



RÉPUBLIQUE
FRANÇAISE

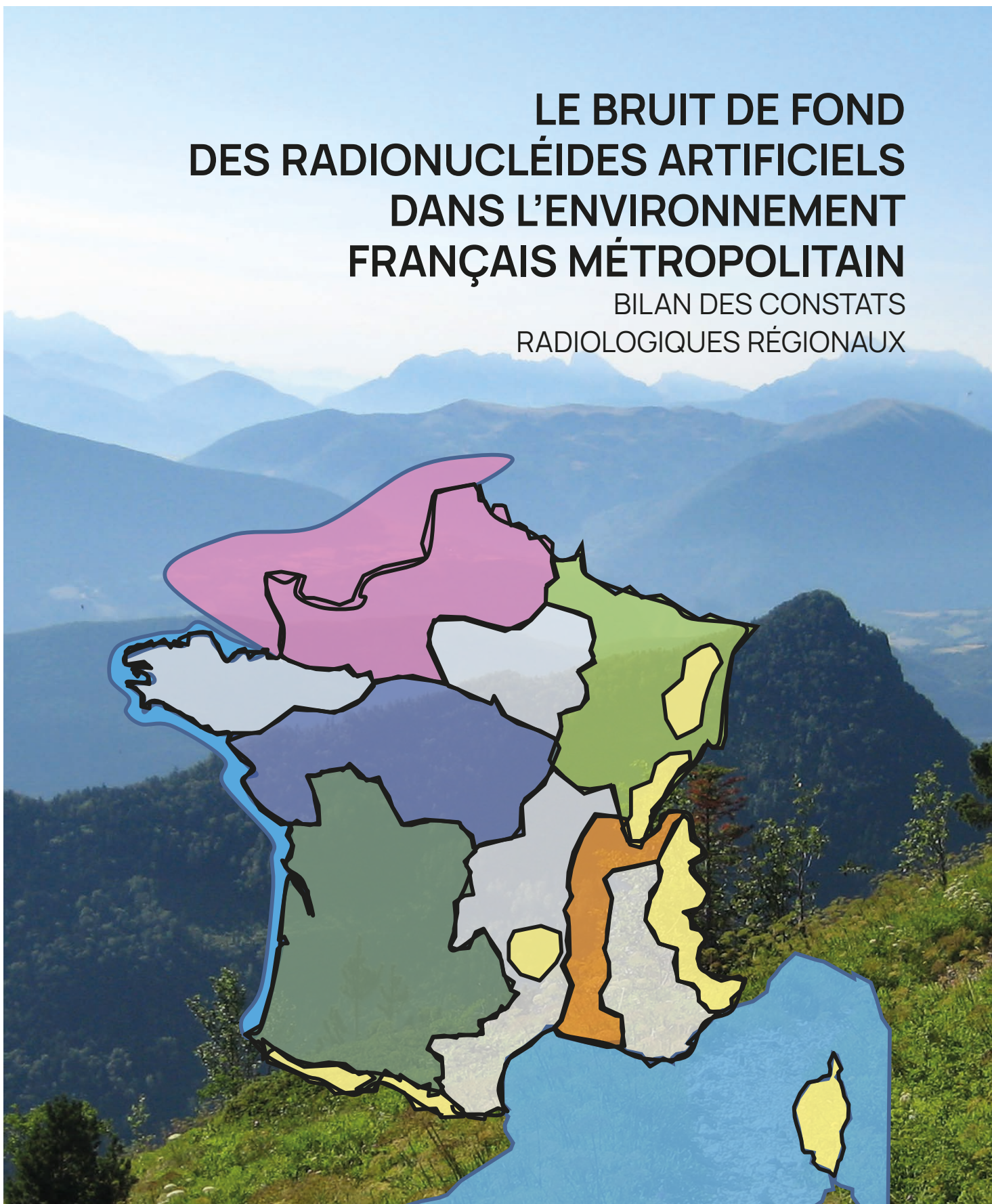
*Liberté
Égalité
Fraternité*

IRSN

INSTITUT DE RADIOPROTECTION
ET DE SÛRETÉ NUCLÉAIRE

LE BRUIT DE FOND DES RADIONUCLÉIDES ARTIFICIELS DANS L'ENVIRONNEMENT FRANÇAIS MÉTROPOLITAIN

BILAN DES CONSTATS
RADIOLOGIQUES RÉGIONAUX



MEMBRE DE

ETSON

L'EXPERT PUBLIC DES RISQUES NUCLÉAIRES ET RADIOLOGIQUES

Expertiser, rechercher, protéger, anticiper, partager ; telles sont les missions de l'IRSN au service des pouvoirs publics et de la population.

La singularité de l'Institut réside dans sa capacité à associer chercheurs et experts pour anticiper les questions à venir sur l'évolution et la maîtrise des risques nucléaires et radiologiques.

Les femmes et les hommes de l'IRSN ont à cœur de faire connaître leurs travaux et de partager leurs savoirs avec la société. Ils contribuent ainsi à améliorer l'accès à l'information et le dialogue avec les parties prenantes.

L'Institut concourt aux politiques publiques de sûreté et sécurité nucléaires, de santé, d'environnement et de gestion de crise.

Établissement public à caractère industriel et commercial (EPIC), sous la tutelle conjointe du ministre chargé de l'Environnement, du ministre de la Défense, et des ministres chargés de l'Énergie, de la Recherche et de la Santé, l'IRSN inscrit pleinement son action dans les politiques de modernisation de l'État avec sa démarche de management des risques et la mise en œuvre d'une politique globale en matière de responsabilité sociétale.

Dans le cadre de ses missions, l'Institut de radioprotection et de sûreté nucléaire (IRSN) contribue notamment à la veille permanente en radioprotection sur le territoire national. À cet égard, la surveillance radiologique de l'environnement réalisée par l'IRSN participe :

- à la vérification du fonctionnement des installations qui rejettent de la radioactivité dans l'environnement ;
- à l'analyse de l'évolution des niveaux de radioactivité – dans le temps et l'espace – et à la détection d'élévations inhabituelles de ces niveaux ;
- à l'évaluation de l'exposition des populations et des écosystèmes aux rayonnements ionisants ;
- à la mise en place de moyens susceptibles d'être mobilisés en situation d'urgence radiologique ou en situation post-accidentelle ;
- à la qualification des modèles de dispersion de la radioactivité dans l'environnement et d'évaluation de ses impacts.

Elle est assortie d'une obligation de transparence qui conduit l'Institut à publier régulièrement ses résultats de mesure et des synthèses sur l'état radiologique des territoires.

L'INSTITUT
COMPTE
ENVIRON
1 816
COLLABORATEURS

parmi lesquels
de nombreux
ingénieurs,
médecins,
agronomes,
vétérinaires,
techniciens,
experts
et chercheurs.

Pour mener à bien
ses missions,
l'IRSN dispose
**D'UN BUDGET
D'ENVIRON
271 M€**

RÉSUMÉ

De 1945 à 1980, plus de 500 essais atmosphériques d'armes nucléaires ont été réalisés par les États-Unis, l'Union Soviétique, la Grande-Bretagne, la Chine et la France. Ces essais ont libéré dans l'atmosphère de nombreux radionucléides dont une vingtaine a contribué à l'essentiel des retombées radioactives sur la France. En mai 1986, les masses d'air contaminées par l'accident de Tchernobyl ont entraîné des dépôts radioactifs très hétérogènes sur le pays.

Si la plupart des radionucléides de période radioactive courte qui composaient ces retombées ont disparu par décroissance radioactive, le césium 137, le strontium 90, des isotopes du plutonium, ainsi que l'américium 241, de plus longues périodes, sont toujours présents dans les sols qui constituent le réservoir qui alimente toutes les autres composantes de l'environnement. Leurs activités massiques et volumiques y sont extrêmement variables, du fait de la variabilité spatiale des dépôts radioactifs initiaux et de leur devenir. Dans le cas du tritium et du carbone 14, également émis lors des explosions nucléaires, c'est l'air qui constitue ce réservoir et leurs concentrations environnementales sont beaucoup plus homogènes. Les activités massiques et volumiques de ces radionucléides dans les différentes composantes des milieux atmosphériques, terrestres, aquatiques continentaux et marins, constituent le « bruit de fond » des radionucléides artificiels dans l'environnement. Ce bruit de fond diminue depuis la fin des retombées atmosphériques du fait de la décroissance radioactive et de différents phénomènes présentés dans ce document.

Connaître le bruit de fond des radionucléides artificiels dans l'environnement français répond à plusieurs objectifs : estimer les expositions des populations qui en résultent, déterminer les activités ajoutées à ce bruit de fond du fait des rejets des installations nucléaires, et disposer d'un référentiel dans l'éventualité d'un accident, d'un rejet intempestif ou de toute autre cause d'augmentation de ce bruit de fond.

Ce rapport présente une synthèse de cette connaissance de bruit de fond radiologique français et de son évolution au cours des 60 dernières années, dans toute sa variabilité, notamment spatiale, sur la base de milliers de résultats de mesures. Ces résultats de mesures proviennent notamment des constats radiologiques régionaux effectués par l'IRSN de 2008 à 2018 : les constats « Val de Loire », « Sud-Ouest », « Vallée du Rhône », « Nord-Est », « Zone de rémanence élevée », « Méditerranée » et « Normandie et Hauts-de-France ».

SOMMAIRE

1	INTRODUCTION	4
2	ASPECTS MÉTHODOLOGIQUES	8
3	LE CÉSIIUM 137 DANS L'ENVIRONNEMENT FRANÇAIS	10
3.1	ORIGINE DU CÉSIIUM 137 DANS L'ENVIRONNEMENT FRANÇAIS	10
3.2	ORIGINE ET SÉLECTION DES DONNÉES EXPLOITÉES DANS CE BILAN	12
3.3	LE CÉSIIUM 137 DANS LES SOLS	14
3.4	LE CÉSIIUM 137 DANS LES DENRÉES VÉGÉTALES ET D'ORIGINE ANIMALE	19
3.5	LE CÉSIIUM 137 EN MILIEU AQUATIQUE CONTINENTAL	37
3.6	LE CÉSIIUM 137 EN MILIEU MARIN	44
3.7	EXPOSITIONS DE LA POPULATION AU CÉSIIUM 137 PRÉSENT DANS L'ENVIRONNEMENT FRANÇAIS	51
4	LE STRONTIUM 90	62
4.1	ORIGINE, ACTIVITÉS DANS L'AIR ET DÉPÔTS	62
4.2	ORIGINE DES DONNÉES DE STRONTIUM 90 EXPLOITÉES DANS CE BILAN	63
4.3	LE STRONTIUM 90 DANS LES SOLS	63
4.4	LE STRONTIUM 90 DANS LES DENRÉES	66
4.5	LE STRONTIUM 90 EN MILIEU AQUATIQUE CONTINENTAL	71
4.6	LE STRONTIUM 90 EN MILIEU MARIN	74
4.7	EXPOSITIONS DE LA POPULATION AU STRONTIUM 90 PRÉSENT DANS L'ENVIRONNEMENT FRANÇAIS	74
5	LES ISOTOPES DU PLUTONIUM ET L'AMÉRICIUM 241	78
5.1	ORIGINE ET RAPPORTS D'ACTIVITÉS ISOTOPIQUES	78
5.2	L'INFLUENCE DES REJETS DES INSTALLATIONS NUCLÉAIRES	80
5.3	COMPORTEMENTS DANS L'ENVIRONNEMENT	81
5.4	MÉTROLOGIE ET ORIGINE DES DONNÉES DE PLUTONIUM ET D'AMÉRICIUM 241 EXPLOITÉES DANS CE BILAN	81

5.5	LE PLUTONIUM DANS LES SOLS	82
5.6	LE PLUTONIUM DANS LES HERBAGES	85
5.7	LE PLUTONIUM DANS LES DENRÉES VÉGÉTALES ET D'ORIGINE ANIMALE	87
5.8	LE PLUTONIUM EN MILIEU AQUATIQUE CONTINENTAL	88
5.9	LE PLUTONIUM EN MILIEU MARIN	90
5.10	L'AMÉRICIUM 241 DANS LES SOLS	92
5.11	L'AMÉRICIUM 241 DANS LES DENRÉES VÉGÉTALES ET D'ORIGINE ANIMALE	94
5.12	L'AMÉRICIUM 241 EN MILIEU AQUATIQUE CONTINENTAL	96
5.13	L'AMÉRICIUM 241 EN MILIEU MARIN	98
5.14	EXPOSITIONS DE LA POPULATION AUX ACTINIDES PRÉSENTS DANS L'ENVIRONNEMENT	98
6	LE CARBONE 14 DANS L'ENVIRONNEMENT FRANÇAIS	100
6.1	RAPPELS SUR LE CARBONE 14 DANS L'ENVIRONNEMENT	100
6.2	LA SURVEILLANCE PAR L'IRSN DU CARBONE 14 DANS L'ENVIRONNEMENT	103
6.3	LE BRUIT DE FOND RADIOLOGIQUE DU CARBONE 14 DANS L'ENVIRONNEMENT FRANÇAIS	103
6.4	EXPOSITION DE LA POPULATION AU BRUIT DE FOND RADIOLOGIQUE DU CARBONE 14 DANS L'ENVIRONNEMENT	112
7	LE TRITIUM DANS L'ENVIRONNEMENT FRANÇAIS	114
7.1	RAPPELS SUR LE TRITIUM DANS L'ENVIRONNEMENT	114
7.2	LA SURVEILLANCE PAR L'IRSN DU TRITIUM DANS L'ENVIRONNEMENT	118
7.3	LE BRUIT DE FOND RADIOLOGIQUE DU TRITIUM DANS L'ENVIRONNEMENT FRANÇAIS	119
7.4	EXPOSITION DE LA POPULATION AU BRUIT DE FOND RADIOLOGIQUE DU TRITIUM DANS L'ENVIRONNEMENT	131
8	CONCLUSIONS	132
9	RÉFÉRENCES	140

1 INTRODUCTION

De 1945 à 1980, plus de 500 essais atmosphériques d'armes nucléaires ont été réalisés par les États-Unis, l'Union soviétique, le Royaume-Uni, la Chine et la France. L'essentiel des retombées radioactives s'est produit sur deux périodes : de 1951 à 1958 (avant le moratoire signé en novembre 1958 par USA, UK et URSS), puis de 1961 à 1962 avant le traité d'interdiction partielle des essais atmosphériques signé le 5 août 1963⁽¹⁾. Ces essais ont libéré dans l'atmosphère de nombreux radionucléides dont une vingtaine ont contribué à l'essentielle de l'exposition de la population française. Les conséquences de ces retombées sur la métropole ont fait l'objet de 3 rapports (Renaud *et al.*, 2003 ; Vray & Renaud, 2004 ; Vray & Renaud 2006).

En mai 1986, les masses d'air contaminées par l'accident de Tchernobyl ont engendré des dépôts radioactifs sur la France, principalement d'iode 131, de césium 137 et de césium 134. Les conséquences des retombées de cet accident sur la métropole ont fait l'objet d'un livre (Renaud *et al.*, 2007).

La figure 1 présente l'évolution des activités volumiques des principaux radionucléides mesurés dans l'air depuis 1959⁽²⁾. À l'exception de celles de tritium (³H) et de carbone 14 (¹⁴C) dont une partie est d'origine naturelle cosmogénique, les activités volumiques des autres radionucléides présentées dans cette figure résultent des retombées des essais nucléaires et de l'accident de Tchernobyl.

Ces activités volumiques dans l'air ont engendré des dépôts radioactifs, notamment lors des pluies, et une contamination des sols. Si la plupart de ces radionucléides de période radioactive courte (inférieure à 3 ans) ont disparu par décroissance radioactive, le césium 137 (¹³⁷Cs) dont la période radioactive est de 30 ans, le strontium 90 (⁹⁰Sr) de 28 ans de période, les isotopes 238, 239, 240 et 241 du plutonium (²³⁸Pu, ²³⁹Pu, ²⁴⁰Pu et ²⁴¹Pu) de périodes respectives de 88 ans, 24 000 ans, 6 560 ans et 14 ans, ainsi que l'américium 241 (²⁴¹Am)⁽³⁾ de 433 ans de période, sont toujours présents dans les sols qui constituent le réservoir qui alimente toutes les autres composantes de l'environnement. Leurs activités massiques et volumiques y sont extrêmement variables, du fait de la variabilité des dépôts radioactifs initiaux et de leur devenir. Dans le cas du tritium (période radioactive de 12 ans) et du carbone 14 (période radioactive de 5 730 ans), c'est l'air qui constitue ce réservoir et leurs activités sont beaucoup plus homogènes. Les activités massiques et volumiques de ces radionucléides constituent le « bruit de fond » des radionucléides artificiels dans l'environnement.

Ce bruit de fond diminue depuis la fin des retombées atmosphériques du fait de la décroissance radioactive et de différents phénomènes qui seront présentés dans ce rapport. La mise à jour de la connaissance relative à ce bruit de fond répond à plusieurs objectifs. Cela permet tout d'abord d'estimer les expositions des populations qui en résultent ; il s'agit principalement de l'exposition liée à leur incorporation par ingestion de denrées alimentaires ainsi que de l'exposition externe au rayonnement émis par le césium 137⁽⁴⁾ présent dans les sols. Ces radionucléides sont par ailleurs présents dans les effluents rejetés lors du fonctionnement normal des installations nucléaires ; connaître les activités massiques et volumiques héritées des retombées anciennes permet d'estimer la contribution de ces rejets aux activités mesurées autour des installations nucléaires et d'estimer ainsi les expositions correspondantes. Enfin, cette connaissance actualisée du bruit de fond radiologique environnemental, permet de disposer d'un référentiel dans l'éventualité de nouvelles retombées radioactives. Cela a été le cas lors des retombées de l'accident de Fukushima en 2011 et la question se pose chaque fois qu'une augmentation de ces radionucléides est décelée dans l'air.

(1) Après 1963, seules la Chine et la France ont effectué des essais atmosphériques ; les retombées des essais français réalisés en Polynésie n'ont concerné que l'hémisphère sud (Renaud *et al.*, 2020) ; les retombées des essais chinois sur la métropole ont été très faibles au regard de celles des essais américano-soviétiques.

(2) Nous ne disposons pas de résultats de mesure sur la France pour la période antérieure, mais les dépôts radioactifs estimés par l'UNSCEAR pour les années 1953-1958 (UNSCEAR, 2000) sont du même ordre quoique inférieurs à ceux de la période 1961-1963 ; avant 1953 les activités dans l'air étaient sans doute très faibles.

(3) L'américium 241 n'a pas été produit directement lors des explosions nucléaires ; il résulte de la désintégration du plutonium 241.

(4) Les autres radionucléides rémanents des retombées anciennes (³H, ¹⁴C, ⁹⁰Sr, isotopes du Pu et ²⁴¹Am), n'émettent pas de rayonnement gamma (ou pas suffisamment) pour induire une exposition externe.

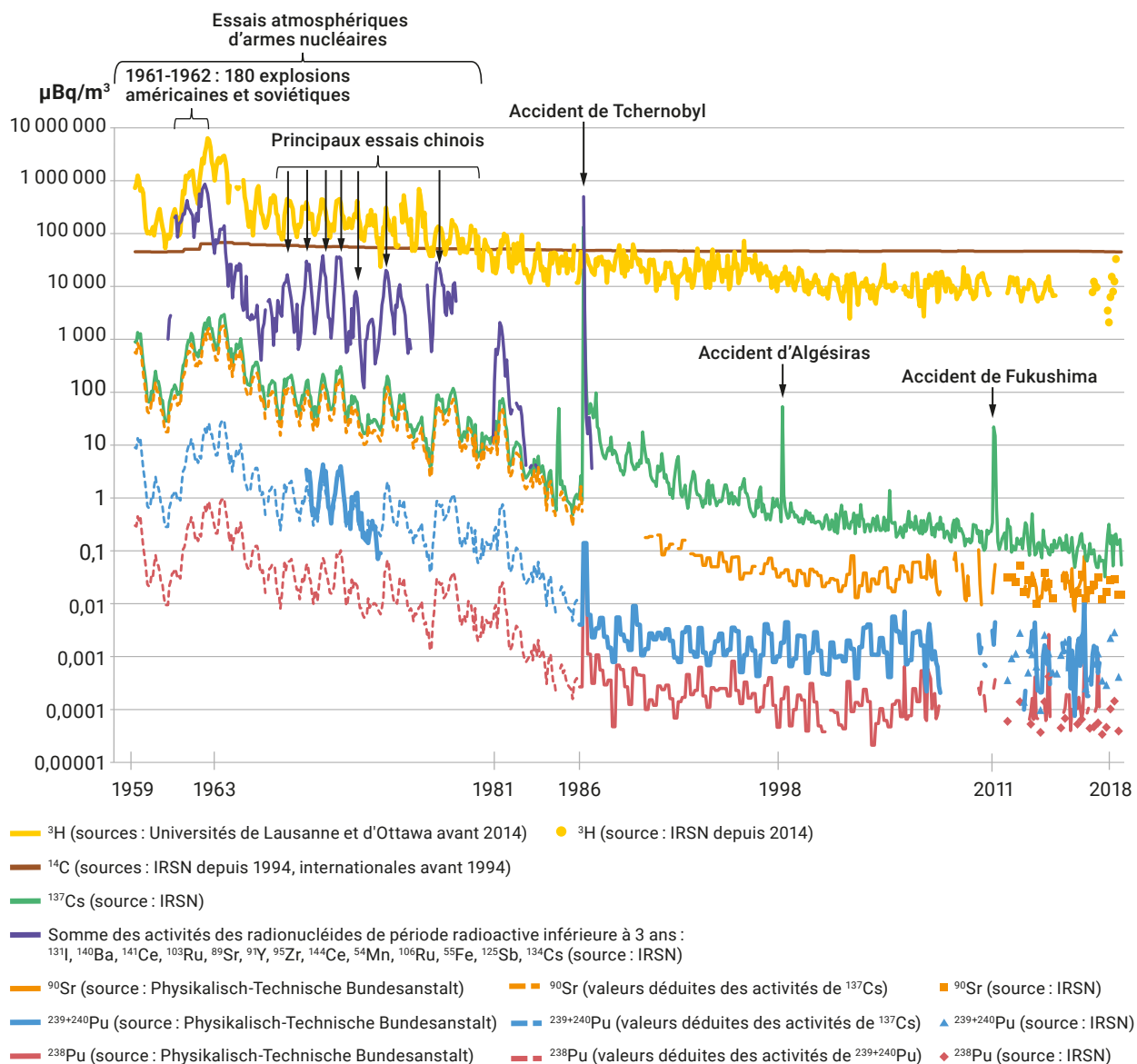


Figure 1. Activités volumiques des principaux radionucléides mesurés dans l'air en France depuis 1959 ($\mu\text{Bq}/\text{m}^3$).

Dans le cas du tritium et du carbone 14 dont les activités massiques et volumiques sont relativement homogènes au sein de chacune des grandes composantes de l'environnement que sont les milieux atmosphérique, terrestre, aquatique continental et marin, les données disponibles permettent d'étudier de manière générale la diminution de ces activités au fil des années. C'est ce qui est fait dans le présent bilan. Pour les autres radionucléides hérités des retombées anciennes (césium 137, strontium 90, américium 241 et isotopes du plutonium), cette diminution est très variable d'une matrice⁽⁵⁾ environnementale à l'autre et quelquefois au sein d'une même matrice⁽⁶⁾. Pour ces radionucléides, les données disponibles ne permettent pas de caractériser ces diminutions temporelles de manière exhaustive et l'objectif du présent bilan est d'obtenir une image de leurs activités massiques et volumiques sur la période considérée : leurs niveaux moyens sur la période 2008-2019.

À partir du milieu des années 1990, en raison de leur baisse régulière, les niveaux d'activités massiques et volumiques des radionucléides rémanents des retombées anciennes dans l'environnement français, sont devenus de plus en plus souvent trop faibles pour être quantifiés malgré l'utilisation de moyens de mesure (de prélèvement et d'analyse d'échantillons) toujours plus performants. Depuis une quinzaine d'années, seuls les plus performants de ces moyens permettent de connaître ces niveaux qui sont désormais extrêmement faibles et qui évoluent très peu au fil des années.

C'est pourquoi, l'IRSN a décidé en 2008 de s'assurer du maintien de la connaissance des niveaux d'activité des radionucléides artificiels hérités des retombées anciennes au travers d'un suivi régulier (chronique d'analyses) sur un nombre limité de natures d'échantillons et de stations de prélèvement⁽⁷⁾ et d'engager la réalisation de constats radiologiques régionaux permettant d'élargir la variété des échantillons (notamment des denrées) et de couvrir la majeure partie du territoire, notamment hors de l'influence des installations nucléaires. Ainsi, les constats radiologiques régionaux réalisés depuis 2008 par l'IRSN fournissent une contribution importante à la connaissance que l'on a du bruit de fond radiologique français métropolitain pour la dernière décennie.

Les sept constats radiologiques dont les résultats sont exploités dans ce bilan sont :

- le constat « Val de Loire » (IRSN, 2010 noté CVL par la suite) ;
- le constat « Vallée du Rhône » (IRSN, 2012 ; IRSN, 2013 et IRSN, 2013 ; CVR) ;
- le constat « Zone de rémanence élevée » (IRSN, 2016 ; CZRE) ;
- le constat « Sud-Ouest » (IRSN, 2020 ; CSO) ;
- le constat « Nord-Est » (IRSN, 2020 ; CNE) ;
- le constat « Méditerranée » (IRSN, 2020 ; CM) ;
- le constat « Normandie et Hauts-de-France » (IRSN, 2021 ; CNHdF).

(5) On désigne par matrice environnementale, un élément spécifique de l'environnement dont les caractéristiques sont homogènes du point de vue radioécologique ; ce peut être par exemple un sol ou un type de sol, une espèce végétale, une denrée ou un type de denrées.

(6) Des études ont par exemple montré que depuis les retombées de l'accident de Tchernobyl, les périodes effectives de diminution des activités de césium 137 dans les sols de prairie ont pu varier entre 6 et 26 ans suivant les caractéristiques des sols (voir page 14 le paragraphe « Comportement et évolution des activités massiques au cours des dernières décennies »). Il en est ainsi de chacune des matrices environnementales

(7) La majeure partie des analyses effectuées par l'IRSN dans le cadre de sa mission de surveillance radiologique de l'environnement ont pour objectif de vérifier l'absence de marquage lié à un éventuel rejet intempestif d'une installation nucléaire, en complément de la surveillance de l'environnement effectuée par les exploitants nucléaires, et du contrôle qu'ils effectuent sur leurs rejets. Cette surveillance de routine de l'IRSN, réalisée principalement au voisinage des sites nucléaires, ne permet pas, le plus souvent, de quantifier les teneurs extrêmement faibles de césium 137 qui relèvent du bruit de fond radiologique hérité des retombées anciennes. Des moyens spécifiques plus performants sont dédiés à cet objectif. Par exemple, sur plus de 50 stations de prélèvements d'aérosols atmosphériques du réseau OPERA-Air, seules les 10 stations de prélèvement à très grand débit (700 m³/h) associées aux moyens météorologiques les plus performants, permettent encore de quantifier des activités de l'ordre de 0,1 µBq/m³. Il est cependant probable que malgré ces moyens, les activités de césium 137 dans l'environnement, toujours en baisse, seront de plus en plus difficiles à mesurer dans les années à venir.



Prélèvement de sédiments dans l'Escaut (Constat radiologique régional « Normandie et Hauts-de-France »).

2 ASPECTS MÉTHODOLOGIQUES

Les données exploitées dans le présent bilan ont principalement été acquises entre 2008 et 2019, à partir des moyens les plus performants qui ont permis d'obtenir une majorité de résultats de mesure significatifs, voire la quasi-totalité dans certains types d'échantillons. On désigne par résultats significatifs, des résultats de mesure qui permettent de quantifier l'activité massique ou volumique d'un échantillon (Bq/kg ou Bq/L). Lorsque l'activité contenue dans l'échantillon est trop faible pour être quantifiée, les résultats sont dits « non significatifs » ou « inférieurs au seuil de décision »⁽⁸⁾ ; la valeur de ce seuil de décision est alors indiquée comme résultat de la mesure.

Sur une période d'acquisition des données de l'ordre de la décennie (2008-2019), l'effet de la décroissance radioactive peut être négligé au regard de la variabilité des activités massique ou volumique mesurées⁽⁹⁾. Par ailleurs, la décroissance radioactive contribue peu aux diminutions effectives des activités massique et volumique observées dans l'environnement qui sont principalement liées à des phénomènes de migration ou de fixation des radionucléides et dont les périodes effectives résultantes ne sont connues que de manière très fragmentaire. Il n'est donc pas utile et serait difficilement possible de corriger les résultats de mesure de manière à les ramener à une année particulière. Les données présentées dans ces chapitres sont donc des résultats de mesure bruts correspondant à l'année de prélèvement.

Les résultats de mesures d'activités massiques et volumiques sont toujours assortis d'incertitudes métrologiques. N'ayant que peu d'intérêt et de pertinence pour ce bilan, elles ne sont le plus souvent pas indiquées dans le texte ni dans les graphiques. En effet, les incertitudes métrologiques ne rendent pas compte de la principale source d'incertitude qu'est la représentativité de l'échantillon (2 ou 3 salades par exemple) au regard de l'état radiologique de l'ensemble plus vaste sur lequel on veut se prononcer (toutes les salades produites sur une localité, sur un département ou une région) et de la très grande variabilité des activités massiques et volumiques (souvent de plus d'un ordre de grandeur) au sein de cet ensemble. La présentation des incertitudes métrologiques donnerait ainsi une fausse idée de la précision de la connaissance radiologique du milieu que l'on a à partir d'un résultat de mesure obtenu sur un échantillon particulier. Par ailleurs, dans le présent bilan, on se prononce sur des moyennes calculées pour des lots de résultats et non pas sur des résultats de mesure individuels⁽¹⁰⁾.

Chaque lot est constitué d'un ensemble de résultats de mesure dont l'homogénéité a été vérifiée : même nature d'échantillons, conditions de prélèvement et d'analyse similaires... Dans les représentations graphiques, l'indication des valeurs minimales et maximales mesurées dans chaque lot donne une idée de la variabilité autour de ces moyennes ; une idée d'autant plus précise que le nombre de résultats de mesure est important.

(8) Le seuil de décision est l'activité massique ou volumique la plus faible qui puisse être quantifiée compte tenu du dispositif d'analyse mis en œuvre. C'est à partir de ce seuil d'activité que le métrologiste peut « décider » de valider l'activité mesurée dans l'échantillon.

(9) Les activités massiques ou volumiques mesurées dans chaque type d'échantillons s'évaluent souvent sur un, voire deux ordres de grandeur ; la diminution de l'activité résultant de la décroissance radioactive entre deux échantillons prélevés à 11 ans d'écart (entre début 2008 et fin 2018) n'est que de 25 % pour le strontium 90, 22 % pour le césium 137 et insignifiante pour l'américium 241 et les isotopes du plutonium.

(10) Les incertitudes métrologiques permettent de juger de la qualité d'un résultat de mesure et sont impérativement à prendre en compte lorsque l'on souhaite effectuer des comparaisons de résultats de mesure individuels, notamment quand les activités mesurées sont très faibles et que ces incertitudes sont plus élevées.

Par ailleurs, en raison du nombre souvent très limité de résultats de mesure dans un lot, le choix a été fait de ne pas recourir à d'autres indicateurs statistiques que la moyenne et les valeurs minimales et maximales (il serait par exemple peu pertinent de fournir des percentiles pour un lot de 5 résultats de mesure). Les valeurs moyennes, minimales et maximales représentées sur les graphiques ne prennent en compte que les résultats significatifs (supérieurs au seuil de décision).

Dans les graphiques présentant des résultats de mesures individuels, les résultats non significatifs (inférieurs au seuil de décision) sont représentés sous la forme de barres verticales dont le sommet correspond au seuil de décision, ce qui permet de les distinguer tout en facilitant la lisibilité.

Les éléments méthodologiques relatifs aux estimations dosimétriques sont détaillés dans les paragraphes concernés.



Traitement pour analyse de sédiments.

LE CÉSIIUM 137 DANS L'ENVIRONNEMENT FRANÇAIS

3 1

ORIGINE DU CÉSIIUM 137 DANS L'ENVIRONNEMENT FRANÇAIS

Le césium 137 dans l'air en France

Le césium 137, émis dans l'atmosphère par les explosions d'armes nucléaires puis par l'accident de Tchernobyl, a été la source initiale de contamination de l'environnement français par ce radionucléide. La courbe verte de la figure 1 page 5 présente l'évolution de l'activité volumique de l'air⁽¹¹⁾ en césium 137, moyennée sur 10 jours, depuis 1959. En 1963, au plus fort des retombées des essais nucléaires américano-soviétiques, cette activité du césium 137 dans l'air était de l'ordre de 1 000 $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$ d'air ($1 \mu\text{Bq}/\text{m}^3 = 0,000001 \text{ Bq}/\text{m}^3$). Au cours des années 1970, elle fluctuait entre 10 et 400 $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$ lors des pics successifs liés aux explosions nucléaires chinoises. Après une diminution progressive vers 1 $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$ en 1985, cette activité volumique du césium 137 dans l'air est remontée brutalement au début de mai 1986 à la suite de l'accident de Tchernobyl, à près de 700 mBq/m^3 (soit 700 000 $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$) en moyenne décadaire sur la France entière, avec un maximum de 7 000 mBq/m^3 mesuré le 1^{er} mai 1986 à Verdun. La baisse régulière des niveaux de ce radionucléide dans l'air après l'accident de Tchernobyl et jusqu'à aujourd'hui, a été très brièvement émaillée par deux événements : l'accident d'Algésiras (incinération d'une source scellée de césium 137 dans un incinérateur industriel à Algésiras dans le sud de l'Espagne le 25 mai 1998) et celui de la centrale de Fukushima-Daiichi, le 11 mars 2011. Les augmentations de l'activité en césium 137 de l'air correspondantes (maximums mesurés de 2,5 mBq/m^3 et de 0,25 mBq/m^3 respectivement) ont été fugaces. Ces dernières années, l'activité volumique du césium 137 dans l'air, de l'ordre de 0,0001 mBq/m^3 (soit 0,1 $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$), liée principalement à

la remise en suspension de poussières et à la combustion de la biomasse⁽¹²⁾, reste assez constante. Enfin, les incendies qui concernent chaque année certains des massifs forestiers d'Ukraine, de Biélorussie et de Russie les plus touchés par les retombées de l'accident de Tchernobyl, amènent dans des conditions météorologies défavorables, des masses d'air dont les activités de césium 137 sont à peine décelables en France (de l'ordre ou inférieures à 1 $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$; Masson *et al.*, 2021).

