des travaux des champs, le sol peut être nu, labouré avant la préparation du lit de semence ou couvert de végétation.

Il est possible d'effectuer directement l'hydrosemiss sur le sol nu. Pour utiliser la déplaqueuse à gazon sur un labour où la surface du sol est formée de sillons laissés par la charrue, il est nécessaire d'aplanir les crêtes des sillons sans faire tomber la contamination dans les creux. L'hydrosemiss est appliqué directement sur les sillons, mais ceux-ci sont aplanis par le passage d'un rouleau plat dès que l'herbe a poussé suffisamment pour fixer le sol et le dépôt contaminant. Sur un sol couvert de végétation herbacée, la technique utilisée a consisté à appliquer un désherbant total à base de glyphosate afin de dégager le sol en provoquant le dessèchement des plantes indésirables, et de supprimer la concurrence pour le gazon futur.

L'hydrosemiss est réalisé à l'aide d'un camion tout terrain, portant un réservoir contenant le milieu de culture projeté au moyen d'une lance. Ce dispositif est alimenté par une pompe à aubes en caoutchouc pour ne pas endommager les graines. Il est possible de réaliser l'épandage du support de culture à sec, par hélicoptère. Cette technique est beaucoup plus rapide que la précédente, mais sensible aux conditions météorologiques, notamment l'arrivée de la pluie nécessaire à l'hydratation du milieu de culture.

La couverture végétale du sol par la technique de l'hydrosemiss présente un avantage évident sur les sols contaminés, car elle permet d'éviter la remise en suspension du dépôt de polluant qui se trouve fixé par le substrat de culture du gazon. Lorsque le gazon a poussé, il constitue une couche protectrice limitant le risque de contamination lors de l'accès aux terrains contaminés par des véhicules ou des piétons.

4.2.1.2. Méthode de mesure de l'efficacité du décapage

Pour déterminer l'efficacité du décapage, il est nécessaire de connaître l'activité initiale du sol et de s'assurer qu'une partie des radionucléides déposés n'a pas migré en dessous de la couche que l'on envisage de décapier.

La technique de prélèvement a consisté à enfoncer dans le sol un tube en aluminium dont une extrémité a été découpée en dent de scie. L'autre extrémité était traversée par une tige d'acier permettant de faire tourner le tube en l'enfonçant à la main par un mouvement alternatif. L'humidité du sol était suffisante pour emprisonner dans le tube une carotte de sol qui a été ensuite délitée par le bas en couches de 1 à 2 cm d'épaisseur recueillies séparément dans des sachets de polyéthylène. La radioactivité des émetteurs γ de chaque couche a été ensuite comptée à Cadarache par spectrométrie γ . Le strontium-90 a été analysé par radiochimie selon une méthode spécialement mise au point pour analyser les échantillons de sols et de végétaux provenant de Tchernobyl dont nous avons publié la description (Tormos *et al.*, 1995).

4.2.1.3. Campagnes d'essais à Tchernobyl

Une campagne d'essai a été réalisée dans la zone interdite autour de la centrale de Tchernobyl, dans deux champs abandonnés situés à proximité des villages de Burakovka et Chistogalovka (figure 4.1) où les dépôts sont de 3 MBq.m^{-2} en ^{137}Cs et $2,6 \text{ MBq.m}^{-2}$ en ^{90}Sr d'après les données du comité d'Etat d'Hydrométéorologie de l'ex URSS. Le sol est un sol podzolique formé sur une terrasse de la rivière Pripyat composée de sable alluvial (figure 4.2).

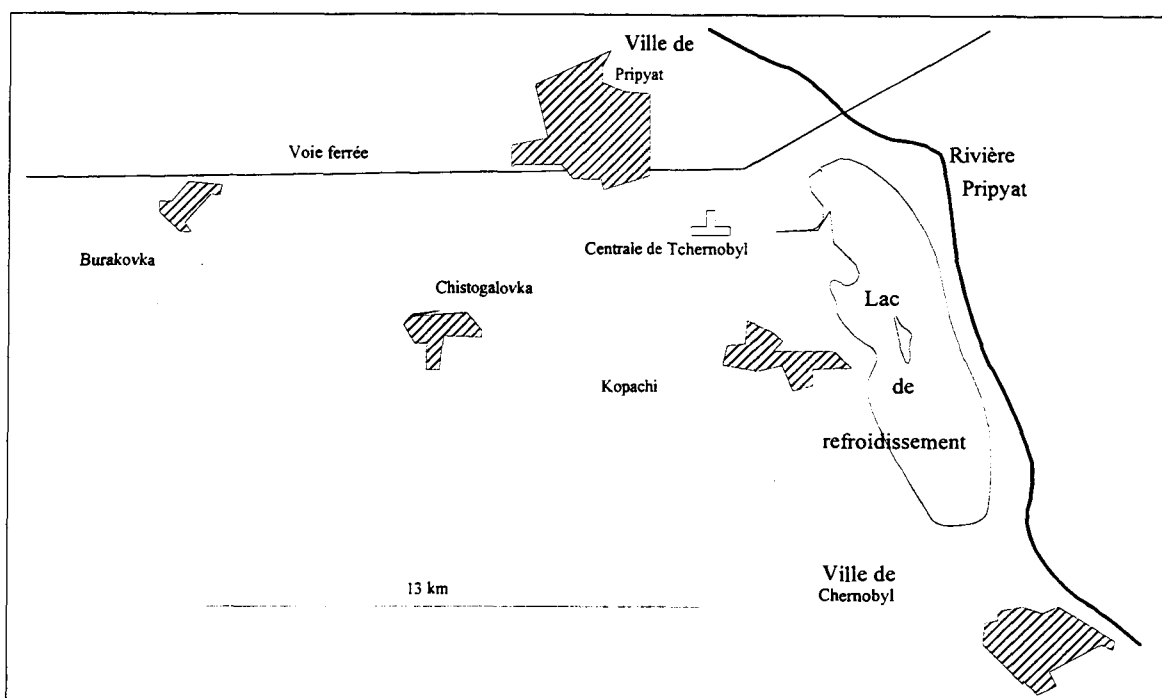


Figure 4.1 : plan de situation de la zone interdite de Tchernobyl.

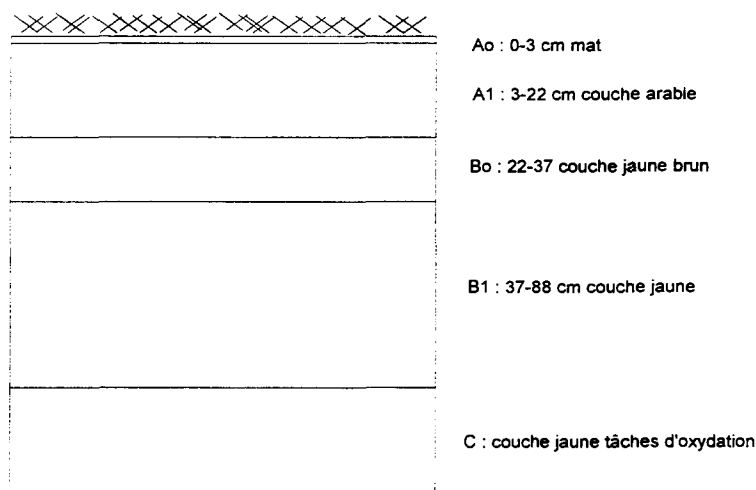


Figure 4.2 : profil pédologique du sol à Burakovka

La préparation du sol n'a pas été nécessaire, car du fait de l'abandon, les champs étaient recouverts d'une strate herbacée très dense, composée notamment d'*Agropirum repens* formant un réseau de racines favorable à l'utilisation de la déplaqueuse à gazon. La profondeur de la lame de la déplaqueuse a été réglée pour décaper une couche de 5 cm de profondeur. Chaque essai de décapage a été réalisé sur environ 100 m². Le sol avant et après le décapage a été prélevé en 5 points à l'aide d'un emporte pièce en acier inoxydable de 10 × 10 cm de côté et 5 cm de hauteur. Les 5 échantillons ont été mélangés et comptés à Cadarache selon les méthodes mentionnées ci-dessus. Par ailleurs, nous nous sommes attachés à caractériser les déchets produits par le décapage. Plusieurs échantillons de plaques de gazon ont été délités afin de caractériser l'activité spécifique des différentes parties végétales et minérales.

Ces essais ont été poursuivis en 1993 à plus grande échelle (1500 m²) pour tester les conditions de remise en culture d'un champ décontaminé. Les deux principaux types de sols rencontrés dans la région de Tchernobyl ont été soumis à ce test : un sol de tourbière en Ukraine et un sol podzolique, en Biélorussie.

Essai sur sol de tourbière

L'essai sur sol de tourbière s'est déroulé dans la province de Rovno, située à 250 km à l'ouest de Tchernobyl dans une région où la population n'a pas été évacuée. Cet essai a été réalisé dans le cadre du programme ECP/4, avec le soutien logistique de la station d'expérimentations agricoles de Samy, près de Rovno.

La contamination des sols de cette région est due principalement à ¹³⁷Cs avec des dépôts 110 -185 kBq.m⁻² d'après les données du comité d'Etat d'hydrométéorologie. Ces sols sont en général occupés par les prairies permanentes qui avec le temps ont développé une couche de mat très dense. La contamination des prairies se traduit par la contamination du lait et de la viande de bovins qui constituent actuellement la principale cause des doses par ingestion. L'objectif de cet essai a donc été d'évaluer l'impact de la décontamination des prairies avec une déplaqueuse à gazon sur la contamination du lait. Afin de produire la quantité d'herbe suffisante pour nourrir des vaches, deux parcelles expérimentales de 2500 m² chacune ont été choisies : une parcelle témoin et une parcelle destinée à être décontaminée à l'aide de la déplaqueuse à gazon. La parcelle destinée à l'essai a été décontaminée à l'aide de la déplaqueuse à gazon. Les plaques de gazon ont été transportées manuellement en bordure de champ. Après passage de la déplaqueuse à gazon la parcelle d'essai a

ensuite été labourée, puis semée d'un mélange d'espèces utilisé dans cette région, composé de maïs, de tournesol, de pois, d'avoine et de colza.

Un lot de trois vaches a été nourri avec l'herbe disponible, à raison de 60 kg par vache et par jour. La contamination du lait produit par ces vaches a été comparée à celle de vaches nourries par de l'herbe produite sur la parcelle témoin.

Essai sur sol podzolique

L'essai sur sol podzolique s'est déroulé dans la province de Gomel en Biélorussie, au village de Savichy, dans la zone de relogement volontaire qui a reçu un dépôt de 0,5 - 1,5 MBq.m⁻² de ¹³⁷Cs, en bordure du périmètre interdit.

Le but de cet essai était :

- d'évaluer l'efficacité de décontamination de la déplaqueuse à gazon pour une prairie sur sol podzolique dont la couche humifère est limitée à une épaisseur de 10 cm
- d'évaluer les conséquences du décapage de ce type de sol sur sa stabilité ultérieure
- d'évaluer l'option de stockage *in situ* des déchets produits par le décapage du sol

La parcelle d'essai, qui désormais porte le nom de "French Field", est située dans une prairie qui a été abandonnée après l'accident et reçoit périodiquement la visite des sangliers qui pullulent dans la zone interdite depuis l'exode de ses habitants. Environ 20% de la surface de ce champ était labourée par les sangliers, ce qui n'a pas facilité le travail de la déplaqueuse, car la surface du sol était très perturbée.

Le sol est de type podzolique sur sable alluvial des terrasses du Dniepr et de la rivière Pripyat. Le pH (eau) du sol de cette parcelle est de 5,0-5,5 et la teneur en matière organique de 1,5-1,8%.

4.2.2. Résultats et discussion des essais à Tchernobyl

4.2.2.1. Essai préliminaire dans la zone interdite autour de Tchernobyl

Profil de contamination du sol

Plusieurs radionucléides d'importance mineure en terme de radioprotection sont détectables dans le sol. Mais les résultats montrent que la radioactivité du sol est due essentiellement à ¹³⁷Cs et ⁹⁰Sr (figure 4.3). Plus de 90% du dépôt de tous les radionucléides se trouvent localisés dans les 5 premiers centimètres de sol. Un pic d'activité de tous les radionucléides est observable entre 25 et 30 cm de profondeur. Cette couche correspond à la semelle de labour, c'est-à-dire la couche de sol tassée par le talon de la charrue utilisée pour labourer le sol avant l'accident. Nous attribuons l'augmentation de l'activité du sol à cet endroit à l'accumulation de particules colloïdales sur lesquelles sont fixés les radionucléides. La migration des radionucléides associés aux particules colloïdales a été rapportée par d'autres auteurs (Brey, *et al.*, 1994).

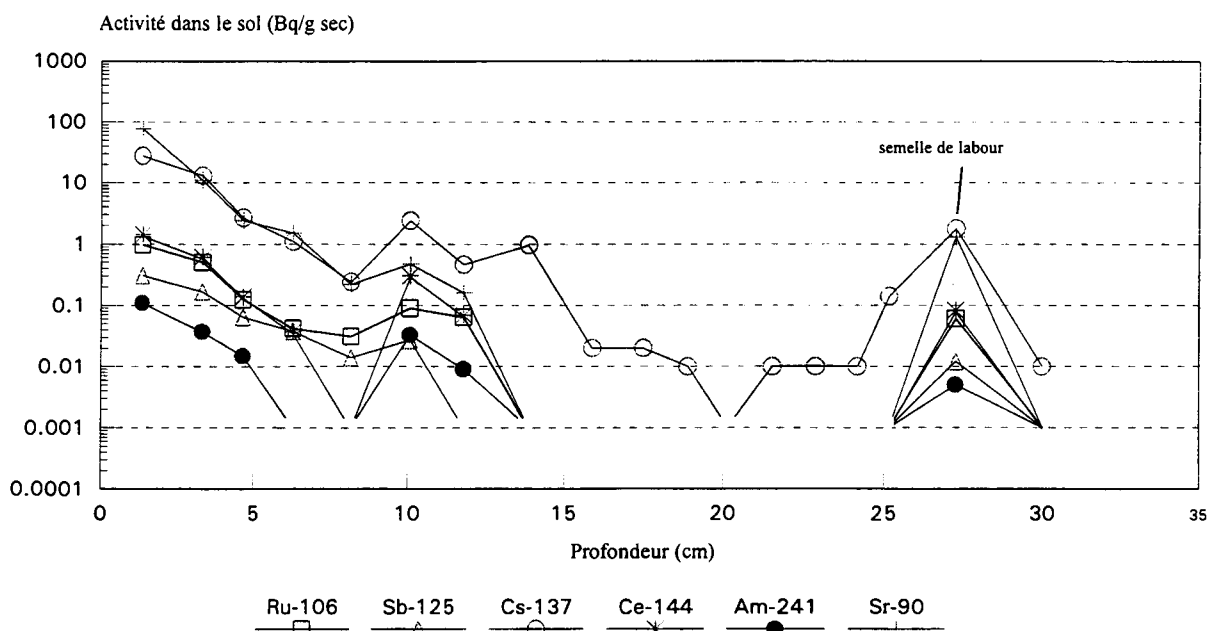


Figure 4.3 : profil de migration des radionucléides dans le profil de sol à Tchernobyl en 1992, Burakovka, 15 km à l'ouest du réacteur n°4, sol podzolique.

b) efficacité du décapage

Les résultats montrent que l'enlèvement d'une couche de sol de 4 à 5 cm d'épaisseur avec la déplaqueuse à gazon a permis de retirer plus de 97% du dépôt de ^{137}Cs et ^{90}Sr (Tableau 4.1).

Tableau 4.1 : activité du sol avant et après le décapage d'une couche de 5 cm d'épaisseur à l'aide d'une déplaqueuse à gazon (Bq.kg^{-1} (sec)) et pourcentage de l'activité décapée.

Chistogalovka

Radionucléides	^{60}Co	^{90}Sr	^{106}Ru	^{125}Sb	^{134}Cs	^{137}Cs	^{144}Ce	^{154}Eu	^{155}Eu	^{241}Am
Avant décapage	1110	274000	23973	6217	30847	443733	32077	5243	4777	3423
Après décapage	8	8000	229	146	354	5150	319	53	51	25
Efficacité %	99	97	99	98	99	99	99	99	99	99

Burakovka

Avant décapage	170	132512	3195	694	4346	61492	3100	509	482	282
Après décapage	5	1350	106	57	135	1968	121	18	17	9
Efficacité %	97	99	97	92	97	97	96	97	97	97

Compte tenu des fortes activités mesurées, l'erreur sur le taux de comptage est pour la plupart des radionucléides inférieure à 10%. L'erreur sur la mesure du strontium-90 est d'environ 20%.