Les dépôts de césium 137 sur la France

Dépôts consécutifs aux essais atmosphériques d'armes nucléaires

Durant toute la période des retombées des essais atmosphériques d'armes nucléaires qui s'est prolongée très au-delà du dernier essai atmosphérique chinois de 1980 en raison d'un séjour moyen de plusieurs années dans la stratosphère, le césium 137 s'est déposé à la surface du sol. Ces dépôts ont conduit à une contamination directe des végétaux et de l'ensemble de la chaîne alimentaire, ainsi qu'à la constitution d'un stock de ce radionucléide dans les sols. La majeure partie de ces dépôts s'est formée lors des pluies⁽¹³⁾ (Renaud *et al.*, 2003). Il en résulte que les activités de césium 137 déposées ont été proportionnelles aux précipitations moyennes annuelles qui, en France métropolitaine, sont étroitement liées à l'altitude. C'est ce qui explique la répartition des dépôts de césium 137 sur la France consécutifs aux retombées des essais nucléaires (figure 2) établies pour la France. Sur les zones de plaine où les hauteurs de précipitations annuelles sont de moins de 700 mm/an (soit 7 L/m²/an) les dépôts cumulés ont été inférieurs à 2 000 Bq/m²; sur les zones d'altitude où les précipitations annuelles sont supérieures à 1 800 mm/an (soit 18 L/m²/an), ils ont pu dépasser localement 8 000 Bq/m².

(11) Dans l'air le césium 137 est fixé sur des particules micrométriques (aérosols).

(12) Le césium contenu dans la biomasse est libéré dans l'air lors de son incinération (utilisation de bois de chauffage, incendies de forêt...).

(13) Les dépôts des radionucléides présents dans l'air sous forme d'aérosols se constituent de deux manières (Renaud *et al.*, 2019) : par temps sec, les aérosols sont interceptés par tout ce qui se trouve à la surface du sol, par temps de pluie, les gouttes d'eau précipitent au sol les aérosols de l'air lors de leur formation (dans le nuage) et lors de leur chute. Le dépôt lors des pluies est beaucoup plus intense que le dépôt par temps sec.

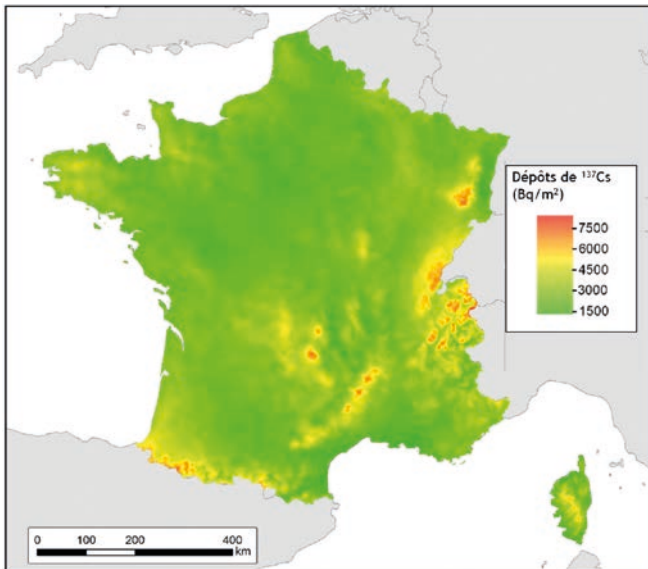


Figure 2. Carte des activités surfaciques de césium 137 déposées sur les sols français à l'issue ⁽¹⁴⁾ des essais atmosphériques d'armes nucléaires.

Dépôts consécutifs à l'accident de Tchernobyl

Les pluies survenues entre le 1^{er} et le 5 mai 1986, période pendant laquelle les masses d'air contaminées par l'accident de Tchernobyl survolaient la France, ont en grande partie déterminé la répartition des dépôts radioactifs consécutifs à cet accident (figure 3). Dans l'est de la France où les activités volumiques de l'air en césium étaient les plus élevées (de l'ordre de 0,75 Bq/m³ en moyenne entre le 1^{er} et le 3 mai 1986), des pluies très hétérogènes et localement importantes (cumul sur les 5 jours dépassant 40 mm et très localement 100 mm) ont conduit à des dépôts également très hétérogènes qui ont pu dépasser 40 000 Bq/m² sur quelques communes (Renaud *et al.*, 2007). À une échelle plus locale, le régime d'averses qui prévalait dans l'est du pays, a pu entraîner de fortes disparités des hauteurs de pluie à quelques kilomètres de distance, comme en Alsace ou dans la vallée du Rhône⁽¹⁵⁾. Sur les 2/3 ouest du pays, les dépôts ont été à la fois moins importants et moins hétérogènes, le plus souvent inférieurs à 5 000 Bq/m², et ceci pour deux raisons : les pluies ont été moins importantes et moins hétérogènes sur les longitudes centrales du pays, et la contamination des masses d'air à l'ouest a été 10 à 100 fois moindre qu'à l'est.

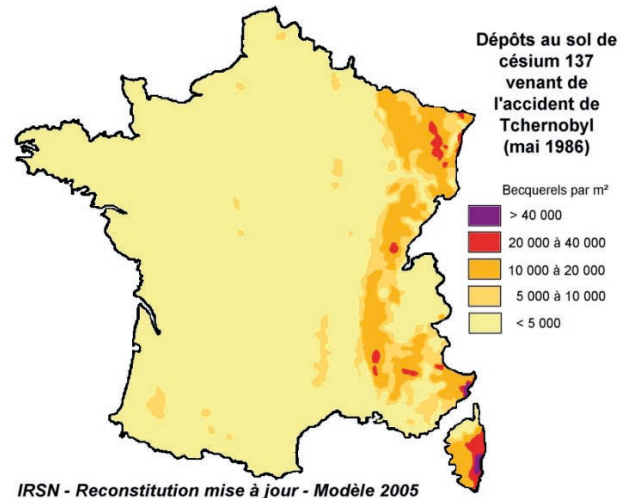


Figure 3. Carte des activités surfaciques de césium 137 déposées sur les sols français en mai 1986 à l'issue des retombées de l'accident de Tchernobyl (Renaud *et al.*, 2007).

Outre les hétérogénéités à l'échelle de quelques kilomètres liées au régime d'averse mentionnées précédemment, d'autres phénomènes ont contribué à augmenter encore l'hétérogénéité des dépôts humides au moment de leur formation, à une échelle parfois très localisée dont ces cartes ne peuvent rendre compte. C'est le cas de phénomènes de redistribution locale des dépôts par effet d'impluvium, par ruissellement, égouttement... qui ont pu induire des surconcentrations ou accumulations à des échelles décimétriques à décimétriques. Il faut citer le cas des dépôts neigeux qui ont eu lieu en montagne, au-dessus de 2 000 m d'altitude et qui ont engendré des concentrations très élevées de ¹³⁷Cs, équivalentes à plusieurs centaines de milliers de Bq/m², sur de petites surfaces (de quelques décimètres carrés à quelques mètres carrés) constituant des « points chauds » de contamination en césium 137 (Pourcelot *et al.*, 2003).

Dépôts consécutifs à l'accident de Fukushima

Les dépôts de césium consécutifs à l'accident de Fukushima ont été au maximum de quelques Bq/m² (un dépôt de 2 Bq/m² a été estimé sur un sol herbeux de région parisienne ; Evrad *et al.*, 2012). Leur interception par les feuilles des végétaux a entraîné une augmentation temporaire des activités de césium 137 dans certaines productions (légumes feuilles, herbages, lait et viande), mais n'a pas été suffisante pour que leur rémanence soit visible dans les sols et donc à plus long terme dans l'ensemble de l'environnement.

(14) L'essentiel des dépôts résulte des essais américano-soviétiques arrêtés en 1963 mais dont les retombées se sont prolongées en 1964 et 1965. Les essais chinois qui se sont prolongés jusqu'en 1980 ont très peu ajouté à ces dépôts. On peut donc considérer que « l'issue des retombées des essais nucléaires atmosphériques » date de 1965.

(15) À titre d'exemple, les 7 stations météorologiques situées dans un rayon de 15 km autour d'Avignon indiquent des cumuls de pluie du 1^{er} au 5 mai 1986 variant de 1,6 mm à 17,2 mm, soit plus d'un facteur 10 d'écart ; on doit s'attendre à trouver le même écart sur les dépôts humides de radionucléides.

3 2 ORIGINE ET SÉLECTION DES DONNÉES EXPLOITÉES DANS CE BILAN

La surveillance du césium 137 dans l'environnement

En tant que contributeur majeur aux retombées des essais nucléaires et de l'accident de Tchernobyl, donc à la radioactivité artificielle dans l'environnement, et ainsi à l'exposition de la population française à ces retombées, le césium 137 a fait l'objet, dès le début des années 1960, d'une surveillance qui a progressivement concerné de nombreuses composantes de l'environnement. Ce déploiement de la surveillance du césium 137 a été facilité par une métrologie très accessible⁽¹⁶⁾. Cette surveillance était basée principalement sur des analyses quotidiennes à hebdomadaires d'échantillons d'air et des analyses mensuelles d'eaux de pluie, de végétaux, de lait, de sol, d'eaux et de sédiments fluviaux et marins issus d'un dense réseau de stations de prélèvement réparties sur l'ensemble du territoire ; elle était complétée par des analyses (souvent à moindre fréquence) de denrées et de plateaux-repas⁽¹⁷⁾ à partir d'un nombre plus restreint de stations.

À la suite de l'accident de Tchernobyl, cette surveillance a été renforcée durant plusieurs mois par l'augmentation des fréquences de prélèvements et l'élargissement à de très nombreuses denrées alimentaires, notamment lors de campagnes d'analyses spécifiques.

À partir du milieu des années 1990, en raison de leur baisse régulière, les niveaux d'activités massiques et volumiques du césium 137 dans l'environnement français sont devenus de plus en plus souvent trop faibles pour être quantifiés malgré l'utilisation de moyens de mesure (de prélèvement et d'analyse d'échantillons) toujours plus performants. Depuis une quinzaine d'années, seuls les plus performants de ces moyens permettent de connaître ces niveaux qui sont désormais extrêmement faibles et qui évoluent très peu au fil des années.

C'est pourquoi, l'IRSN a décidé en 2008 de s'assurer du maintien de la connaissance de ces niveaux d'activité au travers d'un suivi régulier (chronique d'analyses) d'un nombre limité de types d'échantillons prélevés sur un nombre limité de stations⁽¹⁸⁾ et d'engager la réalisation de constats radiologiques régionaux permettant d'élargir la variété des échantillons (notamment des denrées) et de couvrir la majeure partie du territoire.

Dans cet objectif de quantifier les activités de césium 137 rémanent des retombées anciennes, les types d'échantillons (ou matrices) les plus analysés en routine sont ceux pour lesquels les activités sont potentiellement les plus élevées de manière à permettre, le plus souvent possible, l'obtention de résultats de mesure significatifs. Ainsi, en milieu terrestre, les échantillons (ou matrices) les plus analysés sont les sols, les légumes feuilles (essentiellement des salades), le lait et les herbages. En milieu aquatique, il s'agit de plantes aquatiques, de sédiments et de poissons, ainsi que de mollusques en milieu marin. En complément des analyses menées par l'IRSN dans le cadre de la surveillance régulière et dans le cadre du suivi spécifique dédié à la connaissance du bruit de fond, les résultats des analyses réalisées annuellement à la demande d'EdF par l'IRSN et par Subatech sur des échantillons prélevés au voisinage des CNPE, peuvent être considérés comme représentatifs de la rémanence des retombées anciennes (voir chapitre suivant) et constituent un apport important à la connaissance du bruit de fond radiologique du césium 137 dans l'environnement français.

Connaître les niveaux de césium 137 dans d'autres types d'échantillons et notamment dans les différentes catégories de denrées agricoles ou d'élevage (légumes autres que les légumes feuilles, fruits, céréales, viandes...) ainsi que dans des denrées sauvages (gibiers, champignons, baies), produits ou récoltés sur l'ensemble du territoire, est un des objectifs assignés aux constats radiologiques régionaux.

Enfin, le césium 137 et son transfert dans l'environnement ont fait l'objet de nombreuses études et recherches, notamment après l'accident de Tchernobyl, apportant ainsi des données et des connaissances supplémentaires sur les denrées et les parties du territoire les plus marquées par les retombées de cet accident.

(16) En se désintégrant, le césium 137 produit du baryum 137m qui émet un rayonnement gamma facilement décelable par spectrométrie gamma qui est une des techniques de mesure radiologique les plus anciennes. De période radioactive très courte, l'activité de baryum 137m mesurée dans un échantillon environnemental rend compte de l'activité de césium 137.

(17) Il s'agissait de prélever et d'analyser mensuellement l'ensemble des aliments présents sur des plateaux-repas de 6 établissements scolaires répartis sur le territoire.

(18) La majeure partie des analyses effectuées par l'IRSN dans le cadre de sa mission de surveillance radiologique de l'environnement ont pour objectif de vérifier l'absence de marquage lié à un éventuel rejet intempestif d'une installation nucléaire, en complément de la surveillance de l'environnement effectuée par les exploitants nucléaires, et du contrôle qu'ils effectuent sur leurs rejets. Cette surveillance de routine de l'IRSN, réalisée principalement au voisinage des sites nucléaires, ne permet pas, le plus souvent, de quantifier les teneurs extrêmement faibles de césium 137 qui relèvent du bruit de fond radiologique hérité des retombées anciennes. Des moyens spécifiques plus performants sont dédiés à cet objectif. Par exemple, sur plus de 50 stations de prélèvements d'aérosols atmosphériques du réseau OPERA-Air, seules les 10 stations de prélèvement à très grand débit (700 m³/h) associées aux moyens métrologiques les plus performants, permettent encore de quantifier des activités de l'ordre de 0,1 µBq/m³. Il est cependant probable que malgré ces moyens, les activités de césium 137 dans l'environnement, toujours en baisse, seront de plus en plus difficiles à mesurer dans les années à venir.

Représentativité des activités de césium 137 mesurées autour des sites nucléaires

En milieu terrestre

Comme indiqué précédemment, une partie importante des résultats de mesure d'activité de césium 137 disponibles a été acquise au voisinage des installations nucléaires.

La question se pose donc de la contribution des rejets atmosphériques des sites nucléaires, aux activités mesurées dans les différentes matrices prélevées dans le compartiment terrestre, à proximité de ces installations. Cette influence existe potentiellement dans le cas du site de La Hague (IRSN, 2021) ; c'est pourquoi, les résultats acquis autour de ce site ont été écartés de ce bilan. Dans le cas des CNPE, il n'avait jamais été possible de quantifier par la mesure les activités massiques ou volumiques de césium 137 ajoutées dans l'environnement par leurs rejets atmosphériques, ces activités ajoutées étant trop faibles au regard de la variabilité naturelle de celles héritées des retombées anciennes, même localement autour d'un site donné. C'est à partir des mesures réalisées dans le cadre des constats radiologiques régionaux « Sud-Ouest », « Vallée du Rhône » et « Normandie et Hauts-de-France » que l'activité de césium 137 ajoutée dans l'air par les rejets atmosphériques des CNPE de Golfech, Tricastin, Cruas et Gravelines, a pu être estimée de l'ordre de $0,1 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$ sous les vents et à proximité immédiate de ces sites (à environ 1 km des cheminées de rejet). Sur la base de cette valeur, il est possible d'estimer l'activité cumulée déposée sur les sols depuis le début du fonctionnement des plus anciens de ces sites⁽¹⁹⁾ à quelques Bq/m^2 (en négligeant les pertes et la décroissance radioactive). Cette activité représente moins de 1 % de l'activité déposée lors des retombées anciennes. De même, l'activité massique ou volumique de césium 137 ajoutée par les rejets d'un CNPE dans des herbages, des légumes feuilles, ou du lait, prenant en compte à la fois l'activité ajoutée dans l'air et celle accumulée dans les sols depuis le début du fonctionnement du site, serait également négligeable au regard du bruit de fond hérité des retombées anciennes (quelques mBq/kg secs ajoutés dans des herbages prélevés à 1 km des points de rejet atmosphériques par exemple). Il en résulte que les activités de ce radionucléide mesurées dans des échantillons prélevés dans l'environnement terrestre des CNPE, souvent très au-delà de 1 km, peuvent être considérées comme représentatives du bruit de fond radiologique hérité de ces retombées anciennes.

En milieu aquatique continental

Les nombreuses mesures réalisées annuellement sur des échantillons de sédiments, de plantes aquatiques et de poissons montrent que les activités de césium 137 mesurées dans les échantillons prélevés en amont de chacune des installations sont du même ordre que ceux prélevés à l'aval (Eyrolles *et al.*, 2005). Toutefois, contrairement au milieu terrestre, la contribution des rejets aux activités observées ne peut pas être considérée comme négligeable. C'est pourquoi, dans le présent bilan, la rémanence des activités de césium 137 issu des retombées anciennes dans les cours d'eau, est tout d'abord étudiée hors de toute influence d'une installation nucléaire (en amont de toute installation ou sur des cours d'eau sur lesquels aucune installation nucléaire n'est implantée) ; l'influence potentielle des rejets liquides de ce radionucléide est étudiée ensuite en mettant en perspective les activités mesurées en amont et celles mesurées en aval, ainsi que tout au long des cours d'eau lorsque plusieurs installations y sont implantées.

En milieu marin

Bien que le présent bilan porte sur le bruit de fond hérité des retombées anciennes, les résultats de mesures du césium 137 acquis en Méditerranée occidentale potentiellement influencés par des apports de césium rhodaniens, ainsi qu'en Manche et en mer du Nord, potentiellement influencés par les rejets d'effluents liquides de La Hague et dans une moindre mesure des CNPE implantés sur ses côtes, sont présentés dans ce qui suit. Contrairement à d'autres radionucléides (^3H et ^{14}C notamment), la contribution attendue de ces sources aux activités de césium 137 mesurées aujourd'hui en milieu marin est faible à modérée pour le césium 137, et la comparaison par rapport aux résultats représentatifs du bruit de fond permettra de le montrer.

(19) Une activité permanente de $0,1 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$ dans l'air induit un dépôt annuel lié aux pluies de l'ordre de $0,1 \text{Bq}/\text{m}^2/\text{an}$ (pour une précipitation moyenne annuelle de 1 000 mm/an) auquel s'ajoute un dépôt par temps sec de l'ordre $0,01 \text{Bq}/\text{m}^2/\text{an}$; ce qui induit un dépôt total cumulé de l'ordre de $4 \text{Bq}/\text{m}^2$ sur 40 ans.

3 3 LE CÉSIIUM 137 DANS LES SOLS

- Comportement et évolution des activités massiques au cours des dernières décennies _

Les dépôts de césium 137 liés aux retombées des essais nucléaires et de l'accident de Tchernobyl, ont constitué des stocks de césium 137 dans les sols qui sont devenus le réservoir à partir duquel ce radionucléide est transféré à toutes les autres composantes de l'environnement : l'air par remise en suspension (érosion éolienne des sols et par combustion de biomasse), les cours d'eau et le milieu marin par drainage des bassins versants (érosion hydrique des sols), la flore (principalement par transfert racinaire), la faune et l'Homme par ingestion d'aliments. De plus, le césium 137 contenu dans la couche superficielle des sols est également à l'origine d'une exposition externe des populations au rayonnement qu'il émet.

La teneur en césium 137 des sols exprimée en Bq/kg de sol sec, diminue au fil des années depuis la fin des retombées atmosphériques. Cette diminution est plus rapide que celle qui résulterait de la seule décroissance radioactive du césium 137 (période radioactive de 30 ans). Elle est due principalement à l'action de l'eau qui entraîne les particules de sol les plus contaminées situées à sa surface vers les cours d'eau et vers la profondeur, ainsi qu'au labour des surfaces cultivées qui tend à homogénéiser le césium dans une couche de 10 à 25 cm de profondeur, et facilite son entraînement par l'eau. Entre 1991 et 2016, la teneur en césium 137 des sols français a diminué avec une période de l'ordre de 10 ans pour les sols labourés (Roussel-Debet *et al.*, 2007) et de 12 à 22 ans (médiane de 19 ans) pour les sols de prairie (Brimo *et al.*, 2019) ; soit une diminution de 2 à 4 fois en 25 ans. La figure 4 illustre cette diminution dans le cas des sols des environs du CNPE de Chooz (ronds rouges).

Activités massiques et volumiques de césium 137 (Bq/kg sec ou Bq/L)

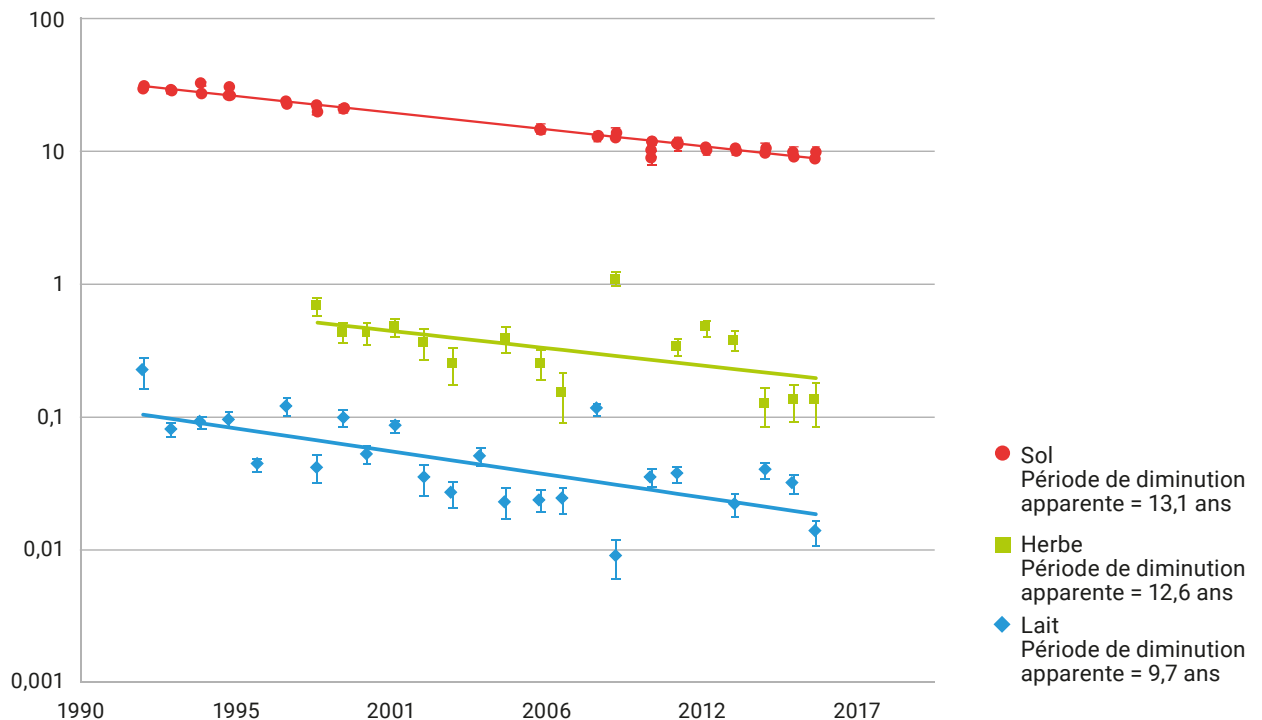


Figure 4. Diminution de 1991 à 2016 des activités massiques et volumiques de césium 137 dans un sol de prairie (ronds rouges en Bq/kg sec), dans de l'herbe (carrés verts en Bq/kg sec) et dans du lait (losanges bleus en Bq/L) prélevés dans les environs du CNPE de Chooz (Bq/kg sec).

La migration du césium 137 vers la profondeur et sa fixation quasiment irréversible dans certaines particules de sol⁽²⁰⁾, expliquent qu'on observe au bout de plusieurs années une évolution de l'activité massique du césium 137 avec la profondeur. Les prélèvements de sols par carottage permettent de mesurer les activités dans différentes couches à différentes profondeurs pour obtenir un « profil de contamination ». À titre d'illustration, la figure 5 présente deux profils de contamination de sols échantillonnés par carottage dans une forêt et une prairie sur la commune d'Aubure dans le Haut-Rhin. Ces deux profils montrent une diminution assez régulière des activités massiques de césium 137 : de 50 à 90 Bq/kg sec dans les 10 cm de surface à quelques Bq/kg secs en dessous de 30 cm de profondeur. De plus, l'écart entre les deux profils réalisés sur une même commune et correspondant donc à des dépôts initiaux très proches, montre, qu'en milieu forestier, le césium 137 est maintenu dans la partie supérieure du profil par l'accumulation dans la litière, conséquence du recyclage de ce radionucléide par la végétation, alors que la migration verticale dans le sol des zones de prairie au-delà de 20 cm est un peu moins marquée (activités massiques plus élevées). La comparaison d'activités massiques mesurées dans des sols ne peut donc se faire que pour des couches de profondeur similaires de sols de même nature voire de mêmes caractéristiques pédologiques.

La rémanence actuelle du césium 137 dans les sols dépend donc de l'importance des dépôts radioactifs initiaux présentés dans les cartes des figures 2 et 3, mais aussi des caractéristiques des sols qui déterminent leur capacité à retenir le césium initialement déposé. Par exemple, bien que parmi les plus fortement touchés par les retombées de l'accident de Tchernobyl, des sols corses pauvres en certains types d'argile ont peu retenu le césium 137 et les activités mesurées dans ces sols sont désormais similaires à celles de zones beaucoup moins touchées initialement. Ainsi, l'hétérogénéité initiale des dépôts dans les sols tend à s'estomper avec le temps. Les différentes études menées depuis le début des années 2000 ont permis d'identifier les quelques zones du territoire où la rémanence des retombées des essais nucléaires et de l'accident de Tchernobyl dans les sols est la plus élevée (désignées par ZRE pour zone de rémanence élevée dans le reste du document). Les principales ZRE sont localisées dans les massifs montagneux (Vosges, Jura, Massif central, Pyrénées et Alpes, et dans une moindre mesure Monts d'Arrée) ainsi que dans la vallée du Rhône ; certaines de ces zones ont fait l'objet d'un constat radiologique spécifique en 2013-2014.

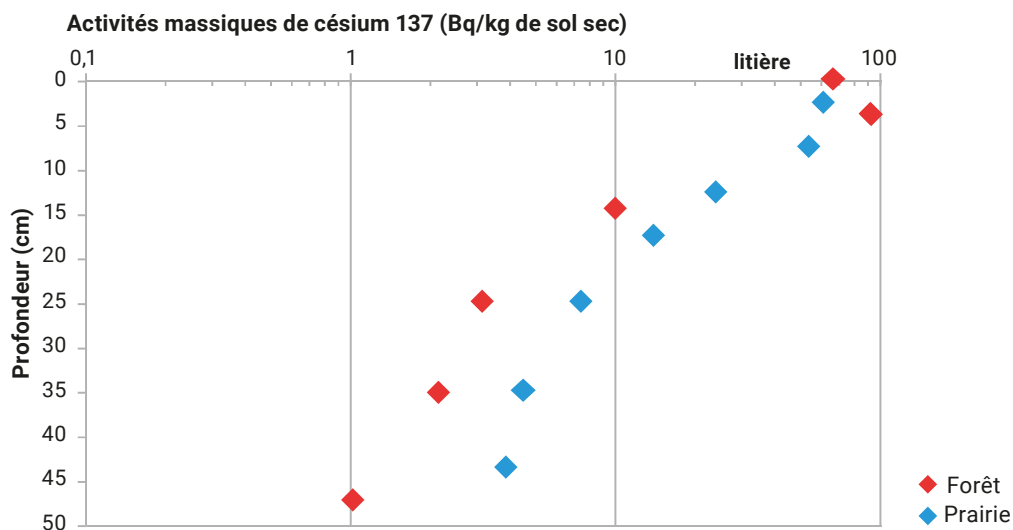


Figure 5. Évolution des activités massiques de césium 137 avec la profondeur (profils de contamination) mesurées dans deux carottes de sols de prairie et de forêt prélevées à Aubure dans le Haut-Rhin en 2014 (IRSN, 2016).

(20) C'est notamment le cas du piégeage de l'ion césium dans les feuillettes de certaines argiles où il se substitue à un ion potassium dont il est un analogue chimique.

Activités massiques et volumiques sur la période 2008-2019

Malgré la diminution des activités massiques, le césium 137 est encore presque toujours présent en quantités mesurables dans les sols français ; la quasi-totalité des analyses effectuées sur des sols depuis 2008 ont fourni des résultats significatifs.

Ces résultats portent sur différents types de sols (cultivés, de vergers ou de vignes, de prairies et forestiers) prélevés sur différentes profondeurs (le plus souvent comprises entre 5 et 40 cm) en différenciant ou non des couches d'épaisseurs variées (le plus souvent des strates de 5 à 10 cm d'épaisseur). Ces résultats ne constituent donc pas un ensemble homogène et ne sont pas tous directement exploitables à des fins de comparaison. Pour ce bilan, le choix a été fait de traiter séparément les différents types de sols et de sélectionner deux profondeurs de prélèvements, 20 cm pour les sols cultivés et 5 cm pour les sols de prairie, de manière à constituer des lots suffisamment homogènes et cohérents pour permettre la comparaison des niveaux d'activités entre les différentes régions d'origine. On distingue ainsi :

- les sols cultivés dans lesquels les labours successifs ont homogénéisé la concentration en césium, qui a été prélevé le plus souvent sur une couche de 20 cm de profondeur. Ces sols constituent un ensemble cohérent de 113 résultats de mesures provenant de 73 communes réparties sur le territoire ; une dizaine de résultats acquis sur des sols de vergers et de vignes, également prélevés sur 20 cm, ont été ajoutés à ce lot. Ces résultats proviennent principalement de la surveillance complémentaire de l'environnement des CNPE réalisée par l'IRSN et Subatech à la demande d'EdF ;
- les résultats de mesure des sols de prairie, le plus souvent non remaniés, prélevés sur 5 cm de profondeur constituent également un ensemble homogène de 385 résultats de mesure provenant de 128 communes réparties sur le territoire. À ce lot ont été ajoutés des résultats acquis sur des sols de friches non remaniées. Ces résultats proviennent principalement de la surveillance

complémentaire de l'environnement des CNPE réalisée par l'IRSN et Subatech⁽²¹⁾ à la demande d'EdF (hors zones de rémanence élevée), et des constats radiologiques régionaux qui ont permis d'augmenter significativement le nombre de sites de prélèvement. C'est notamment le cas des constats « Normandie et Hauts-de-France » (CNHdF) et « Nord-Est » (CNE) ; les données relatives aux zones de rémanence élevée (ZRE) proviennent principalement du constat radiologique dédié à ces zones (CZRE dans la suite du rapport) ainsi que de diverses études qui ont été menées par l'IRSN dans ces ZRE ;

- les prélèvements de sols forestiers sont beaucoup moins nombreux : seulement 35 depuis 2008⁽²²⁾ dont 14 dans le cadre de constats radiologiques régionaux, principalement le constat radiologique des zones de rémanence élevée (CZRE), le reste ayant été acquis dans le cadre d'études spécifiques. Ces résultats portent par ailleurs sur des profondeurs de prélèvement très variables et différencient plusieurs strates ; il en résulte que seulement 15 résultats peuvent être utilisés pour des comparaisons par rapport aux sols de prairie.

La figure 6 présente les activités massiques de césium 137, en Bq/kg de sol sec⁽²³⁾, mesurées par l'IRSN et Subatech dans les 113 échantillons de sols cultivés prélevés entre 2008 et 2018 sur une profondeur de 20 cm. Pour chaque ensemble géographique figure entre parenthèses, le nombre de résultats de mesure et le nombre de communes de provenance des échantillons. Cette figure montre une grande homogénéité de l'activité massique des sols cultivés sur les 2/3 ouest du pays. Les activités massiques des 56 échantillons de sols provenant des régions Bretagne, Normandie, Hauts-de-France, Centre et Pays de la Loire, Val de Loire, Nouvelle-Aquitaine et Occitanie sont comprises entre 1 et 8 Bq/kg sec avec des moyennes proches de 4 Bq/kg sec. Les inventaires⁽²⁴⁾ correspondants sont estimés entre 300 et 2 600 Bq/m² pour une moyenne de 1 300 Bq/m². Dans l'est, les activités massiques mesurées sur les échantillons provenant des régions Rhône-Alpes, Provence-Alpes-Côte d'Azur et Grand Est sont en moyenne 2 fois plus élevées, autour de 8 Bq/kg sec (soit autour de 2 600 Bq/m²) ; elles sont comprises entre 3 et 15 Bq/kg sec (soit entre 1 000 et 5 000 Bq/m²). Enfin, certaines zones de

(21) Il s'agit des analyses réalisées par Subatech dans le cadre d'une action de surveillance des CNPE complémentaire à la surveillance réglementaire et effectuées à la demande d'EdF ; certains des résultats des analyses de l'IRSN ont aussi été obtenus dans ce cadre.

(22) Les principales campagnes de prélèvements de sols forestiers réalisées par l'IRSN l'ont été entre 1997 et 2005 avec 210 prélèvements destinés à la localisation et la caractérisation des zones de rémanence élevée : premières campagnes dans les Vosges et le Mercantour en 1997, dans la vallée du Rhône en 1999-2000, en Corse en 2001, dans le Jura et les Pyrénées en 2003-2004.

(23) Les sols sont séchés en étuve préalablement à la mesure afin que le résultat ne soit pas influencé par la teneur en eau très variable de l'échantillon au moment de son prélèvement ; les protocoles de traitement de l'IRSN et de Subatech prévoient par ailleurs de tamiser les échantillons séchés de manière à éliminer les cailloux qui ne contiennent pas de césium 137.

(24) L'inventaire d'un radionucléide dans un sol désigne l'activité totale du radionucléide contenue dans le sol (jusqu'à la roche mère) par unité de surface (Bq/m²). Même lorsque le prélèvement est effectué jusqu'à la roche mère, l'inventaire est rarement complet en raison des pertes. Des inventaires pouvant être considérés comme complets (jusqu'à des strates situées à 70 cm voire 80 cm de profondeur et dans lesquels l'activité de césium 137 mesurée représente moins de 1 % de l'activité totale) ont été réalisés notamment dans le cadre du constat sur les zones de rémanence élevée. Il est cependant possible de comparer entre eux des inventaires incomplets effectués sur une même profondeur. Dans ce bilan, des inventaires du césium 137 contenu dans 20 cm de sols cultivés, ont été estimés en considérant une densité du sol en place de 1 600 kg/m³. La majeure partie du césium 137 étant contenue dans cette couche de sol, ces inventaires peuvent aussi être mis en perspective des activités de césium initialement déposées lors des retombées anciennes.

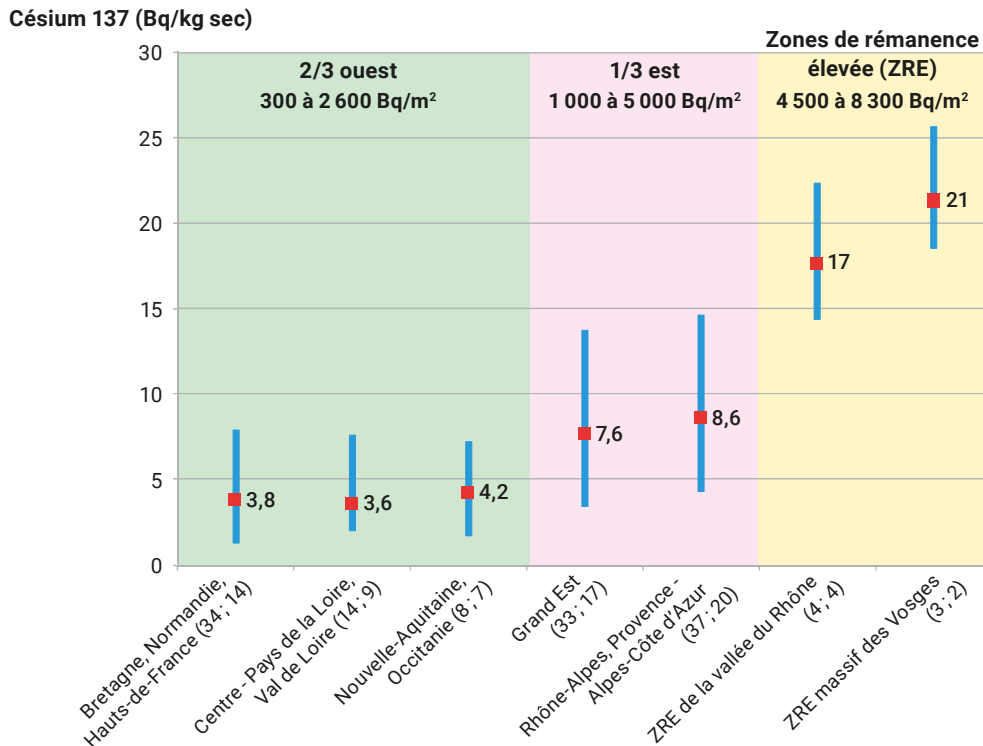


Figure 6. Activités massiques de césium 137, min, max et moyennes, en Bq/kg de sol sec, mesurées par l'IRSN et Subatech dans des échantillons de sols cultivés prélevés entre 2008 et 2018 sur une profondeur de 20 cm. Pour chaque ensemble géographique figure entre parenthèses, les inventaires (Bq/m²) déduits des activités massiques, le nombre de résultats de mesure et le nombre de communes de provenance des échantillons.

la Vallée du Rhône et des Vosges se distinguent par des niveaux d'activités nettement plus élevés, avec une moyenne autour de 20 Bq/kg sec (soit 6 400 Bq/m²) dans une gamme allant de 14 à 26 Bq/kg sec (soit de 4 500 à 8 300 Bq/m²). Elles constituent des zones de rémanence élevée des retombées de l'accident de Tchernobyl (« ZRE » pour zone de rémanence élevée).

Les 385 résultats acquis sur les 5 centimètres de surface des sols non remaniés de prairies et de friches, présentés dans la figure 7, confortent les résultats acquis sur les sols cultivés. On y retrouve notamment les 2 grands ensembles assez homogènes : les deux tiers ouest du pays avec des moyennes de 5 à 6 Bq/kg sec, et le tiers est avec des activités moyennes de 11 et 15 Bq/kg sec. Les activités massiques dans les 5 premiers centimètres sont plus élevées que celles des sols cultivés prélevés sur 20 cm, le césium 137 étant resté majoritairement à la surface de ces sols de prairie non remaniés (voir page 14 le paragraphe « Comportement et évolution des activités massiques au cours des dernières décennies »). Par ailleurs, les échantillons de sols de prairie provenant des principales zones de rémanence élevée des retombées anciennes, sont suffisamment nombreux pour caractériser, pour chacune d'elles, les teneurs en césium dans cette

strate superficielle de 5 cm de profondeur ; on distingue ainsi : les Monts d'Arrée et des sites d'altitude des Pyrénées (retombées des essais nucléaires), des zones du Massif central (essais nucléaires et accident de Tchernobyl), ainsi que des zones de Franche-Comté, de Corse et d'altitude dans les Alpes (accident de Tchernobyl essentiellement). Dans ces zones de rémanence élevée qui se limitent à des groupes de communes, les activités des sols en surface dépassent souvent 50 Bq/kg sec et 100 Bq/kg sec sur des sites situés au-dessus de 800 m d'altitude dans les Vosges, le Massif central, les Pyrénées et les Alpes.

Il est à la fois plus difficile et moins pertinent de fournir des inventaires (en Bq/m²) à partir des activités massiques mesurées dans les 5 cm de surface des sols de prairie, comme cela a été fait pour les sols cultivés. D'une part, la densité des sols en place n'a pas systématiquement été mesurée et elle est beaucoup plus variable (entre 1 200 et 1 800 kg/m³) que celle des sols cultivés ; d'autre part, une partie non négligeable et d'importance très variable du césium 137 se trouve en dessous de 5 cm. Des inventaires quasi-complets, prenant en compte toutes les strates de sols prélevées jusqu'à des profondeurs de 20 à 50 cm ont été calculés dans le cadre du constat sur les zones de rémanence élevée (IRSN, 2016) ;

ils sont fournis dans la figure 8 extraite du rapport correspondant. Les inventaires les plus élevés, dépassant 10 000 Bq/m² concernent principalement certaines des

zones les plus touchées par les retombées de l'accident de Tchernobyl en Corse, dans le Jura et les Vosges, ainsi que des sites d'altitude des Alpes et des Pyrénées.

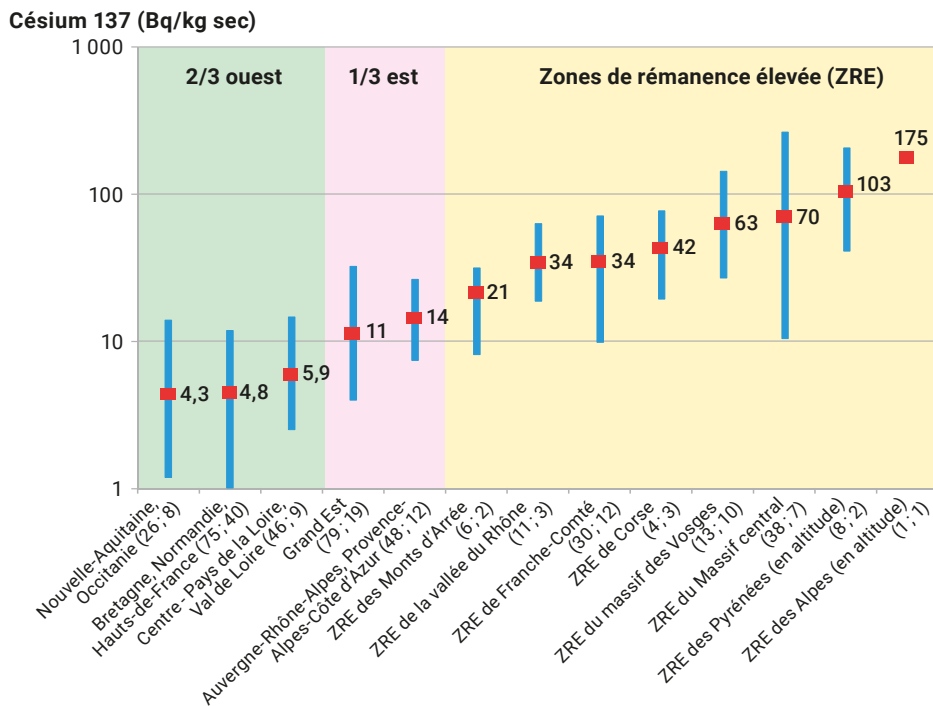


Figure 7. Activités de césium 137, min, max et moyennes en Bq/kg de sol sec, mesurées par l'IRSN et Subatech dans des échantillons de sols de prairie prélevés entre 2008 et 2018 (en 2006 et 2007 dans le cas de certains échantillons de Franche-Comté et du Massif central) sur une profondeur de 5 cm. Pour chaque ensemble géographique figure entre parenthèses, le nombre de résultats de mesure et le nombre de communes de provenance des échantillons.

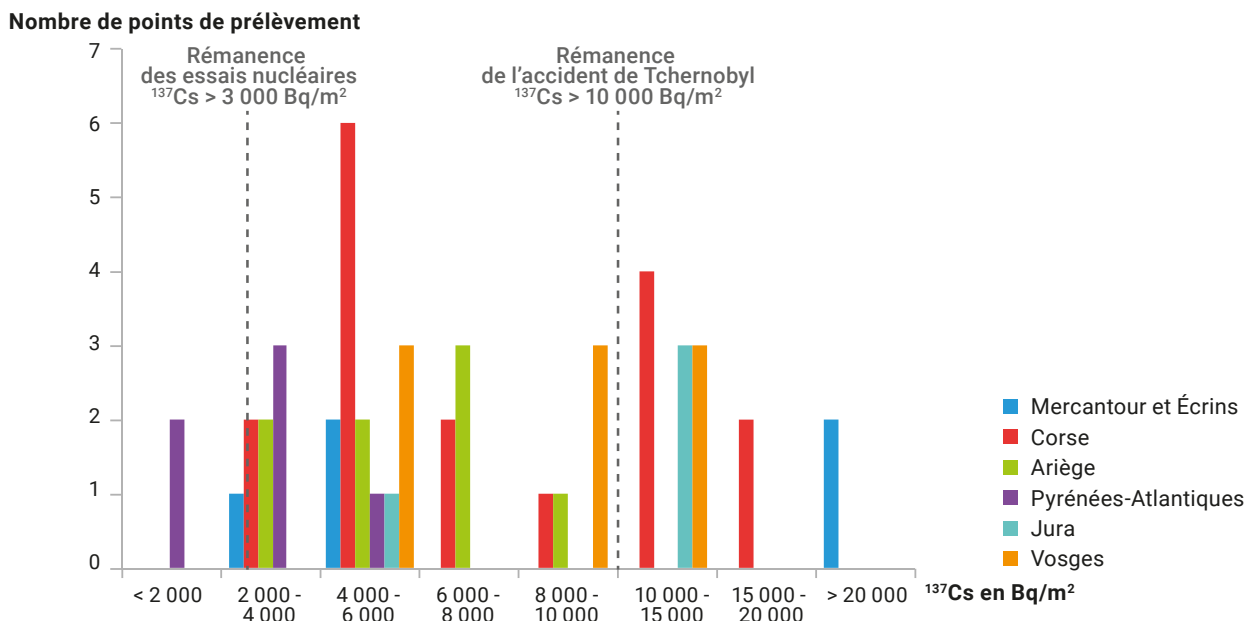


Figure 8. Inventaire de césium 137, en Bq/m², estimés pour 49 sols prélevés dans le cadre du constat sur les zones de rémanence élevée des retombées anciennes (IRSN, 2016).

3 4

LE CÉSIMUM 137 DANS LES DENRÉES VÉGÉTALES ET D'ORIGINE ANIMALE

Comportement et évolution au cours des dernières décennies

Le césium est un élément très mobile dans l'environnement et on le retrouve dans toutes ses composantes. En tant qu'analogie chimique du potassium, il est transféré dans toutes les chaînes alimentaires et notamment vers les différents types de denrées. Il est transféré aux végétaux par interception des aérosols atmosphériques et des gouttes d'eau de pluie contaminée, ou par les sols (transfert racinaire, remise en suspension, éclaboussement des feuilles par des particules de sol) (Renaud *et al.*, 2019). Les activités de césium 137 dans les denrées alimentaires d'origine animale (viande et lait notamment) résultent de son incorporation par les animaux lors de l'ingestion d'aliments (eau et fourrages).

Durant les retombées des essais nucléaires, la contamination en césium 137 de la chaîne alimentaire humaine a principalement résulté de l'interception des dépôts radioactifs par les feuilles des végétaux, notamment les végétaux cultivés, puis par la consommation de ceux-ci par les animaux d'élevage ou sauvages. Ce transfert foliaire a conduit à des activités massiques élevées au regard de celles que l'on mesure aujourd'hui. En 1963, au maximum des retombées des essais nucléaires⁽²⁵⁾, les activités de césium 137 dans la plupart des denrées alimentaires dépassaient 1 Bq/kg et atteignaient 10 à 20 Bq/kg (voire 50 Bq/kg dans la viande) sur les zones les plus touchées du territoire (où les hauteurs de pluie moyennes annuelles sont les plus élevées). La figure 9 illustre également pour le lait de vache, la variabilité régionale des niveaux de contamination sur cette période, liée à celle des dépôts ; dans les régions où les précipitations moyennes annuelles sont faibles (autour de 700 mm/an à Cléville et Sauveterre), les activités de césium 137 dans le lait ont été près de 10 fois plus faibles que dans des régions plus pluvieuses (respectivement 1 200 mm/an à Vioménil dans les Vosges et 1 400 mm/an à Méaudre situé en altitude dans le Vercors).

À partir de 1964, après l'arrêt définitif des essais américano-soviétiques intervenu en août 1963, la contamination des denrées provenait principalement du stock de césium 137 constitué dans les sols et de l'interception des retombées des essais chinois qui se sont poursuivis jusqu'en octobre 1980. Durant cette période, les activités de césium 137 dans les denrées ont diminué pour se trouver comprises entre 0,1 et 1 Bq/kg frais au début des années 1980.

En mai 1986, la contamination des denrées en césium 137 a brusquement augmenté et atteint plusieurs centaines de Bq/kg dans les légumes feuilles (salades, épinards...), la centaine de Bq/L dans le lait et le millier de Bq/kg dans la viande de bœuf du fait de l'interception des dépôts consécutifs à l'accident de Tchernobyl.

Elle a fortement diminué dans les mois qui ont suivi : d'un facteur 100 à 1 000 en trois mois pour les légumes, six mois pour le lait et plus d'un an pour la viande. Depuis 1987, la contamination en césium 137 des denrées provient du sol, principalement par l'absorption racinaire dans le cas du césium⁽²⁶⁾, et diminue lentement au fil des années.

Ainsi, les activités en césium 137 des denrées agricoles et d'élevage produites en France sont devenues le plus souvent inférieures à 1 Bq/kg (ou Bq/L) dès 1987 (à l'exception notable de la viande) et ont ensuite lentement diminué, passant pour la plupart en dessous de 0,1 Bq/kg (ou Bq/L) dès le début des années 2000. Cette évolution est illustrée de manière générale et schématique de 1986 à 2006 par la figure 10 ; elle est illustrée dans le cas du lait de vache par la figure 11 et de manière plus spécifique par la figure 4 page 14 dans le cas des herbages et du lait de vache prélevés dans l'environnement du CNPE de Chooz de 1991 à 2016.

Cette diminution des activités massiques de césium 137 résulte de trois phénomènes : (i) la décroissance radioactive, (ii) la diminution de la teneur des sols en ce radionucléide mentionnée précédemment et (iii) la diminution du facteur de transfert racinaire lui-même lié à la diminution de la biodisponibilité⁽²⁷⁾ du césium 137 dans les sols.

L'intensité du transfert racinaire dépend par ailleurs du type de végétal et des caractéristiques du sol : granulométrie, teneur en matière organique, teneur en potassium, pH... ; il en résulte qu'à teneurs des sols en césium égales, les activités massiques des végétaux qui y poussent peuvent être extrêmement variables.

(25) Nous ne disposons pas de résultats de mesures au cours des années 1950, mais même en 1953-1956 au plus fort des retombées de cette décennie, les niveaux de césium 137 dans les denrées n'ont pas atteint les niveaux de 1963. Ils ont ensuite fortement diminué après le moratoire de 1959 qui a stoppé temporairement les essais atmosphériques américano-soviétiques, avant que les essais atmosphériques reprennent en 1961.

(26) Des phénomènes de transfert foliaire, de remise en suspension ou d'éclaboussement lors des pluies par des particules de sols, contribuent aussi à cette contamination par le sol ; pour certains radionucléides comme les isotopes du plutonium, ces phénomènes peuvent être prépondérants.

(27) Les plantes absorbent le césium présent en solution dans l'eau du sol. Comme mentionné précédemment, la fixation progressivement irréversible du césium sur certaines particules de sols conduit à diminuer sa teneur dans la solution des sols et donc sa disponibilité pour être absorbé par les racines des végétaux.

Césium 137 dans le lait de vache (Bq/L)

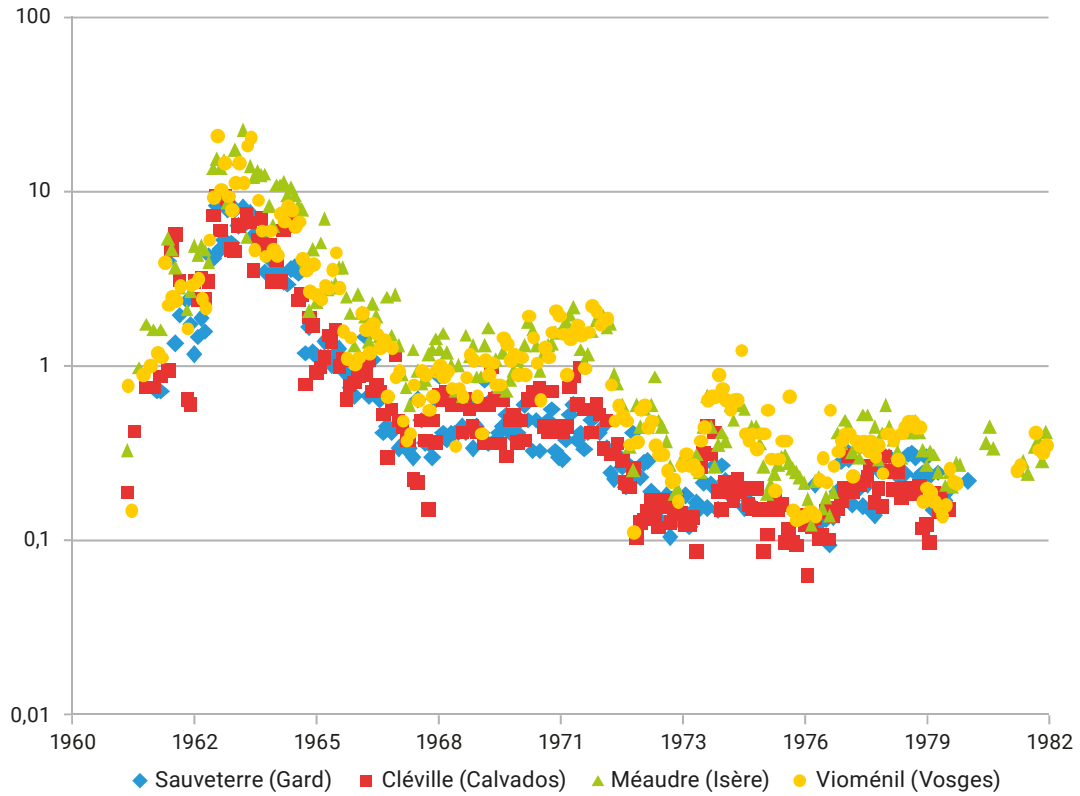


Figure 9. Évolution des activités volumiques de césium 137 dans le lait de vache produit sur 4 localités de 1961 à 1982 (Bq/L).

Césium 137 dans les denrées alimentaires (Bq/kg frais ou Bq/L)

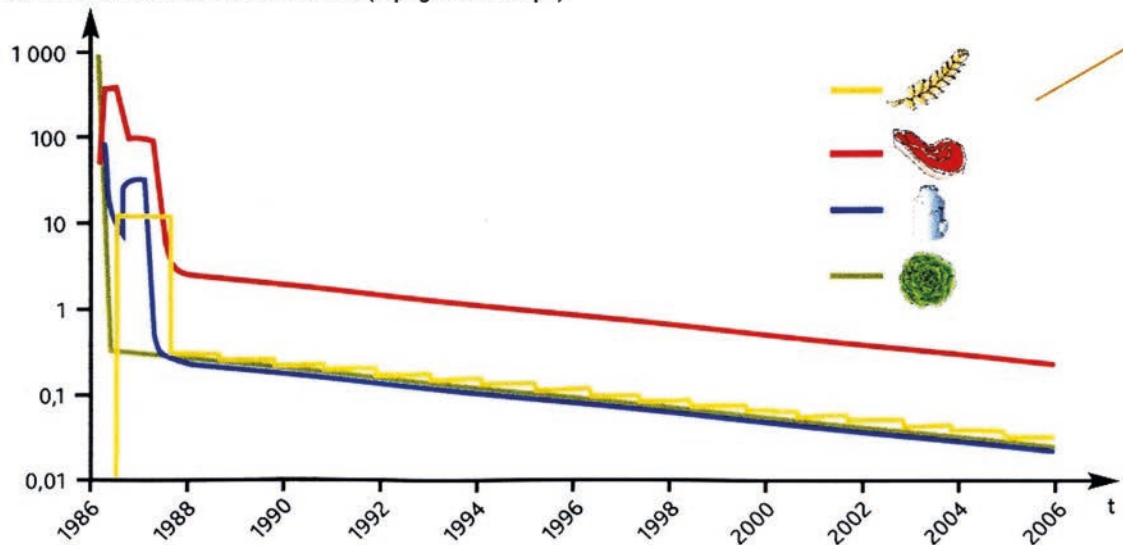


Figure 10. Évolution schématique des activités massiques et volumiques (Bq/kg frais et Bq/L) de césium 137 dans les principales catégories de denrées produites en France de 1986 à 2006 (Renaud et al., 2007).

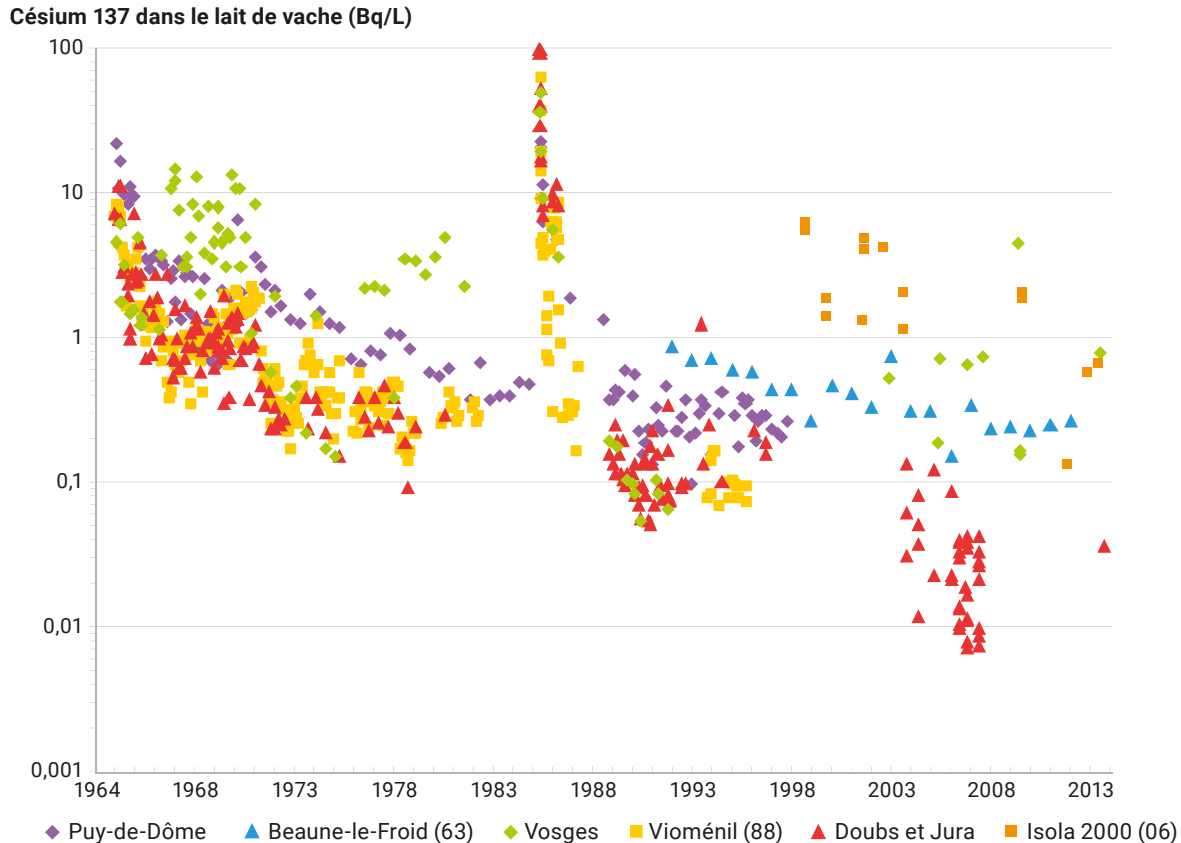


Figure 11. Évolution des activités volumiques (Bq/L) de césium 137 mesurées dans le lait produit en France de 1966 à 2013 (IRSN, 2016).

La figure 11 extraite du rapport relatif au constat régional mené sur les zones de forte rémanence des retombées anciennes (IRSN, 2016) illustre cette variabilité et une diminution différenciée d'une zone à l'autre dans le cas du lait de vache. Au sein des zones les plus touchées par les retombées de l'accident de Tchernobyl, elle permet de distinguer celles où la rémanence est modérée comme le Jura et le Doubs (triangles rouges) qui se rapprochent ainsi de la majeure partie du pays (courbe bleue de la figure 4 page 14), des zones où cette rémanence est plus forte comme le Puy-de-Dôme (losanges violets), les Vosges (losanges verts) et surtout les alpages des Alpes (carrés orange).

Par ailleurs, les pratiques agricoles et d'élevage influencent fortement les teneurs en césium 137 des denrées produites. L'utilisation d'engrais, et notamment d'engrais potassique, réduit le transfert du césium vers les plantes. Les teneurs en césium 137 des produits de l'élevage sont déterminés par celles des aliments donnés aux animaux. Or, ces pratiques sont très variées, de même que l'origine des aliments donnés aux animaux (qui sont parfois importés d'autres régions de France, voire de l'étranger), ce qui conduit à homogénéiser

encore, les niveaux d'activité du césium 137 dans les denrées d'origines animales produites en France.

Il en résulte que l'hétérogénéité spatiale initiale des retombées des essais nucléaires et de l'accident de Tchernobyl, s'est fortement estompée au fil du temps et ne persiste que dans certaines productions agricoles ou d'élevage ; c'est notamment le cas pour la chaîne de transfert sol-herbe-lait.

Contrairement aux productions agricoles ou d'élevage, les denrées alimentaires naturelles, forestières notamment, présentent des niveaux de césium 137 qui ont peu diminué depuis l'accident de Tchernobyl (diminution essentiellement par décroissance radioactive) et qui, n'étant pas (ou peu) influencés par des pratiques de production, ont pu conserver une hétérogénéité territoriale importante. C'est le cas de la viande de gibier, des champignons et des baies sauvages. Il faut noter la très grande variabilité des activités massiques de césium 137 dans ces denrées, liée précisément aux hétérogénéités quelquefois très locales des concentrations dans les sols, ainsi qu'aux différences entre les espèces.

Activités massiques et volumiques sur la période 2008-2019

Les herbages

Des végétaux herbacés sont régulièrement prélevés pour analyse par l'IRSN autour des installations nucléaires. D'autres échantillons l'ont été dans le cadre d'études, notamment sur le transfert du césium dans la chaîne sol-herbe-lait, et quelques-unes supplémentaires dans le cadre des constats régionaux. Sur les 1 120 résultats de mesure acquis entre 2008 et 2019 seuls 367 ont donné des résultats significatifs. Les résultats acquis autour de l'usine de retraitement de La Hague, susceptibles d'être influencés par les rejets de ce site, en ont été retirés ; il en est de même des résultats acquis entre mars et juillet 2011, qui sont potentiellement influencés par les retombées de l'accident de Fukushima. Quarante-trois résultats significatifs acquis par Subatech autour des CNPE des bassins versants de la Loire et de la Garonne ont été ajoutés pour constituer un lot de 453 résultats de

mesure d'herbages prélevés sur 104 localités. Ces résultats, exprimés en Bq/kg de végétaux secs⁽²⁸⁾ sont présentés dans la figure 12. Pour chaque ensemble géographique, le nombre de résultats exploités et le nombre de localités d'origine sont indiqués entre parenthèses.

Au sein de chaque ensemble géographique, les activités massiques des herbages sont plus variables que celles des sols. À la variabilité de la teneur en césium des sols, s'ajoute en effet, celle de l'intensité du transfert vers les plantes (racinaire principalement) qui dépend des caractéristiques du sol : granulométrie, teneur en matière organique, teneur en potassium, pH... De plus, l'intensité du transfert entre le sol et les herbages est liée aux différentes espèces végétales qui varient d'une zone à l'autre. Ces sources de variabilité supplémentaire conduisent à augmenter les gammes d'activités massiques au sein d'une même région et à réduire les différences inter-régionales observées dans les sols. Ainsi, en dehors des zones de rémanence élevée (ZRE), les activités moyennes des herbages sont relativement proches, comprises entre 0,36 et 1,1 Bq/kg sec dans une gamme très étendue allant de 0,03 à 4 Bq/kg sec pour l'ensemble

Césium 137 dans les herbages (moyenne, min et max en Bq/kg sec)

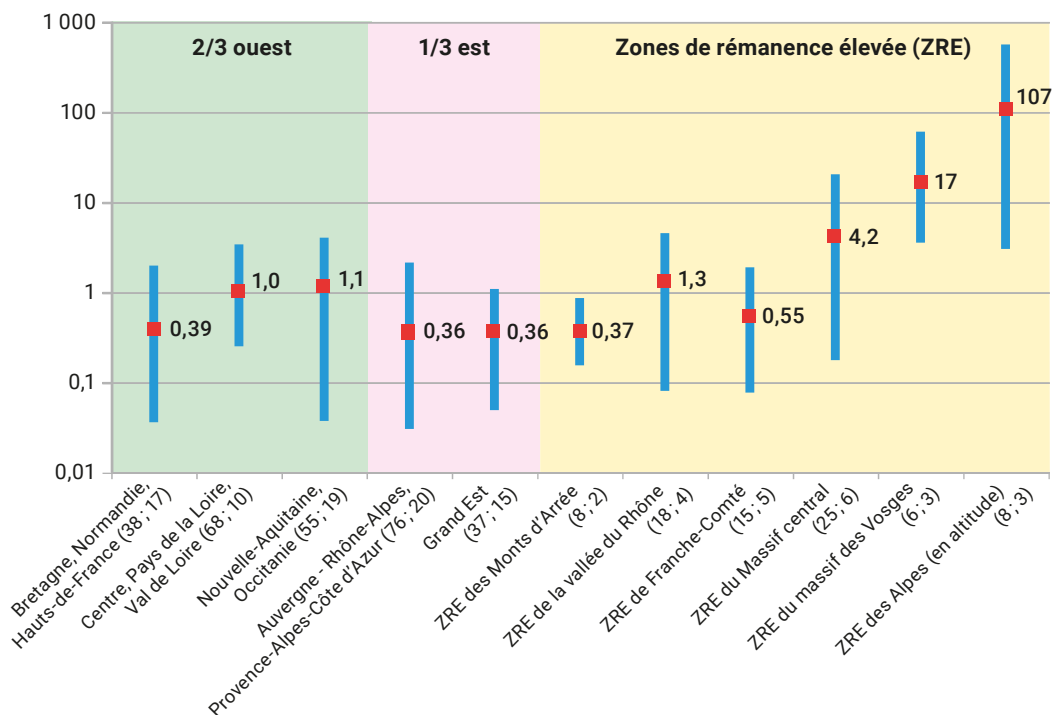


Figure 12. Activités massiques de césium 137, min, max et moyennes en Bq/kg de végétal sec, mesurées par l'IRSN et Subatech dans des échantillons d'herbages prélevés entre 2008 et 2018. Pour chaque ensemble géographique figure entre parenthèses, le nombre de résultats de mesure et le nombre de communes de provenance des échantillons.

(28) Comme dans le cas d'un sol, la teneur en eau d'un échantillon d'herbe est très variable au moment du prélèvement et au moment de l'arrivée au laboratoire. C'est pourquoi les protocoles d'analyse de l'IRSN et de Subatech prévoient leur séchage en étude avant leur mesure.

du pays. Surtout, un transfert du césium du sol vers l'herbe plus faible sur certaines zones de rémanence élevée dans les sols conduit à des activités dans les herbages similaires à celles de zones moins touchées par les retombées anciennes. C'est notamment le cas des ZRE des Monts d'Arrée, de la vallée du Rhône et de la Franche-Comté. Ce n'est que dans les ZRE du Massif central, des Vosges et en altitude dans les Alpes que les activités de césium 137 dans les herbages se démarquent nettement. Dans le cas des zones d'altitude, il est probable qu'un transfert racinaire élevé du césium lié à de faibles teneurs en potassium, augmente encore l'activité des herbages.

Le lait

Comme les herbages, le lait de vache est régulièrement prélevé et analysé par l'IRSN à proximité et à distance des installations nucléaires ; il a été également prélevé dans le cadre d'études menées par l'IRSN et lors des constats radiologiques régionaux. L'activité volumique de césium 137 dans le lait étant beaucoup plus faible que celle des herbages,

seuls les moyens les plus performants de l'IRSN permettent de la mesurer régulièrement. Toutefois, même avec ces moyens, sur 287 analyses réalisées par l'IRSN entre 2008 et 2018, seules 191 ont donné des résultats significatifs (au-dessus du seuil de décision). Comme pour les herbages, les résultats acquis autour de La Hague et ceux acquis entre mars et juillet 2011 (lors des retombées de l'accident de Fukushima) ont été retirés pour constituer un lot de 173 résultats représentatifs du bruit de fond radiologique du césium 137 et provenant de 66 localités réparties sur le territoire. Les résultats sur la partie ouest du territoire étant peu nombreux⁽²⁹⁾, 4 régions ont été regroupées : Centre-Pays de la Loire, Val de Loire, Nouvelle-Aquitaine et Occitanie.