Remarque : le calcul de l'activité surfacique mesurée lors de nos expériences donne 4,7 et 10 MBq.m⁻² pour ¹³⁷Cs et ⁹⁰Sr respectivement, valeurs supérieures à celles annoncées par la carte des dépôts. Il faut noter cependant que les dépôts peuvent être très hétérogènes en raison notamment de la présence de particules chaudes. Nous avons pu isoler dans un échantillon prélevé à Burakovka une particule chaude que nous avons analysée. Cette particule de forme ovoïde mesurait environ 200 µm dans sa plus grande longueur soit une grande taille par rapport à celles étudiées par d'autres auteurs (Burakov, *et al.*, 1994; Tcherkezian, *et al.*, 1994) et contenait essentiellement ⁹⁰Sr et ¹³⁷Cs. L'observation au microscope électronique à balayage a révélé une structure comparable à celle d'un combustible à base d'oxyde d'uranium non fondu ce qui laisse supposer que son éjection du réacteur provient d'un entraînement mécanique, probablement lors de l'explosion (annexe 6).

Outre la mesure de l'efficacité de décontamination de la déplaqueuse à gazon, l'une des questions principales était la récolte des plaques de gazon découpées par la déplaqueuse. En effet, les sols sableux se prêtent généralement assez mal à la production de plaques de gazon de bonne consistance. C'est pourquoi les "gazonnières" sont généralement implantées sur des terrains limoneux. Nos observations à Tchernobyl ont permis de déterminer que lorsque l'enherbement du sol est dense, le réseau de racines donne une cohésion suffisante aux plaques de gazon pour en faire des rouleaux comme en font les producteurs de gazon. L'épaisseur de la couche décapée est de plus un élément favorable à la cohésion. Cependant, s'agissant de rouleaux de gazon très contaminés, leur manipulation ne peut être envisagée à la main. C'est pourquoi l'utilisation d'un convoyeur mécanique serait nécessaire en cas d'application de la technique à grande échelle.

Caractérisation des déchets produits

La masse d'herbe représente environ 10% de la masse de sol (Tableau 4.2). L'activité de l'herbe est très variable d'un échantillon à l'autre en raison de la présence de particules chaudes dans certains échantillons. Abstraction faite des échantillons qui contiennent une activité très élevée, l'activité de l'herbe représente moins de 10% de l'activité du sol. Par conséquent la majeure partie du déchet, tant en terme de masse qu'en terme d'activité, est constituée par du sol. Il ne semble donc pas intéressant d'envisager la séparation éventuelle des constituants.

Tableau 4.2: caractérisation des déchets produits par le déplaquage des sols. Valeurs pour 10 cm².

Echantillon	Masse(g)		Activité (Bq)	
	Sol	Herbe	Sol	Herbe
1	308	46	23408	22494
2	185	16	26455	1488
3	230	15	7820	171
4	364	19	10920	336
5	316	12	15168	146
6	432	67	17323	18961
7	454	25	14074	1198
8	465	40	17484	468
9	409	33	28753	3422
moyenne	351	30	17934	5409
Ecart	99	18	7020	8788

4.2.2.2. Essai en Ukraine sur sol de tourbière

Le sol de tourbière se prête particulièrement bien à l'utilisation de la déplaqueuse à gazon, car il a naturellement une structure fibreuse qui donne une bonne cohésion aux plaques de gazon.

La mesure de l'activité due à ^{137}Cs dans le profil de sol a permis de vérifier que plus de 90% de l'activité mesurable jusqu'à 35 cm de profondeur est présente dans les 5 premiers centimètres de sol (figure 4.4).

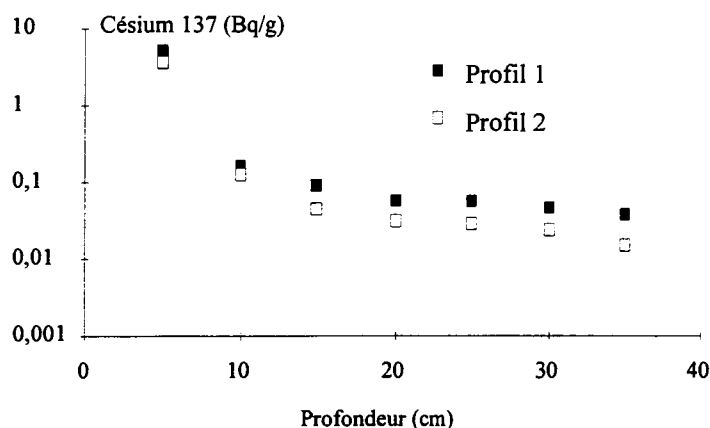


Figure 4.4 : distribution de ^{137}Cs dans 2 profils de sol réalisés à Milyach, province de Rovno, Ukraine en 1993, sur un sol de tourbière. La distance à la centrale nucléaire de Tchernobyl est de 250 km.

L'herbe produite sur la parcelle témoin contenait $550\text{--}660 \text{ Bq.kg}^{-1}$ frais de ^{137}Cs , et l'herbe de la parcelle décontaminée $45\pm 24 \text{ Bq.kg}^{-1}$ frais en moyenne. Il est possible d'observer la décontamination progressive du lait produit par les vaches soumises à l'expérience qui a atteint un facteur 20 au bout de 5 jours (tableau 4.3). La diminution de la contamination du lait en fonction du temps est le résultat de l'élimination du césium contenu dans l'organisme entier des vaches nourries avec de l'herbe non contaminée.

Tableau 4.3 : évolution de la contamination du lait des vaches nourries avec de l'herbe cultivée sur un champ décontaminé à l'aide d'une déplaqueuse à gazon. Comparaison avec la contamination du lait des vaches témoin.

Date	Vache n°	^{137}Cs (Bq.l ⁻¹)			Facteur de décontamination
		Essai	Moyenne	Témoin	
21.07.93	227	59	72	723	10
	246	80			
	920	79			
22.07.93	227	81	78		10
	246	85			
	920	69			
23.07.93	227	67	71		10
	246	74			
	920	74			
24.07.93	227	49	47		15
	246	48			
	920	45			
25.07.93	227	38	36		19
	246	32			
	920	34			

4.2.2.3. Essai en Biélorussie sur sol podzolique

Le prélèvement de sol sur un profil vertical a permis de déterminer à nouveau que la majeure partie du dépôt se trouve localisée dans les 5 premiers cm de sol. A noter également un dépôt relativement important de ^{90}Sr qui représente environ 10% du dépôt de ^{137}Cs (figure 4.5). En effet, cette partie de la Biélorussie a été touchée par le dépôt de particules chaudes contenant du strontium - 90.

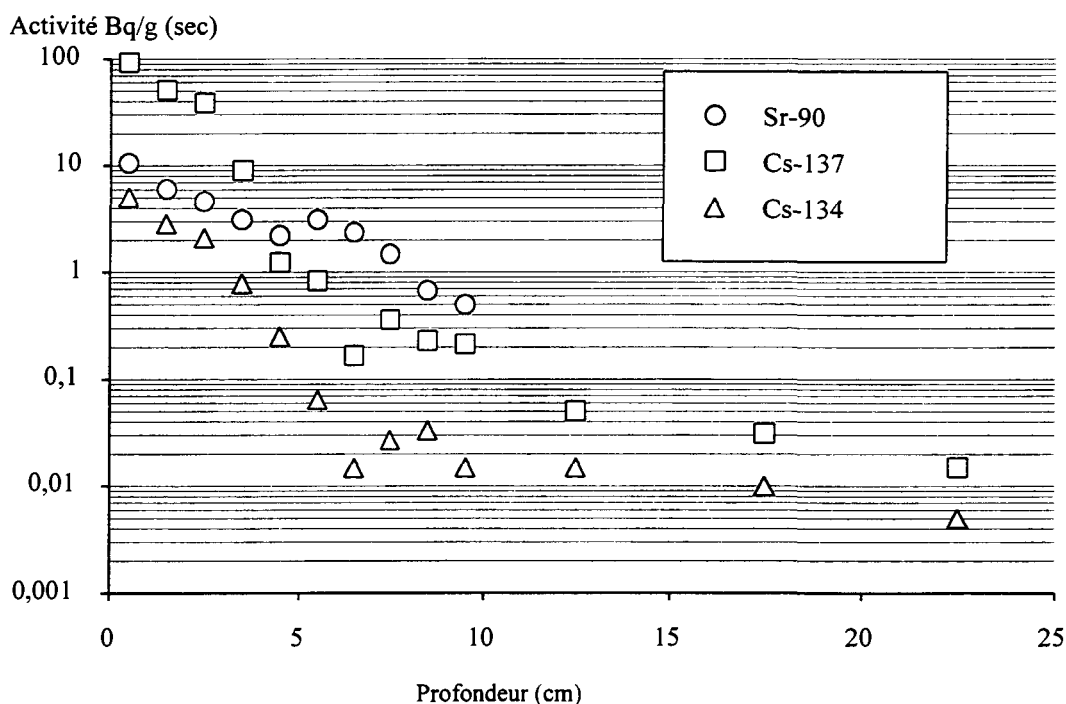


Figure 4.5 : distribution des radionucléides dans le profil de sol à Savichy, Biélorussie, 1993, prairie sur sol podzolique.

Efficacité de la technique pour décontaminer le sol

La prairie permanente qui couvre ce champ possède une couche de mat très importante associée à un horizon humifère d'environ 10 cm d'épaisseur, caractéristique de ce type de podzol appelé "sod podzol". La déplaqueuse à gazon a enlevé environ la moitié de cette épaisseur, soit 5 cm. L'efficacité de décontamination exprimée en pourcentage de l'activité contenue dans la couche de 10 cm est en moyenne de $96 \pm 6 \%$ et $82 \pm 10 \%$ pour ^{137}Cs et ^{90}Sr , respectivement (Tableau 4.4).

L'efficacité du décapage en terme d'irradiation externe se traduit par une diminution d'un facteur 3 de du débit de dose absorbée mesurée à 1 m au dessus du sol. (Tableau 4.5)

La figure 2.1 qui exprime le débit de dose absorbée à 1 m du sol en fonction de la profondeur de migration permet d'expliquer pourquoi le facteur de réduction de l'irradiation externe n'est pas égal au facteur de décontamination. En effet, l'irradiation externe décroît avec la migration de la contamination dans le sol, alors que le décapage, enlève certes une couche contaminée, mais aussi la couche de protection qui s'est formée au dessus de la couche contaminée au fur et à mesure de la migration du radionucléide dans le sol. Il en résulte une différence entre le facteur de réduction de la dose absorbée et le facteur de décontamination.

Tableau 4.4 : efficacité de décontamination : activité enlevée par le décapage d'une couche de 5 cm de sol à l'aide d'une déplaqueuse à gazon en pourcentage de l'activité totale contenue dans la couche de 10 cm. Prairie sur sol podzolique, Savichy, Biélorussie, 1993.

point de prélèvement	Efficacité ^{137}Cs %	Efficacité ^{90}Sr %
1	98	
2	97	
3	90	90
4	98	78
5	98	79
6	98	83
7	93	85
8	98	79
moyenne	96	82
Ecart type	3	5

Tableau 4.5 : débit de dose absorbée à 1 m au dessus du sol, avant et après décapage. ($\mu\text{Gy.h}^{-1}$)

Avant	1,7
Après	0,5
Pile de déchet	6,0

Stabilité du sol après le décapage et contamination de l'herbe repoussée

L'observation visuelle du champ un an après le décapage a permis de constater que l'herbe a repoussé. Un prélèvement de cette herbe a été effectué. L'activité en ^{137}Cs a nettement diminué et n'est plus que de 1 Bq.g^{-1} (de poids sec) au lieu de 6,7 avant le décapage. Par contre, l'activité en ^{90}Sr est passée de 3,1 à $2,5 \text{ Bq.g}^{-1}$. Ainsi, la diminution de l'activité du sol d'un facteur 5 ne se traduit que par une diminution de 20% de l'activité de l'herbe. Ce fait est imputable à la présence, dans la couche qui a été décapée, de particules chaudes contenant du strontium qui n'est pas disponible pour les plantes car insoluble. Le facteur de transfert du strontium à l'herbe poussant sur cette couche est donc plus faible que celui de l'herbe poussant sur la couche restante qui ne contient que du strontium soluble libéré par les particules et qui a migré dans le sol. Mais il est probable que si le sol n'avait pas été décapé, les particules chaudes auraient continué à libérer du strontium sous forme soluble provoquant l'augmentation du facteur de transfert. Cette observation permet de prédire une augmentation des facteurs de transferts dans le futur lorsque les particules chaudes auront libéré le césium et le strontium.

Option d'entreposage *in situ* des déchets

Les plaques de gazon ont été transportées en bordure de champ pour former une pile d'environ 4 m de largeur, 30 m de longueur et 2 m de hauteur qui occupe environ 5 % de la surface décontaminée. Cette pile repose sur un film de polyéthylène destiné à capter les eaux d'infiltration après leur percolation à travers les plaques de gazon. Ce dispositif a permis d'établir que pour une pluviosité de

210 mm, environ 0,05 - 0,1% du césium contenu dans la pile avait été lessivé, ce qui correspond à la fraction hydrosoluble pour ce type de sol. Le flux total de césium vers les couches profondes du sol n'augmente pas globalement, mais du fait de la concentration des déchets en un point, pour une pile occupant 5% de la surface décontaminée, le flux par unité de surface en dessous de la pile est augmenté d'un facteur 20 (annexe 7).

Cependant, il a été observé dans le sol podzolique autour de Tchernobyl (Tikhomirov, 1995), que le flux de césium entre l'horizon A₀ et A₁ du sol est d'environ 0,1% par an, mais qu'entre l'horizon A₁ et B, il n'est plus que de 0,01% (figure 4.2) en raison de la faible teneur en matière organique de l'horizon B. Il semble donc que l'entreposage des plaques de gazon sur le site même où elles ont été récoltées ne présente pas un risque très significatif de pollution des couches profondes du sol. La mise en oeuvre d'un dispositif de protection du sol ne paraît pas justifiée, mais il serait facile, avant d'entreposer les plaques de gazon, de préparer le sol en y incorporant un matériau sorbant tel que par exemple de la clinoptilolite qui donne de bons résultats pour réduire les flux de césium entre le sol et les plantes.

Plusieurs solutions sont envisageables pour limiter l'accès à ces piles de déchets : les planter d'arbustes épineux tels que l'aubépine afin d'empêcher les animaux d'aller paître l'herbe contaminée, ou encore les recouvrir de sol non contaminé.

4.2.3. Conclusion sur le décapage des sols à l'aide d'une déplaqueuse à gazon

Les essais à Tchernobyl ont montré que même 6 ans après un accident nucléaire, il était possible d'enlever plus de 90% du dépôt de radionucléides. Cette bonne efficacité de décontamination du sol se traduit par une diminution importante de la contamination du lait des vaches élevées sur les prairies naturelles. Ce résultat est intéressant dans la mesure où l'ingestion de lait contaminé est l'une des principales contributions à la dose par ingestion dans les régions touchées par l'accident de Tchernobyl. La technique de décapage des sols à l'aide d'une déplaqueuse à gazon est donc principalement utilisable pour éviter des doses internes.

La déplaqueuse existante pourrait être utilisée pour décontaminer les prairies permanentes affectées au pâturage des vaches privées qui produisent le plus souvent du lait dont la contamination dépasse les niveaux d'intervention. Ces prairies permanentes sont souvent situées en zone forestière où la présence d'arbres ou de souches nécessite l'utilisation de machines de petite taille, comme celle mise en oeuvre dans nos essais. Une application de la technique que nous avons décrite aux prairies contaminées dans les régions touchées par l'accident de Tchernobyl permettrait d'apporter une solution permanente au problème de la contamination de ces pâturages, même dans les régions éloignées de la centrale accidentée.

Cependant, un obstacle à l'application de cette technique est lié à la disponibilité d'une machine adaptée. Les machines existantes ne sont pas utilisables pour le décapage de grandes surfaces. Un avant projet de déplaqueuse pouvant décapier 10 ha par jour a été réalisé (Jouve et al., 1992). Mais il serait irréaliste d'inscrire l'emploi de cette machine dans les plans d'intervention avant de connaître les résultats d'essai d'un prototype, par exemple sur les terrains contaminés de Tchernobyl.

Un autre obstacle est lié à la production de déchets dont la seule option de gestion disponible en l'état actuel de la connaissance est l'entreposage sur le lieu de production.