L'évolution inter-régionale de ces résultats présentés sur la figure 13, est très similaire à celle des herbages. Les moyennes régionales, comprises entre 0,01 Bq/L et 0,06 Bq/L, sont relativement proches au regard des variabilités intra-régionales très importantes (allant par exemple de 0,004 à 0,3 Bq/L dans le cas des régions Rhône-Alpes, Provence-Alpes-Côte d'Azur). Aux causes de variabilités mentionnées

Césium 137 dans le lait (moyenne, min et max en Bq/L)

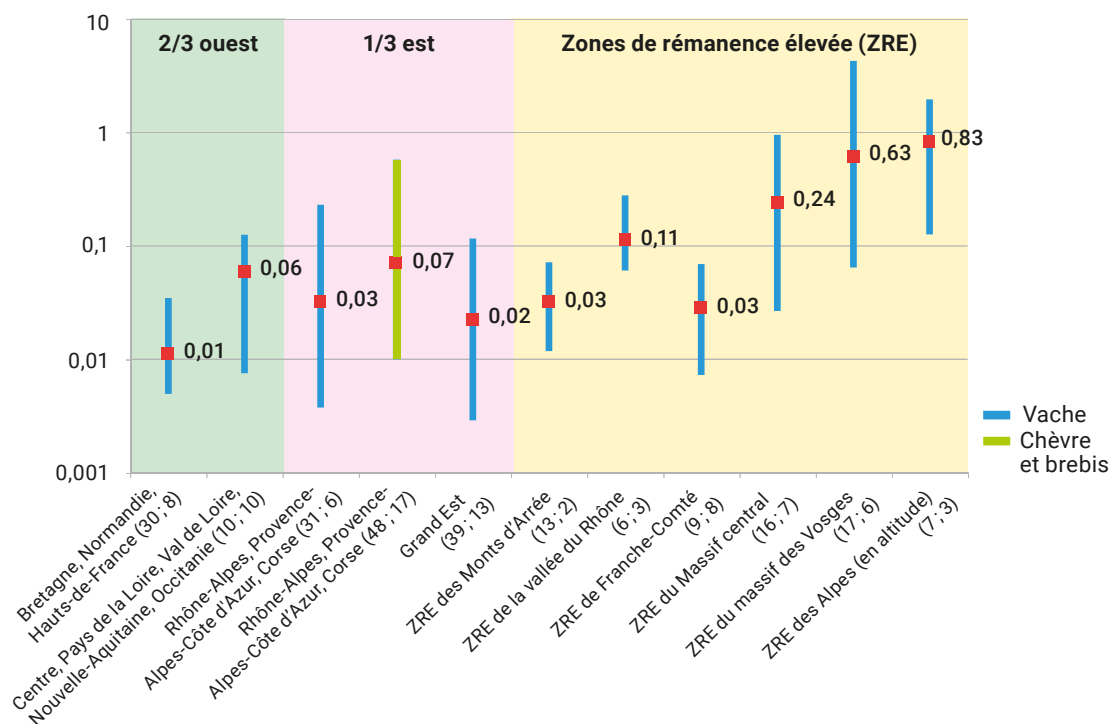


Figure 13. Activités volumiques de césium 137, min, max et moyennes en Bq/L, mesurées par l'IRSN dans des échantillons de lait de vache collectés entre 2008 et 2018. Pour chaque ensemble géographique figure entre parenthèses, le nombre de résultats de mesure et le nombre de communes de provenance des échantillons.

(29) Ceci est dû au fait qu'aucune des 189 analyses effectuées par Subatech entre 2008 et 2018 dans le cadre de la surveillance complémentaire réalisée à la demande d'EdF autour des CNPE des bassins versants de la Loire et de la Garonne, n'a donné de résultats significatifs ; les activités étaient toutes inférieures à des seuils de mesures de l'ordre de 0,2 à 0,5 Bq/L.

précédemment (teneurs en césium 137 dans les sols et transferts du sol vers les fourrages) vient s'ajouter la très grande diversité des pratiques d'alimentation des animaux, tant par la nature des fourrages que par leur origine. Cette variabilité globale tend à uniformiser encore les moyennes et les gammes d'activité à l'échelle de la France entière, effaçant ainsi les hétérogénéités régionales liées aux retombées radioactives initiales. Seuls les échantillons de lait provenant des ZRE des Vosges et des Alpes en altitude se distinguent nettement (et dans une moindre mesure les échantillons des ZRE du Massif central) par des activités volumiques plus élevées.

La figure 14 montre que la variabilité des activités d'échantillons de lait prélevés dans une même localité (souvent une même exploitation) reste importante en lien avec l'activité des fourrages servant à l'alimentation du bétail (nature et origine). Toutefois, la distinction entre les zones géographiques redevient plus visible entre, d'une part l'ouest de la France (localités de l'Orne), l'extrémité est du bassin parisien (Marcilly-sur-Seine) et les zones peu touchées de la vallée du Rhône (St-Victor-de-Morestel), et d'autre part l'est

du pays (Chooz et Jepsheim), les ZRE de la vallée du Rhône (Pélussin et Leyrieu), des Monts d'Arrée (La Feuillée) et du Massif central (Muroi) d'autre part.

Malgré les très grandes variabilités des activités observées dans ces deux matrices, et sans doute la très grande variabilité des pratiques d'alimentation des animaux, il est intéressant de noter que les activités de césium 137 observées dans le lait et dans les herbages sont cohérentes ; elles sont compatibles avec la connaissance que l'on a des facteurs de transfert radioécologiques de ce radionucléide vers le lait⁽³⁰⁾.

Des échantillons de lait de chèvre et de brebis provenant principalement du sud-est de la France et de Corse sont également analysés. Sur la période 2008-2019, 110 des 123 analyses effectuées avec les moyens les plus performants de l'IRSN ont permis d'obtenir des résultats significatifs. Les résultats des 60 analyses spécifiquement réalisées entre mars et juillet 2011 dans le cadre de la surveillance renforcée mise en place après l'accident de Fukushima et potentiellement influencées par ces retombées, ont été retirés des résultats présentés dans la figure 13 (barre verte des

Césium 137 dans le lait (moyenne, min et max en Bq/L)

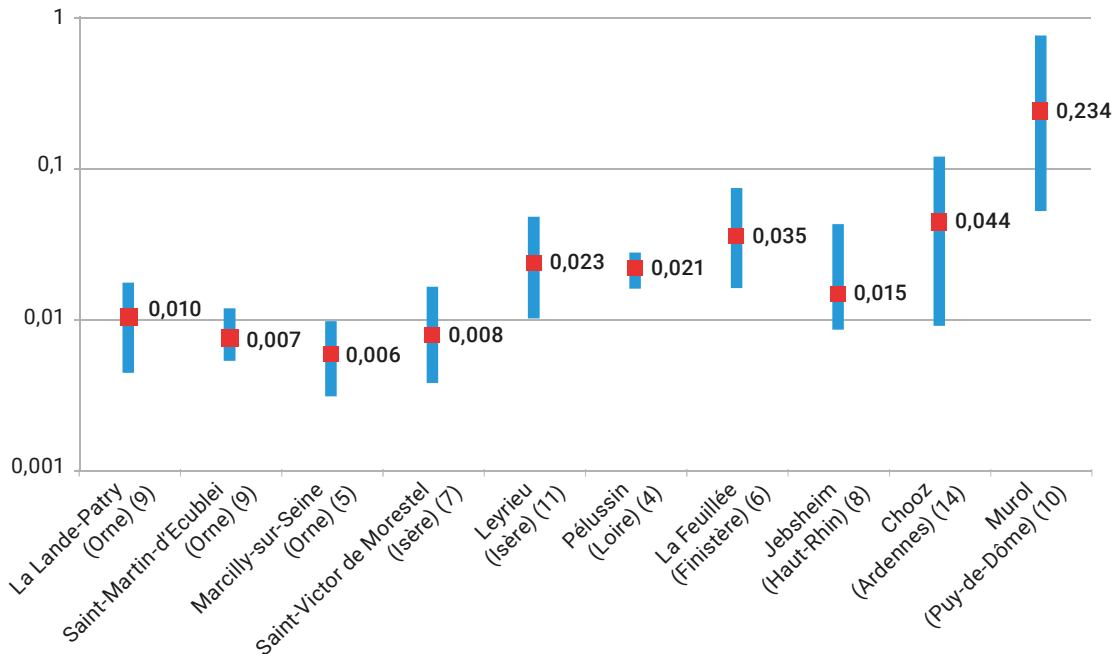


Figure 14. Activités volumiques de césium 137, min, max et moyennes en Bq/L, mesurées par l'IRSN dans des échantillons de lait de vache collectés entre 2008 et 2018 dans 10 localités différentes. Le nombre de résultats de mesure est indiqué entre parenthèses.

(30) Ainsi, pour les 2/3 ouest du pays, la consommation quotidienne de 50 kg d'herbe fraîche par jour dont la teneur en césium serait de l'ordre de 0,1 Bq/kg frais conduirait à une activité volumique théorique du lait de l'ordre de 0,03 Bq/L en utilisant la valeur du facteur de transfert de 0,005 Bq/L par Bq/j indiquée par l'AIEA (AIEA, 2010) ; cette activité volumique théorique est quasiment égale à la moyenne des activités mesurées dans le lait échantillonné au cours des 10 dernières années. Cette cohérence assez remarquable existe aussi pour les ZRE ; ainsi, un même calcul pour les ZRE du Massif central et des Vosges conduit à des activités volumiques théoriques dans le lait de 0,25 et 0,75 Bq/L, alors que les moyennes des activités mesurées sont de 0,24 et 0,63 Bq/L respectivement.

régions Rhône-Alpes, Provence-Alpes-Côte d'Azur). Le lait de chèvre, est connu pour avoir des teneurs en césium 137 supérieures à celles du lait de vache même quand les activités dans les sols sont égales ; la raison en est la végétation plus sèche et donc plus minéralisée ingérée par les animaux. Il est probable que cette différence d'alimentation contribue à l'écart constaté tant entre les moyennes (0,07 pour le lait de chèvre contre 0,03 Bq/L pour le lait de vache) qu'entre les gammes d'activités. Cet écart entre le lait de vache et celui de chèvre est plus visible dans le fromage (voir paragraphe suivant).

À l'issue de cet examen des niveaux de césium 137 dans le lait de vache produit en France, la détermination d'indicateurs statistiques (moyenne et percentiles) communs à l'ensemble du territoire à l'exception de certaines zones de rémanence élevée du Massif central, des Vosges et d'altitude, apparaît pertinente ; ainsi 90 % des 133 échantillons de lait collectés en France entre 2008 et 2019 en dehors de ces zones et analysés par l'IRSN et Subatech présentent une activité massique de césium 137 comprise entre 0,005 Bq/L et 0,09 Bq/L pour une moyenne de 0,03 Bq/L. Sur les zones de rémanence élevée des Vosges, du Massif central et d'altitude, la moyenne est de 0,5 Bq/L et 90 % des 40 résultats de mesures disponibles sont compris entre 0,06 et 1,8 Bq/L.

Les fromages

La quasi-totalité (53 sur 56) des échantillons de fromages analysés par l'IRSN entre 2008 et 2018 présentait une teneur en césium 137 suffisante pour être quantifiée. Ces analyses ont été réalisées dans le cadre d'études spécifiques, notamment l'étude du transfert du césium dans la chaîne sol-herbe-lait-fromage, à partir d'échantillons collectés dans les Vosges, le Jura et le Doubs, dans le cadre de constats radiologiques régionaux zone (« Zones de rémanence élevée », « Normandie et Hauts-de-France » et « Nord-Est » notamment) et dans le cadre d'une chronique portant sur le saint-nectaire produit dans le Puy-de-Dôme (figure 15). Les activités massiques de césium 137 les plus élevées, supérieures à 0,1 Bq/kg frais concernent les zones de production où la rémanence des retombées anciennes dans les sols est la plus forte : certains échantillons de munster du Haut-Rhin et des Vosges, ainsi que de tomme du Mercantour.

Césium 137 dans les fromages (Bq/kg frais)

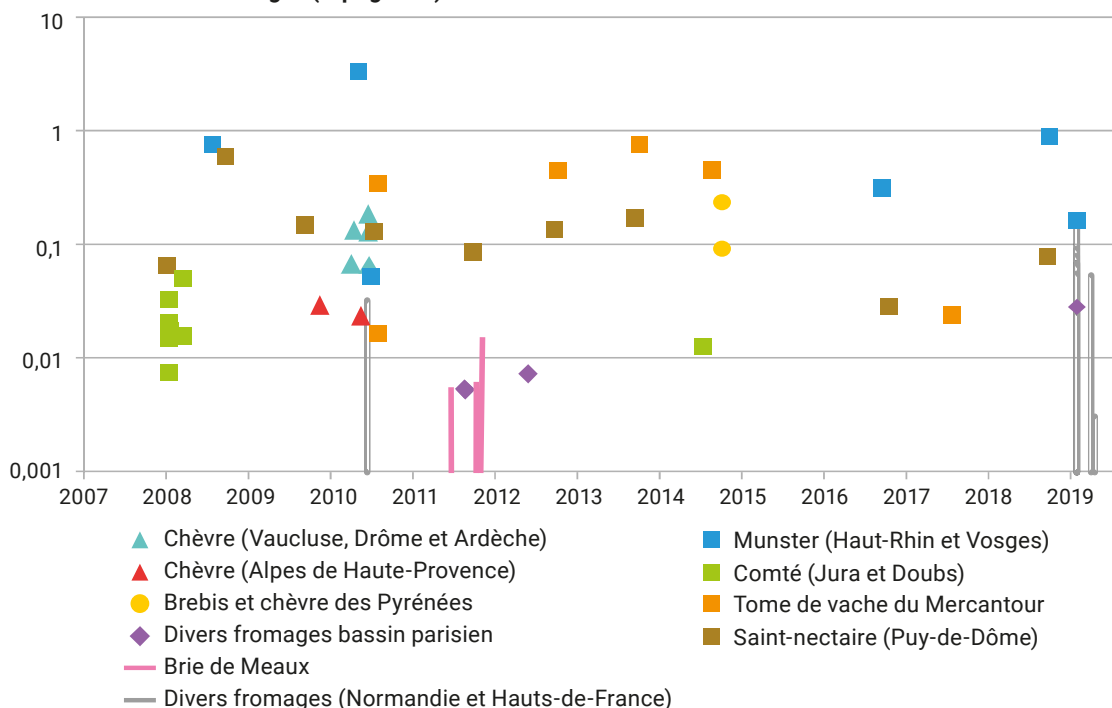


Figure 15. Activités massiques de césium 137, en Bq/kg frais, mesurées par l'IRSN dans des échantillons de fromages collectés entre 2008 et 2018. Les « bâtons » représentent les seuils de décision des mesures non significatives.

La forte variabilité (entre 0,02 et 3 Bq/kg frais pour une moyenne de 0,9 Bq/kg frais pour le munster et 0,3 Bq/kg frais pour la tomme du Mercantour) s'explique principalement par l'hétérogénéité des dépôts radioactifs de mai 1986⁽³¹⁾. Les teneurs en césium 137 du saint-nectaire du Puy-de-Dôme sont en moyenne inférieures aux fromages des Vosges et du Mercantour (0,15 Bq/kg frais dans une gamme allant de 0,03 à 0,6 Bq/kg frais). Bien que fortement touché par les dépôts de mai 1986, le Jura et le Doubs produisent un comté dont l'activité massique de césium 137 est modérée (entre 0,007 et 0,05 Bq/kg frais pour une moyenne de 0,02 Bq/kg frais). Ce constat est cohérent avec celui fait sur les herbages servant à l'alimentation du bétail. À l'inverse, bien qu'issus de zones moins touchées par les retombées de l'accident de Tchernobyl, les fromages de chèvre du sud de la France présentent des teneurs en césium 137 comprises entre 0,02 et 0,2 Bq/kg frais pour une moyenne de 0,09 Bq/kg frais (voir l'explication fournie précédemment pour le lait).

Enfin, pour les fromages produits dans les régions de France beaucoup moins touchées par les retombées de l'accident de Tchernobyl et des essais nucléaires comme la Normandie, les Hauts-de-France et le bassin parisien, les activités massiques sont plus faibles, le plus souvent inférieures à 0,02 Bq/kg

frais (brie de Meaux notamment) ; la dizaine d'échantillons de fromages différents (pont l'évêque, livarot, camembert, neufchâtel...) produits dans ces régions et analysés en 2019 dans le cadre du constat « Normandie et Hauts-de-France », présentait d'ailleurs des teneurs en césium trop faibles pour être quantifiées.

Les salades

Avec les herbages et le lait, les salades sont les échantillons de l'environnement terrestre les plus analysés avec 525 analyses réalisées par l'IRSN et Subatech sur la période 2008-2018. Toutefois, seuls les moyens les plus performants (401 analyses sur la période) ont permis d'obtenir les 240 résultats significatifs (60 %) provenant de 85 localités réparties sur le territoire français métropolitain.

La figure 16 montre que toutes les causes de variabilité évoquées précédemment, auxquelles s'ajoutent les pratiques culturales faisant appel notamment à différents engrais plus ou moins riches en potassium (qui diminuent le transfert racinaire du césium), conduisent d'une part à une homogénéisation des activités massiques moyennes à l'échelle du territoire (très proches et comprises entre 0,034 et 0,049 Bq/kg frais),

Césium 137 dans les salades (moyennes, min et max en Bq/kg frais)

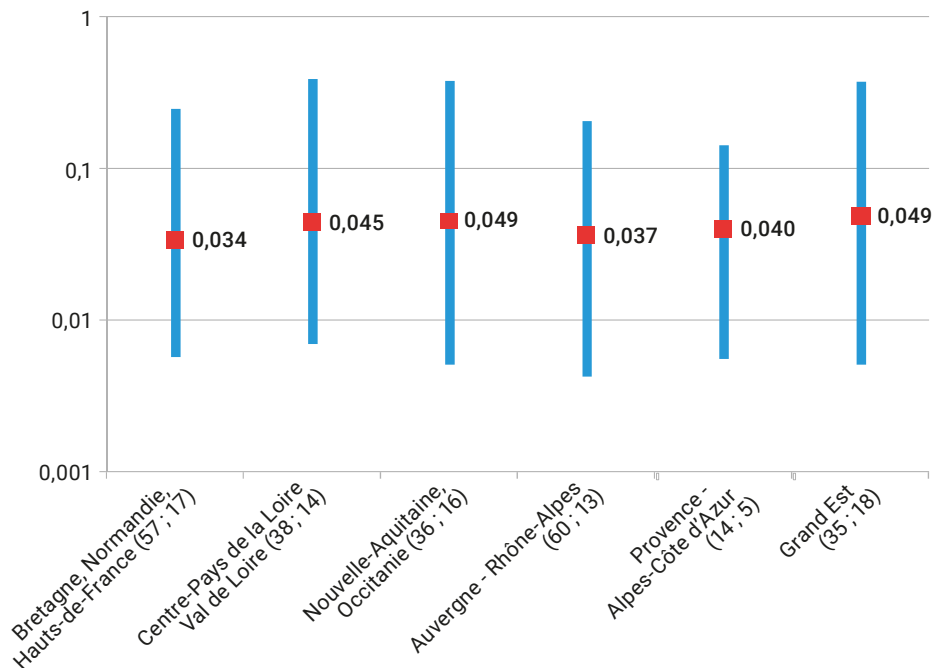


Figure 16. Activités massiques de césium 137, min, max et moyennes en Bq/kg frais, mesurées par l'IRSN et Subatech dans des échantillons de salades collectés entre 2008 et 2018. Le nombre de résultats de mesure et le nombre de localités sont indiqués entre parenthèses.

(31) Les productions d'origine contrôlée font l'objet d'un cahier des charges strict, notamment d'alimentation des animaux sur la base de fourrages locaux, réduisant ainsi la variabilité liée à ces pratiques.

et d'autre part à des gammes d'activités qui s'étendent sur près de 2 ordres de grandeur.

La figure 17 présente les activités de césium 137 mesurées dans les salades de plein champ collectées dans des communes situées autour de 16 sites nucléaires : 14 CNPE d'EdF et deux sites en démantèlement (Brennilis et Creys-Malville). Elle montre que la variabilité des activités massiques des échantillons prélevés sur chacune d'elles, et quelquefois même au sein d'une même exploitation, est également élevée ; des écarts d'un facteur 25 à 45 entre les activités maximales et minimales sont observés pour les échantillons prélevés autour des sites de Chinon, Chooz, Creys-Malville ou Dampierre. Par ailleurs, comme pour les résultats régionaux présentés précédemment (figure 16), il est difficile d'établir un lien entre cette variabilité et celle des retombées anciennes telles qu'elle apparaît encore dans les sols aujourd'hui. Ce sont donc principalement les caractéristiques des sols (plutôt que leur teneur en césium 137) et les pratiques culturales qui déterminent aujourd'hui la variabilité des niveaux de césium 137 rémanent des retombées anciennes dans les salades. La détermination d'indicateurs statistiques communs aux salades produites sur l'ensemble du pays apparaît ainsi pertinente (et nous verrons que ce sera aussi le cas des autres productions agricoles) ; 90 % des 240 échantillons de salades collectés

en France entre 2008 et 2019 et analysés par l'IRSN et Subatech présentent une activité massique de césium 137 comprise entre 0,007 Bq/kg frais et 0,09 Bq/kg frais pour une moyenne de 0,04 Bq/kg frais.

Les autres légumes

Les légumes font l'objet de très peu d'analyses dans le cadre de la surveillance radiologique de routine de l'environnement. Les activités de césium 137 de ces denrées sont proches ou inférieures aux seuils de décisions. Les constats radiologiques régionaux ont été l'occasion d'essayer d'augmenter le nombre de mesures significatives disponibles dans le but d'améliorer notre connaissance des niveaux de césium 137 dans ces productions agricoles. Ainsi, sur 69 analyses de légumes feuilles autres que des salades (épinard, blettes, chou, céleri, asperge, poireau) réalisées sur la période 2008-2019, le tiers l'ont été dans le cadre des constats régionaux « Val de Loire » (CVL), « Sud-Ouest » (SO), « Normandie et Hauts-de-France » (CNHdF) et « Nord-Est » (CNE). Toutefois, malgré la performance des moyens métrologiques utilisés, la majorité des échantillons présentait des teneurs en césium 137 inférieures aux seuils de décision. Ce qui ne permet de disposer que de 29 résultats de mesure significatifs.

Césium 137 dans les salades (moyennes, min et max en Bq/kg frais)

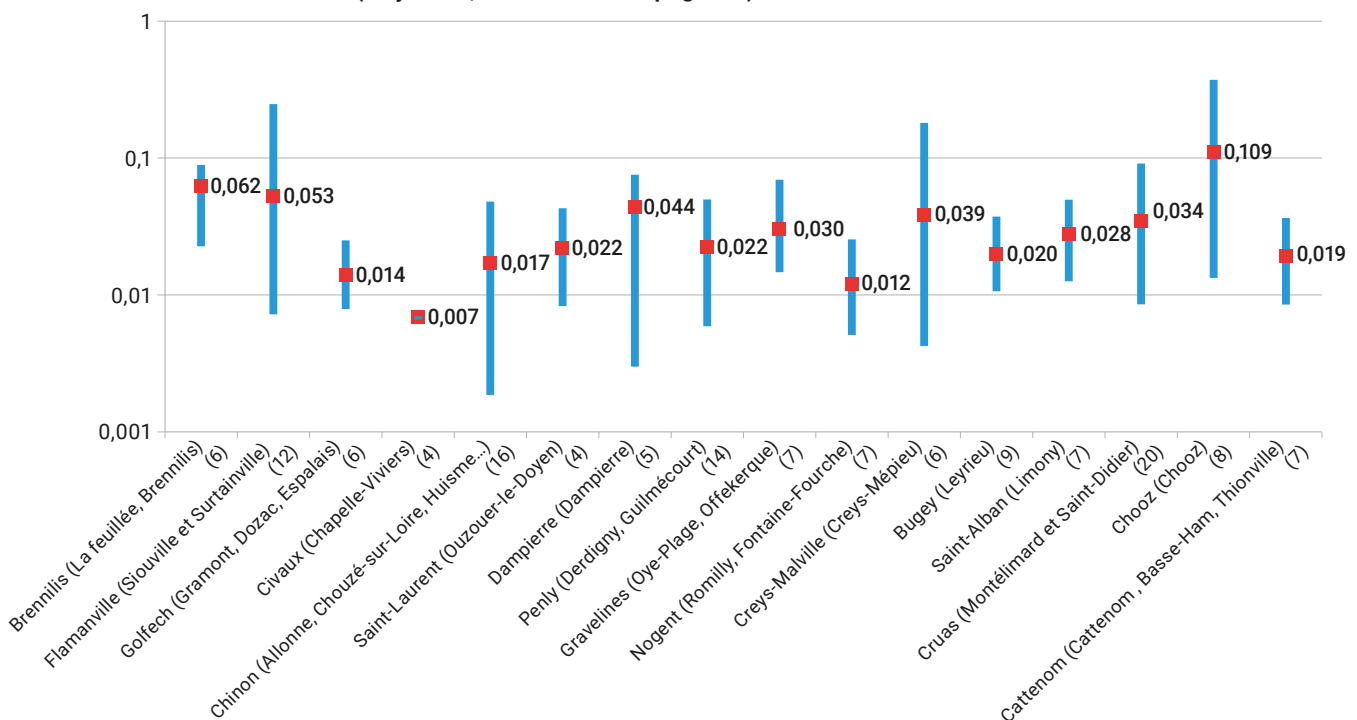


Figure 17. Activités massiques de césium 137, min, max et moyennes en Bq/kg frais, mesurées par l'IRSN et Subatech dans des échantillons de salades collectés entre 2008 et 2018 autour de 16 sites d'EdF. Le nombre de résultats de mesure et le nombre de localités sont indiqués entre parenthèses.

De même, sur les 88 analyses de légumes racines et de tubercules (pommes de terre, betteraves, carottes, radis, oignons, navets et aulx), 29 l'ont été dans le cadre des constats régionaux (CNHdF, CSO et CNE). Cet ensemble d'analyses permet de disposer de 32 résultats de mesure significatifs.

Enfin, les 26 analyses de légumes fruits (concombres, tomates, courgettes, poivrons, etc.), dont 15 réalisées dans le cadre des constats radiologiques CVR, CVL et CSO, ne permettent de disposer que de 5 résultats significatifs.

Comme pour les salades, la variabilité des activités massiques de césium 137 dans les autres légumes est très importante (activités massiques comprises entre 0,003 et 0,3 Bq/kg frais), sans lien apparent avec celle des activités dans les sols. Cette variabilité est vraisemblablement liée à la variété des espèces et des pratiques culturales (amendements) et aux caractéristiques des sols (figure 18).

Les céréales et les plantes oléagineuses

Sur 507 échantillons de blé, d'orge et de maïs (assimilé pour cette étude à une céréale) et de plantes oléagineuses (colza principalement) analysés par l'IRSN entre 2008 et 2019, seuls 57 (soit 11 %) ont présenté une teneur en césium 137 suffisante pour être quantifiée ; les activités massiques des autres étaient inférieures à des seuils de décision de l'ordre de 0,1 à 0,2 Bq/kg frais. La possibilité de quantifier l'activité massique de ce radionucléide dans des céréales produites en France est donc aléatoire. C'est pourquoi, peu d'analyses ont été dédiées aux céréales et aux plantes oléagineuses lors des constats radiologiques régionaux, à l'exception des constats « Sud-Ouest » (22 échantillons de blé) et « Nord-Est » (2 échantillons de maïs, 9 d'orge, 7 de blé et 11 de colza). Ces résultats sont cependant presque tous non significatifs.

Césium 137 dans les légumes autres que les salades en Bq/kg frais

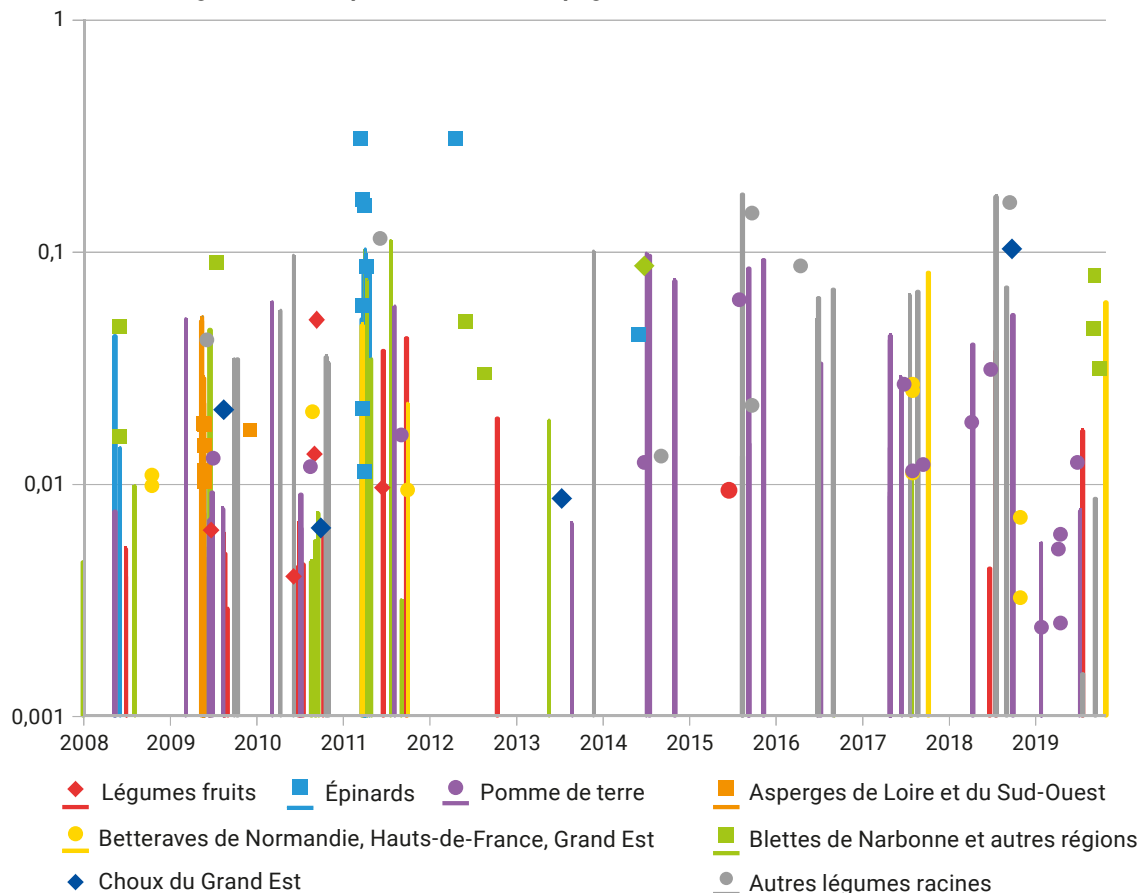


Figure 18. Activités massiques de césium 137, en Bq/kg frais, dans des échantillons de légumes autres que des salades collectés entre 2008 et 2019. Les « bâtons » représentent des seuils de décision.

La figure 19 présente les résultats des 122 échantillons obtenus avec des seuils de décision suffisamment bas (inférieurs à 0,05 Bq/kg frais), pour quantifier les activités massiques de 57 d'entre eux. Les échantillons de blé et de maïs proviennent de différentes localités réparties sur l'ensemble du territoire. Les activités massiques dans le blé vont de moins de 0,01 à 0,3 Bq/kg frais, celles de maïs sont globalement plus faibles, allant de 0,003 à 0,06 Bq/kg frais. Les échantillons d'orge et de colza proviennent presque tous de la région Grand Est ; seules 5 analyses de colza ont donné des résultats significatifs compris entre 0,04 et 0,08 Bq/kg.

Les résultats de mesures, peut-être en raison de leur nombre limité, ne permettent pas de mettre en évidence de variabilité régionale. Notamment, les résultats acquis sur quelques-uns des sites de la vallée du Rhône et des Vosges sur lesquels une rémanence élevée a été constatée dans les sols cultivés, ne se démarquent pas de ceux d'échantillons provenant de l'ouest du pays. Il est probable que, comme pour les salades, la variabilité de l'intensité du transfert racinaire qui dépend des caractéristiques des sols, augmentée par celle liée aux pratiques agricoles et notamment à l'utilisation d'engrais potassique, efface les contrastes régionaux des retombées anciennes.

Césium 137 dans les céréales et le colza en Bq/kg frais

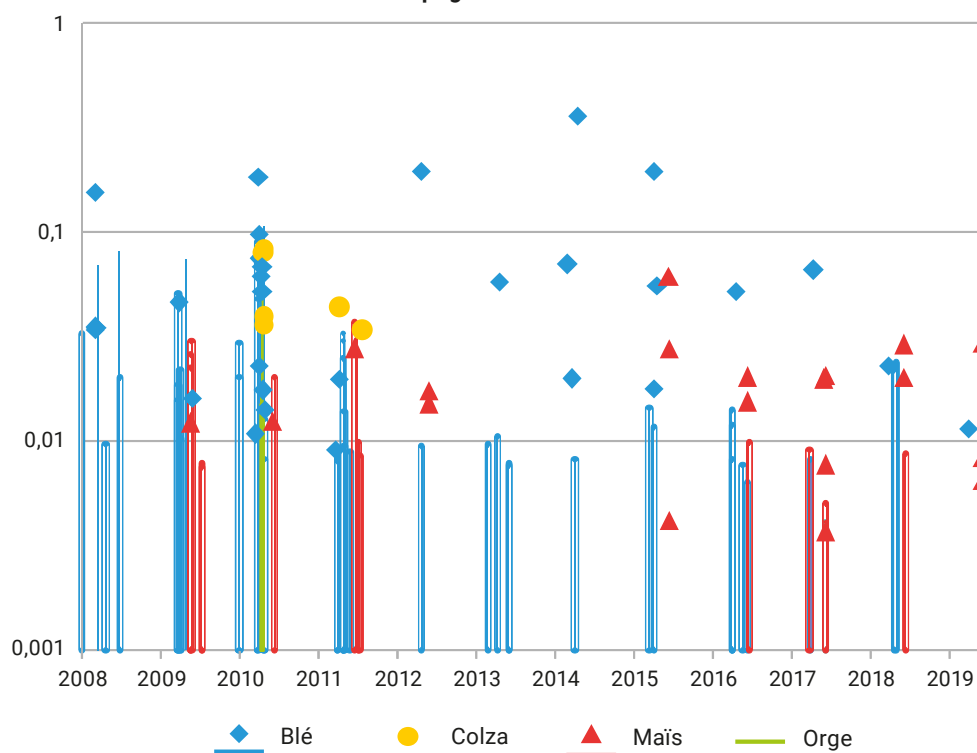


Figure 19. Activités massiques de césium 137, en Bq/kg frais, mesurées par l'IRSN dans des échantillons de céréales et de colza collectés entre 2008 et 2019. Les « bâtons » représentent des seuils de décision.

Les fruits, les baies, les vins et cidres

Sur 170 analyses de césium 137 effectuées dans des fruits depuis 2008, 117 (soit 68 %) ont été réalisées dans le cadre des constats radiologiques régionaux. Les constats ont par ailleurs permis d'élargir de manière importante la variété des fruits analysés (dans le cadre de la surveillance de routine et des études menées par l'IRSN pour EdF, ce sont surtout des pommes et des raisins qui sont prélevés). Avec des activités massiques comprises le plus souvent entre 1 et 30 Bq/kg frais, les myrtilles présentent des activités 10 à 1 000 fois plus élevées que celles des fruits de verger (figure 20). Cet écart s'explique, d'une part par la nature du fruit qui concentre plus fortement les éléments minéraux et d'autre part par le fait que la plupart des myrtilles ont été prélevées dans des zones des Vosges, du Haut-Rhin, du Jura, du Doubs, des Alpes-Maritimes et des Hautes-Pyrénées, parmi les plus touchées par les retombées de l'accident de Tchernobyl et des essais nucléaires.

Les activités massiques des autres baies (framboises, fraises, mûres) sont proches de celles des autres fruits qui sont comprises entre 0,002 et 0,1 Bq/kg frais. Compte tenu du nombre très limité de données, il n'est pas possible de relier cette variabilité ni à la zone géographique de provenance, ni à l'espèce, même si on peut noter que les pommes présentent une teneur en césium plus faible (autour de 0,004 Bq/kg frais) que le raisin (autour de 0,025 Bq/kg).