Les techniques de décapage du sol par quelque moyen que ce soit présentent toutes l'inconvénient de produire de grandes quantités de déchets. Or, il n'existe pas à notre connaissance d'outil permettant de rivaliser avec la déplaqueuse à gazon pour décapier une épaisseur de sol limitée à 1-5 cm. Ce faisant, la quantité de déchet produite par cette technique est comparativement plus faible que celle produite par les techniques permettant de décapier une couche plus épaisse, comme par exemple le scraper ou le bulldozer. De plus la consistance des déchets produits par la déplaqueuse à gazon présente un avantage par rapport à du sol décapé au bulldozer qui aurait perdu sa cohésion et se trouverait sous forme de particules sensibles à la remise en suspension par le vent ou l'entraînement par la pluie. Nos essais réalisés en conditions réelles ont montré que la quantité relativement limitée de déchets produits par la déplaqueuse à gazon pouvait être stockée sur le lieu de production sans incidence sur l'environnement.

4.3. Conséquences radioécologiques

Les contre-mesures et les techniques de réhabilitation sont utilisables pour réduire l'irradiation interne, par ingestion ou inhalation ou l'irradiation externe. Il n'existe pas de solution universelle aux problèmes posés par la contamination accidentelle de l'environnement mais un ensemble d'options qu'il est nécessaire d'étudier d'un point de vue stratégique pour utiliser au mieux les ressources limitées affectées à la gestion de la crise. L'analyse coût/bénéfice permet une comparaison des différentes options disponibles sur la base de critères apparaissant comme les plus pertinents. A titre d'exemple, l'analyse coût/bénéfice de l'utilisation d'une déplaqueuse à gazon pour décontaminer les prairies permanente est présentée ci-après.

4.3.1. Irradiation interne par ingestion

4.3.1.1. Hypothèses envisagées

Sur la base des observations réalisées en Ukraine dans les territoires affectés par l'accident de Tchernobyl, un cas hypothétique a été imaginé pour compenser l'absence de données réelles. Les hypothèses s'inspirent de quelques données disponibles concernant le village ukrainien étudié ci-dessus. Le décapage des prairies permanentes de tourbière est envisagé afin de réduire la contamination du lait.

Il s'agit d'un village de 1000 habitants situé dans la région de Rovno, où certaines terres agricoles sont occupées par des tourbières affectées à la pâture des vaches privées. Ce village a reçu un dépôt compris entre 3 et 5 Ci.km⁻² de césium-137 présent essentiellement sous forme soluble. Le facteur de transfert sol-plante étant très élevé dans les tourbières et les vaches étant nourries essentiellement à l'herbe, le lait a une contamination de 650 Bq.l⁻¹. La consommation de lait dans ce village est supposée égale à la moyenne pour l'ex URSS qui est de 1 litre par personne et par jour. La productivité des pâturages est de 10000 litres par hectare et par an, la superficie des pâturages de tourbières est de 36,5 ha. Les tourbières ne bénéficient pas de l'application de contre-mesures à base d'engrais qui sont réservées en priorité aux terres où est pratiquée la culture intensive. La totalité du lait produit par les vaches privées est auto-consommée. La déplaqueuse à gazon est appliquée sur les 36,5 ha de prairies.

4.3.1.2. Données existantes

La déplaqueuse à gazon permet d'obtenir un facteur de décontamination d'environ 20 (tableau 4.14). La différence entre la contamination du lait avant et après application de la technique est de 600 Bq.l⁻¹. La technique de réhabilitation envisagée permet donc d'éviter l'ingestion de 600 Bq par personne et par jour. Cette activité évitée va décroître avec le temps car les pâturages vont s'auto-décontaminer grâce à la décroissance radioactive du césium, la perte de césium par migration dans le sol et par ruissellement, ainsi que par exportation dans l'herbe broutée. La période radioécologique du césium-137 dans les prairies est supposée égale à 14 ans (Tableau 2.2). La dose efficace engagée pour 50 ans évitée par l'application de la technique de réhabilitation est calculée en utilisant un facteur de dose de

$1,35 \times 10^{-8} \text{ Sv.Bq}^{-1}$ (tableau 2.3) pour un rendement d'absorption de 1, à l'aide de l'expression suivante :

$$E_{cc} = \sum_t A_e \times (e^{-\lambda t}) \times L_i \times F_d \times n$$

E_{cc} = dose efficace engagée par ingestion, collective, cumulée (Hommes.sieverts).

A_e = diminution de la contamination du lait (Bq.l^{-1})

λ = constante de décroissance radioécologique = $0,0495$ ($T_{\frac{1}{2}} = 14 \text{ ans}$)

t = temps écoulé (ans)

L_i = Quantité journalière de lait ingérée par individu (l)

F_d = facteur de dose efficace engagée pour 50 ans (Sv.Bq^{-1})

n = nombre de personnes concernées (Hommes)

La dose évitée au bout de 50 ans est de 53 Hommes.sieverts (figure 4.6).

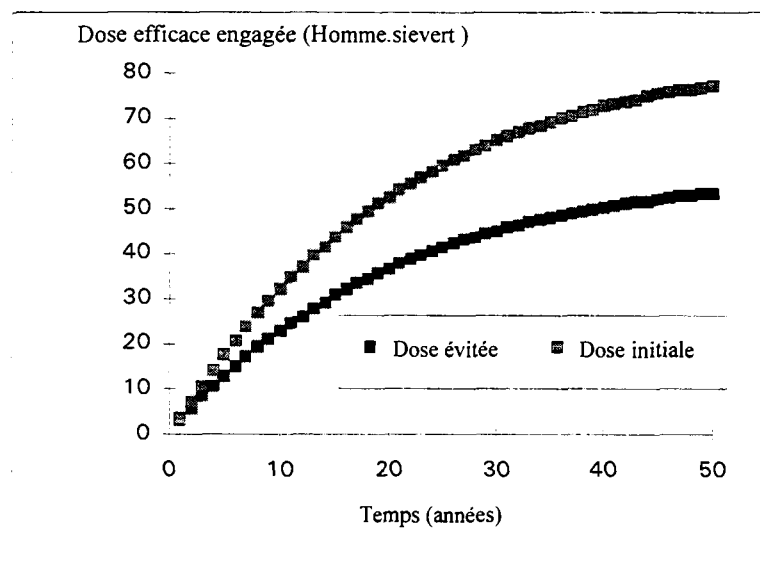


Figure 4.6 : dose collective efficace engagée pour 50 ans, évitée par le décapage des sols à l'aide d'une déplaqueuse à gazon : dose par ingestion.

Le coût de la technique appliquée en Ukraine est de 960 F par hectare pour l'investissement et le travail, et de 280 F par hectare pour le stockage *in-situ* des déchets en supposant que la pile de déchet occupe 5% de la surface décontaminée et que le sol contaminé est entreposé directement sur le sol naturel. Ce dernier coût correspond à la valeur du terrain immobilisé. Le coût total est donc de 1260 F/ha soit 45990 F pour 36,5 ha. Il est donc possible de calculer le coût de l'Homme sievert évité qui est ici de 867 F, coût du même ordre de grandeur que celui relatif à l'installation d'une culture.

4.3.2. Irradiation externe

4.3.2.1. Hypothèses envisagées

L'hypothèse envisagée ici est celle du décapage ou du labour du sol autour des habitations pour atténuer l'irradiation externe, dans un village de 1000 habitants situé dans une zone de dépôt de 1 MBq.m⁻². La population est constituée en majorité de retraités car une partie des actifs n'est pas retournée au village après son évacuation (tableau 4.6). Le facteur de réduction de dose est respectivement de 3 et 10 pour le décapage et le labour. Le débit de dose absorbée avant l'intervention est en moyenne de 1,7 µGy.h⁻¹.

4.3.2.2. Calcul

Afin de comparer cette option à celle étudiée ci-dessus, la dose évitée est calculée pour la même période, à savoir 50 ans, par la relation suivante :

$$H_C = \sum_t A \cdot e^{(-\lambda t)} \times d \left(1 - \frac{1}{F_r}\right) \times k$$

H_C = équivalent de dose cumulée à la population considérée Sv

A = activité déposée sur le sol (Bq)

λ = constante de décroissance radioactive (an⁻¹)

t = Temps (ans)

d = facteur de dose absorbée (Gy.Bq⁻¹)

k = facteur de conversion du gray en sievert = 1 Sv.Gy⁻¹

F_r = facteur de réduction de dose = $\frac{\text{débit de dose avant intervention}}{\text{débit de dose après intervention}}$

Les résultats montrent que la dose évitée est faible en comparaison de celle évitée par le décapage des prairies puisqu'elle atteint 0,3 Sv au bout de 50 ans. La dose évitée par le labour dépasse celle évitée par le décapage (figure 4.7).

Tableau 4.6 : contribution de la contamination du sol autour des habitations à l'exposition externe annuelle d'une population villageoise de 1000 habitants vivant dans une zone de dépôt à 1 MBq.m⁻² et dose évitée par la réhabilitation.

	Travailleurs à l'intérieur	Travailleurs à l'extérieur	Retraités	Ecoliers	Total
Temps passé à l'extérieur (h)	1840	1314	2628	2102	
Nombre de personnes concernées	171	177	428	225	1000
Dose évitée par le décapage (µSv.an-1)	2391	1708	3416	2733	10249
Dose évitée par le labour (µSv.an-1)	2814	2010	4020	3216	12062
Dose totale sans intervention (µSv.an-1)	3127	2233	4467	3574	13402

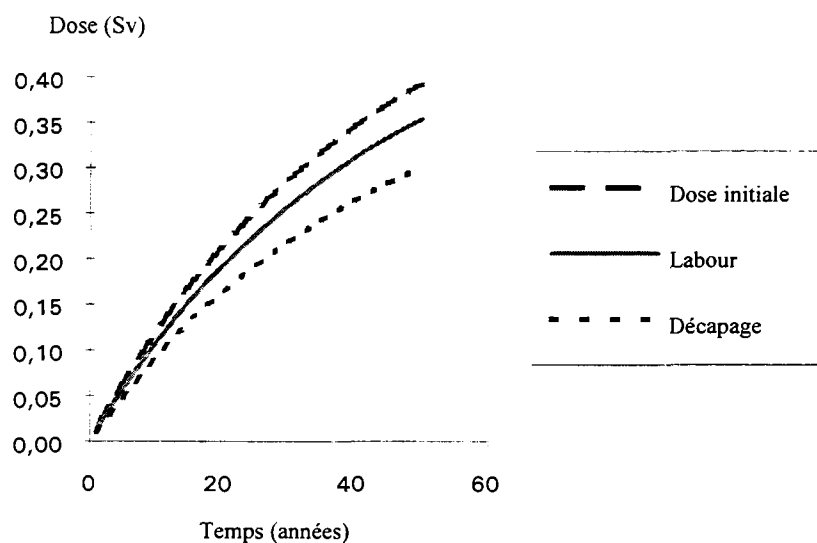


Figure 4.7 : équivalents de dose d'irradiation externe cumulés évités par le décapage du sol et le labour et dose due à l'irradiation externe provenant du sol autour des maisons d'habitation reçue par une population de 1000 personnes en l'absence d'intervention.

Les coûts respectifs du décapage du sol et du labour sont de 1260 et 840 F par hectare. Nous ferons l'hypothèse qu'il faut traiter 1000 m² de sol par habitation. Sachant que chaque famille est en moyenne composée de 5 personnes, le nombre d'habitations à réhabiliter est de 200, soit 20 ha. Le coût de l'Homme sievert évité est donc respectivement de 84000 et 48000 F pour le décapage et le labour pour 20 ha.

4.4. Critique des contre-mesures et des techniques de réhabilitation

4.4.1. Analyse coût/bénéfice

Le coût de l'Homme.sievert évité n'est qu'un critère parmi d'autres. Des critères, sociologiques, politiques ou économiques peuvent entrer dans le choix d'une option. Mais du point de vue de la protection des populations contre les rayonnements, le coût de l'Homme.sievert évité est un critère d'une pertinence incontestable.

Pour illustrer l'application d'une démarche stratégique, il serait intéressant de comparer les autres options applicables au cas de Miljachy. Elles sont au nombre de 4 et ont été évaluées dans le cadre du programme ECP/4 (Hubert *et al.*, 1996). Il s'agit du labour profond, de l'application d'engrais associée à la culture du sol de prairie par un cultivateur à disques et à l'emploi de sorbants du césium à base de cyanoferrates, sous forme de bolus donné aux animaux et sous forme de filtres pour le lait. Les facteurs de décontamination du lait qu'il est possible d'obtenir par l'application de ces techniques sont compris entre 2 et 10. La dose évitée par chaque option est supposée proportionnelle au facteur de décontamination (Tableau 4.7).

Les données concernant les coûts ont fait l'objet d'une évaluation collective par les scientifiques promoteurs des différentes techniques (Roed *et al.*, 1995). Lorsque les coûts concernent des interventions à renouveler périodiquement comme par exemple l'apport d'engrais, ou l'emploi de cyanoferrates, ils sont calculés pour toute la période concernée par le cumul de dose évitée, à savoir 50 ans.

Tableau 4.7 : comparaison de la technique proposée avec les techniques existantes.

Technique	Facteur de décontamination ou de réduction de dose	Coût (F)	Bénéfice (Homme sievert)	Coût/Bénéfice (F/ Homme sievert)
Décapage (prairie)	20	45990	53	868
Labour profond (prairie)	4	30660	11	2787
Filtre à lait	10	766500	27	28389
Engrais + cultivateur	16	1479345	42	35223
Bolus	3	5110000	8	638750
Décapage (jardins)	3	25200	0,30	84000
Labour (jardins)	10	16800	0,35	48000

La dose collective cumulée évitée au bout de 50 ans est comprise entre 8 et 43 Sv pour les options existantes, c'est-à-dire le labour, les engrais, le bolus et le filtre à lait. L'option proposée dans cette thèse, c'est-à-dire le décapage permet d'obtenir un rapport coût-bénéfice le plus faible pour une dose collective évitée la plus forte (53 Sv). Si l'intervention avait eu pour objectif d'éviter une dose plus faible, d'autres techniques comme le labour profond ou l'application d'engrais auraient été plus avantageuses. Dans le cas étudié, pour que ces techniques soient compétitives la dose évitée ne doit pas dépasser 10 Sv pour le labour et 3 à 4 Sv pour les engrais (figure 4.8). En effet, le coût de ces techniques suit une évolution exponentielle en fonction des doses évitées cumulées. Ces options sont

basées sur la consommation d'antidotes du césium comme le Bleu de Prusse (§ 4117) ou l'apport d'engrais qu'il faut appliquer chaque année (§4111).

En revanche, le coût des techniques de décapage et de labour profond peut être considéré comme définitif ce qui permet un amortissement sur une longue période (figure 4.8).

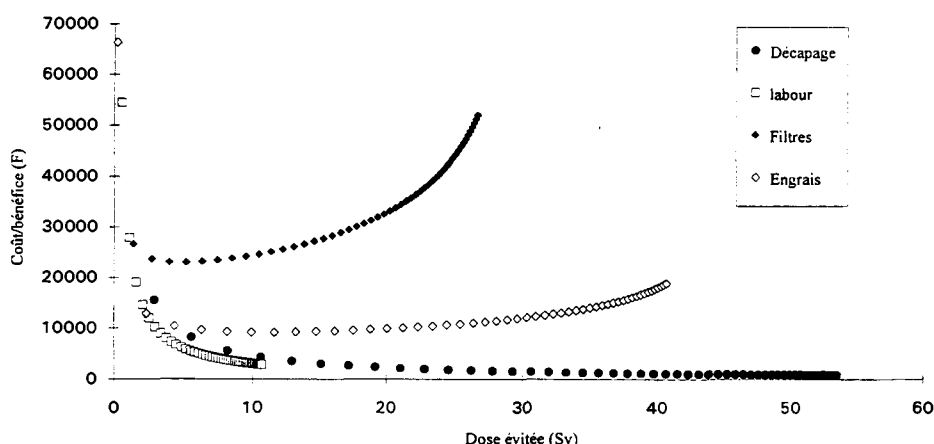


Figure 4.8 : coût/bénéfice des différentes options à Miljachy, Ukraine, et dose évitée.

L'emploi d'engrais et de Bleu de Prusse peuvent donc être considérés comme des techniques dont l'emploi doit se limiter à une période courte après l'accident, alors que le labour profond et le décapage des sols seront préférables lorsque la période radioécologique du radionucléide dans le compartiment considéré est longue (14 ans). Dans le cas étudié, une technique comme le Bleu de Prusse sous forme de Bolus (§4117) est dès le départ disqualifiée en raison de son coût élevé et de sa faible efficacité.

Le traitement des sols autour des habitations a un rapport coût/bénéfice peu attractif. Il faut noter cependant que les hypothèses envisagées ont considéré que la contamination du sol autour des habitations était homogène ce qui n'est généralement pas le cas. Bien que d'un coût comparativement élevé, cette intervention peut trouver une justification dans l'impact psychologique sur les populations de savoir que le risque encouru d'exposition externe par l'existence de taches de forte contamination, n'existe plus autour des habitations. D'autres critères d'évaluation des interventions sont donc à considérer.

4.4.2. Autres critères d'évaluation des contre-mesures et techniques de réhabilitation

4.4.2.1. Disponibilité de la technique

L'un des obstacles au choix d'une option est la disponibilité des moyens permettant de la mettre en oeuvre. Par exemple la déplaqueuse à gazon n'a pas été développée pour décontaminer les sols mais pour récolter des plaques de gazon dans des conditions particulières. C'est ainsi que les machines existantes ne sont pas totalement adaptées à cet usage. Par contre, le labour profond est facilement mis en oeuvre à l'aide des charrues existantes.

4.4.2.2. Obstacle du traitement des déchets

Les techniques dites de réhabilitation sont génératrices de déchets. C'est le cas par exemple du décapage des sols. Dans certains pays, la législation stipule qu'à partir du moment où est entreprise la collecte d'une matière radioactive présente sur le sol naturellement ou à la suite d'un accident, cette matière devient un déchet radioactif qui doit être traité selon une procédure définie et très souvent contraignante. En l'absence d'une réglementation sur les déchets radioactifs issus d'un accident nucléaire ou d'une opération de réhabilitation d'un site contaminé hérité, il peut s'avérer préférable de ne pas collecter la contamination mais plutôt de l'enfouir ou de la diluer, ce qui peut soulever un problème d'éthique.

4.4.2.3. Critère psychologique

Certaines options permettent d'enlever la contamination comme par exemple le décapage des sols, d'autres comme l'emploi d'engrais ou le labour ne font que la diluer. Bien que le résultat en terme de dose puisse être équivalent, il peut sembler psychologiquement moins dangereux de vivre sur une terre dont la contamination a été enlevée que sur une terre où elle a été diluée par enfouissement ou par l'ajout d'analogues chimiques. D'autres éléments peuvent intervenir comme par exemple la présence d'éléments à vie très longue comme le plutonium, même si sa contribution à la dose est faible (§2.4.4).

4.4.2.4. Critère économique

Certaines techniques peuvent dégager un bénéfice complémentaire à celui de la dose évitée. C'est en particulier le cas de l'emploi d'engrais qui se traduit en général par une augmentation de la productivité de la terre, dans la mesure leur emploi n'était pas pratiqué de façon systématique avant la contamination. Si ce bénéfice, au demeurant difficile à évaluer, était pris en compte dans le calcul, il est probable que l'emploi d'engrais serait une technique plus avantageuse que le décapage jusqu'à une dose évitée d'environ 30 Sv, dans le cas étudié.

4.4.2.5. Critère politique

La CIPR recommande qu'en l'absence de certitude quant à l'effet des faibles doses, la dose induite par la mise en oeuvre d'une activité nucléaire doit-être la plus faible possible. Bien que les recommandations de la CIPR ne prévoient pas de limites de doses à atteindre par les interventions consécutives aux accidents nucléaires, les décisions pour le choix des options de gestion des situations de fait, comme les accidents nucléaires, s'inspirent souvent des principes de la CIPR concernant les situations pour lesquelles sont imposées des limites. Il est donc probable que dans le cas de Miljachy, le décideur pourrait être amené à choisir l'option permettant d'éviter le plus de dose possible, c'est-à-dire celle basée sur le décapage des sols.

Le décapage des sols peut être préféré pour d'autres raisons ayant trait à la valeur de la terre. Il est probable qu'une terre contaminée aura plus de valeur marchande si elle est décontaminée par l'enlèvement de la couche contaminée, que si la contamination a été enfouie par le labour, souvent de façon irréversible, c'est-à-dire rendant impossible toute décontamination ultérieure.

Par contre, la valeur monétaire du sol peut constituer un handicap pour le réhabilitateur si l'indemnisation du propriétaire se présente comme un coût supplémentaire s'ajoutant à celui de la réhabilitation.

4.4.2.6. Eviter un risque supplémentaire

Il n'y a pas à priori de risque supplémentaire à prendre en compte dans la stratégie visant à éviter des doses provenant de la contamination du lait, mais ce risque fait partie des critères à considérer dans une stratégie d'ensemble. La contamination des forêts en est une illustration intéressante. Elle présente dans certains cas un risque de remise en suspension des radionucléides lors des incendies. Il est donc nécessaire de prévenir ce risque en réalisant l'abattage de zones coupe-feu. Cette opération plutôt banale dans les forêts non contaminées se complique dans les forêts contaminées, en raison notamment du risque d'exposition du personnel d'abattage. Elle peut même s'avérer irréalisable sans l'utilisation de machines lorsque les forêts sont très contaminées (jusqu'à 1000 Ci.km⁻² dans la zone interdite de Tchernobyl). Le coût de la dose évitée est très élevé, alors que le bénéfice d'une telle intervention est souvent difficile à chiffrer car dépendant d'un grand nombre de probabilités (Tableau 4.8). Il est cependant possible que pour éviter un risque supplémentaire une telle option soit malgré tout choisie, en dépit d'un coût prohibitif.

Tableau 4.8 : rapports coût/bénéfice de quelques options de réhabilitation étudiées à Tchernobyl.

Option	Dose évitée et groupe critique	Coût de la dose évitée (F par Homme.sievert)
Machine à abattre les arbres en forêt contaminée	externe bûcherons	23800000
Culture de champignons hors sol	interne ruraux	147000

D'après (Jouve *et al.*, 1996)

4.4.2.7. Accompagner des mesures restrictives

Certaines contre-mesures sont basées sur l'interdiction de pratiquer une activité qui peut faire partie d'habitudes culturellement très ancrées. C'est notamment le cas de l'élevage de vaches privées qui a été interdit dans certaines régions de Russie. L'expropriation des vaches privées, même si elle peut provoquer le mécontentement des populations concernés s'est avéré un moyen radical d'éviter des doses (Balonov *et al.*, 1996). Cette mesure restrictive est facile à contrôler par les autorités et difficile à contourner par la population. Il n'en est pas de même pour une autre contre-mesure restrictive qu'est l'interdiction de cueillir les champignons. La population ne disposant pas de moyens de contrôle de la contamination des champignons et ne pouvant pas ressentir physiquement, la nuisance qui accompagne l'ingestion de champignons contaminés, les interdictions sont difficiles à mettre en oeuvre. Les champignons constituent une source importante d'alimentation pour les populations rurales. Il en résulte une contribution majoritaire des champignons à la dose pour les populations mycophages (figure 2.2). Pour accompagner ces mesures de restriction, la culture de champignons hors sol peut être envisagée. Le coût de cette contre-mesure a été calculé sur la base de données relatives à la production de champignons en France (Tableau 4.8).

**THIS PAGE IS MISSING IN THE
ORIGINAL DOCUMENT**

5. Conclusion générale

L'objectif de la protection radiologique des populations en cas d'accident nucléaire est d'empêcher l'apparition d'effets déterministes, en maintenant les doses en dessous des seuils appropriés, et à assurer que toutes les mesures raisonnables sont prises pour limiter l'induction d'effets stochastiques à des niveaux soit imperceptibles soit très faibles et considérés comme acceptables.

La possibilité d'accidents graves qui pourraient avoir un impact sur l'environnement ne pouvant être exclue, il était donc nécessaire de mettre en oeuvre un programme de recherche sur la préparation aux situations accidentelles. L'ingestion de nourriture contaminée est une voie prépondérante d'exposition des populations au risque radiologique suite à un accident nucléaire. Il importe donc de bien connaître les flux de radionucléides dans les productions agricoles et les techniques permettant de les atténuer. Cette thèse a tenté d'en donner quelques éléments.

La démarche adoptée pour l'étude des corrélations du facteur de transfert à partir d'expérimentations en laboratoire a permis de mettre en évidence l'influence de facteurs généralement masqués par la variabilité des conditions du milieu que subissent les expérimentations en champ. Les résultats obtenus ont permis de mettre en évidence l'influence de plusieurs facteurs ignorés des formulations existantes du facteur de transfert sol-plante :

- le coefficient de distribution K_d , mesuré par la nouvelle méthode mise au point dans le cadre de ce travail est une variable permettant de mieux quantifier la biodisponibilité des radionucléides pour les plantes, le césium notamment.

- La teneur du sol en analogues chimiques des radionucléides (K^+ et Ca^{++}) permet de quantifier le rôle antagoniste de ces éléments dans l'absorption compétitive des radionucléides par les plantes.

- le pH a été identifié comme un paramètre générique dont l'influence s'exerce à la fois sur la disponibilité des radionucléides dans la solution du sol et sur leur absorption par les systèmes végétaux.

Le sol à travers ses caractéristiques d'échangeur d'ion est donc principalement responsable de la variabilité du facteur de transfert. Pour les espèces végétales étudiées, et à l'exception d'un seul type de sol caractérisé par une teneur élevée en calcaire actif, il n'y a pas de comportement individuel des plantes sur un sol par rapport à l'autre, quant à l'absorption du césium et du strontium. En d'autres termes, les plantes ayant le facteur de transfert le plus élevé, comme par exemple les oléagineux, manifestent ce comportement indépendamment du type de sol. Il n'a donc pas été mis en évidence parmi les plantes étudiées d'espèce que l'on pourrait qualifier "d'espèce marqueur" de la contamination des sols. Pour autant, cela n'exclue pas l'existence éventuelle d'un tel comportement dans la nature, notamment à la faveur de mécanismes dont nous avons tenu compte dans notre interprétation tels que les mycorhizes, sujet d'étude qui fait appel à d'autres techniques que celles mises en oeuvre dans ce travail.

La prise en compte des facteurs tels que les éléments antagonistes des radionucléides permet la mise en oeuvre de contre-mesures basées sur l'apport d'engrais. Cependant le facteur de réduction de la contamination des productions agricoles dépasse rarement 2 dans ce cas. Aussi,

la méthode proposée dans cette thèse avait-elle pour objectif une diminution plus importante de la contamination des plantes et de la chaîne alimentaire.

Le travail réalisé a montré que cet objectif pouvait être atteint par le décapage des sols à l'aide d'une déplaqueuse à gazon. Cette technique permet d'enlever une couche de sol contaminé sans compromettre la fertilité du sol, même pour un sol dont la couche arable est très peu épaisse. Les facteurs de décontamination mesurés dans la zone interdite de Tchernobyl sont compris entre 20 et 50 pour l'enlèvement d'une couche de sol de 5 cm d'épaisseur. La machine utilisée, conçue pour la production de plaques de gazon d'épaisseur constante permet de décapier le sol avec une grande précision, en suivant les ondulations éventuelles de la surface du champ contaminé. Cette particularité lui confère un avantage par rapport aux méthodes traditionnelles de décapage des sols telles que les bulldozers et les scrapers conçus pour aplanir ou niveler les sols en déposant dans les creux la terre décapée sur les bosses. Pour obtenir un facteur de décontamination comparable à celui de la déplaqueuse à gazon, le bulldozer devra donc décapier une couche de sol équivalente à la somme des hauteurs des creux et des bosses. La quantité de déchets produite par la déplaqueuse à gazon est donc plus faible que celle engendrée par les techniques traditionnelles. Le sol décapé reste agrégé en plaques qu'il est possible de manipuler sans provoquer la remise en suspension de poussière de sol contaminé. Il est donc possible de stocker sur le site décontaminé les déchets produits par la déplaqueuse à gazon sans risque particulier de remise en suspension par le vent ou d'entraînement par la pluie.

Une application prometteuse de cette technique est offerte par le décapage des prairies de tourbières. Les facteurs de décontamination du lait consécutifs à la décontamination de l'herbe récoltée sur les prairies décontaminées par la déplaqueuse à gazon atteignent un facteur 20. D'après nos calculs basés sur des hypothèses réalistes, le coût de la dose par ingestion de lait contaminé évité par l'utilisation de cette technique serait d'environ 900 F par Homme.sievert au lieu d'environ 2800 F pour la technique de labour profond qui correspond à l'alternative la plus crédible.

Principales critiques formulées à l'encontre de cette technique :

La première et la plus importante réside dans le fait que les machines existantes ne sont pas adaptées au décapage de grandes superficies. Il est probable que la crédibilité de cette technique passe par une démonstration à grande échelle. Le site de Tchernobyl eût été une opportunité intéressante pour cette démonstration.

Mais une autre critique objecte qu'il est trop tard pour intervenir sur les terrains contaminés de Tchernobyl. Beaucoup de champs ont été labourés après l'accident ce qui rend impossible l'application de cette technique. La profondeur de migration des radionucléides dans les sols qui n'ont pas été labourés est trop importante pour que la technique soit encore efficace. Certes, une intervention dans les deux ou trois ans après l'accident eût été plus efficace. Cependant, les résultats des mesures effectuées montrent que la migration des radionucléides est très lente, et qu'il pourrait encore se trouver à l'intérieur de la zone interdite des champs sur lesquels cette technique pourrait être appliquée avec succès.

Il est plus rapide, moins cher et surtout plus praticable de labourer les sols pour diluer les radionucléides dans le sol, réduire la contamination des plantes et l'irradiation externe.

Cette technique produit des déchets que l'on ne sait pas gérer. Si l'entreposage *in situ* peut se concevoir comme solution temporaire, la dissémination de tas de déchets sur tout le territoire fait partie des problèmes soulevés actuellement pour les déchets de Tchernobyl. Il n'existe pas

actuellement de schéma directeur ni vraiment de réglementation quant à la gestion des déchets de très faible activité pondérale que sont les sols contaminés alors que les techniques de décontamination des sols par lavage ou séparation des constituants n'offrent pas encore de perspective satisfaisante en terme de coût/bénéfice.

Le travail réalisé sur le site de Tchernobyl a permis d'appréhender les mécanismes de flux d'une manière plus complète que celle offerte par les études en laboratoire. En particulier, l'implication des mécanismes tels que les symbioses mycorhiziennes dans les flux de radionucléides n'est pas élucidée. Les flux particuliers du césium observés chez les champignons soulèvent la question des mécanismes biochimiques d'absorption du césium par les organismes en fonction de leur niveau de complexité évolutive :

Existe-t-il chez les différents groupes végétaux les mêmes mécanismes d'exclusion compétitive des éléments au niveau de l'absorption racinaire ? Quelle est la signification physiologique des flux de césium dans le règne végétal ou autrement dit, le césium est-il un élément indispensable à la vie, existe-t-il des molécules spécifiques du flux de césium chez les végétaux et quelle est l'incidence des doses absorbées par ces molécules sur la stabilité des organismes, des populations et des écosystèmes.

L'une des finalités des recherches dans ce domaine pourrait être la "phytodécontamination des sols" qui est un sujet d'étude certes controversé, mais en cours de développement sous l'égide des organismes de recherche qui s'intéressent à la décontamination des sols.

Le temps imparti aux recherches qui ont conduit à écrire cette thèse n'a pas permis d'étudier cette technique de décontamination des sols, mais c'est dans cette direction que se poursuivraient nos recherches sur le flux des radionucléides vers les végétaux et la décontamination des sols, si la charge nous en était confiée.