Sur 35 analyses de cidres (21 analyses) et de vins (14 analyses) réalisées par l'IRSN entre 2008 et 2019, majoritairement dans le cadre des constats radiologiques régionaux (14 analyses) et pour le suivi d'une chronique portant sur du cidre de Normandie (11 analyses), seules 15 analyses ont donné des résultats significatifs. Les activités volumiques, comprises entre 0,003 et 0,03 Bq/L (figure 21), sont dans la même gamme que celles des raisins et de manière plus générale des fruits (figure 20). Pour un nombre aussi restreint de résultats, il est difficile de se prononcer sur la signification de l'écart observable entre les activités volumiques dans les 3 échantillons de vin de la vallée du Rhône et celles des vins de Loire.

Césium 137 dans le fruits et les baies (Bq/kg frais)

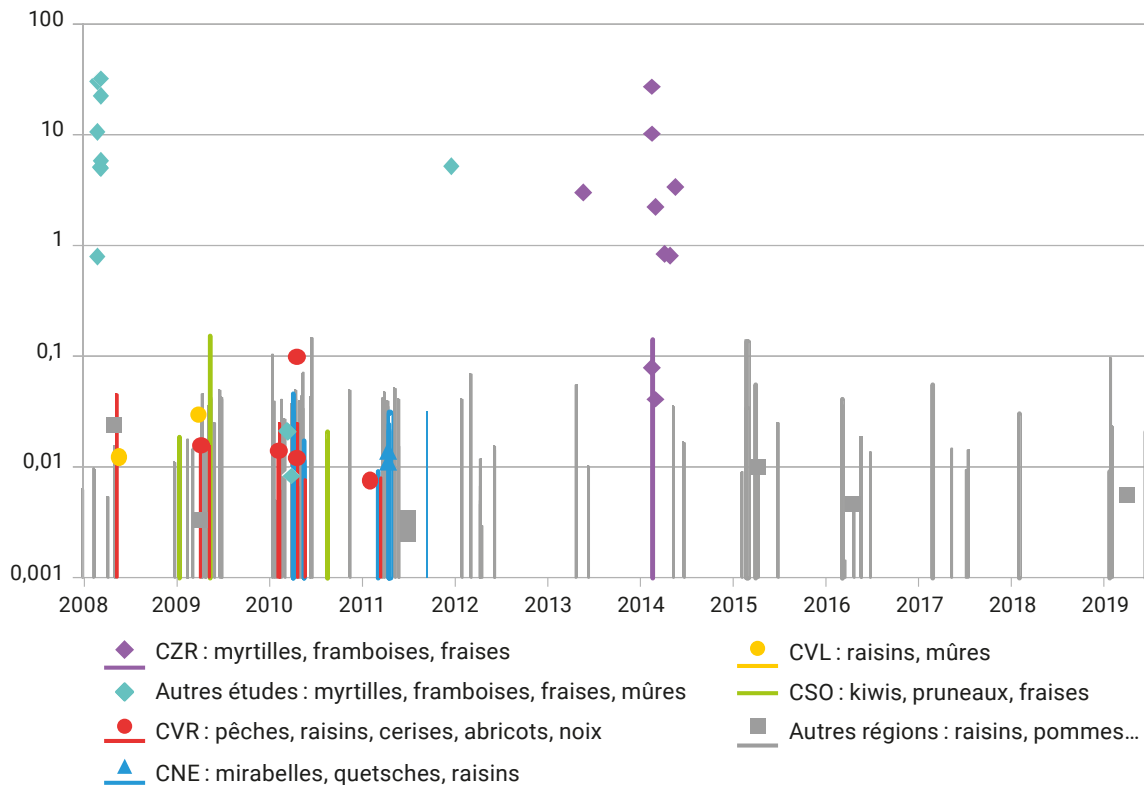


Figure 20. Activités massiques de césium 137, en Bq/kg frais, mesurées par l'IRSN dans des échantillons de fruits et de baies collectés entre 2008 et 2019. Les « bâtons » représentent des seuils de décision.

Césium 137 dans le cidre et le vin (Bq/L)

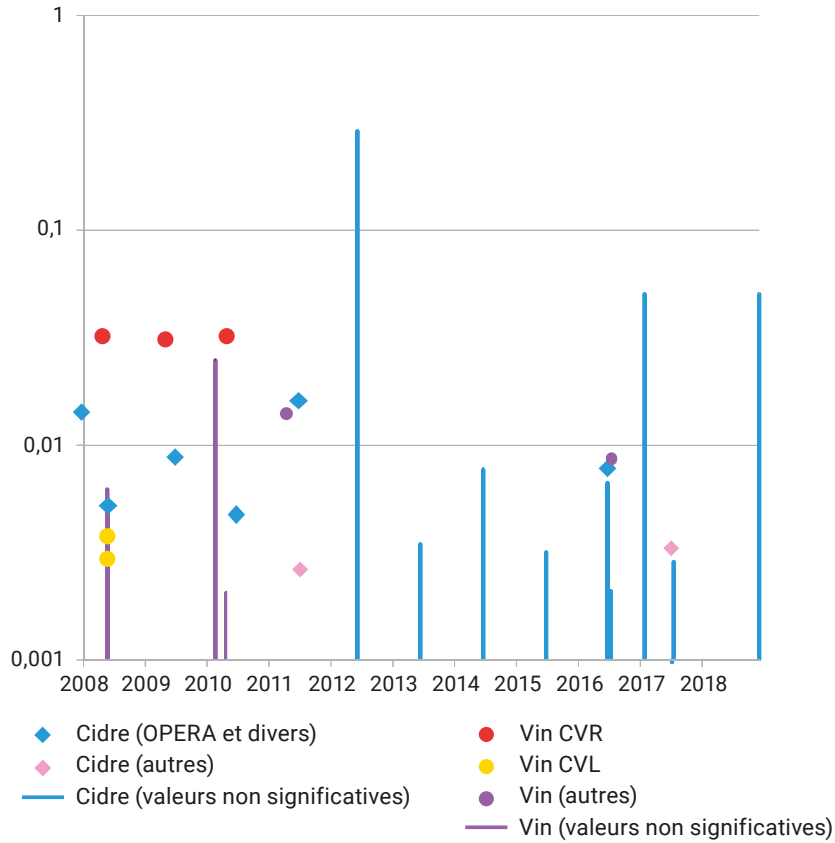


Figure 21. activités volumiques de césium 137, en Bq/L mesurées dans des échantillons de cidres et de vins collectés entre 2008 et 2018. Les « bâtons » représentent des seuils de décision.



Traitement de kiwis pour analyse
(Constat radiologique régional « Sud-Ouest »).

La viande bovine (bœuf, vache de réforme et taureau)

Plus de 40 % des 72 analyses de césium 137 dans la viande de bœuf réalisées par l'IRSN ces 10 dernières années l'ont été dans le cadre des constats radiologiques régionaux « Val de Loire » (CVL), « Sud-Ouest » (CSO), « Vallée du Rhône » (CVR) et « Nord-Est » (CNE) (figure 22). Le césium étant fortement transféré aux muscles (en tant qu'analogue du potassium), la majorité de ces analyses a donné des résultats significatifs.

Hors zones de rémanence élevée, les activités mesurées sont comprises entre 0,02 et 0,3 Bq/kg frais avec une moyenne de 0,07 Bq/kg frais sans distinction en fonction de l'origine géographique des échantillons. À l'instar de ceux de lait, les échantillons de viande bovine provenant des zones de rémanence élevée des retombées anciennes (zones des Vosges, du Haut-Rhin et du Puy-de-Dôme) présentent des activités massiques nettement plus élevées et comprises entre 0,4 Bq/kg frais et 3,5 Bq/kg frais.

Cependant, parmi les valeurs élevées figurent 4 échantillons prélevés dans les environs de La Hague dans le cadre de la surveillance de ce site par l'IRSN avec des valeurs comprises entre 0,4 et 4,0 Bq/kg frais. Dans une région où la rémanence des retombées de l'accident de Tchernobyl est faible, ces activités élevées ne peuvent résulter que de l'influence des rejets atmosphériques de césium 137 par les installations de ce site ou d'évènements accidentels passés ayant pu entraîner des dépôts au sol (notamment l'incendie du silo 130 en 1973). Enfin, des échantillons de viande de bœuf ont été analysés entre avril et novembre 2011 afin d'étudier l'influence des retombées de l'accident de Fukushima. Les résultats de cette étude qui comportait également des analyses de viande de mouton (figure 23) ont fait l'objet d'une publication en revue scientifique (Saey *et al.*, 2013).

Césium 137 dans le viande de bœuf (Bq/kg frais)

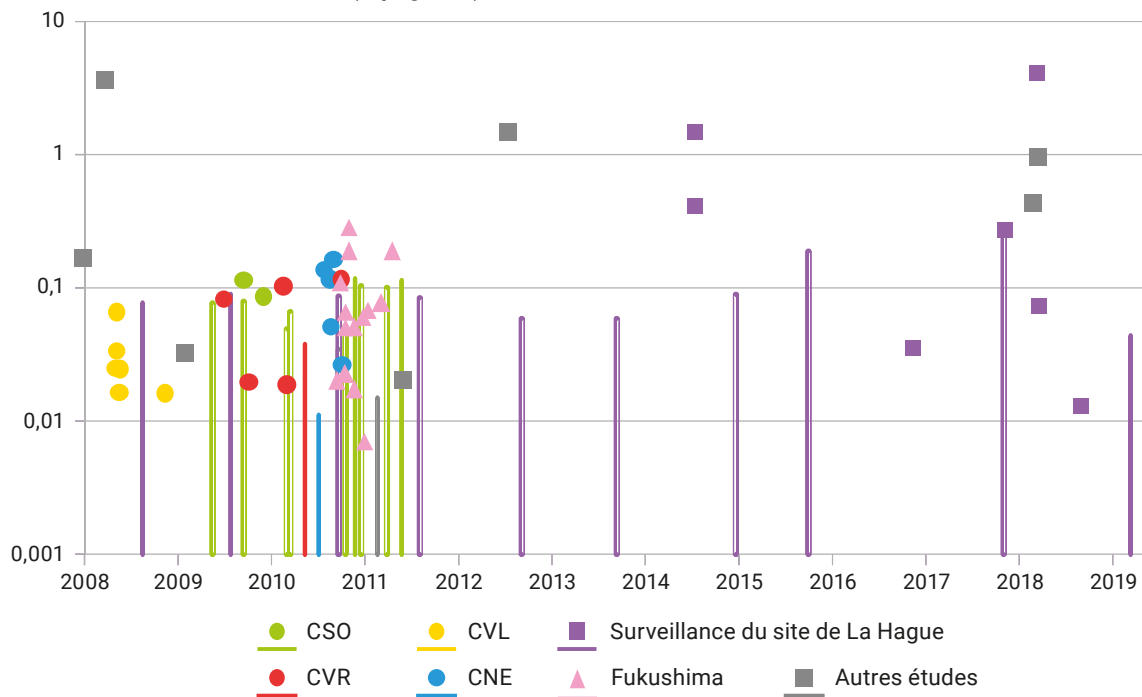


Figure 22. Activités massiques de césium 137, en Bq/kg frais, mesurées dans des échantillons de viandes de bœuf, de vache de réforme et de taureau collectés entre 2008 et 2019. Les « bâtons » représentent des seuils de décision.

Césium 137 dans différentes viandes (Bq/kg frais)

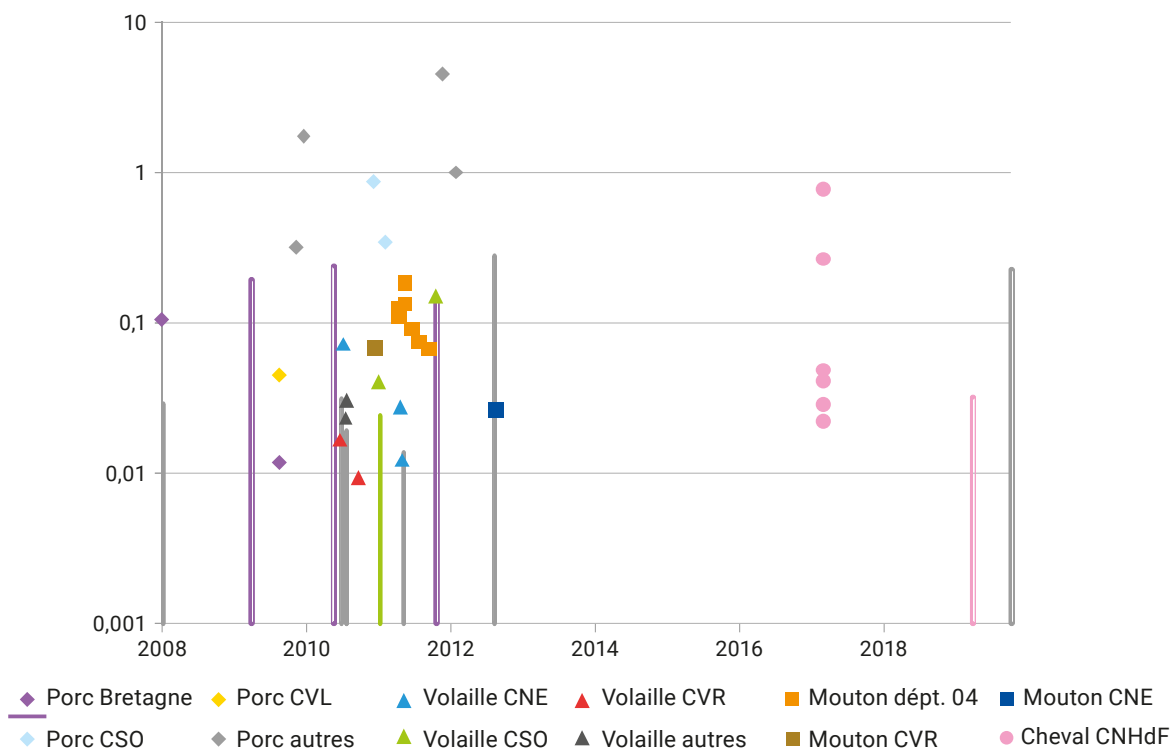


Figure 23. Activités massiques de césium 137, en Bq/kg frais, mesurées dans des échantillons de viandes de porc, de volaille, de mouton et de cheval collectés entre 2008 et 2019. Les « bâtons » représentent des seuils de décision.

Comme pour le lait, il est intéressant de noter que malgré les très grandes variabilités des activités observées et sans doute la très grande variabilité des pratiques d'alimentation des animaux, les activités de césium 137 observées dans la viande bovine et dans les herbages sont cohérentes ; elles sont compatibles avec la connaissance que l'on a des facteurs de transfert radioécologiques de ce radionucléide vers le lait⁽³²⁾.

Les autres viandes d'élevage

La plupart des résultats de mesure de l'activité de césium 137 dans des échantillons de viandes de porc, de volaille, de mouton et de cheval acquis par l'IRSN depuis 2008, l'ont été dans le cadre des constats radiologiques régionaux.

De manière générale, les activités massiques mesurées dans la viande de porc sont les plus élevées de toutes les viandes d'élevage ; notamment, elles sont de l'ordre de 10 fois plus élevées que celles des viandes bovines (une moyenne de 0,7 Bq/kg frais pour la viande de porc contre une moyenne de 0,07 Bq/kg frais pour la viande bovine). Ceci s'explique principalement par le fait qu'à contamination identique de leurs aliments, le césium 137 est beaucoup plus transféré vers la viande de porc que vers la viande bovine (de l'ordre de 10 fois plus ; cf. IAEA, 2010). Ces activités élevées s'accompagnent d'une grande variabilité (entre 0,01 et 4 Bq/kg frais) liée à celle des pratiques d'alimentation de ces animaux suivant le type et notamment la taille de l'élevage.

(32) Ainsi, la consommation quotidienne de 50 kg d'herbe fraîche par jour dont la teneur en césium serait de l'ordre de 0,1 Bq/kg frais (0,5 Bq/kg sec dans la figure 12 page 22) conduirait à une activité massique théorique de la viande de l'ordre de 0,1 Bq/kg frais en utilisant la valeur du facteur de transfert de 0,02 Bq/kg par Bq/j indiquée par l'AIEA (IAEA, 2010) ; cette activité volumique théorique est très proche de la moyenne des activités mesurées dans la viande échantillonnée au cours des 10 dernières années qui est de 0,07 Bq/kg frais.

Les activités les plus faibles concernent la volaille (poulet, poule, canard) : de 0,01 à 0,1 Bq/kg frais avec une moyenne de 0,04 Bq/kg frais. Ceci s'explique par leur alimentation. Les aliments donnés aux volailles et notamment les dérivés céréaliers (grains) ont des teneurs en césium 137 plus faibles (de l'ordre de 10 à 100 fois plus faibles) que les herbages ou ensilages donnés aux bovins ; ceci compense le fait que le facteur de transfert du césium 137 à la viande de volaille est de l'ordre de 100 fois plus élevé que celui de la viande de bœuf (IAEA, 2010). Il en résulte que les activités massiques des viandes de bœuf et de volaille sont du même ordre.

Les résultats acquis spécifiquement lors du constat régional « Normandie et Hauts-de-France » montrent que le transfert du césium à la viande de cheval est potentiellement plus important que celui aux viandes de bœuf ou de mouton. En effet, avec des activités de l'ordre de 0,1 à 2 Bq/kg frais pour une moyenne de 0,6 Bq/kg frais, les activités mesurées dans deux des échantillons de viande de cheval provenant de zones peu touchées par les retombées de l'accident de Tchernobyl, se situent parmi les plus élevées mesurées dans de la viande bovine française au cours des 10 dernières années et peuvent atteindre celles des échantillons de viande de bœuf issues des zones où la rémanence de ces retombées est la plus forte. Enfin, la viande de mouton a fait l'objet comme la viande de bœuf, d'un suivi en 2011 après les retombées de l'accident de Fukushima (Saey *et al.*, 2013).

La viande de gibiers

Depuis l'accident de Tchernobyl, le gibier, comme les autres denrées forestières, est connu pour conserver durant des décennies des niveaux de contamination élevés en césium 137. Ce constat a été confirmé après l'accident de Fukushima. À partir de 1996, des campagnes de prélèvement et d'analyse de viandes de gibiers ont été réalisées par l'IRSN. Ces campagnes, réalisées parallèlement aux études des dépôts radioactifs sur la France, ont permis d'identifier les zones du territoire présentant les activités massiques de césium 137 les plus élevées (figure 24). Après quelques analyses réalisées dans le cadre des constats radiologiques régionaux (Val de Loire, Vallée du Rhône et Sud-Ouest notamment) le constat radiologique sur les zones de forte rémanence des retombées de l'accident de Tchernobyl et des essais nucléaires, réalisé entre 2013 et 2014, a permis d'obtenir un nombre plus conséquent de données sur les zones les plus touchées des Vosges, de Corse et du Mercantour (zones d'altitude des Alpes-Maritimes). Un suivi périodique a ensuite été effectué avec notamment une campagne en 2016-2017 puis en 2019.

Activités massiques de césium 137 (Bq/kg frais)

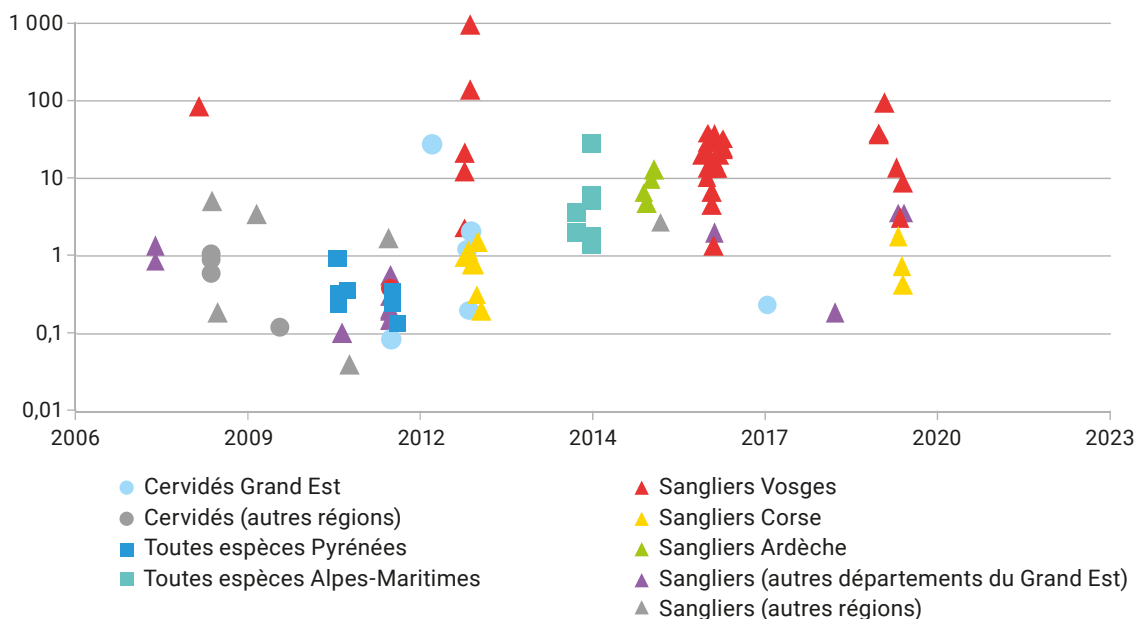


Figure 24. Activités massiques de césium 137, en Bq/kg frais, mesurées par l'IRSN dans des échantillons de viandes de gibiers collectés entre 2008 et 2019.

Ces résultats qui sont à plus de 96 % au-dessus des seuils de décision (les résultats non significatifs n'ont pas été représentés sur le graphique), confirment que les activités de césium 137 dans les viandes de gibiers peuvent être jusqu'à 10 000 fois plus élevées que celles des animaux d'élevage. Ceci résulte de concentrations en césium 137 dans leur nourriture plus élevées, liées à une plus grande biodisponibilité de ce radionucléide en milieu naturel et notamment en milieu forestier (Renaud, 2019). Avec des valeurs dépassant régulièrement 10 Bq/kg et atteignant ponctuellement 900 Bq/kg, les niveaux de contamination des sangliers des zones des Vosges les plus touchées par les retombées de l'accident de Tchernobyl, sont les plus élevés que l'on puisse mesurer dans des denrées produites en France. Bien qu'issus de zones également fortement touchées en 1986, les gibiers de Corse et du Mercantour présentent des activités massiques moindres : entre 1 et 30 Bq/kg frais dans le cas du Mercantour et entre 0,2 et 2 Bq/kg frais dans le cas de la Corse. Ceci résulte d'une plus faible rétention du césium 137 dans les sols de ces régions par rapport aux sols des Vosges.

De manière générale, à activités de césium 137 similaires dans les sols, les activités massiques de ce radionucléide dans la viande de sanglier sont plus élevées que celles des autres gibiers. Ce constat a été fait dans toutes les zones touchées par les retombées des accidents de Tchernobyl et de Fukushima. Ceci s'explique par le fait qu'une partie de l'alimentation des sangliers est constituée de larves, de racines et de tubercules enfouis dans la terre alors que les cervidés se nourrissent principalement de végétaux. Par ailleurs, il faut signaler qu'une importante variabilité saisonnière liée à l'alimentation a été observée lors d'études spécifiques pour les grands gibiers (sangliers et cervidés) ; les activités de césium 137 de la viande des animaux abattus en automne peuvent être jusqu'à 10 fois plus élevées que celle des animaux abattus au printemps (Renaud *et al.*, 2007).

Les champignons

Comme la viande de gibier, dans tous les territoires touchés par les retombées des accidents de Tchernobyl et de Fukushima, les champignons se caractérisent par la persistance durant des décennies de niveaux de contamination élevés en césium 137. Outre la forte disponibilité du césium en milieu forestier déjà évoquée pour le gibier, s'ajoute le fait que le mycélium d'un champignon se développe à faible profondeur dans les sols (donc dans la couche qui contient l'essentiel du césium) et de manière très étendue (pouvant atteindre quelques dizaines de mètres carrés). Par ailleurs, les teneurs en césium 137 des champignons présentent une variabilité extrêmement forte même à l'échelle très locale⁽³³⁾.

Les résultats des mesures effectuées par l'IRSN dans le cadre de la surveillance radiologique de l'environnement et notamment dans celui du constat régional dédié aux zones de rémanence élevée des retombées anciennes, présentés dans la figure 25, illustrent cette persistance de niveaux de contamination très élevés avec des activités massiques moyennes de quelques dizaines à plus de 100 Bq/kg frais, soit 100 à 10 000 fois plus élevées que celles des denrées issues de l'agriculture et de l'élevage. De plus, la variabilité est très importante avec des activités massiques s'étalant sur 3 voire 4 ordres de grandeur. Cette variabilité qui masque en partie les différences interrégionales. Ainsi, les activités des champignons provenant de l'ouest du territoire ne sont pas différenciables de celles des champignons prélevés dans l'est. C'est cependant dans les zones de rémanence élevée des retombées de l'accident de Tchernobyl que l'on peut trouver le plus fréquemment les plus hauts niveaux de contamination (supérieurs à 100 Bq/kg frais).

(33) Cette variabilité est due, d'une part à la forte hétérogénéité de la contamination des sols liée à celle des dépôts pluvieux initiaux (phénomènes de ruissellement) et d'autre part à la profondeur du mycélium au regard de la profondeur d'enfouissement du césium. Par ailleurs, certaines espèces qui vivent en symbiose avec un végétal supérieur (arbre ou arbuste) peuvent « accumuler » le césium 137 par échanges de nutriments avec le végétal hôte.

Césium 137 dans les champignons (min max, et moyennes en Bq/kg frais)

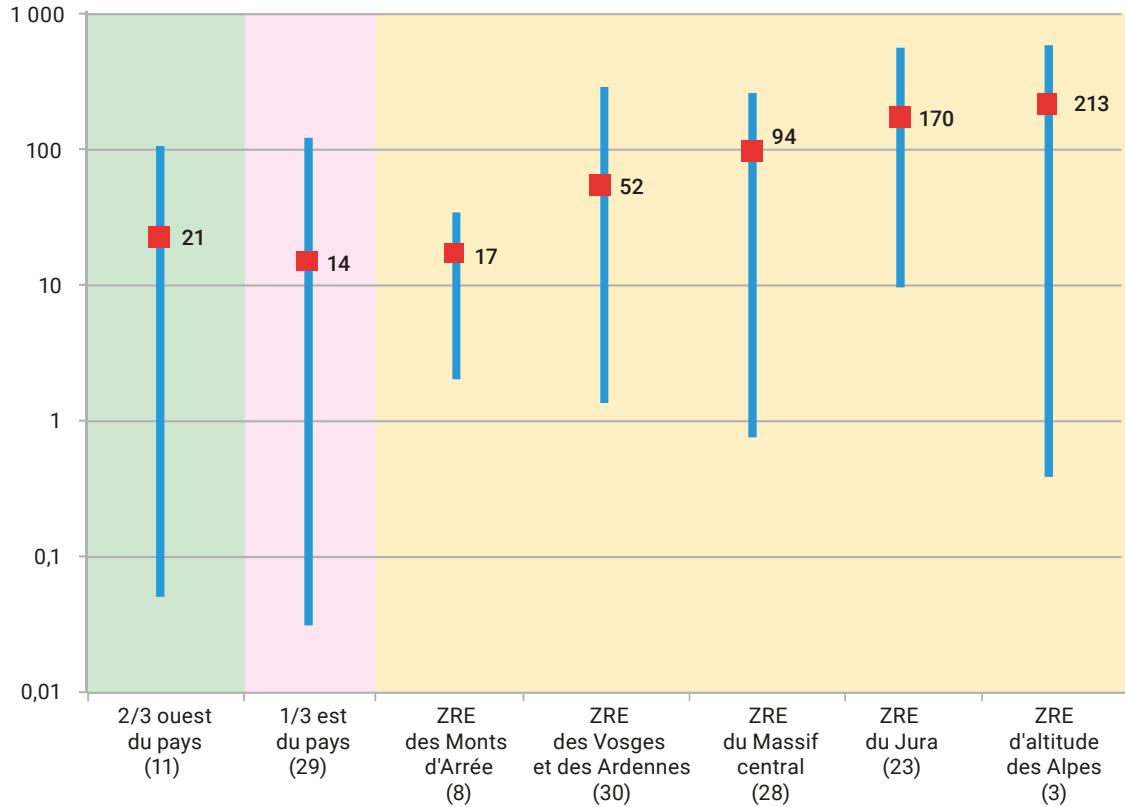


Figure 25. Activités massiques de césium 137, min max, et moyennes en Bq/kg frais, mesurées dans des échantillons de champignons prélevés en France entre 2008 et 2018.



Traitement de champignons pour analyse
(Constat radiologique régional « Zones de rémanence élevée »).

3 5 LE CÉSIIUM 137 EN MILIEU AQUATIQUE CONTINENTAL

Comportement et évolution au cours des dernières décennies

Le césium 137 présent dans les eaux de surface continentales, hors de l'influence des rejets d'une installation nucléaire, provient du drainage des sols. Les concentrations dans ce milieu dépendent donc de celles des sols du bassin versant. Les apports sont constitués soit de particules de sol sur lesquelles le césium est fixé, soit de césium sous forme dissoute.

Dans les eaux douces de surface (cours d'eau, lacs...), le césium se trouve sous ces deux formes dissoutes⁽³⁴⁾ (dans l'eau filtrée) et particulaires (fixé à des matières en suspension ou des sédiments). Si on excepte les quelques jours à semaines qui ont suivi les dépôts consécutifs à l'accident de Tchernobyl durant lesquels le césium 137 était très majoritairement sous forme dissoute sous influence directe des dépôts pluvieux, les apports au milieu aquatique continental sont principalement constitués de particules de sol. De plus, en eau douce, le césium a une forte propension à se fixer aux particules en suspension ; quelle que soit la situation hydrologique (vitesse de l'eau, étiage, crue...) la forme particulaire est largement prédominante. Il en résulte que l'activité volumique de césium 137 d'une eau brute (fractions dissoute et particulaire) dépend de la teneur en matière en suspension (charge en mg/L) : l'activité volumique dans l'eau brute augmente lorsque la charge augmente. Mesurer les très faibles activités de césium 137 dans la fraction dissoute nécessite des prélèvements de très grands volumes (plusieurs mètres cubes) que seule permet en France, la Station Observatoire du Rhône en Arles (SORA ; Antonelli, 2015). Les activités moyennes mensuelles de césium 137 mesurées grâce à cette station, sur les particules en suspension du Rhône d'une part, et dissous dans l'eau d'autre part, montrent que 60 % à 70 % du césium 137 qui transite dans le Rhône se trouvent fixés à des matières en suspension (les 30 % à 40 % restant étant dissouts dans l'eau) (Eyrolle, 2020).

En mai 1986, les activités volumiques mensuelles de césium 137 mesurées dans les eaux des fleuves de l'est de la France ont été de quelques dizaines de mBq/L (principalement sous forme dissoute comme indiqué précédemment). Ces activités volumiques ont été moyennées sur le mois et nous ne disposons pas de données sur les activités quotidiennement atteintes, notamment les plus élevées des premiers jours de mai 1986. Elles étaient probablement du même ordre que celles mesurées dans des pays voisins où les dépôts ont été similaires : autour de 1 Bq/L⁽³⁵⁾ dans la première décade de mai 1986 (Foulquier et Baudin-Jaulent, 1989). Les activités volumiques de césium 137 ont ensuite rapidement baissé au cours des jours suivants, avant que cette diminution ne soit ralentie par les apports de césium 137 encore très labile lié au drainage des bassins versants. Les résultats ponctuels (non moyennés) les plus précoces mesurés en France sont de 18 mBq/L le 23 juin 1986 dans le Tavignano en Corse et 50 mBq/L dans la Moselle le 23 juillet 1986. Dans les eaux brutes du Rhône aval qui recevait des apports de césium 137 provenant de rejets des installations nucléaires beaucoup plus importants qu'aujourd'hui (notamment du site de Marcoule), les activités volumiques sont passées de l'ordre de 20 mBq/L mesurés jusqu'en avril fin 1986 à 74 mBq/L du 25 avril au 5 mai 1986, puis de 30 à 80 mBq/L dans les mois suivants.

La fixation du césium sur les particules en suspension puis la sédimentation de celles-ci ont ensuite amené une diminution progressive des activités dans les eaux. Toutefois, dans les petits cours d'eau des zones les plus touchées comme le Cavalet dans le Mercantour, des activités volumiques de césium 137 de 30 mBq/L étaient encore mesurables en octobre 1987 et de 3 mBq/L en juillet 1995.

Les activités volumiques de césium 137, mesurées dans les eaux lacustres après l'accident de Tchernobyl, ont été extrêmement variables en fonction de l'importance locale des retombées et aussi de la configuration des lacs (notamment le rapport surface/volume) et de leurs rives. Les activités les plus élevées ont atteint quelques centaines de mBq/L à 1 000 mBq/L, voire 10 000 mBq/L (lacs du sud de la Bavière durant la première semaine de mai 1986). Il en a probablement été ainsi pour les petits lacs d'altitude des Alpes françaises.

(34) En radioécologie, on considère que la fraction particulaire est celle fixée sur des particules de diamètre supérieur à 0,45 µm. Ainsi, la fraction de césium 137 fixée sur des particules plus fines (les colloïdes de quelques nm à 0,45 µm) est assimilée à la fraction dissoute (eau filtrée).

(35) Les activités volumiques de césium 137 ont été de 0,35 Bq/L dans les eaux du Pô entre le 4 mai et le 7 mai 1986 (essentiellement sous forme dissoute), entre 0,4 et 2 Bq/L dans la Glatt en Suisse entre le 2 mai et le 20 mai, de 0,5 à 1 Bq/L dans plusieurs cours d'eau du Royaume-Uni, de 1 Bq/L également dans la Moselle en Allemagne entre le 30 avril et le 7 mai 1986, et 2 Bq/L dans le Rhin allemand durant cette même période.

Les sédiments sont des particules en suspension qui se sont déposées car la dynamique du cours d'eau (vitesse notamment) ne permettait plus leur suspension ; ils peuvent être repris dans le flux d'eau dès lors que cette dynamique redevient suffisante. De manière générale, en l'absence d'informations permettant de juger du « passé » d'un échantillon de sédiment, sa représentativité peut être sujette à caution et l'interprétation du résultat de mesure délicate. Toutefois, hors influence des rejets d'une installation nucléaire, la teneur en césium 137 d'un échantillon de sédiment « de surface⁽³⁶⁾ » est principalement liée à l'activité des sols du bassin versant amont et à la granulométrie ; les sédiments les plus fins ayant une plus forte propension à fixer le césium. La comparaison d'activités massiques mesurées dans des sédiments n'est donc vraiment pertinente que si leur granulométrie est connue et permet de corriger les activités massiques mesurées (Vray *et al.*, 2005). En l'absence de cette correction, la comparaison est très limitée.