6. Références bibliographiques

- Aarkrog, A. (1972).** Direct contamination of barley with Be-7, Na-22, Cd-115, Sb-125, Cs-134 and Ba-133 (Risoe report No. 256). Danish Atomic Energy Commission.
- Aarkrog, A. (1992).** Concept of seasonality in the light of the Chernobyl Accident. *Analyst*, 117, 497-499.
- Aarkrog, A., Tsaturov, Y., Polikarpov, G. G. (1993).** Sources to environmental radioactive contamination in the former USSR, report N°. XI-095/93, Commission of the European Communities.
- AIEA (1986).** Les mécanismes d'interaction solide-liquide et leur modélisation: applications aux études de migration en milieu aqueux (Document technique N°. IAEA-TECDOC-367). AIEA.
- AIEA, A. I. d. I. A. (1989).** L'accident radiologique de Goiânia. AIEA, Vienne.
- Albrecht, H. (1987a).** Radioactivity emission from the Chernobyl accident in comparison with the results of the SASCHA program. *Radiochimica Acta*, 41, 141-143.
- Albrecht, H. (1987b).** Results of the SASCHA program on fission product release under core melting conditions. *Radiochimica Acta*, 41, 133-140.
- Alexakhin, R., Fessenko, S., Sanzharova, N. (1995).** Optimal Management routes for different types of sites contaminated during and after the Chernobyl accident, report : Russian institute of agricultural radiology, Obninsk, Russia.
- Alexakhin, R. M. (1993).** Countermeasures in agricultural production as an effective means of mitigating the radiological consequences of the Chernobyl accident. *The Science of the Total Environment*, 137, 9-20.
- Arnaud, A., Coen, S., Jouve, A., Lelaidier, M., Perichaud, A. (1995).** Chemical modification of a polyacrylamide : enhanced decontamination of soils and surfaces after a nuclear accident. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, Letters*, 201(3), 213-223.
- Arnaud, A. (1995)** Réhabilitation de sols et surfaces après accident : contribution à l'étude de la décontamination en césium et strontium par des polyacrylamides fonctionnalisés. Doctorat, Université d'Aix Marseille I.
- Askbrant, S., Melin, J., Sandalls, J., Rauret, G., Vallejo, R., Hinton, T., Cremers, A., Vandecastelle, C., Lewycky, N., Ivanov, Y. A., Firsakova, S. K., Arkhipov, N. P., Alexakhin, R. M. (1996).** Mobility of radionuclides in undisturbed and cultivated soils in Ukraine, Belarus and Russia six years after the Chernobyl Fallout. *J. Environ Radioactivity*, 31(3), 287-312.
- Avery, S. V., Codd, G. A., Gadd, G., M. (1991).** Caesium accumulation and interactions with other monovalent cations in the cyanobacterium *synechocystis* PCC 6803. *Journal of General Microbiology*, 137, 405-413.
- Avery, S. V., Codd, G. A., Gadd, G., M. (1992a).** Replacement of cellular potassium by caesium in *Clorella emersonii*: differential sensitivity of photoautotrophic and chemoheterotrophic growth. *Journal of General Microbiology*, 138, 69-76.
- Avery, S. V., Codd, G. A., Gadd, G. M. (1992b).** Caesium transport in cyanobacterium *Anabaena variabilis*: kinetics and evidence for uptake via ammonium transport system(s). *FEMS Microbiology Letters*, 95, 253-258.
- Avetisov, G. M. (1991).** Temporary permissible levels for the population exposed to radiation as a result of the Chernobyl accident. In C. o. t. E. Communities (Ed.), *International Seminar on Intervention Levels and Countermeasures for Nuclear Accidents*, 1 (pp. 239-253). Cadarache, France: Commission of the European Communities.
- Balonov, M., Jacob, P., Likhtarev, I., Minenko, V. (1996)** Pathways, levels and trends of population exposure after the Chernobyl accident, The radiological consequences of the Chernobyl accident, Karaoglou A., Desmet, G., Kelly, N.G., Menzel, H.G. (Ed), report EUR 16544EN, (pp 235-249), Minsk, Belarus, European Commission..

Barthe, P., Bon, P. (1991). Réhabilitation des sols par les tapis végétaux décontaminants et essai in situ de traitement de la biomasse végétale contaminée (Mémoire de fin d'études . IPSN/DPEI/SERE). Commissariat à l'Energie Atomique et Ecole des Mines d'Alès.

Benes, P., Stamberg, K., Stegmann, R. (1994). Study of the kinetics of the interaction of Cs-137 and Sr-85 with soils using batch method: methodological problems. *Radiochimica Acta*, 66/67, 315-321.

Bobovnikova, T. I., Virchenko, Y. P., Konoplev, A. V., Siverina, A. A., Shkuratova, I. G. (1990). Chemical forms of occurrence of long-lived radionuclides and their alteration in soils near the Chernobyl nuclear station. *Pochvovedeniye*(10), 20-25.

Bonneau, M., Souchier, B. (1979). *Pédologie* (1 ed.). Paris: Masson.

Bourgeois, J., Tanguy, P., Cogné, F., Petit, J., (1995), La sûreté nucléaire en France et dans le Monde, Lavoisier, Paris.

Brey, R. R., Mc Connell, J. W., Rogers, R. D., Sullivan, T. M., Jastrow, J. D. (1994). A preliminary investigation of the existence of radiocolloids in leachate from the NRC field lysimeter investigations. *Waste Management*, 14(7), 581-588.

Bunzl, K., Förster, H., Krackle, W., Schimmack, W. (1994). Residence time of fallout $^{239+240}\text{Pu}$, ^{238}Pu , ^{241}Am and ^{137}Cs in the upper horizons of an undisturbed grassland soil. *J. Environ. Radioactivity*, 22(1), 11-27.

Burakov, B. E., Anderson, E. B., Galkin, B. Y., Pazukhin, E. M., Shabalev, S. I. (1994). Study of Chernobyl hot particles and fuel containing masses: implications for reconstructing the initial phase of the accident. *Radiochimica Acta*, 65, 199-202.

Cardot, A. L. (1991). Etude des possibilités d'utilisation de polysaccharides et de polyacrylamides dans la réhabilitation des sols après un accident nucléaire (Mémoire de fin d'études, DPEI/SERE, Commissariat à l'Energie Atomique, Ecole Nationale des Ingénieurs des Travaux Ruraux et Techniques Sanitaires, Strasbourg).

Chamberlain, A. C. (1970). Interception and retention of radioactive aerosols by vegetation. *Atmospheric environment*, 4, 57-78.

Chamberlain, A. C. (1990). Deposition of activity from the Windscale accident. In C. o. t. E. Communities (Ed.), Seminar on comparative assessment of the environmental impact of radionuclides released during the three major nuclear accidents: Kyshtym, Windscale, Chernobyl, 1 (pp. 303-308). Luxembourg: Commission of the European Communities.

CIPR (1979). Limits for intakes of radionuclides by workers. , CIPR publication 30, Pergamon Press, Oxford.

CIPR (1993). Recommandations 1990 de la Commission Internationale de Protection Radiologique , CIPR publication 60, Pergamon Press, Oxford.

Cornell, R. M. (1993). Adsorption of caesium on minerals: A review. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, Articles*, 171(2), 483-500.

Coughtrey, P. J., Thorne, M. C. (1983a). Caesium. In *Radionuclide distribution and transport in terrestrial aquatic ecosystems* (pp. 320-328). Rotterdam: A.A Balkema.

Coughtrey, P. J., Thorne, M. C. (1983b). Strontium. In *Radionuclide distribution and transport in terrestrial and aquatic ecosystems* (pp. 93-102). Rotterdam: A.A Balkema.

Cremers, A., Elsen, A., De Preter, P., Maes, A. (1988). Quantitative analysis of radiocaesium retention in soils. *Nature*, 335, 247-249.

Cremers, A., Elsen, A., Valcke, E., Wauters, J. (1989). The sensitivity of upland soils to radiocaesium contamination. In *DESMET, G., NASSIMBENI, P., BELLI, M. (Ed.)*, Transfer of radionuclides in natural and semi-natural environments, 1 (pp. 238-248). Udine, Italy: Elsevier.

Davies, B. E., Davies, R. I. (1963). A simple centrifugation method for obtaining small samples of soil solution. *Nature*, 198(4876), 216-217.

Duchaufour, P. (1983). *Pédologie*. Paris: Masson.

Entry, J. A., Rygiewicz, P. T., Emmingham, W. H. (1994). ^{90}Sr uptake by *Pinus ponderosa* and *Pinus radiata* seedlings inoculated with ectomycorrhizal fungi. *Environmental Pollution*, 86, 201-206.

Fernandjian, J., Evrard, J. M., Berthion, Y., Lhiaubet, G., Lucas, M. (1983). Source terms associated with two severe accident sequences in a 900 MWe PWR. In International meeting on LWR severe accident evaluation, . Cambridge (USA):

Frissel, M. J., Koster, J. (1986). Uncertainties of predicted soil-to-plant transfer factors because of averaging the impact of space, time, local conditions and crop variety. In BGA-RIVM Workshop, (pp. 1-12). Neuheerberg: RIVM, P.O. Box 1, 3720 Bilthoven the Netherlands.

Frissel, M. J., Koster, J. (1987). Soil to plant transfer factors of radionuclides expected values and uncertainties , a summary of available data. In meeting of the IUR soil-to-plant workgroup, (pp. 1-24). Royal Holloway Bedford new Colleges, Egham, Surrey, UK: RIVM, P.O. Box 1, 3720 Bilthoven the Netherlands.

Garger, E. K. (1994). Air concentrations of radionuclides in the vicinity of Chernobyl and the effects of resuspension. *J. Aerosol Sci.*, 25(5), 745-753.

Gianinazzi-Pearson, V., Gianinazzi, S. (1985). Physiological and genetical aspects of mycorrhizae. Paris: Institut National de la Recherche Agronomique.

Giese, W. W. (1988). Ammonium-ferric-cyano-ferrate (II) (AFCC) as an effective antidote against radiocaesium burdens in domestic animals and animals derived foods. *British Veterinary Journal*, 144(4), 363-368.

Goncharova, N. V., Kislushko, P. M., Zebrakova, I. V. (1994). New ways enhancing the vital activity of plants in order to increase crop yields and to suppress radionuclide accumulation. In M. H. Gerzabek (Ed.), International Union of Radioecologists, XXIVth annual ENSA/IUR meeting, (pp. 258-266). Varna, Bulgaria: Forschungszentrum Seibersdorf Austria.

Grauby, A., Jouve, A., Legrand, B. (1989). Study of the possibility of attenuating soil-plant transfer after an accident, by application of manure to the soil and by foliar spraying. In *DESMET, G., NASSIMBENI, P., BELLI, M.* (Ed.), Transfer of radionuclides in natural and semi-natural environments, 1 (pp. 403-410). Udine, Italy: Elsevier.

Gudiksen, P. H., Harvey, T. F., Lange, R. (1989). Chernobyl source term, atmospheric dispersion and dose estimation. *Health physics*, 57(5), 697-706.

Guo, B. Z., AN, Z. Q., Hendrix, J. W., Dougherty, C. T. (1993). Influence of a change from tall fescue to pearl millet or crabgrass on the mycorrhizal fungal community. *Soil science*, 155(6), 398-405.

Harry, J. F. (1989). Migration des radionucléides dans les sols partiellement saturés en eau (Mémoire de fin d'études, DPEI/SERE, Commissariat à l'Energie Atomique et Ecole Nationale des Ingénieurs des Travaux Ruraux et des Techniques Sanitaires, Strasbourg).

Hove, K. (1993). Chemical methods for reduction of the transfer of radionuclides to farm animals in semi-natural environments. *The Science of the total environment*, 137, 235-248.

Hubert, P., Anissimova, L., Antzipov, G., Ramzaev, V., Sobotovitch, V. (1996) Strategies of decontamination, Report, EUR 16530 EN, European Commission, Brussels.

IAEA (1974). Evaluation of radiation emergencies and accidents (Technical Report series n°152). International Atomic Energy Agency.

IAEA (1985). Principles for establishing intervention levels for the protection of the public in the event of a nuclear accident or radiological emergency. Vienna: IAEA.

IAEA (1987a). Methodology and technology for cleanup of very large areas after a nuclear accident (Draft Report N° 7857w Rev.3). International Atomic Energy Agency.

IAEA (1987b). One year after Chernobyl (Pub. D3 International Atomic Energy Agency).

IAEA (1989). Radioactive fallout in food and agriculture (IAEA-TECDOC N° 494). International Atomic Energy Agency.

IAEA (1991). The international Chernobyl project (Technical Report) International Atomic Energy Agency.

IAEA (1994a). Guidelines for agricultural countermeasures following an accidental release of radionuclides (Technical Reports series N° 363). IAEA.

IAEA (1994b). Handbook of parameter values for the prediction of radionuclides transfer in temperate environments. Vienna: International Atomic Energy Agency.

Ilin, L. A. (1991). Theory and practice of regulatory activity concerning radiation effects on people following the Chernobyl accident. In C. o. t. E. Communities (Ed.), International seminar on intervention levels and countermeasures for nuclear accidents, 1 (pp. 469-494). Cadarache: Commission of the European Communities.

Iranzo, E., Espinoza, A., Martinez, J. (1994). Resuspension in the Palomares area of Spain: a summary of experimental studies. *J. Aerosol Sci.*, 25(5), 833-841.

Jacob, P. (1994). Contamination of surfaces by resuspended material Technical Report ECP/1 1992/93). GSF-Forschungszentrum für Umwelt und Gesundheit, Neuherberg, Germany.

Jones, D. R., Paul, L., Mitchell, N. G. (1994). Field investigations of the effects of ameliorative treatments applied to unimproved upland vegetation in the U.K. contaminated by radiocaesium. In M. H. Gerzabek (Ed.), International Union of Radioecologists, XXIVth annual ENSA/TUR meeting, (pp. 197-203). Varna, Bulgaria: Forschungszentrum Seibersdorf Austria.

Jouve, A., Li, Y. L. (1986). Programme RESSAC, Transfert des radionucléides aux plantes, résultats du deuxième semestre 1986. (Rapport interne No. IPSN/DERS/SERE/LEI). Commissariat à l'Energie Atomique.

Jouve, A., Schulte, H., Bon, P., Cardot, A. L. (1993). Mechanical and physical removing of soil and plants as agricultural mitigation techniques. *The Science of the Total Environment*, 137, 65-79.

Jouve, A. (1995). Technical and economical study of the use of a turf harvester for decontaminating permanent pastures in the Chernobyl affected areas (SERE - 95/019(P)). Institut de Protection et de Sûreté Nucléaire, IPSN/CDSN, BP6,92265, Fontenay aux Roses, France.

Jouve, A., Mary, N. (1992). Procédé de décontamination de la couche superficielle d'un sol recouvert de particules polluantes et solution de décontamination Brevet n° B11245.3/FB.HD 601). Société française pour la gestion des brevets d'application nucléaire, 25 rue de Ponthieu, Paris.

Jouve, A., Maubert, H., Bon, P., Barthe, P. (1991). Soil reclamation with turfing plant harvest. In International conference on the implications of the new recommendations of the ICRP, 1 (pp. 361-368). Slamanca, Spain: CIEMAT, Madrid.

Jouve, A., Maubert, H., Schulte, E. (1992). Biomechanical removing of contaminated soils : a field experiment. In R. G. Post (Ed.), Waste management and environmental remediation, (pp. 643-646). Tucson, A.Z, USA: W.M. Symposia.

Jouve, A., Schulte, H., Bon, P., Cardot, A. L. (1993). Mechanical and physical removing of soil and plants as agricultural mitigation techniques. *The Science of the Total Environment*, 137, 65-79.

Jouve, A., Schulte, H., Maubert, H., Bon, P. (1994). Non-lethal defoliation to impair the foliar uptake of fallout radionuclides by forest trees. *The Science of the Total Environment*, 157, 407-410.

Jouve, A., Troesch, O., Legrand, B. (1989). Essai de modélisation du transfert sol-plante du césium (C20 N°. CEA-R-5494). Commissariat à l'Energie Atomique.

Jouve, A., Tikhomirov, F.A., Grebenkov, A., Dubourg, M., Belli, M., Arkhipov, N., (1996) Management of contaminated forests, The radiological consequences of the Chernobyl accident, Karaoglou A., Desmet, G., Kelly, N.G., Menzel, H.G. (Ed), report EUR 16544EN, (pp 389-400), Minsk, Belarus, European Commission..

Kashparov, V., Protsak, V. P., Yoschenko, V. I., Watterson, J. D. (1994). Inhalation of radionuclides during agricultural work in areas contaminated as a result of the Chernobyl reactor accident. *J. Aerosol Sci.*, 25(5), 761-766.

Kirchner, G., Baumgartner, D. (1992). Migration rates of radionuclides deposited after the Chernobyl accident in various North German Soils. *Analyst*, 117, 475-479.

Konoplev, A. V., Bulgakov, A. A., Popov, V. E., Bobovnikova, T. I. (1992). Behaviour of long-lived Chernobyl radionuclides in soil-water system. *Analyst*, 117, 1041-1047.

Krivokhatskii, A. S., Smirnova, E. A., Avdeev, V. A., Trifonov, V. A. (1994). Speciation of radionuclides in samples collected in the 30-km zone of the Chernobyl NPP ("Red Forest region")R. *Radiochemistry*, 36(1), 80-84.

Kulikov, N. V., Molchanova, I. V., Kravayeva, A. N. (1990). Radionuclides in the soil and vegetation in the 30km accident zone around the Chernobyl NPP. In C. o. t. E. Communities (Ed.), Comparative assessments of the environmental impact of radionuclides released during three major nuclear accidents Kyshym, Windscale, Chernobyl, 1 (pp. 327-332). Luxembourg: Commission of the European Communities.

Lagoutine, F., Coursol, N., Legrand, J. (1975). Table de radionucléides. Gif-sur-Yvette, France: Commissariat à l'Energie Atomique, Bureau National de Métrologie.