En 1986, les activités massiques de césium 137 dans les sédiments des fleuves drainant les bassins versants les plus touchés par les retombées de l'accident de Tchernobyl comme la Moselle (en amont de Cattenom), la Meuse (en amont de Chooz), le Rhône (en amont de Creys-Malville), le Var (ainsi que la Tinée et la Vésubie), les fleuves de la côte orientale de la Corse (Fiumorbo, Tavignano, Golo) ont avoisiné, voire dépassé 100 Bq/kg sec. Les valeurs les plus élevées mesurées par l'IRSN l'ont été dans le Golo : de 175 à 970 Bq/kg sec en juillet 1987. Dans le Rhône, l'activité la plus élevée de 306 Bq/kg sec a été mesurée dans un échantillon prélevé en juillet 1986 ; dans la Moselle, elle a été de 220 Bq/kg sec dans un échantillon prélevé en novembre 1986. En comparaison des fleuves de l'est de la France, les activités de césium 137 dans les sédiments de la Seine (en amont de Nogent-sur-Seine) et de la Loire (en amont de Belleville) n'ont pas dépassé 50 Bq/kg sec ; celles des échantillons de la Garonne, une dizaine de Bq/kg sec.

Les activités les plus élevées en France l'ont été dans des échantillons de sédiments prélevés dans le lac du Mercantour : jusqu'à 13 400 Bq/kg sec en novembre 1987 et encore 2 600 Bq/kg en juillet 1995.

Les activités de césium 137 dans les sédiments ont ensuite diminué⁽³⁷⁾, plus vite dans les cours d'eau que dans les lacs. Les valeurs moyennes sur la période 2003-2006 ont été estimées à 12 Bq/kg dans les cours d'eau de l'est du Pays et à 5 Bq/kg dans ceux situés plus à l'ouest (Eyrolle, 2008).

Le césium 137 est aussi présent dans d'autres composantes du milieu aquatique continental. Il est en effet transféré aux végétaux aquatiques par voie foliaire (adsorption du césium dissous dans l'eau ou fixé sur une particule déposée) et par voie racinaire depuis les sédiments de fond. Les contributions respectives de ces deux voies de transfert sont mal connues. Mais leur intensité est suffisante (comme en milieu terrestre le césium est un analogue chimique du potassium) pour faire des plantes aquatiques un bon indicateur biologique du niveau de césium 137 dans les cours d'eau.

Avant l'accident de Tchernobyl, les activités massiques de césium 137 dans les plantes aquatiques prélevées dans les grands cours d'eau français en amont des installations nucléaires étaient comprises entre 1 et 10 Bq/kg sec, en rémanence des retombées des essais nucléaires. La figure 26 montre qu'elles ont brutalement augmenté et dépassé 10 Bq/kg sec avec un « pic » de plus d'un an, entre juillet 1986 et juillet 1987 et des maxima mesurés de l'ordre de 100 à 220 Bq/kg sec dans la Meuse, la Moselle et le Rhône. Des activités du même ordre ont été mesurées dans le fleuve Var et dans les fleuves de Corse orientale (jusqu'à 500 Bq/kg sec en 1986). Comme pour les eaux et les sédiments, les activités les plus élevées ont été mesurées dans des mousses aquatiques du lac du Mercantour : 7 350 Bq/kg sec en novembre 1987 et 6 084 Bq/kg sec en juillet 1995. Les activités ont ensuite diminué pour se retrouver essentiellement en dessous de 10 Bq/kg sec au début des années 1990. Une diminution plus lente est observée depuis. Les résultats disponibles pour la Loire et la Seine à partir du début des années 1990 montrent que ces cours d'eau situés plus à l'ouest ont été moins touchés, en cohérence avec l'importance relative des dépôts radioactifs sur les bassins versants. Sur la période 2003-2006, les moyennes se situaient entre 2 Bq/kg sec à l'ouest du pays et 4 Bq/kg sec dans l'Est (Eyrolle, 2008).

(36) Les méthodes de prélèvement les plus courantes (cône de Berthois, pelle à main...) permettent de disposer d'échantillons déposés depuis quelques mois à quelques années ; seuls des prélèvements plus profonds obtenus par carottage peuvent théoriquement concerner des sédiments plus anciens, déposés par exemple avant l'accident de Tchernobyl.

(37) Il est difficile de se prononcer sur la cinétique de cette diminution car l'hétérogénéité granulométrique des échantillons prélevés brouille la perception que l'on peut en avoir au travers des résultats bruts. Sur la base d'une correction qui permet de ramener les activités mesurées à celles d'un échantillon de granulométrie standard, la diminution aurait été d'un facteur 4 à 10 au cours des 15 années suivantes (périodes effectives de diminution de 4 à 8 ans ; Vray *et al.*, 2005).

Césium 137 dans les plantes aquatiques des cours d'eau (Bq/kg sec)

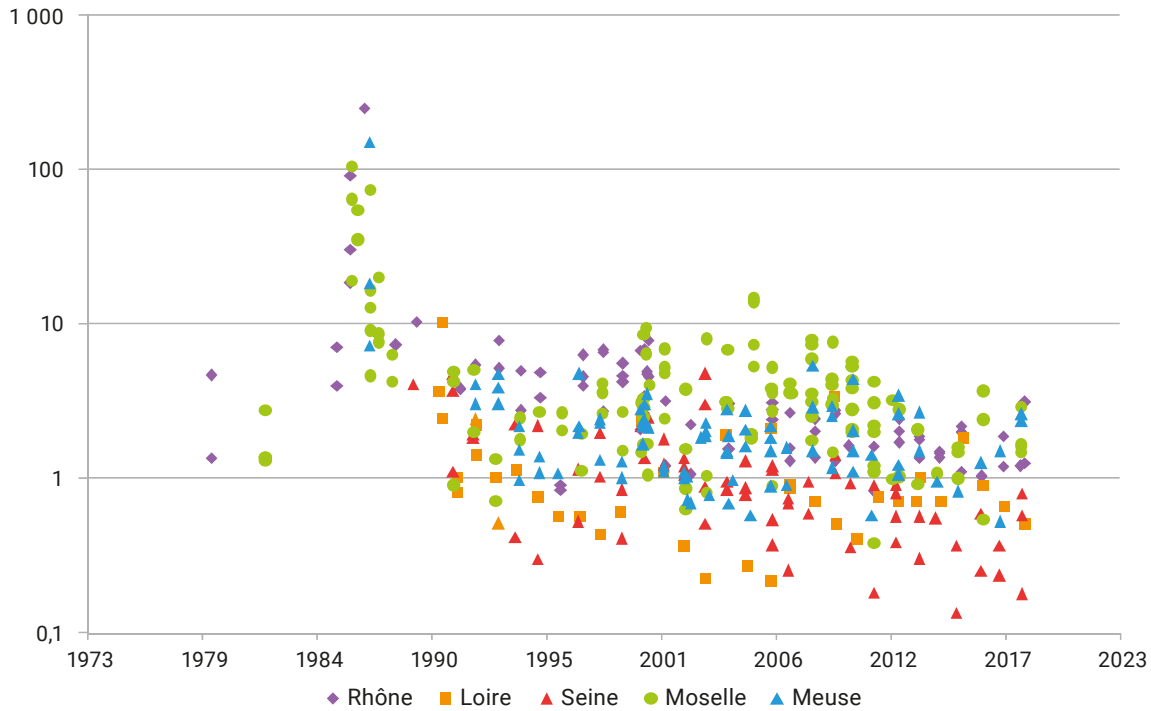


Figure 26. Activités massiques de césium 137 (en Bq/kg sec) mesurées dans des plantes aquatiques prélevées en amont (de toutes les installations nucléaires) de grands cours d'eau français de 1979 à 2018.

Le césium présent en milieu aquatique est aussi transféré aux poissons, principalement par ingestion, l'apport branchial étant négligeable. Néanmoins, la teneur en césium 137 des poissons est usuellement déterminée en radioécologie par rapport à celle de l'eau brute par un facteur de concentration qui varie entre quelques centaines et quelques milliers de Bq/kg de chair de poissons par Bq/L d'eau (valeur moyenne de 300 Bq/kg frais par Bq/L d'eau). De ce fait, bien que les activités volumiques de césium 137 dans l'eau qui relèvent du bruit de fond hérité des retombées anciennes soient très faibles et difficilement mesurables, les activités de ce radionucléide dans les poissons des cours d'eau sont le plus souvent mesurables encore aujourd'hui.

Dans les années 1970, les teneurs en césium 137 des poissons du Rhône, de la Moselle et de la Seine étaient de l'ordre de 0,1 à 1 Bq/kg frais. Ces ordres de grandeur sont probablement représentatifs de tous les grands cours d'eau français à cette époque. Après l'accident de Tchernobyl, les activités de césium 137 mesurées dans des poissons de cours d'eau ont dépassé 1 Bq/kg frais avec un maximum de 17 Bq/kg frais mesuré entre mai 1986 et 1989. Elles ont ensuite diminué de 5 à 10 fois jusqu'au début des années 2000 avant de baisser plus lentement par la suite (figure 27). Dans les rivières du nord de la Corse, des activités plus élevées ont été mesurées en 1986 et 1987, jusqu'à 120 Bq/kg (Descamps et Baudin-Jaulent, 1988).

Césium 137 dans les poissons des cours d'eau (Bq/kg frais)

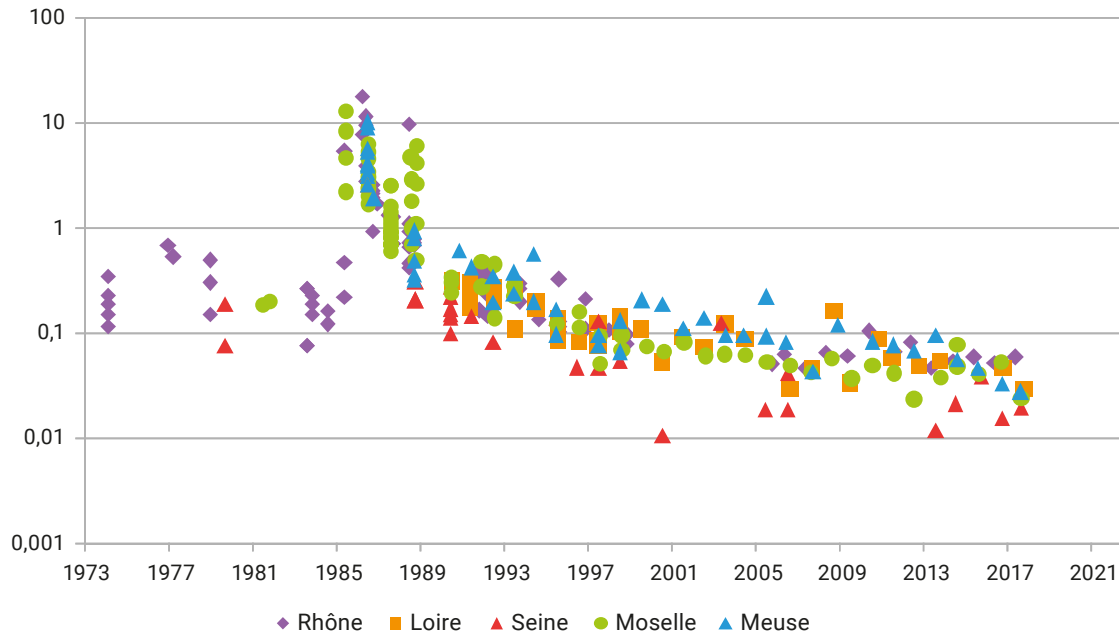


Figure 27. Activités massiques de césium 137 (en Bq/kg frais) mesurées dans des échantillons de poissons prélevés en amont (de toutes les installations nucléaires) de grand cours d'eau français de 1973 à 2018.

Activités de césium 137 sur la période 2008-2019

Les eaux douces de surface

Les activités de césium 137 relevant du bruit de fond hérité des retombées anciennes sont extrêmement faibles dans les eaux douces continentales ; dans les eaux brutes (fraction dissoute et fraction particulaire) elles sont inférieures, voire très inférieures à 0,001 Bq/L. Elles sont encore plus faibles dans les eaux filtrées (fraction dissoute, voir paragraphe « Comportement et évolution au cours des dernières décennies »). Dans le cadre d'études spécifiques menées en 2011 et 2017, le césium 137 dissout a été mesuré dans des prélèvements d'eau filtrée de l'Orb et de l'Hérault ; elles sont de l'ordre de 0,1 mBq/L. Des activités similaires ont été mesurées dans les eaux filtrées prélevées dans le Rhône en amont du site de Creys-Malville : 21 résultats significatifs entre 2001 et 2012 dans une gamme allant de 0,02 à 0,49 mBq/L pour une moyenne de 0,09 mBq/L.

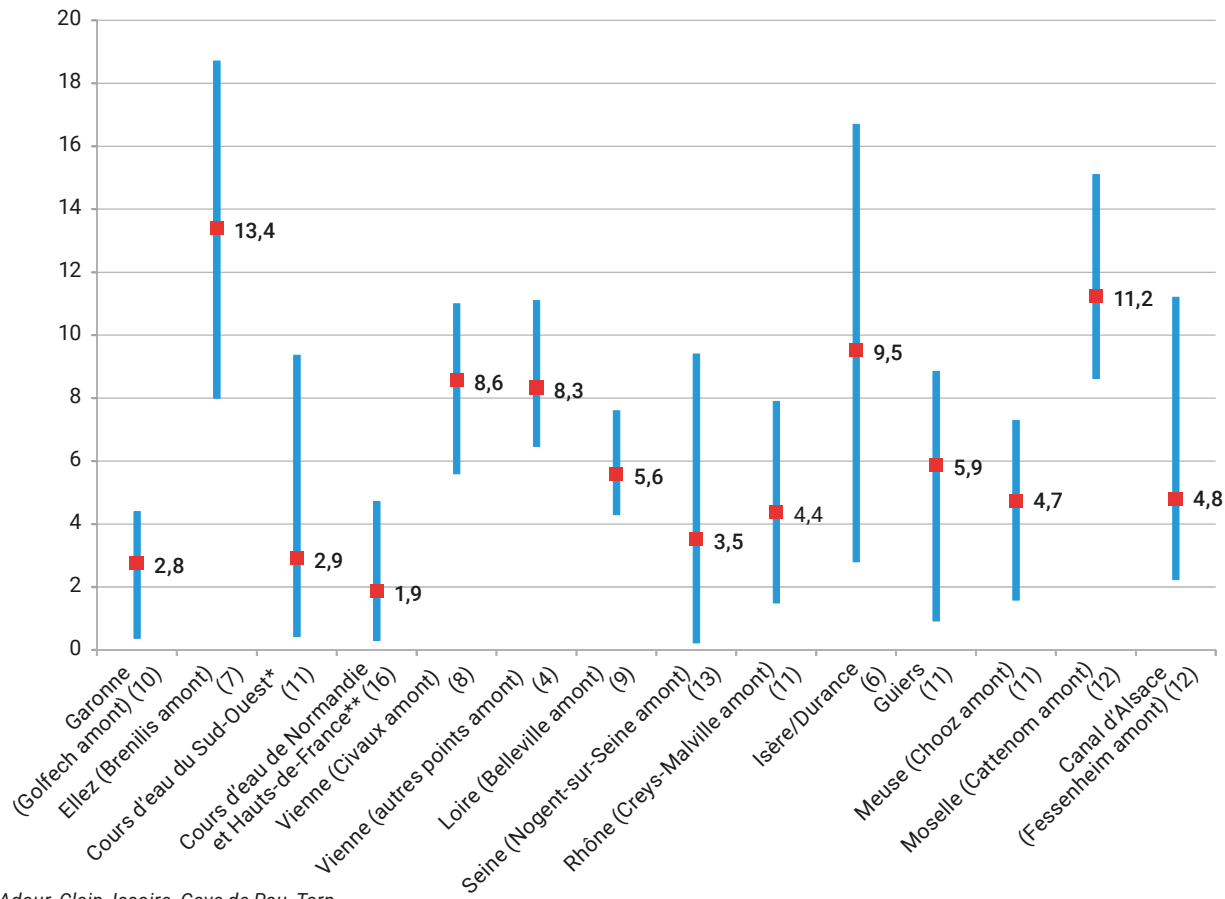
Les activités volumiques de césium 137 comprises entre 0,7 et 1,7 mBq/L mesurées en 2013 dans les eaux de 4 des 6 lacs d'altitude du Mercantour échantillonnées dans le cadre du constat sur les zones de rémanence élevée des retombées anciennes, sont probablement les plus élevées qui puissent

être mesurées actuellement en France hors influence des rejets d'une installation nucléaire. Elles sont toutefois légèrement inférieures à celles qui avaient été mesurées en 2005 dans ces mêmes lacs (IRSN, 2016).

Les sédiments

Les analyses de sédiments réalisées dans le cadre des plans de surveillances réglementaires des exploitants nucléaires et dans celui de l'IRSN, portent principalement sur des échantillons prélevés en aval des points de rejet des installations. Toutefois, la surveillance complémentaire effectuée par l'IRSN et Subatech pour EDF comporte des analyses en amont des CNPE qui sont représentatives du bruit de fond du césium 137 hérité des retombées anciennes (et notamment en amont des sites de Creys-Malville et de Belleville-sur-Loire qui sont situés les plus en amont sur le Rhône et la Loire). Les résultats disponibles portent donc essentiellement sur les grands cours d'eau. C'est pourquoi, des échantillons de sédiments ont été prélevés dans plusieurs cours d'eau de moindres débits dans le cadre des constats radiologiques « Sud-Ouest » (Adour, Gave de Pau, Issoire, Clain, Tarn) et « Normandie et Hauts-de-France » (17 cours d'eau dont la liste est fournie sous la figure 28). La quasi-totalité des analyses concernées relatives à la période 2008-2019 ont donné des résultats significatifs ; la figure 28 présente les 141 résultats correspondants.

Césium 137 dans les sédiments (Bq/kg sec)



* Adour, Clain, Issoire, Gave de Pau, Tarn.

** Durdent, Arques, Yères, Deule, Lys, Sambre, Flamenne, Eure, Dielette, Sée, Divette, Orne, Oise, Aisne, Scarpe, Risle.

Figure 28. Activités massiques de césium 137 (moyennes, min et max) dans les sédiments mesurés par l'IRSN dans des cours d'eau français depuis 2008 (Bq/kg sec).

Malgré la variabilité liée à celle de la granulométrie, les activités massiques de césium 137 dans les sédiments français reflètent dans une certaine mesure la répartition géographique des retombées anciennes. Les valeurs les plus faibles, comprises entre 2 et 4 Bq/kg sec, concernent les cours d'eau qui drainent les bassins versants les moins touchés par les retombées anciennes (Sud-Ouest, Normandie, Hauts-de-France, Seine) à l'exception de l'Ellez (moyenne de 13 Bq/kg sec) qui draine une zone de rémanence élevée des retombées des essais nucléaires (voir la figure 7 page 18) et de la Vienne dont certains affluents drainent des zones de rémanence élevée du Massif central. On peut noter que les résultats acquis sur la Vienne en amont de Civaux (moyenne de 8,6 Bq/kg sec) sont très proches de ceux acquis, dans le cadre du constat « Sud-Ouest », en d'autres points du cours de cette rivière (8,3 Bq/kg sec). Les activités massiques de césium 137 des sédiments des cours d'eau situés plus à

l'Est sont comprises entre 4 et 11 Bq/kg sec. La Moselle qui draine, notamment via la Meurthe, les zones de rémanence élevée des Vosges présente les activités massiques les plus élevées (moyenne de 11 Bq/kg sec). Ces activités moyennes sont inférieures à celles estimées pour la période antérieure de 2003 à 2006 (Eyrolles *et al.*, 2005) (4,8 Bq/kg sec dans les sédiments de l'ouest du pays et 12,9 Bq/kg sec dans ceux de l'est), ce qui témoigne du fait que la baisse observée depuis l'accident de Tchernobyl se poursuit.

Les plantes aquatiques d'eau douce

Comme pour les sédiments, afin de compléter les données acquises sur les plantes aquatiques prélevées en amont des grands cours d'eau qui reçoivent les rejets des installations nucléaires, des analyses d'échantillons issus de plus petits cours d'eau ont été réalisées dans le cadre de constats radiologiques régionaux, le constat « Sud-Ouest » (le Gave de Pau, l'Adour, le Tarn), le constat « Normandie et Hauts-de-France » (La Divette, La Somme, La Flamenne, La Dielette, La Durdent, l'Yères) et le constat « Nord-Est » (L'Ignon), auxquels viennent s'ajouter des analyses portant sur l'Isère en amont du site de Framatome de Romans-sur-Isère. La plupart des résultats d'analyses sont significatifs et 217 résultats sur 282 analyses réalisées entre 2008 et 2018 sont présentés dans la figure 29. Comme pour les herbages, afin de s'affranchir de la variabilité liée à la teneur en eau au moment du prélèvement (malgré les précautions au conditionnement des échantillons, le dessèchement de ces végétaux est rapide et très variable), les résultats sont exprimés en Bq/kg sec. À titre d'information le rapport de masse frais/sec moyen sur ces échantillons est de l'ordre de 9.

De manière générale, les activités de césium 137 mesurées sont assez peu variables et les moyennes sont très proches mais reflètent encore la répartition géographique des retombées anciennes, notamment celles de l'accident de Tchernobyl : entre 0,4 et 1,3 Bq/kg sec pour les cours d'eau des 2/3 ouest du pays et entre 1,8 et 2,9 Bq/kg sec pour ceux de l'est du pays. Le fait que les moyennes générales de 0,9 Bq/kg sec dans les cours d'eau de l'ouest et de 2,4 Bq/kg secs dans ceux de l'Est, soient deux fois plus faibles que celles calculées sur la période 2003-2006 (Eyrolle, 2019), montre que la diminution des teneurs en césium 137 en milieu aquatique se poursuit. Notons enfin que les activités dans les cours d'eau de moindre débit étudiés dans le cadre des constats radiologiques régionaux ne se distinguent pas de ceux des grands cours d'eau.

Pour des raisons d'échelle, les activités de césium 137 mesurées dans des mousses aquatiques prélevées en 2013 dans six lacs d'altitude du Mercantour ne peuvent figurer dans le graphique de la figure 29 : 79 Bq/kg sec (lac de Vens inférieur), 173 Bq/kg sec (lac Besson), 306 Bq/kg sec (lac du Mercantour), 570 Bq/kg sec (lac des Terres Rouges) et 940 Bq/kg sec (lac Lausfer).

Césium 137 dans les plantes aquatiques (Bq/kg sec)

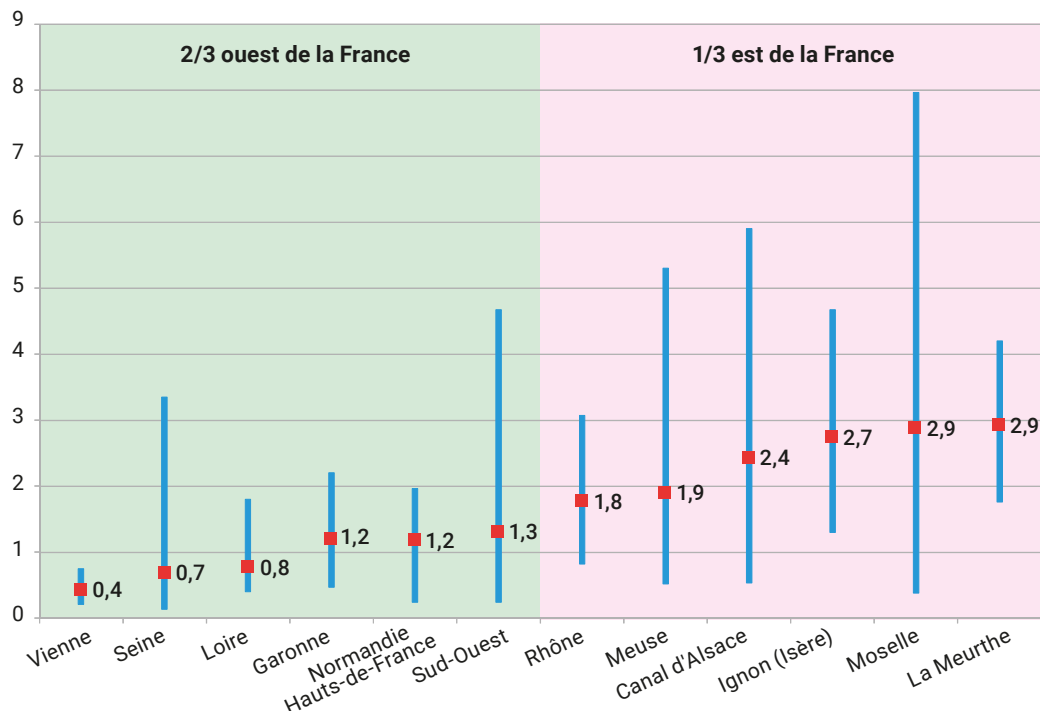


Figure 29. Activités massiques de césium 137 (min, max et moyennes en Bq/kg sec) mesurées dans des plantes prélevées dans des cours d'eau français et analysées par l'IRSN et Subatech entre 2008 et 2019.

Les poissons d'eau douce

Sur 123 analyses de poissons de cours d'eau réalisées entre 2008 et 2019 par l'IRSN dans le cadre de son plan de surveillance, et par l'IRSN et Subatech dans celui du suivi radioécologique autour des CNPE d'EdF, 99 ont fourni des résultats significatifs qui sont présentés dans la figure 30. Ces résultats portent essentiellement sur les grands cours d'eau en amont des installations nucléaires. Toutefois, des résultats sur de plus petits cours d'eau ont été acquis dans le cadre des constats radiologiques régionaux : la Durdent, la Douve, la Saire, la Risle, le canal de la Deule... (constat « Normandie et Hauts-de-France »), le Tavignano, le Golo, le Fiumorbo et le Tepe Rosse en Corse (constat relatif aux zones de rémanence élevée des retombées anciennes), ainsi que l'Ignon et l'Ornain (constat « Nord-Est »). À ces résultats, s'ajoutent ceux acquis sur des prélèvements de l'Ellez dans les Monts d'Arrée. Contrairement aux plantes aquatiques, aucune distinction géographique liée à l'importance des retombées

anciennes ne peut être faite pour les poissons des cours d'eau dont les activités massiques moyennes sont comprises entre 0,02 et 0,1 Bq/kg frais à l'est comme à l'ouest. C'est également vrai pour les petits cours d'eau ; il n'y a par exemple pas de différence entre les activités des poissons prélevés en Normandie et dans le nord de la France et ceux prélevés sur des zones du Grand Est ou en Corse plus touchées par les retombées de l'accident de Tchernobyl. On note toutefois le cas des poissons de la Vienne en amont de Civaux, qui, avec une teneur moyenne de césium 137 de 0,23 Bq/kg frais, se distinguent de ceux des autres cours d'eau. Cette activité plus élevée des poissons de la Vienne est à relier à celle également plus élevée observée dans les sédiments de cette rivière dont certains affluents drainent des zones de rémanence élevée du Massif central (voir figures 2 et 3). Enfin, les 7 résultats significatifs obtenus sur des poissons prélevés dans le lac de Saint-Pardoux, illustrent le fait que les poissons lacustres ont souvent des teneurs en césium 137 nettement plus élevées que celles des poissons de cours d'eau.

Césium 137 dans les poissons d'eaux douces (Bq/kg frais)

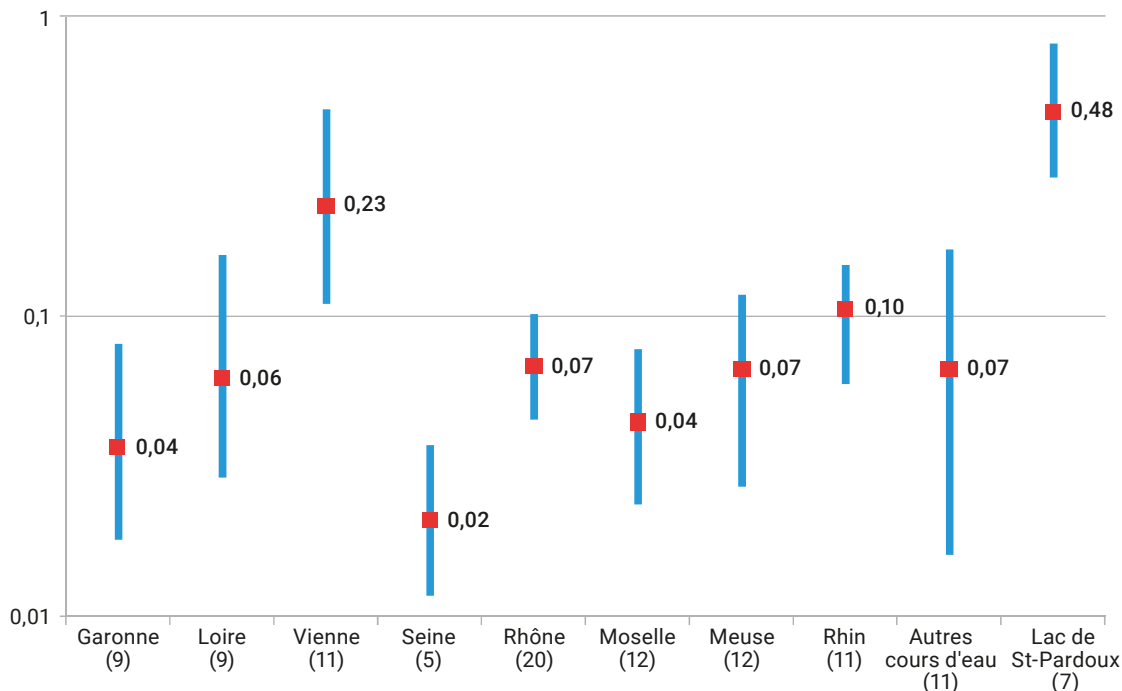


Figure 30. Activités massiques de césium 137 (min, max et moyennes en Bq/kg frais) mesurées dans des échantillons de poissons d'eau douce analysés par l'IRSN et Subatech entre 2008 et 2019. Le nombre de résultats de mesure est entre parenthèses.

3 6 LE CÉSIMUM 137 EN MILIEU MARIN

Comportement et évolutions au cours des dernières décennies

Le césium 137 présent en milieu marin provient d'une part des dépôts radioactifs qui ont eu lieu lors des retombées atmosphériques des essais nucléaires et de l'accident de Tchernobyl, à la surface des mers et océans qui bordent la France métropolitaine (apports dissous principalement), et d'autre part du drainage des sols *via* les apports fluviaux et diffus sur les côtes (apport particulaire principalement). La Seine, la Loire, la Garonne et surtout le Rhône⁽³⁸⁾, apportent aussi en milieu marin le césium 137 provenant des rejets liquides des installations nucléaires. Enfin, les CNPE de Flamanville, Paluel, Penly et Gravelines, et surtout des installations du site de La Hague, rejettent des effluents liquides en Manche.

Contrairement aux eaux douces, le césium est présent dans l'eau de mer essentiellement sous forme dissoute. La fraction du césium associée aux particules en mer est minoritaire (moins de 10 % en zone côtière en général quoique souvent beaucoup plus forte aux embouchures). La sédimentation des particules fait qu'une partie du césium présent dans la colonne d'eau se retrouve, à terme, dans les sédiments de fond. La distribution du césium entre les phases liquide et solide, est principalement liée à la proportion de sédiments argileux (fins), le césium se fixant surtout sur la fraction fine du sédiment. Ainsi, des stocks sédimentaires de césium 137 ayant les deux origines (retombées atmosphériques anciennes et rejets des installations nucléaires fluviales) se sont constitués au débouché des fleuves⁽³⁹⁾.

Le césium est transféré aux organismes marins par adsorption sur le phytoplancton et par adsorption et absorption (*via* l'ingestion notamment) pour les autres organismes, du zooplancton aux grands prédateurs, avec une tendance à l'augmentation des concentrations lorsqu'on s'élève dans la chaîne alimentaire (légère amplification trophique).

En avril 1986, avant l'accident de Tchernobyl, les activités volumiques de césium 137 dans les eaux filtrées de surface

des côtes méditerranéennes françaises (Corse incluse) étaient comprises entre 1 et 4 mBq/L (Calmet *et al.*, 1992) ; cette activité résultait essentiellement de la rémanence des retombées des essais nucléaires dans ce milieu. En novembre 1986, elles étaient comprises entre 3 et 8 mBq/L atteignant 11 mBq/L sur le littoral de Corse Orientale où les retombées de cet accident ont été les plus importantes de France, en raison des apports directs mais aussi indirects par les fleuves côtiers et les apports diffus depuis les terres. En juillet 1987, ces activités avaient diminué pour être comprises entre 3 et 6 mBq/L. À l'embouchure du Rhône, sous influence des eaux du fleuve marquées par les rejets des installations nucléaires, les activités en césium 137 des eaux de surface marines qui se situaient entre 4 et 15 mBq/L avant l'accident, ont atteint un maximum 25 mBq/L en septembre 1986.

Les activités massiques des sédiments de surface à l'embouchure des fleuves côtiers, qui étaient de l'ordre de quelques Bq/kg sec avant l'accident de Tchernobyl (entre 3 et 10 Bq/kg sec entre septembre 1985 et avril 1986), ont augmenté pour se trouver à quelques dizaines de Bq/kg sec (30 Bq/kg dans le golfe de Valinco en Corse, et 40 Bq/kg sec au débouché de l'Argens [près de Fréjus] et jusqu'à 100 Bq/kg sec au débouché du Var [Saint-Laurent-du-Var]).

Les organismes filtreurs (moules et huîtres) dont l'alimentation est liée à des apports terrigènes ont été les denrées marines dont les teneurs en césium 137 ont été les plus influencées. Ainsi, au début de l'année 1986, les activités de césium 137 dans les moules de Méditerranée hors influence rhodanienne (à l'est du débouché du Rhône), étaient de l'ordre de 0,1 Bq/kg frais ; fin mai 1986, elles étaient plus de 10 fois supérieures, de l'ordre de quelques Bq/kg frais. Après une rapide diminution, leur activité massique était revenue dès le début des années 1990, à ce qu'elle était avant l'accident. La figure 31 présente l'évolution qu'elles ont ensuite suivie de 1992 à 2015 (IRSN, 2020) : une diminution assez rapide qui s'est poursuivie jusqu'au début des années 2000, plus lente par la suite.

Les teneurs en césium 137 des poissons ont été moins influencées par les retombées de l'accident de Tchernobyl : Au début de 1986 avant l'accident, elles étaient déjà de l'ordre de 1 Bq/kg frais et n'ont semble-t-il pas dépassé quelques Bq/kg frais dans les mois suivant l'accident (SCPRI, 1986). Leur diminution a cependant été plus lente comme l'illustre la figure 32 pour les poissons de Méditerranée (IRSN, 2020), et les teneurs en césium 137 des moules sont devenues inférieures à celles des poissons dès le début des années 2000.