Laylavoix, F., Madelmont, C., Fache, P., Manesse, D., Camus, H. (1989). Etude bibliographique des techniques de réhabilitation des sols en milieu rural après un rejet atmosphérique accidentel par une installation nucléaire (Bibliographie N°. CEA-BIB-245). Commissariat à l'Energie Atomique.

Lehto, J. (1994). Cleanup of large radioactive contaminated areas and disposal of generated wastes. (TemaNord 1994-567). Nordic council of ministers.

Lembrechts, J. (1993). A review of literature on the effectiveness of chemical amendments in reducing the soil-to-plant transfer of radiostrontium and radiocaesium. The Science of the Total Environment, 137, 81-98.

Lembrechts, J. F., Van Ginkel, J. H., de Winkel, J. H., Stoutjesdijk, J. F. (1989). The effect of some agricultural techniques on soil-to-plant transfer of radionuclides under field conditions. In International symposium on environmental contamination following a major nuclear accident, Vienna, Austria: International Atomic Energy Agency.

Lostchilov, N. A., Kashparov, V. A., Yudin, E. B., Protzak, V. P., Jurba, M. A. (1991). Physico-chemical characteristics of radioactive fallout from the accident of the Chernobyl nuclear power plant. In N. A. Lotschilov (Eds.), Problems of agricultural radiology (pp. 8-12). Kiev: Institute of Agricultural Radiology, Institute of Scientific and Technical Information (in Russian)

Madoz-Escande, C., Colle, C., Hugon J., Jouget, H., Tormos, J., Contaminations foliaires de cultures de blé, expérimentations 1994, sur un lysimètre de grandes dimensions, IPSN Cadarache, manuscrit en préparation.

Martin, W. E. (1964). Losses of Sr-90, Sr-89, and I-131 from fallout-contaminated plants. Radiation Botany, 4, 275-284.

Mary, N. (1992). Etude de l'utilisation d'un polyacrylamide dans la réhabilitation des sols et de surfaces après un accident nucléaire (Document SERE N°. 92/084 (I)). Institut de Protection et de Sécurité Nucléaire.

Maubert, H., Quinault, J.-M., Roussel, S. (1986). Modélisation du transfert des radionucléides dans la chaîne alimentaire à la suite d'un dépôt (C.20 No. CEA-R-5367). Commissariat à l'Energie Atomique.

Maubert, H. (1992). CCE/CHECIR contract strategies of decontamination, Report for the period 10/91 to 10/92 No. DPEI/SERE). Institut de Protection et de Sécurité Nucléaire.

Mikhail, K. Y. (1981) Radioactive waste treatment using zeolites. Ph. D, Salford, UK.

Mubarak, A., Olsen, R. A. (1976). Immiscible displacement of the soil solution by centrifugation. Soil Sci. Soc. Am. J., 40, 329-331.

Métivier, H., Colle C., Germain, P. (1996) les actinides et l'Homme dans son environnement, Clefs CEA, n°31, 62-71.

Métivier, H. (1990) principes et normes de radioprotection, Techniques de l'ingénieur, 8, B 3904.

Neeb, K. H. (1990). Fission products chemistry in postulated severe reactor accidents. Radiochimica Acta, 51, 127-137.

Nelin, P., Nylén, T. (1994). Factors influencing the changes in ¹³⁷Cs levels with time in boreal-forest plants in Sweden. The Science of the Total Environment, 157, 73-81.

Nilsen, K.E., Haug, F. (1994) L'endroit le plus radioactivement contaminé sur la terre, Rayonnements Ionisants, N°1, 1994, 13-35.

Nisbet, A. F., Mocanu, N., Shaw, S. (1994). Laboratory investigations into the potential effectiveness of soil-based countermeasures for soils contaminated with radiocaesium and radiostrontium. The Science of the Total Environment, 149, 145-154.

Olsen, R. A., Joner, E., Bakken, L. R. (1989). Soil fungi and the rate of radiocaesium in the soil ecosystem - a discussion of possible mechanisms involved in the radiocaesium accumulation in fungi, and the role of fungi as a Cs-sink in the soil. In D. D. P. M. M. Belli (Ed.), *Transfer of radionuclides in natural and semi-natural environments*, 1 (pp. 657-668). Udine, Italy: Elsevier, London.

Pannetier, R. (1981). *Vade-mecum du technicien*. Massy, France: S.C.F du Bastet, 16, résidence du parc, Massy, France.

Prister, B. S., Loshchilov, N., Perepeliatnikov, L. V., Perepeliatnikova, L. V. (1992). Efficiency of measures aimed at decreasing the contamination of agricultural products in areas contaminated by the Chernobyl accident. *The Science of the Total Environment*, 112, 79-87.

Prister, B. S., Perepeliatnikov, G. P., Perepeliatnikova, L. V. (1993). Countermeasures used in the Ukraine to produce forage and animal food products with radionuclide levels below intervention limits after the Chernobyl accident. *The Science of the Total Environment*, 137, 183-198.

Quinault, J.M., Cartier, Y., Bourdeau, F., (1989), *Guide d'évaluation des rejets radioactifs atmosphériques*, Paris, Electricité de France.

Rajec, P., Shaw, G. (1994). Sorption of radiocaesium on soils in the presence of electrolytes. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, Articles*, 183(1), 147-157.

Rapport (1986). L'accident de Tchernobyl No. Rapport IPSN 2/86). Institut de protection et de sûreté nucléaire, commissariat à l'énergie atomique.

Rapport (1987). L'accident survenu au réacteur de Tchernobyl et ses impacts sur le territoire de la république démocratique allemande. Report SAAS - 353 A. Service officiel de la sûreté nucléaire et de la radioprotection de la RDA (Staatliches amt für atomsicherheit und strahlenschutz).

Rapport (1991). Programme RESSAC, Acquis expérimentaux 1985-1990 (RESSAC 04/91). Commissariat à l'Energie Atomique.

Report (1989). VI Th Report of the working group soil-to-plant transfer factors International Union of Radioecologists.

Report (1994). Fluxes of radionuclides in rural communities in Russia, Ukraine and Belarus : transfer of radionuclides, their comparative importance under different agricultural Ecosystems and appropriate countermeasures (ECP9 annual Report). Norwegian Radiation Protection Authority.

Rauret, G. (1994). Transfer of radionuclides through the terrestrial environment to agricultural products including the evaluation of agrochemical practices. (Contract COSU - CT93 - 0040). European Commission.

Roed, J., Anderson, K., Prip, H. (1995) Practical means for decontamination, 9 years after a nuclear accident, Report Risø-R-828(EN), Risø National Laboratory, Roskilde, Denmark.

Romanenko, A. E., (1996) Critical assessment of efficiency of immediate intervention, proceedings : The radiological consequences of the Chernobyl accident, Karaoglou A., Desmet, G., Kelly, N.G., Menzel, H.G. (Ed), report EUR 16544EN, (pp 559-568), Minsk, Belarus, European Commission..

Romanov, G. N., Buldakov, L. A., Shevedov, V. L., Dibobes, I. K., Goloshchapov, P. V.,

Kravtsova, E. M., Spirin, D. A., Drozhko, E. G. (1991). Establishing the criteria for judging the effectiveness of radiation protection measures following the kyshtym accident. In C. o. t. E. Communities (Ed.), *International seminar on intervention levels and countermeasures for nuclear accident*, 1 (pp. 155-181). Cadarache: Commission of the European Communities.

Romanov, G. N., Stukin, D. A., Aleksakhin (1990). Peculiarities of Sr-90 migration in the environment. In C. o. t. E. Communities (Ed.), *Comparative assessments of the environmental impact of radionuclides released during three major nuclear accidents Kyshym, Windscale, Chernobyl*, 1 (pp. 421-436). Luxembourg: Commission of the European Communities.

Rongier, P. (1989). Bilan des expériences Polyr (Note technique N°. RESSAC 09/89). Commissariat à l'Energie Atomique.

Sandalls, F. J., Segal, M. G., Victorova, N. (1993). Hot particles from Chernobyl: a review. *J. Environ. Radioactivity*, 18, 5-22.

Sawhney, B. L. (1972). Selective sorption and fixation of cations by clay minerals: a review. *Clays and clay minerals*, 20, 93-100.

- Scherrer, B. (1984).** Biostatistique. Quebec, Canada: Gaetan Morin.
- Schimmack, W., Bunzl, K., Dietl, F., Klotz, D. (1994).** Infiltration of radionuclides with low mobility (^{137}Cs and ^{60}Co) into a forest soil. Effect of the irrigation intensity. *J. Environ. Radioactivity*, 24, 53-63.
- Schneider, T., Lochard, J. (1992).** Réflexions sur l'acceptabilité sociale et les conséquences économiques d'un accident nucléaire (Convention d'étude CEA/IPSN/DPEI BC-6519 N°. 191). Centre d'Etude sur l'évaluation de la Protection dans le domaine Nucléaire.
- Shand, C. A., Cheshire, M. V., Smith, S., Vidal, M., Rauret, G. (1994).** Distribution of radiocaesium in organic soils. *J. Environ. Radioactivity*, 23, 285-302.
- Shaw, G. (1992).** Radiocaesium uptake and translocation in wheat with reference to the transfer factor concept and ion competition effects. *J. Environ. Radioactivity*, 16, 167-180.
- Shaw, G., Bell, J. N. B. (1989).** The kinetics of caesium absorption by root of winter wheat and the possible consequences for the derivation of soil-to-plant transfer factors for radiocaesium. *J. Environ. Radioactivity*, 10, 213-231.
- Shaw, G., Bell, J. N. B. (1991).** Competitive effects of potassium and ammonium on caesium uptake kinetics in wheat. *J. Environ. Radioactivity*, 13, 283-296.
- Shenber, M. A., Eriksson, A. (1993).** Sorption behaviour of caesium in various soils. *J. Environ. Radioactivity*, 19, 41-51.
- Simmonds, J. (1987).** Europe calculates the health risk. *New Scientist*, 114, 40-43.
- Strullu, D. G. (1991).** Les mycorhizes des arbres et plantes cultivées. Paris: Lavoisier.
- Sweek, L., Wauters, J., Valcke, E., Cremers, A. (1989).** The specific interception potential of soils for radiocaesium. In *DESMET, G., NASSIMBENI, P., BELLI, M. (Ed.)*, Transfer of radionuclides in natural and semi-natural environments, 1 (pp. 249-258). Udine, Italy: Elsevier.
- Tawil, J. J., Bold, F. C., Harrer, B. J., Currie, J. W. (1985).** Off site consequences of radiological accidents: methods costs and schedules for decontamination (NUREG/CR-3413, PNL-4790). Nuclear Regulatory Commission, Washington D.C.
- Tcherkezian, V., Shkinev, V., Khitrov, L., Kolesov, G. (1994).** Experimental approach to Chernobyl hot particles. *Journal of Environmental Radioactivity*, 22(2), 127-139.
- Thiry, Y., Mittenaere, C. (1993).** Behaviour of radiocaesium in forest multilayered soils. *J. Environ. Radioactivity*, 18, 247-257.
- Tikhomirov, F. A. (1995).** Optimal management routes for different types of forest contaminated during and after the Chernobyl-4 reactor accident (Laboratory of radioecology, soil Science faculty, Moscow State University).
- Tikhomirov, F. A., Shcheglov, A. I. (1990).** The radioecological consequences of the Kyshtym and Chernobyl radiation accidents for forest ecosystems. In C. o. t. E. Communities (Ed.), Comparative assessments of the environmental impact of radionuclides released during three major nuclear accidents Kyshtym, Windscale, Chernobyl, 2 (pp. 867-888). Luxembourg: Commission of the European Communities.
- Tompkins, J. A., Shaw, G., Butler, A. P., Wadey, P., Wheeler, H. S., Bell, J. N. B. (1994).** Experimental and modelling studies of radionuclide migration from contaminated groundwaters. In M. H. Gerzabek (Ed.), International Union of Radioecologists, XXIVth annual ENSA/IUR meeting, 1 (pp. 155-171). Varna, Bulgaria: International Union of Radioecologists.
- Tormos, J., Jouve, A., Revy, D., Millan-Gomez, R., Zanon, R., Erario, M. J. (1995).** A rapid method for determining strontium-90 in soils and plants. *J. Environ. Radioactivity*, 27(3), 193-206.
- Trabalka, J. R., Auerbach, S. I. (1990).** One western perspective of the 1957 Soviet nuclear accident. In C. o. t. E. Communities (Ed.), Seminar on comparative assessment of the environmental impact of radionuclides released during the three major nuclear accidents: Kyshtym, Windscale, Chernobyl, 1 (pp. 41-69). Luxembourg: Commission of the European Communities.
- Valcke, E., Cremers, A. (1992).** Sorption desorption dynamics of radiocaesium in organic matter soils. In Laboratory for Colloid Chemistry, Faculty of Agronomy, K.U. Leuven Kardinall Mercierlaan 92 B-3001 Heverlee.

Van Praag, H. J., Weissen, F. (1984). The intensity factor in acid forest soils : extraction and composition of the soil solution. *Pédologie*, XXXIV(2), 203-214.

Varskog, P., Naeumann, R., Steinnes, E. (1994). Mobility and plant availability of radioactive Cs in natural soil in relation to Stable Cs, other alkali elements and soil fertility. *J. Environ. Radioactivity*, 22(1), 43-53.

Vovk, I. F., Blagoyev, V. V., Lyashenko, A. N., Kovalev, I. S. (1993). Technical approaches to decontamination of terrestrial environments in the CIS (former USSR). *The Science of the Total Environment*, 137, 49-63.

Wallace, G. A., Wallace, A. (1986). Control of soil erosion by polymeric soil conditioners. *Soil science*, 141(5), 363-367.

Wang, Y. Y., Biwer, B. M., Yu, C. (1993). A compilation of radionuclide transfer factors for the plant, meat, milk and aquatic food pathways and the suggested default values for the RESRAD code (ANL/EAIS/TM-103). Argonne National Laboratory.

Wirth, E., Hiersche, L., Kammerer, L., Krajewska, G., Krestel, R., Mahler, S., Rommelt, R. (1994). Transfer equations for cesium-137 for coniferous forests understorey plant species. *The Science of the Total Environment*, 157, 163-170.

Yoshida, S., Muramatsu, Y. (1994). Radiocaesium concentrations in mushrooms collected in Japan. *J. Environ. Radioactivity*, 22(2), 141-154.

7. Glossaire :

Å : unité de longueur égale à 10^{-10} m.

AIEA : Agence Internationale de l'Energie Atomique dont le siège est à Vienne, Autriche.

Bq, becquerel : activité d'une quantité de nucléide radioactif pour laquelle le nombre de transitions nucléaires spontanées par seconde est égal à 1. (kBq = kilo becquerel = 10^3 becquerels. MBq = méga becquerel = 10^6 becquerels. GBq = giga becquerel = 10^9 becquerels. TBq = Tera becquerel = 10^{12} becquerels. PBq = péta becquerel = 10^{15} becquerels. EBq = éta becquerel = 10^{18} becquerels).

CEI : Communauté des Etats Indépendants, ex-URSS.

CIPR, ICRP : Commission Internationale de Protection Radiologique.

Chernozem : Les Chernozems sont des sols réputés pour leur grande fertilité : leurs propriétés tant physiques que chimiques sont exceptionnellement favorables à la vie des plantes. Ils sont profonds, de porosité élevée (65-70%) ont donc une bonne aération alors que la capacité de rétention de l'eau est suffisante. Le complexe absorbant est saturé sans qu'un pH trop élevé ne joue un rôle défavorable. Ils sont pourvu d'humus dont une partie peut être âgée de 1000 à 3000 ans. La classification des sols les place parmi les sols "zonaux" d'URSS, car leur nature dépend étroitement du climat. Les argiles qu'ils contiennent sont essentiellement composées d'illite et de montmorillonite. L'illite est une argile contenant des sites spécifiques de fixation du césium. (Duchaufour, 1983)

Coefficient d'interception : rapport de l'activité des radionucléides déposée sur la végétation au dépôt total sur le sol et la végétation

Combustible : terme utilisé par abus de langage pour désigner le combustible nucléaire, c'est-à-dire l'oxyde d'uranium dans le cas d'un réacteur fonctionnant à l'uranium.

Contre-mesure : mesure visant à réduire le flux de radionucléides dans l'environnement afin de réduire l'exposition des populations aux rayonnements ionisants.

Demi-vie physique : la demi-vie physique est le (temps nécessaire pour que l'activité au temps t_0 d'un radionucléide soit réduite de moitié ($T_{1/2}$).

Demi-vie biologique : la demi-vie biologique est le temps nécessaire à un organisme pour éliminer la moitié de son contenu d'une substance donnée sur une base strictement biologique.

Demi-vie effective : la demi-vie effective est la combinaison des demi-vies physiques et biologiques. L'introduction du paramètre biologique dans cette grandeur la rend extrêmement dépendante de l'homéostasie du système considéré.