(38) Les flux exportés par le Rhône en Méditerranée sont évalués par l'IRSN grâce à la station SORA (Station Observatoire du Rhône à Arles) qui permet de prélever l'eau du Rhône à haute fréquence afin de déterminer les concentrations en matières en suspension et en radionucléides. Entre 2005 et 2016, les flux annuels ont été estimés entre 8 et 46 GBq/an de ¹³⁷Cs sous forme dissoute et entre 23 et 90 GBq/an de ¹³⁷Cs sous forme particulaire. La forte variabilité est essentiellement liée à la variabilité d'une année à l'autre des événements hydrologiques (crues).

(39) Le stock le plus important concerne le delta immergé du Rhône (prodelta) ; il a été évalué à 10 TBq à la fin des années 1990 sur une surface de 30 km² dont le drainage du bassin versant a contribué pour moitié (le reste provenant des rejets des installations nucléaires et plus particulièrement de deux du site de Marcoule avant 1992). Ce stock représente 10 fois les rejets liquides annuels de césium du site de La Hague ou 10 000 fois les rejets liquides annuels de ce radionucléide par l'ensemble des CNPE fluviales françaises.

Césium 137 dans les moules (Bq/kg frais)

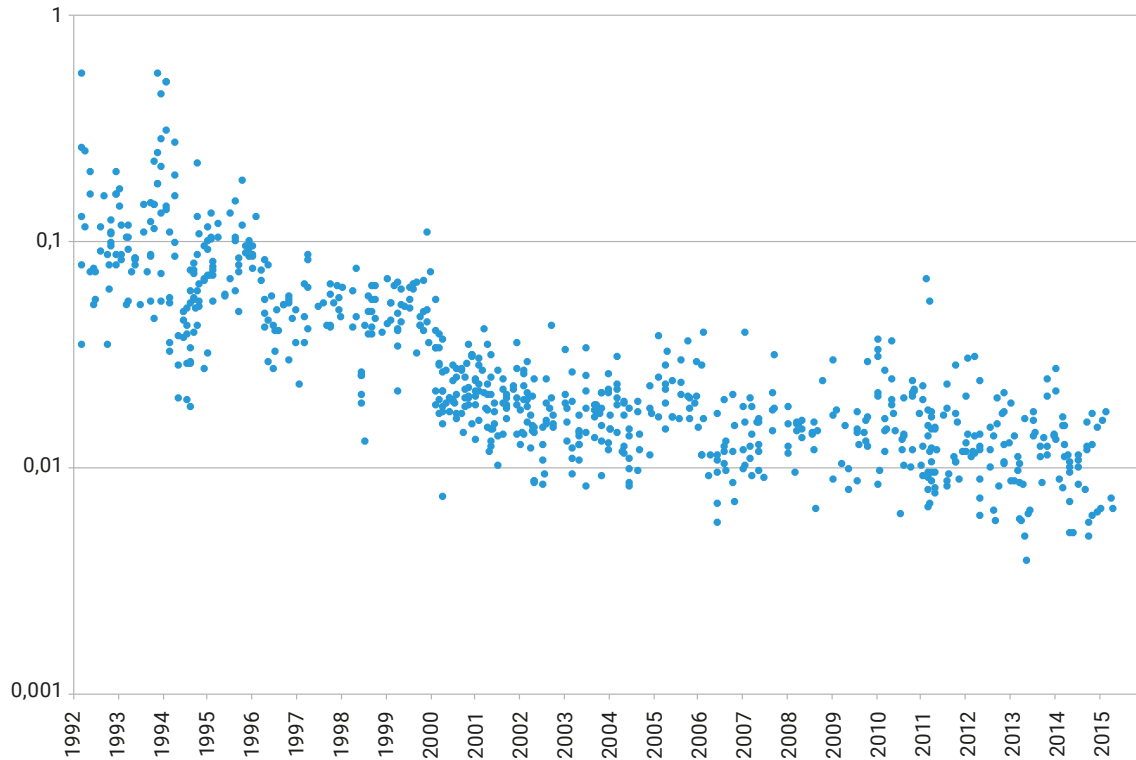


Figure 31. Évolution des activités massiques de césium 137 dans les moules de Méditerranée de 1992 à 2015 (Bq/kg frais) (IRSN, 2020).

Césium 137 dans les poissons (Bq/kg frais)

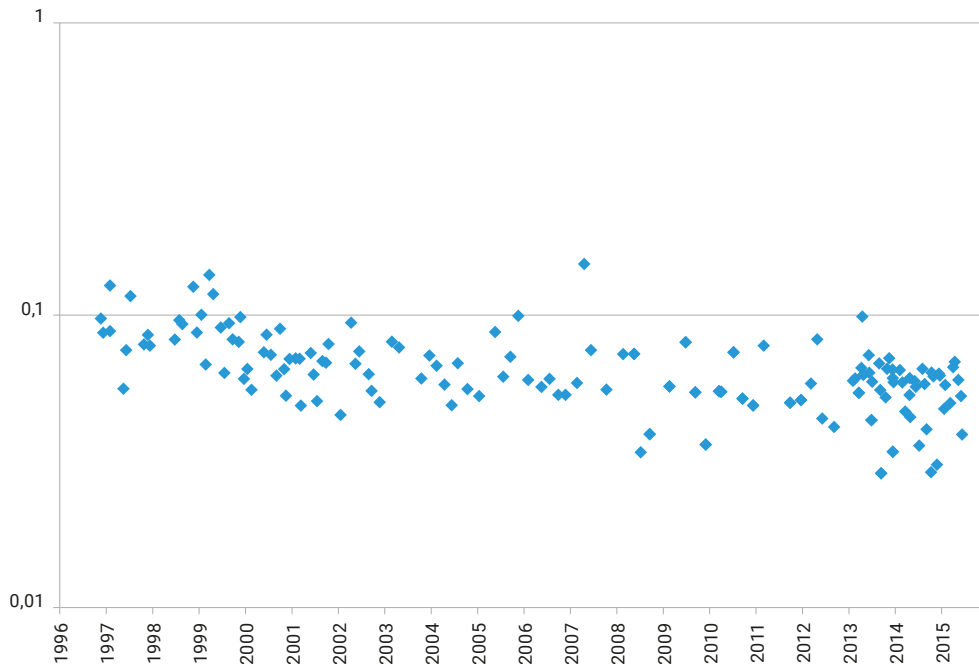


Figure 32. Évolution des activités massiques de césium 137 dans les poissons de Méditerranée de 1992 à 2015 (Bq/kg frais) (IRSN, 2020).

Activités de césium 137 en milieu marin sur la période 2008-2019

L'IRSN réalise une surveillance régulière du milieu marin littoral à partir de différentes stations côtières sur l'ensemble de la façade maritime.

Cette surveillance porte sur un nombre limité d'indicateurs et de types de denrées représentatifs du milieu : certaines espèces d'algues (*Fucus vésiculeux* et *Fucus serratus* principalement), de coquillages (moules, patelles et bulots principalement), de poissons (rougets en Méditerranée, loup, plie, sole en Manche), ainsi que des sédiments. L'activité dans l'eau étant faible (de l'ordre de 1 mBq/L), elle est difficile à mesurer car elle nécessite des prélèvements de grands volumes⁽⁴⁰⁾. Enfin, les activités de césium 137 dans les crustacés étant plus faibles que celles des coquillages et des poissons, les résultats de mesure sont souvent non significatifs et ces denrées marines ne font donc l'objet que d'un nombre très restreint d'analyses. Par ailleurs, cette surveillance porte presque exclusivement sur le milieu littoral.

Les constats radiologiques régionaux « Normandie et Hauts-de-France » (CNHdF) et « Méditerranée » (CM) ont permis d'élargir cette connaissance du littoral, au milieu hauturier (haute mer) et à des espèces peu analysées habituellement : encornets, crustacés, divers poissons pélagiques et démersaux... en s'associant notamment à des campagnes de l'Ifremer pour la fourniture d'échantillons. Enfin des espèces spécifiques ont été prélevées lors de pêches à pieds organisées notamment en baie de Somme avec des acteurs locaux : salicornes, asters marins, scrobiculaires (lavignons)...

L'eau de mer

L'activité volumique du césium 137 rémanente des retombées anciennes dans les eaux de mer et océaniques qui bordent les côtes françaises, est assez homogène : de l'ordre de 1 mBq/L⁽⁴¹⁾. Les résultats acquis par l'IRSN depuis 2008 et présentés dans la figure 33 confirment ces valeurs. Cette figure montre par ailleurs que sous influence immédiate des rejets liquides du site de La Hague, l'activité volumique de césium 137 peut atteindre 3,5 mBq/L pour une moyenne de 2 mBq/L (au niveau de Goury) et que cette influence est aujourd'hui difficilement perceptible dans l'eau de mer de Manche orientale (à l'est de Dieppe) ces dernières années⁽⁴²⁾.

Césium 137 dans l'eau de mer (min, max et moyenne en Bq/L)

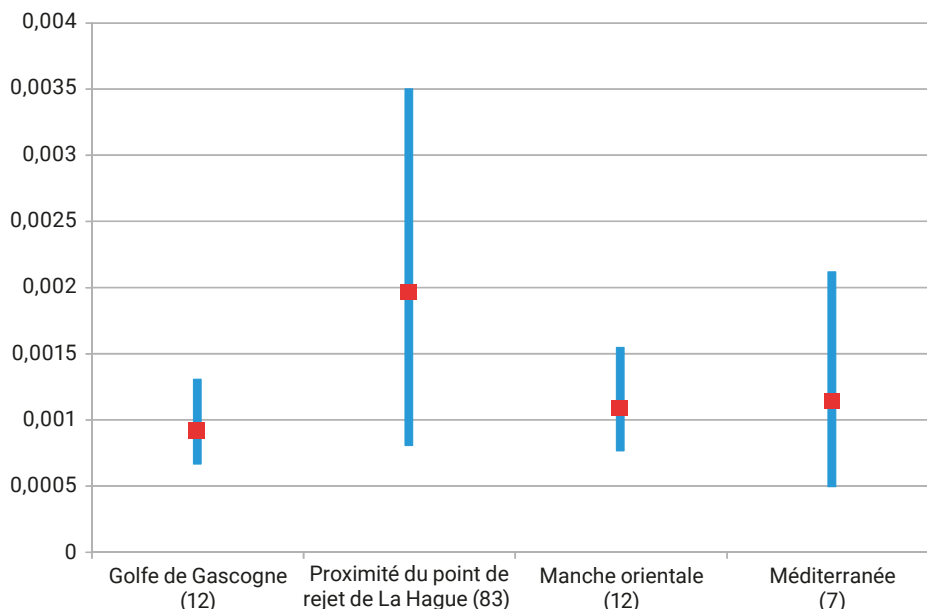


Figure 33. Activités volumiques de césium 137 dans des échantillons d'eau de mer analysés par l'IRSN entre 2008 et 2019 (en Bq/L). Le nombre de résultats de mesure figure entre parenthèses.

(40) De récents progrès permettent aujourd'hui de mesurer ce bruit de fond à l'IRSN avec un prélèvement de seulement 20 L d'eau.

(41) À titre de comparaison, en raison des dépôts consécutifs à l'accident de Tchernobyl importants sur les sols des bassins versants qui l'alimentent, les eaux de la mer Noire présentaient des activités de césium 137 qui pouvaient dépasser 10 Bq/L au début des années 2000.

(42) Les activités de césium 137 rejetées dans les effluents liquides ont diminué de plus de 10 fois au cours des années 1980-1990 ; dans les années 1980, les activités de ce radionucléide dans l'eau de mer atteignaient quelques dizaines de mBq/L. Il faut par ailleurs rappeler la faible représentativité temporelle d'un prélèvement d'eau et le nombre très limité de données.

Les algues marines

964 échantillons d'algues brunes (*Fucus serratus* et *Fucus vésiculeux*) prélevés en différents points des côtes de l'Atlantique, de la Manche et de la mer du Nord, incluant les îles anglo-Normandes, ont été analysés par l'IRSN entre 2008 et 2019 ; 73 % ont donné des résultats significatifs⁽⁴³⁾ pour le césium 137. La figure 34 présente 683 de ces résultats significatifs acquis sur une sélection de 29 stations réparties le long de ces côtes. Ces résultats montrent une très grande homogénéité des activités massiques de ce radionucléide depuis la Gironde jusqu'au Pas-de-Calais ; 90 % des résultats sont compris entre 0,16 et 0,44 Bq/kg sec, avec des moyennes quasiment toutes comprises entre 0,2 et 0,3 Bq/kg sec. L'influence des rejets du site de La Hague, perceptible pour le césium 137 dans l'eau de mer (figure 32), n'est pas suffisante pour être décelable dans les algues ;

notamment, les activités massiques de ce radionucléide ne sont pas notablement plus élevées au voisinage de l'émissaire de rejet (autour de Goury). Il en est de même de l'influence potentielle des rejets du site anglais de Sellafield (usine de retraitement du combustible usé) ; les activités massiques en Manche occidentale (Roscoff) ne sont pas plus élevées que celles des stations de l'Atlantique (Concarneau, Pornichet, Merscher-sur-Gironde). L'ensemble de ces résultats est donc bien principalement représentatif d'un bruit de fond hérité des retombées anciennes et très homogène. On note toutefois des activités massiques plus importantes en baie de Somme, probablement liées aux apports fluviaux et à une granulométrie plus fine des sédiments qui se trouvent ainsi plus marqués en césium et élèvent la teneur globale en césium 137 du milieu ; il en est probablement de même des poissons de Concarneau.

Césium 137 dans les algues (min, max et moyenne en Bq/kg sec)

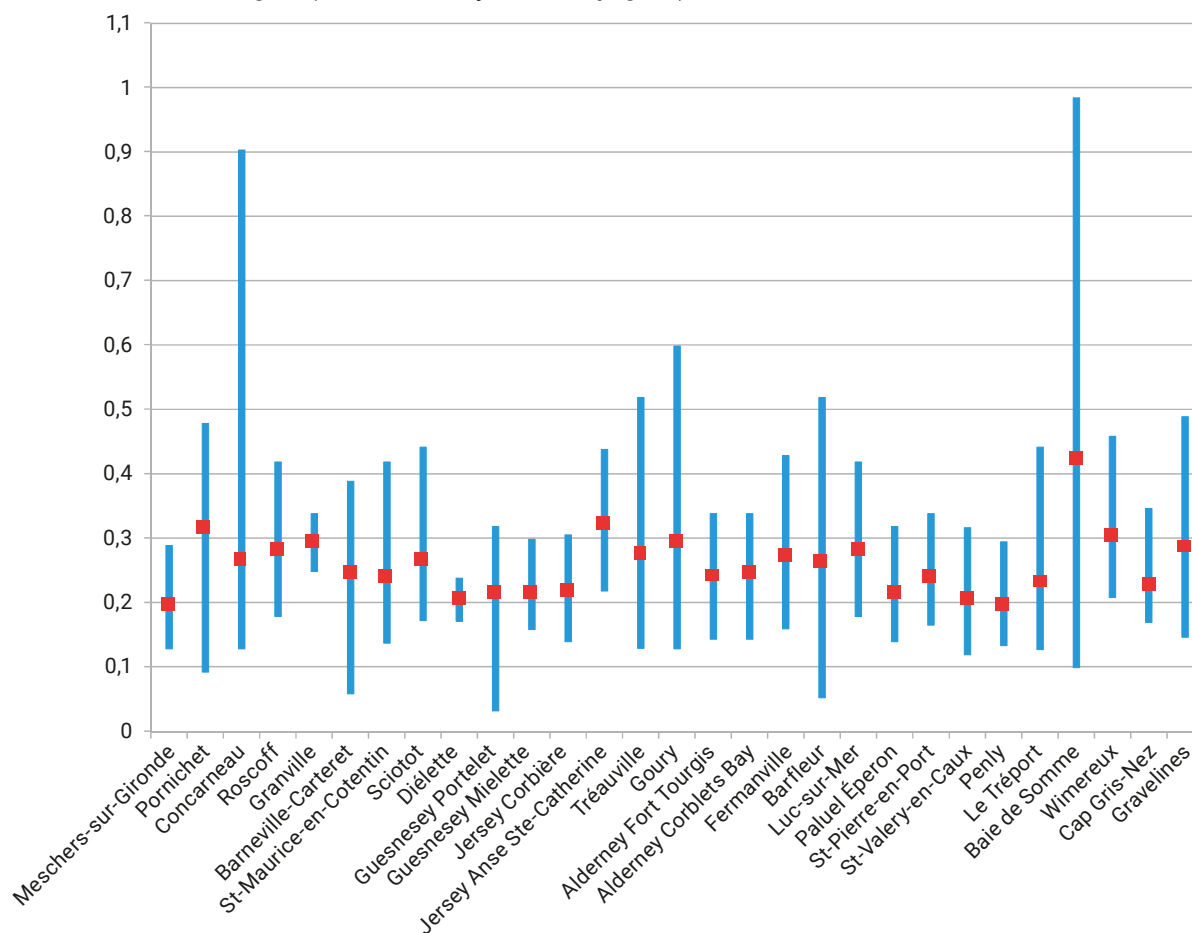


Figure 34. Activités massiques de césium 137 mesurées par l'IRSN depuis 2008 (Bq/kg sec).

(43) La plupart des mesures non significatives présentent des seuils de décision très élevés (entre 0,5 et 3 Bq/kg sec) en raison probablement d'une quantité de matière insuffisante.

Les coquillages

Plus de 80 % des 645 analyses de chair de coquillages (moules, patelles, bulots et huîtres) effectuées par l'IRSN entre 2008 et 2019 ont donné des résultats significatifs pour le césium 137. La majeure partie de ces échantillons ont été prélevés dans le cadre du plan de surveillance de l'IRSN et dans celui de la surveillance complémentaire effectuée par l'IRSN pour le compte d'EdF. Le constat régional « Normandie et Hauts-de-France » a permis de collecter des échantillons de coquilles Saint-Jacques lors de campagnes effectuées par l'Ifremer au large des côtes du Calvados, ainsi que des scrobiculaires (ou lavignons) prélevés lors de pêches à pied en baie de Somme. En Méditerranée, c'est le nombre de stations de prélèvement de moules spécifiquement cultivées qui a été augmenté pour étudier la variabilité géographique, en s'associant au programme RINBIO de l'Ifremer.

Les 445 résultats d'activité massique de ce radionucléide acquis sur une sélection de 17 sites sont présentés dans la figure 35. Les activités mesurées dans les moules des localités de Saint-Laurent-du-Var (près de Nice) et de La-Seyne-sur-Mer situées à l'est du Rhône, dont la moyenne se situent à 0,011 Bq/kg frais sont représentatives du bruit de fond du césium 137 hérité des retombées anciennes. L'influence du Rhône dont les eaux reçoivent les rejets

de plusieurs installations nucléaires, est visible à son embouchure au niveau des stations de Carteau (Port-Saint-Louis) et Port-Gardian (Saintes-Maries-de-la-Mer) où les activités massiques de ce radionucléide dans les moules sont 2 fois plus élevées (de l'ordre de 0,02 Bq/kg frais). En raison du courant marin allant majoritairement d'est en ouest et de la dilution des apports de césium rhodanien, cette influence diminue progressivement vers l'ouest au niveau des stations du Grau d'Agde (Sète ; 0,15 Bq/kg en moyenne) et de Banyuls où l'activité massique moyenne (0,12 Bq/kg frais) est de nouveau proche du bruit de fond mesuré à l'est du Rhône (0,11 Bq/kg frais).

En Manche, avec des moyennes allant de 0,02 à 0,05 Bq/kg frais, les activités de césium 137 mesurées dans les coquillages peuvent toutes être considérées comme influencées par les rejets du site de La Hague, sans exclure une contribution probablement très faible et très locale des rejets des CNPE pour les échantillons prélevés dans les environs des sites de Flamanville, Paluel, Penly et Gravelines. À noter que les 2 échantillons de coquille Saint-Jacques prélevés dans le cadre du CNHdF n'ont pas donné de résultats significatifs.

Ainsi, contrairement au milieu terrestre, les activités de césium 137 en milieu marin varient peu sur un même site, il en résulte une homogénéité qui permet de déceler de

Césium 137 dans les coquillages (min, max et moyenne en Bq/kg frais)

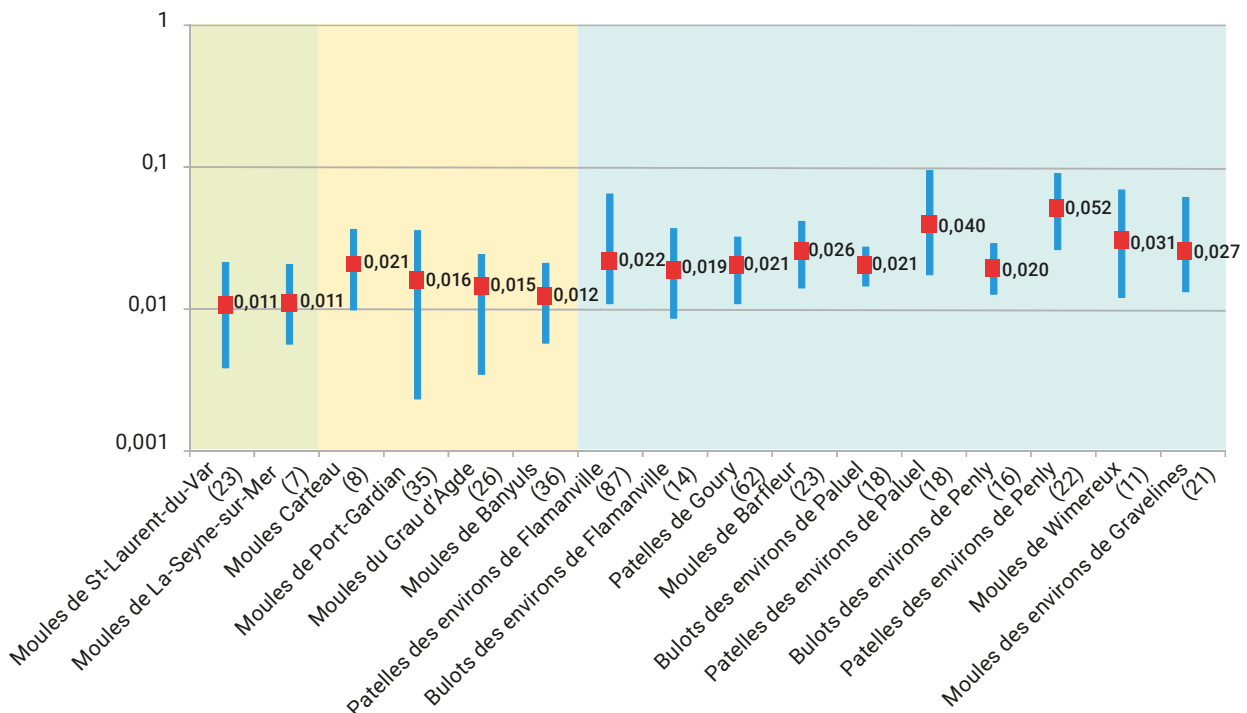


Figure 35. Activités massiques de césium 137 dans des échantillons de coquillages analysés par l'IRSN entre 2008 et 2019 (en Bq/kg frais). Le nombre de résultats de mesure figure entre parenthèses.

faibles influences comme c'est le cas en Méditerranée ou une augmentation de moins d'un facteur 2 peut être reliée à l'influence du Rhône.

Les poissons de mer

Plus de 85 % des 592 analyses de césium 137 effectuées par l'IRSN entre 2008 et 2019 dans des poissons d'espèces très variées pêchés sur le littoral des côtes de la Méditerranée, de l'Atlantique, de la Manche et de la mer du Nord, ont fourni des résultats significatifs. La majeure partie de ces échantillons ont été prélevés dans le cadre du plan de surveillance de l'IRSN et dans celui de la surveillance complémentaire effectuée par l'IRSN pour le compte d'EdF. Ces échantillons sont constitués souvent des mêmes espèces de poissons afin de permettre des comparaisons intersites et diachroniques. Il s'agit le plus souvent d'échantillons de rougets en Méditerranée, de loup, de sole, de vieille et de plie en Manche, issus de pêches côtières. Les constats radiologiques régionaux « Normandie et Hauts-de-France » (CNHdF) et « Méditerranée » (CM) ont permis d'élargir à la fois la variété des espèces prélevées et les zones de pêches à des stations de haute mer (zone hauturière) par des pêches au chalut (les poissons analysés dans le cadre de la surveillance de routine proviennent

de la frange littorale). Pour disposer de ces prélèvements hauturiers, l'IRSN s'est associé aux pêches réalisées par l'Institut français de recherche pour l'exploitation de la mer (Ifremer). Dans le cas du constat « Normandie et Hauts-de-France », 2 des 17 échantillons provenaient de zones des pêches situées en Manche occidentale hors influence potentielle des rejets de La Hague (au large des côtes du Finistère et de Cornouaille); et un échantillon destiné à témoigner de la persistance potentielle de l'influence de La Hague au-delà des côtes françaises a été pêché en mer du Nord au large des côtes néerlandaises au niveau de La Haye. Dans le cas du constat « Méditerranée », 14 pêches au chalut ont été réalisées au large à l'ouest de l'embouchure du Rhône et 5 autres au large de la côte orientale corse, dans le cadre des campagnes MEDITS et PELMED de l'Ifremer, pour compléter la connaissance du bruit de fond hérité des retombées anciennes dans ces eaux peu échantillonnées habituellement.

La figure 36 présente les activités massiques de césium 137 mesurées (résultats significatifs) dans 522 échantillons sur une sélection de stations en distinguant les campagnes spécifiquement réalisées pour les constats régionaux (CNHdF et CM). Les espèces pêchées sont indiquées entre parenthèses ainsi que le nombre d'échantillons.

Césium 137 dans les poissons (min, max et moyenne en Bq/kg frais)

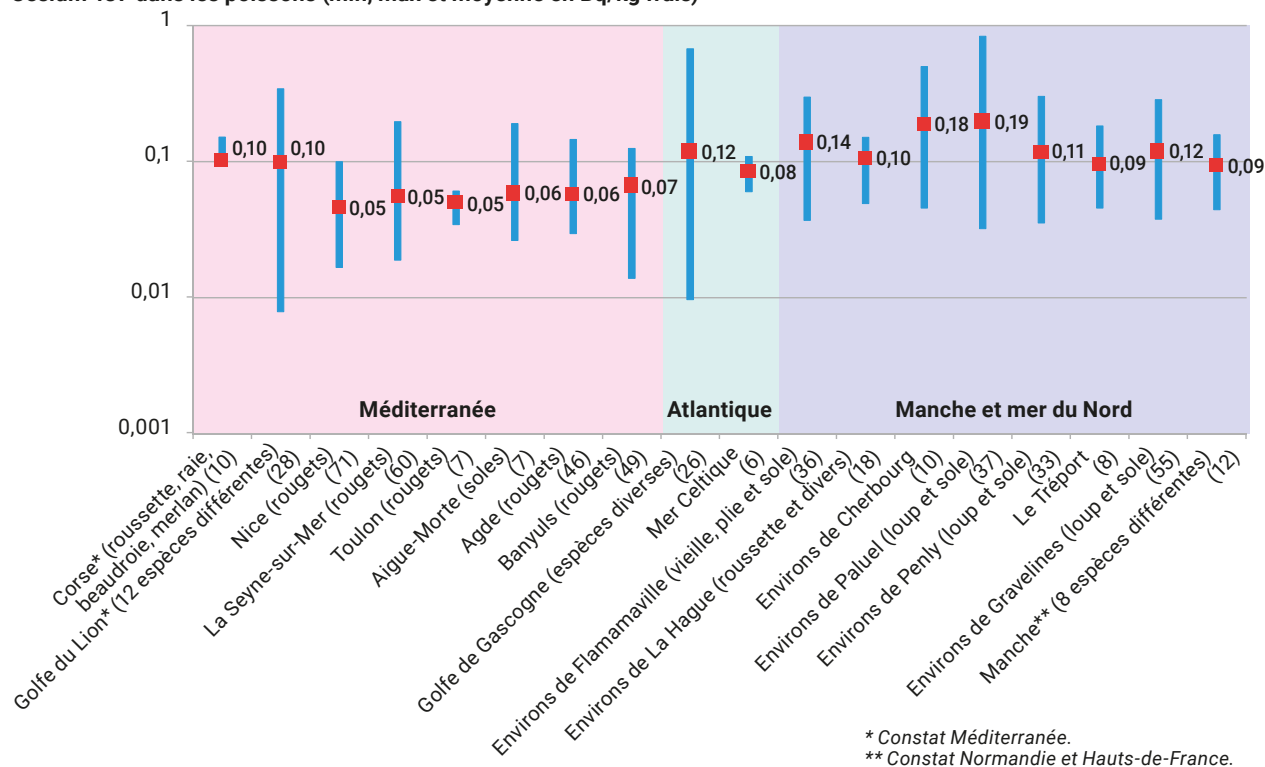


Figure 36. Activités massiques de césium 137 dans des échantillons de poissons analysés par l'IRSN entre 2008 et 2019 (en Bq/kg frais). Le nombre de résultats de mesure figure entre parenthèses.

De manière générale, les activités massiques de césium 137 mesurées dans les poissons sont plus élevées que celles des coquillages : de 5 à 10 fois plus élevées si l'on compare les moules prélevées en Méditerranée hors influence rhodanienne et les poissons pêchés dans cette mer. Plusieurs études ont montré une augmentation des teneurs en césium 137 avec le niveau trophique en milieu marin (bioamplification ou biomagnification) ; or les poissons se situent à un niveau trophique plus élevé que les moules⁽⁴⁴⁾. Les valeurs moyennes des activités massiques mesurées dans les poissons sont proches, comprises entre 0,05 et 0,19 Bq/kg frais, toutes espèces, stations et ensembles marins confondus. Les plus faibles concernent les rougets de Méditerranée (entre 0,05 et 0,06 Bq/kg frais). L'influence des apports du Rhône sur les stations situées à l'ouest de son embouchure (Aigue-Morte, Agde notamment) n'est pas visible dans les poissons comme elle l'était pour les coquillages. Ceci résulte probablement du fait que les poissons ne sont pas inféodés à un site géographique précis comme les coquillages. Les valeurs moyennes des activités massiques des échantillons prélevés au chalut en Corse et dans le golfe du Lion dans le cadre des campagnes effectuées pour le constat « Méditerranée » sont plus élevées (de l'ordre de 0,1 Bq/kg frais) sans qu'il ne soit possible d'attribuer cet écart aux espèces.

Les moyennes des activités de césium 137 mesurées dans les poissons de l'Atlantique sont presque égales à celles des poissons de Corse et du golfe du Lion (autour de 0,1 Bq/kg frais). Sur certaines stations du nord Cotentin et de Manche orientale, les moyennes sont plus élevées : 0,14 Bq/kg frais au niveau de Flamanville, 0,18 Bq/kg frais au niveau de Cherbourg et 0,19 Bq/kg frais dans les environs de Paluel. Elles diminuent ensuite pour se situer de nouveau autour de 0,1 Bq/kg frais entre les environs de Penly et ceux de Gravelines. Cette évolution, assez concordante avec celle observée dans les coquillages, est également attribuable à une influence des rejets du site de La Hague. Enfin, on peut noter que l'échantillon prélevé en mer du Nord au large de La Haye (Pays-Bas) présente une activité massique de césium 137 de 0,08 Bq/kg frais, parmi les valeurs les plus basses observées en Manche orientale.

Les crustacés et les céphalopodes (encornets, poulpes...)

Les activités de césium 137 dans les crustacés qui relèvent du bruit de fond des retombées anciennes, sont le plus souvent trop faibles pour être quantifiées même avec les meilleures techniques disponibles. Deux échantillons de chair de langoustines prélevés dans le cadre du constat « Méditerranée » présentaient des activités de 0,02 et 0,05 Bq/kg frais. En Manche et en mer du Nord, à proximité des CNPE et potentiellement sous influence combinée de leurs rejets et surtout de ceux de La Hague, les activités massiques n'ont pu être quantifiées que dans 40 % des échantillons, notamment d'araignées de mer, crabes, crevettes, tourteaux et étrilles prélevés dans le cadre du suivi radioécologique effectué par l'IRSN pour EdF. Tous les résultats significatifs sont inférieurs à 0,1 Bq/kg frais et le plus souvent inférieurs à 0,05 Bq/kg frais.

Les céphalopodes (poulpes, encornets...) ne font habituellement pas l'objet d'analyses ; c'est pourquoi 12 échantillons ont été prélevés en Manche et en mer du Nord dans le cadre du constat régional « Normandie et Hauts-de-France » ; un seul présentait une activité mesurable de 0,04 Bq/kg frais (prélevé au large de Cabourg).

(44) Les poissons présentent également une teneur en potassium importante, il en résulte des teneurs en césium, analogue chimique du potassium, également plus importantes.

3 7 EXPOSITIONS DE LA POPULATION AU CÉSIIUM 137 PRÉSENT DANS L'ENVIRONNEMENT FRANÇAIS

Contribution du césium 137 aux doses reçues par la population française au cours des dernières décennies

Le césium 137 présent dans l'environnement induit une exposition externe – c'est le cas du césium présent dans les sols ou dans l'air – ainsi qu'une exposition interne liée à son incorporation par ingestion de denrées et, dans une moindre mesure, par inhalation.

L'exposition de la population française a fortement évolué au cours des six dernières décennies, de pair avec les activités massives et volumiques de ce radionucléide dans l'environnement. Le césium 137 a été le deuxième radionucléide contributeur (juste derrière le strontium 90) aux doses efficaces dues aux retombées des essais nucléaires reçues par la population française. En 1963, il a occasionné une dose moyenne pour un adulte de l'ordre de 40 μSv (30 μSv par ingestion et 10 μSv par exposition externe au dépôt), pour un total de près de 330 μSv tous radionucléides confondus pour cette même année.

Après une diminution régulière jusqu'à moins de 10 $\mu\text{Sv}/\text{an}$ au début des années 1980 (principalement par exposition externe), la dose efficace pour un adulte due au césium 137 a atteint en moyenne 300 μSv en 1986 (due majoritairement à l'ingestion de denrées directement contaminées par les dépôts radioactifs) dans les régions les plus touchées par les retombées de l'accident de Tchernobyl (Renaud *et al.*, 2007) (soit de l'ordre de 40 % de la dose efficace totale pour un adulte cette année-là, tous radionucléides confondus ; les deux autres grands contributeurs à cette dose efficace étant le césium 134 et l'iode 131).

Dix ans plus tard, en 1996, le césium 137 était quasiment le seul contributeur aux expositions liées à cet accident avec une dose efficace moyenne pour un adulte comprise entre 3 $\mu\text{Sv}/\text{an}$ et 150 $\mu\text{Sv}/\text{an}$ suivant que l'on réside sur les zones les moins touchées de l'ouest du pays ou les plus touchées de l'est. Ces doses sont désormais dues essentiellement à l'exposition externe. En effet, l'exposition interne par ingestion a brutalement diminué dès la fin de 1986 et durant le printemps 1987, la contamination des denrées ne résultant plus, dès lors, que du seul transfert du césium 137 présent dans les sols et non plus de l'interception des dépôts radioactifs comme c'était le cas au cours des premiers mois suivant l'accident.