Demi-vie radioécologique : la demi-vie radioécologique est le temps au bout duquel la moitié de l'activité d'un radionucléide n'entre plus dans le flux aboutissant à la voie d'exposition considérée. La raison de cette "disparition" est liée la demi-vie physique et à la migration hors du compartiment considéré sous l'action des différents vecteurs : eau, air, exportations par les consommateurs primaires ou les pratiques agricoles.

Détecteur au germanium pur : système de comptage de la radioactivité des émetteurs γ qui utilise les propriétés du germanium. Cet élément lorsqu'il est refroidi par de l'azote liquide et soumis à une très haute tension (≈ 4 kV) transforme en impulsions électriques l'énergie des rayonnements qui le traversent. La hauteur de l'impulsion électrique produite est fonction de l'énergie du rayonnement incident, caractéristique du radionucléide émetteur. Les systèmes modernes fonctionnent au germanium pur alors que les premiers détecteurs de ce type contenaient également du lithium.

ECP/4 : "Experimental Collaboration Programme n°4" Programme de collaboration expérimentale avec les institutions scientifiques de l'ex URSS, sur les conséquences de l'accident de Tchernobyl, financé par la Direction de la recherche scientifique (DGXII) de la Commission de l'Union Européenne.

Efficacité relative : rapport du nombre d'impulsions électriques enregistrées par une chaîne de comptage équipée d'un détecteur au germanium, au nombre d'impulsions qu'aurait enregistré la

même chaîne équipée d'un détecteur à iodure de sodium (NaI). Les détecteurs NaI furent les premiers détecteurs scintillateurs fabriqués qui servent de référence.

Ft : Facteur de transfert rapport des activités d'un radionucléide entre la plante et le sol par unité de masse.

eV : électron volt : perte moyenne d'énergie par paire d'ion formée égale au quotient de l'énergie cinétique initiale d'une particule chargée ionisante par l'ionisation totale de cette particule (Pannetier, 1981)

Gy, gray : dose absorbée dans un élément de matière de masse 1 kg auquel les rayonnements ionisants communiquent de façon uniforme une énergie de 1 joule. En radioprotection, la dose absorbée se rapporte à l'organe ou tissu.

Horizon : couche de sol caractérisée par son homogénéité de composition physique, chimique et évolutive.

IPSN : Institut de Protection et de Sécurité Nucléaire

keV : kilo électron volt, énergie correspondant à 10^3 électrons volts

LnFt : logarithme népérien du facteur de transfert

M : Mole par litre

Mat : couche de matière organique à la surface du sol formée par l'accumulation de structures végétales mortes, parcourue par les racines superficielles de la végétation herbacée.

Michaelis-Menten : équation de Michaelis et Menten décrivant la vitesse de la réaction enzymatique :

$$v = \frac{V_m \cdot [S]}{K_m + [S]}$$

La vitesse instantanée d'une réaction enzymatique est proportionnelle à la vitesse maximale de la réaction aux conditions limites (V_m) et à la concentration du substrat de la réaction $[S]$ et inversement proportionnelle à la quantité d'enzyme disponible pour la réaction, c'est-à-dire celle qui n'est pas déjà fixée sur le substrat. En effet :

$$K_m + [S] = \frac{[ET] \times [S]}{[ES]}$$

où

$[ET]$ = la concentration totale d'enzyme dans le milieu réactionnel

$[ES]$ = la concentration d'enzyme liée au substrat

$[S]$ = la concentration d'enzyme libre

Mycorhizes : symbioses entre les racines des végétaux et le mycélium des champignons. Les mycorhizes se séparent en trois groupes principaux : les ectomycorhizes, les endomycorhizes, les ectendomycorhizes. (Strullu, 1991)

nm : nanomètre = 10^{-9} m

Plomb de basse activité : plomb utilisé pour le blindage des appareils de détection de la radioactivité. Il s'agit de plomb ayant été extrait du minerai avant les premiers essais d'armes atomiques dans l'atmosphère qui ont laissé des traces de césium-137 dans tous les matériaux fabriqués depuis lors. En effet, il importe pour abaisser la sensibilité de la mesure que les matériaux utilisés pour l'appareillage contiennent eux-mêmes peu de radioactivité.

Podzol : Les podzols sont des sols résultant d'une acidification accentuée de l'humus produisant des quantités massives de composés organiques solubles qui migrent en profondeur. Ces composés solubles entraînent la migration du fer libre et l'altération de la partie minérale du complexe absorbant en libérant l'alumine et la silice. Il ne reste en surface des sols podzoliques caractérisés qu'une très faible quantité d'argile. Parmi les podzols, les podzols humiques ont un profil très différencié formé sur sable quartzueux, caractérisé par un horizon supérieur (A) cendreux correspondant aux sols rencontrés dans la région de Tchernobyl. (Duchaufour, 1983)

Profil : coupe verticale du sol permettant de caractériser la classe à laquelle il appartient et de déterminer les différents horizons qui composent le profil.

RESSAC : REhabilitation des Sols et des Surfaces après un Accident

Scintillation : propriété de certaines molécules capables de convertir en lumière l'énergie reçue d'un rayonnement ionisant. Ces émissions lumineuses sont utilisées notamment pour la détection des rayonnements peu pénétrants α et β par la technique de mesure par scintillation liquide.

Section efficace : pour une entité cible spécifique, c'est-à-dire par exemple un noyau d'atome, et une réaction produite par des particules incidentes chargées ou non chargées, c'est-à-dire par exemple, un neutron éjecté lors de la fission d'un noyau d'uranium, la section efficace est égale au quotient de la probabilité de cette réaction par la fluence des particules incidentes. L'unité de section efficace est le barn, symbole : b.

Sols alluviaux : sols constitués des dépôts récents des vallées où ils occupent le lit actuel, très souvent inondé, des rivières. Ils sont caractérisés notamment par la présence d'une nappe phréatique soumises à de fortes oscillations saisonnières, et une absence de différenciation du profil (Duchaufour, 1983).

Sols hydromorphes : sols soumis à une saturation temporaire ou permanente des pores par l'eau produisant un déficit prolongé en oxygène qui se traduit par une réduction locale du fer (Duchaufour, 1983).

Sv : sievert, grandeur de radioprotection permettant d'exprimer, la dose équivalente à l'organe, ou la dose efficace. (voir chapitre 211).

T_{1/2} demi-vie : temps au bout duquel une grandeur physique ou biologique atteint la moitié de sa valeur initiale. La demi-vie peut recouvrir les notions particulières de demi-vie biologique, demi-vie effective, demi-vie radioécologique (voir chapitre 231).

Technique de réhabilitation : technique visant à réduire la source de contamination de l'environnement pour réduire l'exposition des populations aux rayonnements ionisants.

8. Annexes

Annexe 1 : Vue du dispositif de culture, pour l'étude du transfert sol-plante des radionucléides aux principales plantes cultivées autour des sites nucléaires français.

Annexe 2 : Vue du dispositif d'absorption de l'eau du sol à l'aide d'un polyacrylamide, pour la mesure de K_d .

Annexe 3 : Vue de la charrue de décapage enfouissement testée à Tchernobyl par une équipe danoise

Annexe 4 : Vue du premier essai de décapage des sols à Tchernobyl en novembre 1992, village de Burakovka.

Annexe 5 : Vue du dispositif de culture destiné à mettre en contact les racines des plantes avec la contamination déposée à la surface du sol.

Annexe 6 : Vue au microscopie électronique à balayage d'une particule chaude prélevée à Tchernobyl en 1992

Annexe 7 Vue de la pile d'entreposage des plaques de gazon décapées à Savichy, Biélorussie, 1993.

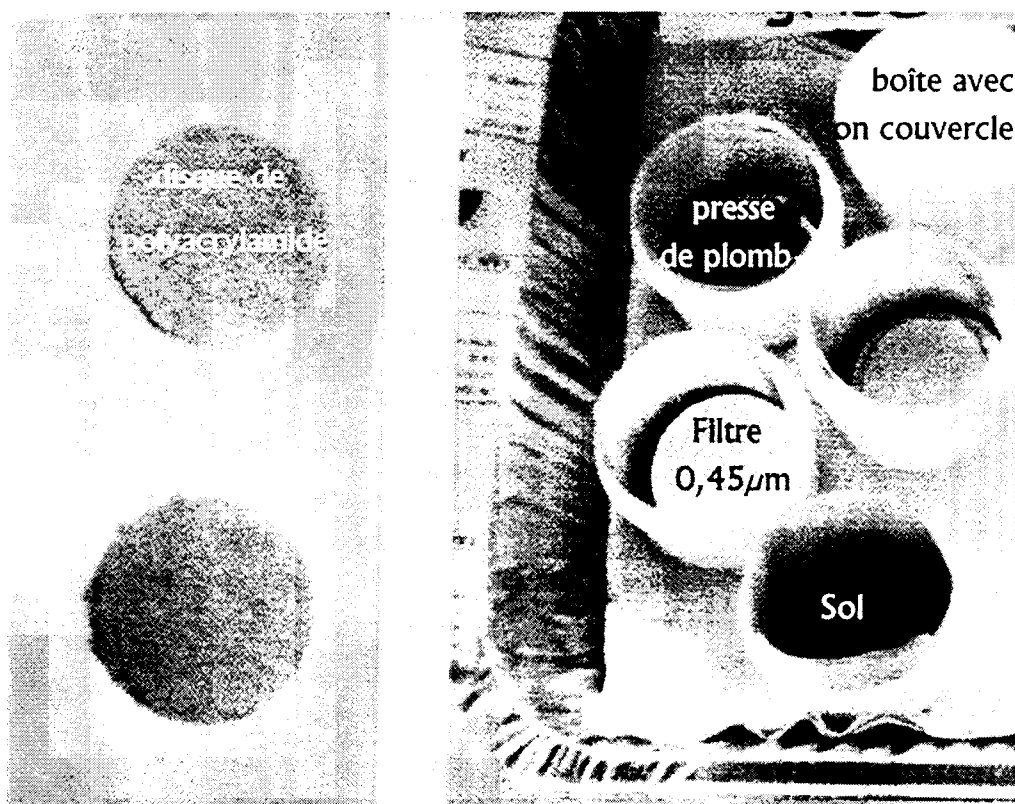
Annexe 1



pot contenant
10 kg de sol
(redessiné)

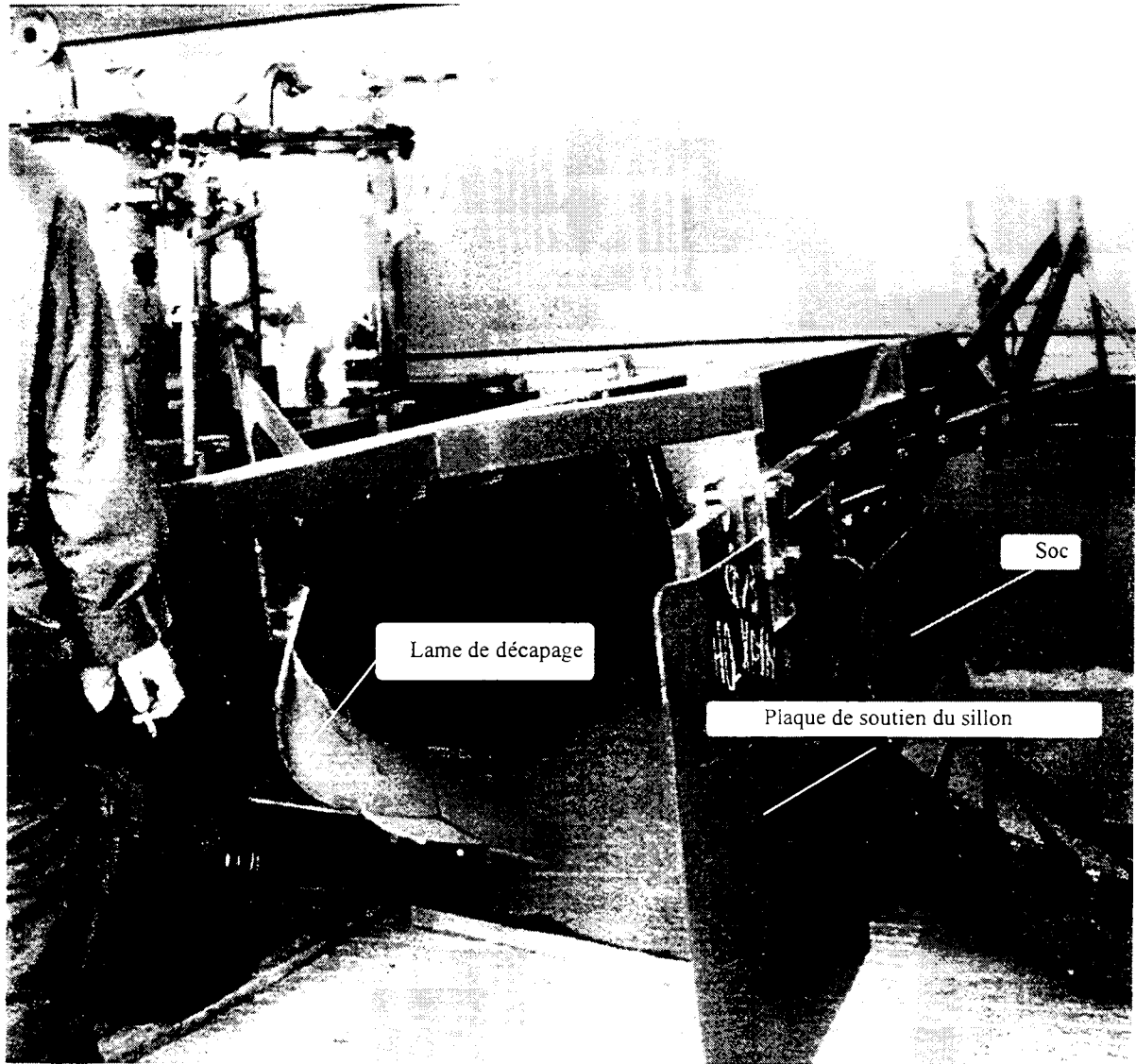
Vue du dispositif de culture, pour l'étude du transfert sol-plante des radionucléides aux principales plantes cultivées autour des sites nucléaires français.

Annexe 2



Vue du dispositif d'absorption de l'eau du sol à l'aide d'un polyacrylamide, pour la mesure de K_d .

Annexe 3



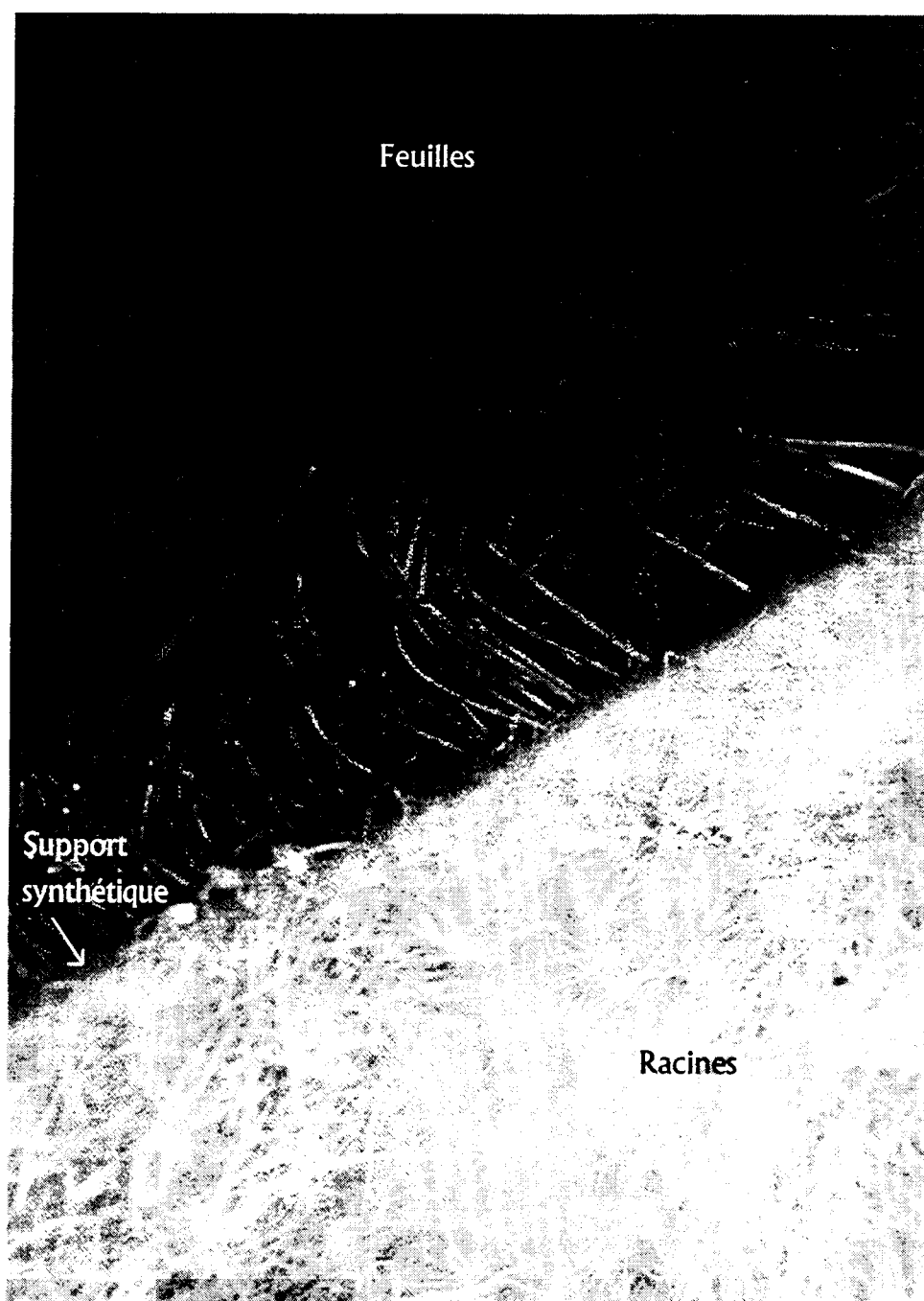
Vue de la charrue de décapage enfouissement testée à Tchernobyl par une équipe danoise

Annexe 4



Vue du premier essai de décapage des sols à Tchernobyl en novembre 1992, village de Burakovka.

Annexe 5



Vue du dispositif de culture destiné à mettre en contact les racines des plantes avec la contamination déposée à la surface du sol.

Annexe 6



Vue au microscope électronique à balayage d'une particule chaude prélevée à Tchernobyl en 1992

Annexe 7



Vue de la pile d'entreposage des plaques de gazon décapées à Savichy, Biélorussie, 1993.

9. Liste des tableaux

Tableau 2.1 :	facteurs de pondération pour les tissus	7
Tableau 2.2 :	rejets des accidents nucléaires passés et hypothèses pour les réacteurs à eau pressurisée	17
Tableau 2.3 :	quelques exemples de demi-vies effectives	17
Tableau 2.4 :	exemples de facteurs de dose au poumon	20
Tableau 2.5 :	contribution relative des radionucléides à la dose engagée jusqu'à 70 ans pour le terme source de l'accident de Tchernobyl.	22
Tableau 3.1 :	pourcentages de ^{137}Cs extrait du sol par différentes méthodes.	27
Tableau 3.2 :	coefficients S et μ relatifs à l'interception des aérosols secs par les végétaux	32
Tableau 3.3 :	interception des radionucléides par la végétation à la suite d'un dépôt	32
Tableau 3.4 :	rayons ioniques de quelques ions hydratés et déshydratés, et énergies d'hydratation.	37
Tableau 3.5 :	caractéristiques des sols étudiés	45
Tableau 3.6 :	variables explicatives du facteur de transfert (Ft) ou du logarithme népérien du facteur de transfert (LnFt) de ^{134}Cs et ^{85}Sr au ray-grass et valeurs du coefficient de détermination R^2 .	53
Tableau 3.7 :	paramètres statistiques de la régression linéaire exprimant le facteur de transfert (Ft) de ^{134}Cs et ^{85}Sr au haricot en fonction du coefficient de distribution Kd.	55
Tableau 3.8 :	coefficients de la régression multiple des variables explicatives de $\text{LnFt}(\text{Cs})$ et coefficients de détermination.	56
Tableau 3.9 :	coefficient de détermination R^2 de la régression linéaire des facteurs de transfert pour 8 plantes entre les différents types de sols.	61
Tableau 3.10 :	Coefficients de régression des équations modélisant les transferts sol-plante du césium et du strontium	63
Tableau 3.11 :	comparaison des facteurs de transfert de ^{137}Cs à l'herbe observés et calculés d'après l'équation (1).	65
Tableau 4.1 :	activité du sol avant et après le décapage d'une couche de 5 cm d'épaisseur à l'aide d'une déplaqueuse à gazon	88
Tableau 4.2 :	caractérisation des déchets produits par le déplaquage des sols. Valeurs pour 10 cm^2 .	89
Tableau 4.3 :	évolution de la contamination du lait des vaches nourries avec de l'herbe cultivées sur un champ décontaminé à l'aide d'une déplaqueuse à gazon.	91
Tableau 4.4 :	efficacité de décontamination	93
Tableau 4.5 :	débit de dose absorbée à 1 m au dessus du sol, avant et après décapage.	93
Tableau 4.6 :	contribution de la contamination des sols autour des habitations à la dose externe	98
Tableau 4.7 :	comparaison de la technique proposée avec les techniques existantes	100
Tableau 4.8 :	rapports coût/bénéfice de quelques options de réhabilitation	103

10. Liste des figures

Figure 2.1 :	débit de dose absorbée à 1 m du sol pour un dépôt de ^{137}Cs égal à 1 Ci.km^{-2} et profondeur de pénétration du césium dans le sol à Halch, Biélorussie, 1994.	18
Figure 2.2 :	^{137}Cs mesuré par antropogammamétrie chez les personnes vivant dans les zones contaminées en Russie et en Ukraine et fréquence de contamination des champignons. D'après Strand, (1994)	19
Figure 3.1 :	Influence des paramètres K_d et D sur la migration du césium dans le profil vertical d'un sol, calculée à l'aide du programme Cathy2.	30
Figure 3.2 :	césium-137 échangeable, a : à l'acétate d'ammonium N et b : à l'acide chlorhydrique N dans des sols contaminés par l'accident de Tchernobyl et augmentation de la fraction échangeable lors de l'ajout de césium soluble; en 1988.	35
Figure 3.3 :	description schématique du transport compétitif du césium à travers la membrane cellulaire.	40
Figure 3.4 :	facteurs de transfert de ^{137}Cs à l'épiblaste de blé en présence de NH_4^+ , K^+ , Cs^+ dans la solution.	41
Figure 3.5 :	exemple de spectre de raie	46
Figure 3.6 :	représentation schématique d'une chaîne de comptage	47
Figure 3.7 :	schéma racapitulatif des expériences réalisées	51
Figure 3.8 :	facteur de transfert sol plante du césium-134 aux tiges et aux feuilles de haricot vert.	52
Figure 3.9 :	facteur de transfert de ^{134}Cs au haricot et K_d mesuré par différentes méthodes.	55
Figure 3.10 :	facteur de transfert de ^{85}Sr au haricot et K_d mesuré par différentes méthodes.	56
Figure 3.11 :	facteur de transfert du césium à l'herbe, valeurs calculées par le modèle à trois variables et valeurs observées.	58
Figure 3.12 :	facteur de transfert du césium à l'herbe et résidus du modèle à trois variables (K_d , MO, K^+).	59
Figure 3.13 :	facteur de transfert du césium à l'herbe et résidus du modèle à trois variables (Sable, MO, K^+).	59
Figure 3.14 :	facteur de transfert moyen du césium aux différentes plantes et distribution des valeurs observées pour chaque type de sol.	60
Figure 3.15 :	facteur de transfert moyen du strontium aux différentes plantes et distribution des valeurs observées pour chaque type de sol.	62
Figure 3.16 :	facteur de transfert de ^{134}Cs , distribution des valeurs calculées en fonction des valeurs expérimentales.	64
Figure 3.17 :	facteur de transfert sol-plante de ^{137}Cs (Ft_{Cs}) à l'herbe, en Grande Bretagne.	66
Figure 3.18 :	influence de pH sur la valeur de Ft_{Cs} .	67
Figure 3.19 :	représentation schématique du flux des radionucléides entre le sol et les végétaux.	68
Figure 4.1 :	plan de situation de la zone interdite de Tchernobyl.	85
Figure 4.2 :	profil pédologique du sol à Burakovka	86
Figure 4.3 :	profil de migration des radionucléides dans le profil de sol à Tchernobyl en 1992.	88
Figure 4.4 :	distribution de ^{137}Cs dans 2 profils de sol réalisés à Milyach, province de Rovno	90
Figure 4.5 :	distribution des radionucléides dans le profil de sol à Savichy, Biélorussie, 1993.	92
Figure 4.6 :	dose collective engagée pour 50 ans évitée par le décapage des sols	97

Figure 4.7 :	equivalents de dose externe évités par le décapage des sols et le labour	99
Figure 4.8 :	coût/bénéfice des différentes options à Miljachy	101

Table des matières

1.	Introduction	3
2.	Contexte général de la protection radiologique	5
2.1.	Risques d'exposition des populations aux rayonnements.....	6
2.1.1.	Notion de dose.....	6
2.1.1.1.	Dose absorbée.....	6
2.1.1.2.	Dose équivalente.....	6
2.1.1.3.	Dose efficace	6
2.1.2.	Recommandations pour la protection des populations.....	7
2.1.2.1.	Effets déterministes et stochastiques	7
2.1.2.2.	Le cadre conceptuel de la Protection Radiologique.....	7
2.1.2.3.	Les activités.....	8
2.1.2.4.	Les pratiques.....	8
2.1.2.5.	Les interventions.....	9
2.1.3.	Exposition naturelle et artificielle	9
2.2.	Les accidents nucléaires majeurs	10
2.2.1.	Accidents ayant eu un impact sur l'environnement	10
2.2.1.1.	Windscale (Royaume Uni) 1957.....	10
2.2.1.2.	Kyshtym (l'Oural) 1957	10
2.2.1.3.	Palomares (Espagne) 1966	11
2.2.1.4.	Tchernobyl (Ukraine) 1986	11
2.2.2.	Accident sans impact notable sur l'environnement	12
2.2.2.1.	Three Mile Island (TMI) (Etats Unis) 1979.....	12
2.2.3.	La préparation aux situations accidentelles	12
2.3.	Le terme source d'un accident nucléaire	14
2.3.1.	Les produits de condensation	14
2.3.2.	Les particules chaudes.....	14
2.3.3.	Les radionucléides significatifs en terme d'exposition des populations	15
2.3.3.1.	Inventaire.....	15
2.3.3.2.	Emissions radioactives.....	16
2.3.4.	Demi-vie radioécologique	17
2.4.	Conséquences radiologiques	18
2.4.1.	L'irradiation externe	18
2.4.2.	L'irradiation interne.....	18
2.4.2.1.	Par ingestion	18
2.4.2.2.	Par inhalation	19
2.4.2.3.	La remise en suspension	20
2.4.3.	Les facteurs de dose	22
2.4.4.	Les radionucléides les plus importants.....	22
2.5.	Contre-mesures agricoles et techniques de réhabilitation	23
2.5.1.	Les phases d'un accident nucléaire.....	23
2.5.2.	Les contre-mesures agricoles	24
2.5.3.	La réhabilitation des sols.....	24
3.	Expérimentations en laboratoire	25
3.1.	Bases radioécologiques : partie bibliographique.....	26
3.1.1.	Le transfert dans les sols	26
3.1.1.1.	Les principales caractéristiques des sols et leur influence sur le transfert des radionucléides	26
3.1.1.2.	Le coefficient de distribution.....	28
3.1.2.	Le transfert foliaire.....	30
3.1.2.1.	L'interception par les végétaux.....	30
3.1.2.2.	La rétention des radionucléides par les végétaux	32
3.1.2.3.	La translocation	33
3.1.3.	Le transfert sol-plantes des radionucléides.....	34

3.1.3.1.	La solubilité du terme source.....	34
3.1.3.2.	La fixation sur le sol et l'échange d'ion avec la solution du sol.....	36
3.1.3.3.	La rhizosphère	38
3.1.4.	Conclusion sur le transfert des radionucléides dans les productions agricoles.....	43
3.2.	Techniques mises en oeuvre	44
3.2.1.	Etude des causes de variation du facteur de transfert sol-plante de Cs et Sr	44
3.2.1.1.	Les sols étudiés	44
3.2.1.2.	Techniques d'analyse	45
3.2.1.3.	Contamination des sols	48
3.2.2.	Mesure de l'interaction des radionucléides avec le sol à l'aide du coefficient Kd	48
3.2.2.1.	Méthode par centrifugation.....	49
3.2.2.2.	Méthode de mesure de Kd en conditions saturées.....	49
3.2.2.3.	Nouvelle méthode de mesure de Kd par absorption à l'aide de résine polyacrylamide.....	49
3.2.3.	Analyse des corrélations du facteur de transfert.....	50
3.2.4.	Expériences de transfert sol-plante de Cs et Sr aux principales plantes cultivées autour des sites nucléaires français.....	51
3.3.	Résultats obtenus : expérimentations en laboratoire	52
3.3.1.	Expérience préliminaire de transfert sol-plante.....	52
3.3.2.	Influence des paramètres liés au type de sol	53
3.3.2.1.	Césium	53
3.3.2.2.	Strontium	54
3.3.3.	Comparaison des 3 méthodes de mesure de Kd	54
3.3.3.1.	Régression multiple	56
3.3.3.2.	Conclusion	58
3.3.4.	Essai de modélisation du transfert sol-plante de Cs et Sr	59
3.3.4.1.	Césium	60
3.3.4.2.	Strontium	61
3.3.4.3.	Modèle générique	62
3.4.	Discussion : application du modèle de transfert sol-plante.....	65
3.4.1.	Application du modèle	65
3.4.2.	Conclusion.....	68
3.4.2.1.	Mécanismes de transfert sol-plante.....	68
3.4.2.2.	Ce qu'il reste à étudier.....	69
3.4.2.3.	Conséquences en terme de contre-mesures agricoles et techniques de réhabilitation	71
4.	Expérimentations in situ	72
4.1.	Données disponibles sur le site de Tchernobyl	73
4.1.1.	Contre-mesures agricoles	73
4.1.1.1.	Engrais à base de potassium	73
4.1.1.2.	Engrais à base de calcium.....	74
4.1.1.3.	Engrais à base de phosphore.....	75
4.1.1.4.	Pulvérisation d'engrais foliaires	75
4.1.1.5.	Amendements organiques.....	76
4.1.1.6.	Alumino silicates naturels : zéolites, bentonite, diatomites	77
4.1.1.7.	Bleu de Prusse.....	77
4.1.2.	Techniques de réhabilitation	78
4.1.2.1.	La fixation du dépôt et la décontamination des sols	78
4.1.2.2.	La récolte de la végétation	79
4.1.2.3.	La défoliation non létale	79
4.1.2.4.	L'enfouissement du sol contaminé.....	80
4.1.3.	Conclusion sur les contre-mesures et les techniques de réhabilitation.....	82
4.2.	Le décapage des sols à l'aide d'une déplaqueuse à gazon.	83
4.2.1.	Technique mise en oeuvre.....	83
4.2.1.1.	Origine de la technique.....	83
4.2.1.2.	Méthode de mesure de l'efficacité du décapage.....	85

4.2.1.3.	Campagnes d'essais à Tchernobyl.....	85
4.2.2.	Résultats et discussion des essais à Tchernobyl	87
4.2.2.1.	Essai préliminaire dans la zone interdite autour de Tchernobyl	87
4.2.2.2.	Essai en Ukraine sur sol de tourbière.....	90
4.2.2.3.	Essai en Biélorussie sur sol podzolique	91
4.2.3.	Conclusion sur le décapage des sols à l'aide d'une déplaqueuse à gazon	95
4.3.	Conséquences radioécologiques	96
4.3.1.	Irradiation interne par ingestion	96
4.3.1.1.	Hypothèses envisagées	96
4.3.1.2.	Données existantes.....	96
4.3.2.	Irradiation externe	98
4.3.2.1.	Hypothèses envisagées	98
4.3.2.2.	Calcul.....	98
4.4.	Critique des contre-mesures et des techniques de réhabilitation.....	100
4.4.1.	Analyse coût/bénéfice	100
4.4.2.	Autres critères d'évaluation des contre-mesures et techniques de réhabilitation.....	101
4.4.2.1.	Disponibilité de la technique	101
4.4.2.2.	Obstacle du traitement des déchets	102
4.4.2.3.	Critère psychologique.....	102
4.4.2.4.	Critère économique.....	102
4.4.2.5.	Critère politique	102
4.4.2.6.	Eviter un risque supplémentaire	103
4.4.2.7.	Accompagner des mesures restrictives	103
5.	Conclusion générale	105
6.	Références bibliographiques.....	108
7.	Glossaire :	116
8.	Annexes	119
9.	Liste des tableaux	127
10.	Liste des figures.....	128