En 2004, sur la base d'un nombre restreint de résultats de mesures, l'ordre de grandeur de la dose efficace moyenne due au césium 137 présent dans l'environnement français, pour un adulte ne résidant pas sur les zones les plus touchées du territoire, a été estimé à 10 $\mu\text{Sv}/\text{an}$.

La figure 37 présente les différentes contributions à cette estimation.

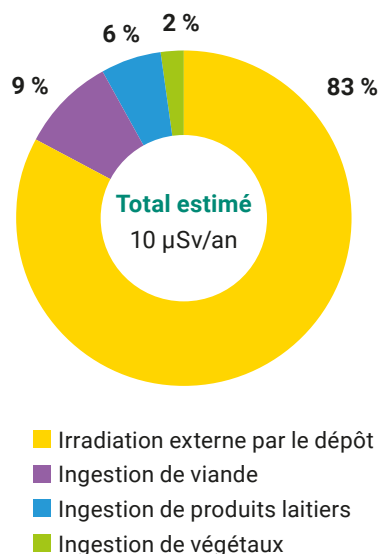


Figure 37. Contributions des voies d'atteinte et des catégories de denrées à la dose efficace moyenne due au césium 137 présent dans l'environnement, estimée pour un adulte ne résidant pas dans les zones les plus touchées de France (Roussel-Debet *et al.*, 2007).

Doses estimées sur la période 2008-2019

Doses liées à l'ingestion de denrées

À l'issue de cette analyse des teneurs en césium 137 dans les différentes catégories de denrées, les doses liées à l'incorporation de ce radionucléide par ingestion peuvent être estimées de manière très complète en prenant en compte la plupart des types de denrées. Les doses efficaces pour un adulte sont calculées suivant la même méthodologie⁽⁴⁵⁾ que celle utilisée dans le bilan de l'état radiologique de l'environnement français 2015-2017 pour évaluer les expositions dues aux rejets des installations nucléaires (IRSN, 2018 ; chapitre 8 annexe). Le tableau 1 présente, pour chaque catégorie de denrées, les moyennes des activités massiques et volumiques de césium 137 (Bq/L ou Bq/kg frais) mesurées, les quantités annuellement consommées (kg/an) et les doses efficaces⁽⁴⁶⁾ correspondantes ainsi que leur contribution à la dose efficace totale par ingestion (%). Les activités massiques et volumiques du lait de vache, de la viande de bœuf, des fromages de vache ainsi que de la viande de gibier et des champignons provenant des zones de rémanence élevée des retombées anciennes (ZRE) étant significativement plus élevées que celles du reste du pays, des doses spécifiques ont été calculées pour des personnes consommant ces denrées ; la fraction que cette consommation est supposée représenter dans la quantité consommée annuellement est précisée dans le tableau (autoconsommation en %).

La dose efficace totale liée à l'incorporation de césium 137 par ingestion de denrées est ainsi estimée pour un adulte à 1 $\mu\text{Sv}/\text{an}$ en 2020⁽⁴⁷⁾. Cette dose est 30 fois inférieure à celle estimée pour l'année 1964 et près de 300 fois inférieure à celle estimée pour l'année 1986.

83 % de cette dose seraient liés à la consommation de deux types de denrées : les champignons sauvages (54 % de la dose totale malgré une quantité annuellement consommée supposée très faible de 2,5 kg frais par an) et le porc (29 % de la dose totale). Dans le cas des champignons, cette forte contribution s'explique par l'activité massique moyenne élevée de ces denrées (16 Bq/kg frais) ; dans le cas du porc, elle résulte de la conjonction d'une activité massique moyenne qui est la plus élevée de toutes les denrées agricoles ou d'élevage (7 Bq/kg frais) et d'une consommation conséquente (30 kg/an). Les contributions des autres denrées sont beaucoup plus faibles, comprises entre 0,1 % (poissons de rivière) et 2,6 % (lait et produits laitiers frais de vache).

Une quinzaine d'analyses de plateaux-repas ont été effectuées de 2005 à 2007. Ces analyses n'ont donné qu'un seul résultat significatif de 0,43 Bq/personne/jour ; les autres résultats sont tous inférieurs à 0,3 Bq/personne/jour. En supposant 365 jours de consommation annuelle, ces valeurs correspondent à des doses efficaces annuelles de 2,0 $\mu\text{Sv}/\text{an}$ pour la seule valeur significative, et inférieures à 1,4 $\mu\text{Sv}/\text{an}$ pour les autres résultats, ce qui est cohérent avec les estimations précédentes.

La dose efficace totale liée à l'incorporation de césium 137 par ingestion de denrées atteindrait 4 $\mu\text{Sv}/\text{an}$ pour des personnes consommant en partie des denrées venant de ZRE. La contribution des champignons sauvages atteindrait alors 75 %, toujours suivie de celle de porc (7 %), puis de celles liées à la consommation de viande de gibier (6 %), de viande de bœuf et de produits laitiers frais (4,5 % chacune), les consommations des autres types de denrées étant chacune inférieure à 1 %.

L'écart important entre les activités massiques des denrées sauvages (champignons, gibiers et baies), notamment celles provenant des zones de rémanence élevée, et les denrées issues de l'agriculture et de l'élevage, suscite l'intérêt de considérer le cas de personnes qui en consommeraient des quantités plus importantes. Ainsi, une personne qui prendrait deux fois par mois un repas composé de 200 g de gibier et 100 g de champignons, assorti de 100 g de baies (activité moyenne des baies de 8 Bq/kg frais) provenant de ZRE, recevrait une dose supplémentaire de 6 $\mu\text{Sv}/\text{an}$ imputable équitablement au gibier et aux champignons, la contribution des baies étant inférieure à 10 %.

On peut également considérer le cas extrême d'un très gros consommateur de ces produits qui prendrait 2 fois par semaine un repas composé de 300 g de viande de gibier (ce qui revient à remplacer toute sa consommation annuelle de viande de porc par de la viande de gibier), 250 g de champignons et 100 g de baies, dont les activités massiques seraient les plus élevées mesurées (900 Bq/kg pour la viande, 600 Bq/kg pour les champignons et 32 Bq/kg pour les baies) ; la dose totale reçue par cette personne, incluant les contributions des autres types de denrées (hors consommation de porc remplacé par le gibier) atteindrait alors 580 $\mu\text{Sv}/\text{an}$.

(45) Calculs de moyennes et prise en compte des valeurs non significatives, rations alimentaires, facteur de dose par unité d'incorporation.

(46) En utilisant la valeur du facteur de dose issue de la réglementation française de $1,3 \cdot 10^{-8}$ Sv/Bq ingéré.

(47) Cette dose est estimée sur la base des activités massiques et volumiques mesurées dans les denrées produites en France entre 2008 et 2019 ; ces activités évoluent cependant très lentement et la dose annuelle estimée peut être affectée à l'année 2020.

Tableau 1. Doses efficaces par incorporation de césium 137 liées à l'ingestion de denrées produites en France pour un adulte en 2020.

Catégories de denrées	Activités massique ou volumique (Bq/kg frais ou Bq/L)		Rations (kg/an)	Denrées de ZRE (%)	Doses efficaces ($\mu\text{Sv}/\text{an}$)		Contributions (%)	
	Hors ZRE	En ZRE			Hors ZRE	En ZRE	Hors ZRE	En ZRE
Dérivés céréaliers	0,05		31		$1,9 \cdot 10^{-2}$	$1,9 \cdot 10^{-2}$	2,0	0,5
Légumes feuilles	0,03		24		$1,1 \cdot 10^{-2}$	$1,1 \cdot 10^{-2}$	1,1	0,3
Légumes fruits	0,01		60		$1,1 \cdot 10^{-2}$	$1,1 \cdot 10^{-2}$	1,1	0,3
Légumes racines	0,03		38		$1,3 \cdot 10^{-2}$	$1,3 \cdot 10^{-2}$	1,3	0,3
Lait de vache*	0,03	0,54	59	43	$2,6 \cdot 10^{-2}$	$1,8 \cdot 10^{-1}$	2,6	4,5
Lait de chèvre	0,07		5,5	43	$5,0 \cdot 10^{-3}$	$5,0 \cdot 10^{-3}$	0,5	0,1
Fromages chèvre/brebis	0,10		1,1		$1,4 \cdot 10^{-3}$	$1,4 \cdot 10^{-3}$	0,1	0,04
Fromages de vache	0,04	0,43	13	5	$6,6 \cdot 10^{-3}$	$3,6 \cdot 10^{-3}$	0,7	0,1
Viande de bœuf**	0,07	1,7	21	38	$1,9 \cdot 10^{-2}$	$1,8 \cdot 10^{-1}$	1,9	4,5
Porc	0,7		30		$2,8 \cdot 10^{-1}$	$2,8 \cdot 10^{-1}$	29	7,0
Viande de volaille	0,04		16		$9,3 \cdot 10^{-3}$	$9,3 \cdot 10^{-3}$	1,0	0,2
Fruits	0,03		55		$1,9 \cdot 10^{-2}$	$1,9 \cdot 10^{-2}$	2,0	0,5
Vins et cidres	0,02		27		$7,9 \cdot 10^{-3}$	$7,9 \cdot 10^{-3}$	0,8	0,2
Poissons de mer	0,09		11		$1,2 \cdot 10^{-2}$	$1,2 \cdot 10^{-2}$	1,2	0,3
Mollusques et crustacés***	0,01		1,6		$2,1 \cdot 10^{-4}$	$2,1 \cdot 10^{-4}$	0,02	0,01
Poissons de rivière	0,08		0,6		$6,1 \cdot 10^{-4}$	$6,1 \cdot 10^{-4}$	0,1	0,02
Viande de gibier	2	55	0,4	89	$1,1 \cdot 10^{-2}$	$2,5 \cdot 10^{-1}$	1,1	6,4
Champignons sauvages	16	94	2,5	97	$5,3 \cdot 10^{-1}$	3,0	54	75
Eau****	0,0003		730		$2,8 \cdot 10^{-3}$	$2,8 \cdot 10^{-3}$	0,3	0,005

* Et produits laitiers frais (yaourts, fromages frais...).

** Et viande de mouton.

*** L'activité massique moyenne est celle des coquillages, les activités des crustacés et des céphalopodes étant le plus souvent non quantifiables et inférieures à cette valeur.

**** La valeur retenue pour l'eau correspond à une activité très pénalisante de 0,001 Bq/L de césium 137 dans de l'eau brute dont seulement 30 % se trouvent sous forme dissoute, le reste étant arrêté par la filtration, première étape du traitement de potabilisation des eaux de consommation.

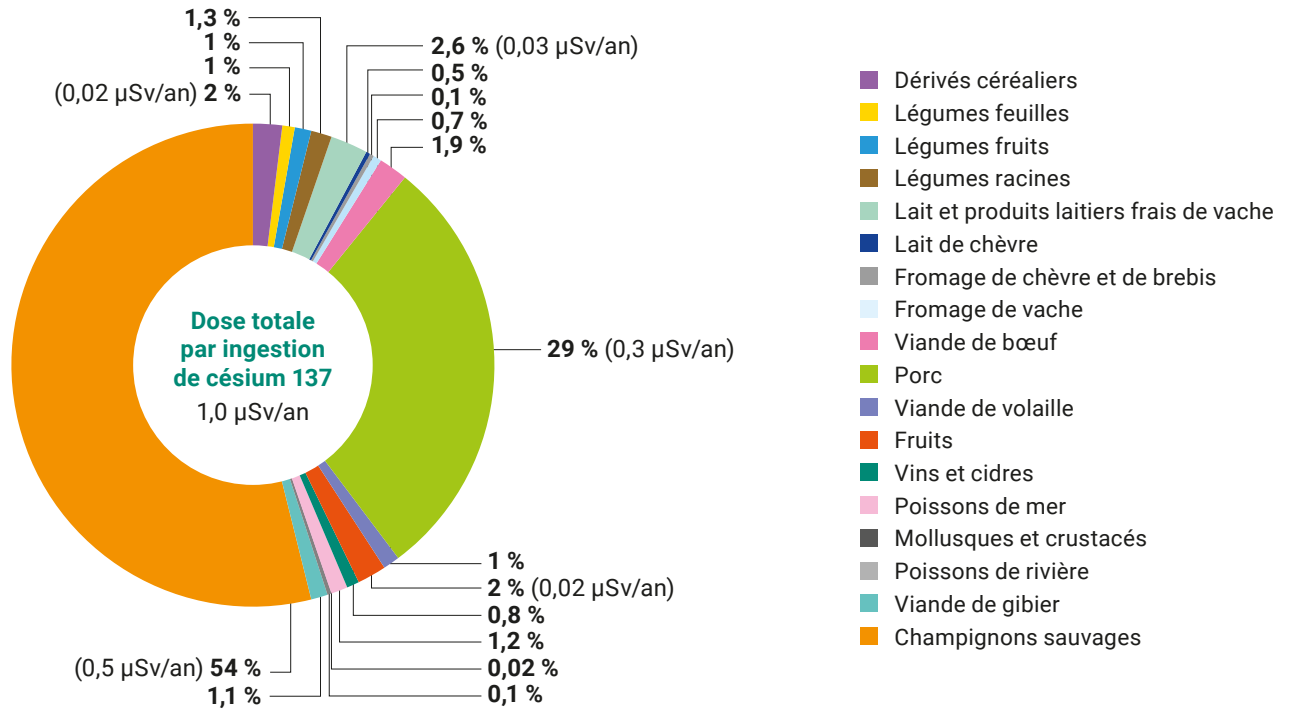


Figure 38. Dose efficace totale pour des adultes liée à l'incorporation de césium 137 par ingestion de denrées produites en France en 2020 en dehors des zones de rémanence élevée des retombées anciennes et contributions des différentes catégories de denrées (en %).

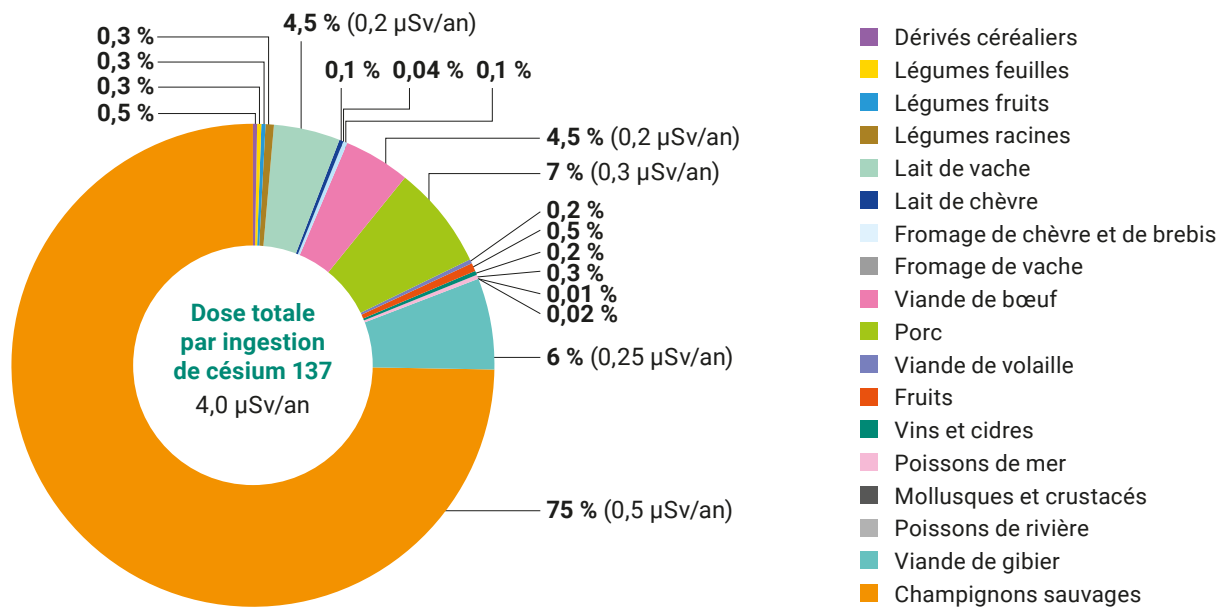


Figure 39. Dose totale liée à l'incorporation de césium 137 par ingestion de denrées produites en France en 2020 pour des adultes consommant en partie des denrées provenant des zones de rémanence élevée des retombées anciennes et contributions des différentes catégories de denrées (en %).

Doses externes liées à l'exposition externe au rayonnement du césium 137 présent dans les sols

Ces doses peuvent être estimées de deux manières : à partir de la mesure du débit d'équivalent de dose dû au césium 137 exprimé en nSv/h (10^{-9} Sv/h) ou à partir des activités massiques de césium 137 mesurées dans les sols.

Le débit d'équivalent de dose est mesuré de manière permanente en France par des balises destinées à donner l'alerte en cas d'accident grave. Ces balises rendent compte de l'intensité du rayonnement (essentiellement gamma) dans l'air, sans discriminer son origine. Il s'agit principalement du rayonnement tellurique et du rayonnement cosmique. Le rayonnement tellurique, émis par les radionucléides naturels descendants des chaînes de l'uranium 238 et 235 et du thorium 232 ainsi que par le potassium 40 présents dans les sols y contribuent à raison de moins de 20 nSv/h à plus de 200 nSv/h dans les régions où les sols sont riches en radionucléides naturels (Massif central, armoricain, parties du massif vosgien et de Corse). Le rayonnement cosmique dont la source est le rayonnement émis par le soleil et les étoiles, augmente avec l'altitude, allant de moins de 40 nSv/h au niveau de la mer à plus de 200 nSv/h à plus de 2 000 m d'altitude. Une augmentation des activités volumiques de

radionucléides descendants radioactifs du radon dans l'air lors de conditions météorologiques limitant la dispersion de ce gaz radioactif (hautes pressions anticycloniques) peut augmenter temporairement le débit de dose dans l'air.

De tous les radionucléides artificiels provenant des retombées anciennes, seul le césium 137 contribue au débit de dose et seulement à raison de quelques pourcents.

La technique de spectrométrie gamma *in situ* permet de discriminer ces différentes sources de rayonnement et notamment le rayonnement gamma d'énergie spécifique émis par le césium 137. Des campagnes de ce type de mesure ont été réalisées par l'IRSN à partir de la fin des années 1990. En 2013-2014, de telles mesures ont été réalisées dans le Jura et dans les Vosges dans le cadre du constat radiologique dédié aux zones de rémanence élevée des retombées de l'accident de Tchernobyl. La figure 40 présente ces résultats de mesure. Même sur ces zones plus particulièrement touchées par les retombées de cet accident, la contribution du césium 137 ne représente que de 2 % à 15 % du débit de dose total avec un débit d'équivalent de dose allant de 2 à 7 nSv/h. Des débits de dose dus à ce radionucléide atteignant 10 nSv/h ont également été mesurés dans les Alpes en altitude.

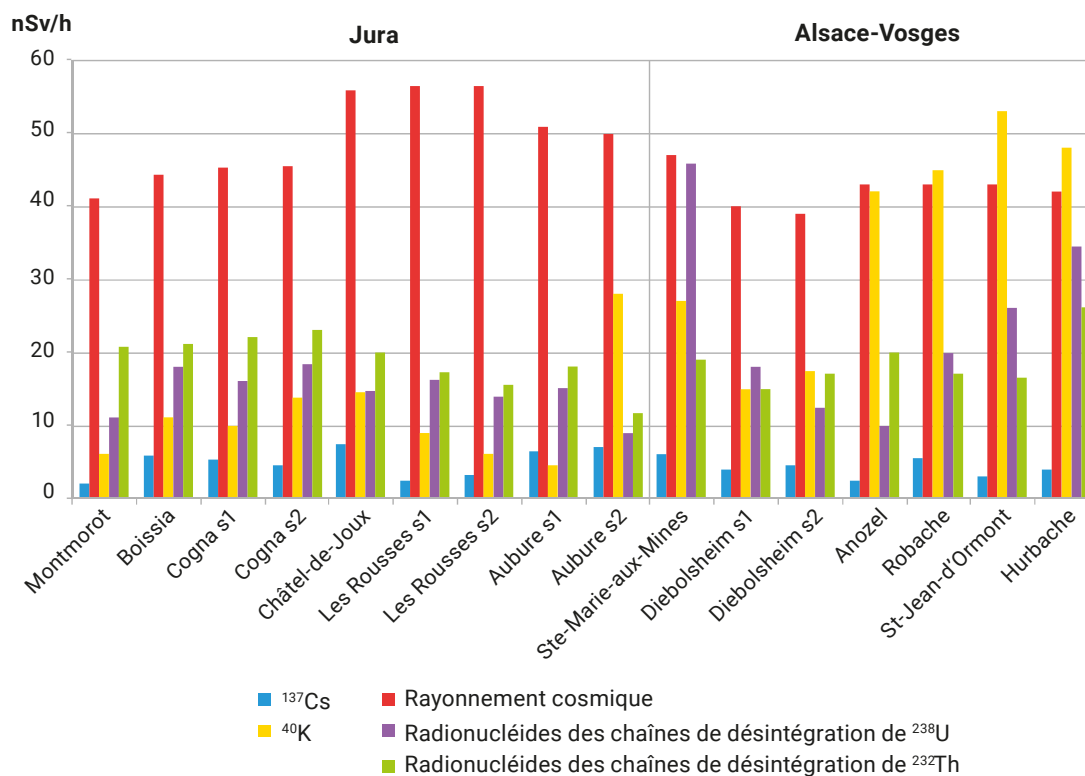


Figure 40. Débits d'équivalents de dose (nSv/h) mesurés dans des zones de rémanence élevée des retombées anciennes du Jura, d'Alsace et des Vosges ; contribution des différentes sources et notamment du césium 137.

La spectrométrie gamma *in situ* a également été mise en œuvre pour estimer les doses externes susceptibles d'être reçues à proximité des « points chauds » de césium 137 en altitude (voir page 11 ; Pourcelot *et al.*, 2003). Des débits de doses beaucoup plus élevés, de l'ordre de 100 nSv/h ont été mesurés au-dessus de ces « points chauds », soit de l'ordre de 100 fois le débit de dose dû au césium 137 mesuré en région parisienne ou en Normandie (figure 41).

Enfin, depuis quelques années, des mesures par spectrométrie gamma *in situ* sont réalisées par l'IRSN dans le cadre des bilans radioécologiques décennaux réalisés pour le compte d'EdF dans l'environnement des CNPE. La figure 42 présente ces résultats.

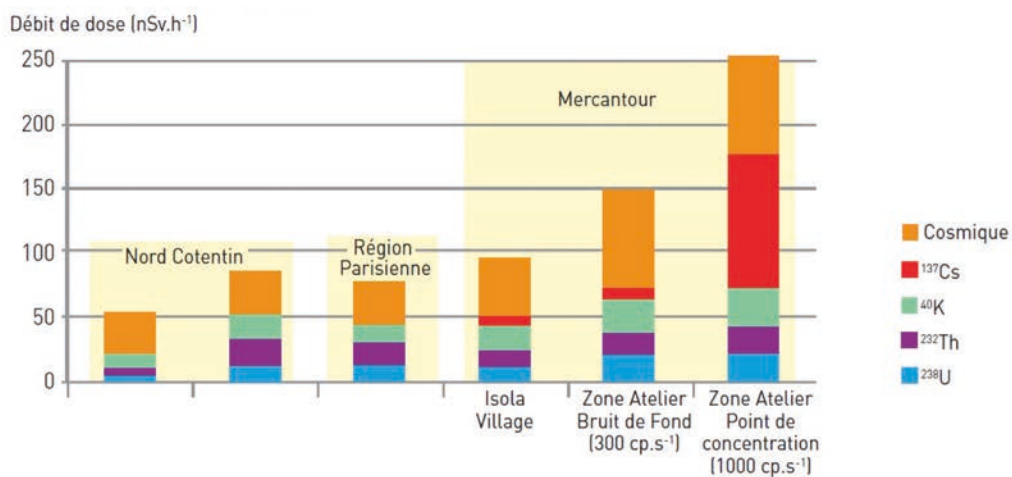


Figure 41. Débits d'équivalents de dose (nSv/h) mesurés dans des régions faiblement touchées par les retombées anciennes (région parisienne et Normandie), dans une zone de rémanence élevée des Alpes en altitude (Mercantour) et sur des « points chauds » de re-concentration du césium 137.

Débit d'équivalent de dose césium 137 (nSv/h)

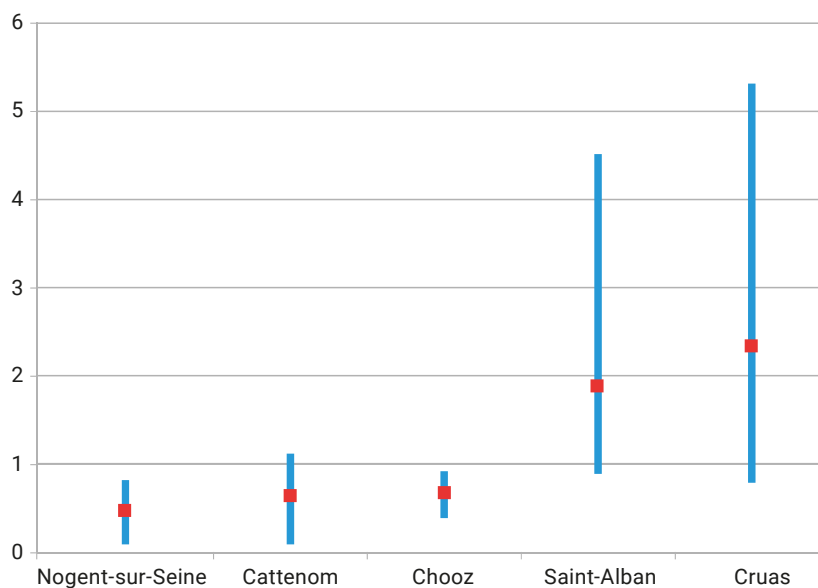


Figure 42. Débits d'équivalents de dose dus au césium 137 (min, max et moyennes en nSv/h) mesurés dans l'environnement de 5 CNPE d'EdF.

À partir de ces mesures de débits de dose, des doses efficaces externes annuelles peuvent être estimées. Pour une estimation pénalisante en zone rurale, on considère usuellement qu'une personne passe 8 h par jour en extérieur et 16 h par jour à l'intérieur d'une habitation de plain-pied dans laquelle le débit de dose correspond à 40 % de celui mesuré en extérieur.

Ainsi, aux débits d'équivalent de dose mesurés en région parisienne et en Normandie correspondent des doses efficaces externes annuelles allant de 3 à 6 $\mu\text{Sv}/\text{an}$. Sur les zones de rémanence élevée du Jura, d'Alsace et des Vosges, les doses externes correspondantes sont comprises entre 10 et 40 $\mu\text{Sv}/\text{an}$ et jusqu'à 50 $\mu\text{Sv}/\text{an}$ au niveau de la station de sports d'hiver d'Isola 2000. Il faut toutefois noter que même si une personne vivait tout au long de l'année sur cette station, l'épaisseur de neige hivernale diminuerait le débit de dose durant une partie de l'année. Enfin, la surface occupée par les « points chauds » d'altitude, le plus souvent de moins d'un mètre carré, ne permet d'imaginer qu'un temps d'exposition limité, par exemple lors d'un bivouac. À titre d'illustration, passer une centaine d'heures sur un de ces points conduirait à une dose efficace externe de 10 μSv .

L'autre approche pour l'estimation des doses externes dues au césium 137 présent dans les sols, consiste à convertir les activités massiques (Bq/kg) mesurées dans les sols, en activités volumiques (Bq/m^3 de sol) en prenant en compte la densité du sol en place, puis d'utiliser un facteur de dose exprimé en Sv/h par Bq/m^3 de sol pour estimer un débit de dose dans l'air à 1 mètre au-dessus du sol comparable aux résultats de mesure précédents. Ces estimations peuvent être faites sur la base des activités massiques mesurées dans les différentes régions et ZRE françaises présentées dans les figures 6 et 7 pages 17 et 18. Les activités massiques mesurées dans les 20 cm de surface des sols cultivés et 5 cm de surface des sols de prairie sont converties en activités volumiques en considérant une densité apparente du sol en place de 1 600 kg/m^3 pour les sols cultivés et 1 800 kg/m^3 pour les sols de prairie. Les facteurs de dose utilisés sont issus de la *Federal Guidance* américaine (*United State Environmental Protection Agency*, 1993) : $6,53 \cdot 10^{-14}$ Sv/s par Bq/m^3 pour les sols cultivés (le césium 137 est supposé réparti de manière homogène sur cette profondeur ce qui est le cas en raison du labour) et $5,83 \cdot 10^{-14}$ Sv/s par Bq/m^3 pour les sols de prairie (couche de 5 cm d'épaisseur). Un calcul similaire à celui effectué précédemment permet d'estimer les doses efficaces externes à partir des débits d'équivalents de dose.

Les tableaux 2 et 3 synthétisent l'ensemble des résultats pour les sols cultivés et les sols de prairie.

La convergence entre les débits d'équivalent de dose dus au césium 137 directement mesurés et ceux calculés à partir des activités massiques de ce radionucléide mesurées dans les sols de prairie est remarquable. Le fait que les débits de dose soient plus faibles (jusqu'à 2 fois plus faibles) au-dessus des sols cultivés s'explique principalement : d'une part par le fait que dans les sols de prairie le césium est resté en surface alors que dans les sols cultivés il a été homogénéisé sur la profondeur de labour, et d'autre part par le fait que le rayonnement émis par le césium 137 situé plus en profondeur est plus fortement absorbé par le sol même (auto-absorption), diminuant ainsi le débit de dose⁽⁴⁸⁾. La convergence entre les deux approches permet, grâce aux nombreux résultats d'activités massiques de césium 137 dans les sols disponibles, d'étendre à l'ensemble du pays, une connaissance par mesure directe des débits de dose dûs à ce radionucléide qui n'est que partielle (peu de campagnes de mesures ont été réalisées).

(48) La possibilité de diminuer le débit de dose dans l'air en labourant le sol pour favoriser l'enfouissement du césium 137 est une disposition qui a été utilisée après les accidents de Tchernobyl et de Fukushima pour limiter les expositions des personnes sur les territoires les plus touchés non évacués.

Tableau 2. Activités massiques moyennes, min et max mesurées dans les 5 cm de surface des sols de prairie dans différentes régions et ZRE françaises. Moyennes, min et max des débits d'équivalent de dose ainsi que des estimations des doses efficaces annuelles correspondantes.

	2/3 ouest du pays			1/3 est du pays	
	Activités (Bq/kg) dans les 0-5 cm de sols de prairie				
	Occitanie Nouvelle-Aquitaine	Bretagne, Normandie, Hauts-de-France	Centre-Val de Loire, Pays de la Loire	Grand Est	Rhône-Alpes, Provence-Alpes- Côte d'Azur
min	2	0,3	3	4	7
max	14	12	11	34	33
moyenne	5	5	6	11	15
Débits d'équivalent de doses associés (nSv/h)					
min	0,2	0,04	0,3	0,4	0,8
max	1,5	1,2	1,2	3,6	3,5
moyenne	0,5	0,5	0,6	1,2	1,6
Doses efficaces annuelles externes estimées (µSv/an)					
min	1	0	1	2	4
max	8	7	6	19	18
moyennes interrégionales	2	3	3	6	8
moyennes zonales	3			7	



Dispositif de spectrométrie gamma et de mesure du débit d'équivalent de dose (Constat radiologique « Zones de rémanence élevée »).

Zones de rémanence élevée						
Activités (Bq/kg) dans les 0-5 cm de sols de prairie						
ZRE des Monts d'Arrée	ZRE de la vallée du Rhône	ZRE de Corse	ZRE du Jura et du Doubs	ZRE des Vosges	ZRE des Pyrénées (en altitude)	
8	19	33	31	27	41	
39	63	39	71	143	207	
25	34	36	48	65	112	
Débits d'équivalent de doses associés (nSv/h)						
0,9	2	3,5	3,2	2,8	4,3	
4,1	6,6	4,1	7,5	15	22	
2,6	3,5	3,8	5,1	6,8	12	
Doses efficaces annuelles externes estimées (μSv/an)						
4	10	18	17	15	23	
22	35	22	39	79	114	
14	19	20	27	36	62	
		23				



Prélèvement de lait
(Constat radiologique régional « Vallée du Rhône »).

Tableau 3. Activités massiques moyennes, min et max mesurées dans les 20 cm de surface de sols cultivés de différentes régions et ZRE françaises. Moyennes, min et max des débits d'équivalent de dose ainsi que des estimations des doses efficaces annuelles correspondantes.

	2/3 ouest du pays			1/3 est du pays		Zones de rémanence élevée	
	Activités (Bq/kg) dans les 0-20 cm de sols cultivés						
	Bretagne, Normandie, Hauts-de-France	Centre-Val de Loire, Pays de la Loire	Occitanie Nouvelle-Aquitaine	Grand Est	Rhône-Alpes, Provence-Alpes-Côte d'Azur	ZRE de la vallée du Rhône	ZRE des Vosges
min	1	2	2	3	4	14	19
max	8	8	7	14	15	22	26
moyenne	4	4	4	8	9	18	21
Débits d'équivalent de doses associés (nSv/h)							
min	0,1	0,2	0,2	0,4	0,5	2	2
max	1	1	1	1	2	2	3
moyenne	0,4	0,4	0,4	1	1	2	2
Doses efficaces annuelles externes estimées (µSv/an)							
min	1	1	1	2	2	8	10
max	4	4	4	8	8	12	14
moyennes interrégionales	2	2	2	4	5	10	12
moyennes zonales	2			4		11	



Prélèvement d'eau dans un lac du Mercantour
(Constat radiologique « Zones de rémanence élevée »).

Cas du milieu urbain

Les doses efficaces externes estimées précédemment sont assez représentatives de celles reçues par des personnes vivant en milieu rural sur des sols non remaniés ou sur des sols cultivés et passant beaucoup de temps en extérieur. Nous ne disposons malheureusement d'aucune donnée sur les débits de dose dus au césium 137 en milieu urbain en France. Il est toutefois certains que les doses externes reçues par les personnes vivant en milieu urbain sont beaucoup plus faibles pour trois raisons principales : (i) la majeure partie des dépôts initiaux se sont effectués par temps de pluie (de plus de 70 % dans le cas des retombées des essais nucléaires à plus de 90 % dans les zones les plus touchées par les retombées de l'accident de Tchernobyl), si les sols ont pu garder l'essentiel de ces dépôts radioactifs, une partie importante a ruisselé vers les réseaux de collecte des eaux pluviales en milieu urbain ; (ii) plusieurs études ont montré que le césium 137 fixé sur les voiries s'élimine assez rapidement en raison de l'usure des surfaces liée au passage et au nettoyage et (iii) pour des raisons de géométrie, plus le local est à un étage élevé plus le rayonnement provenant du sol est atténué⁽⁴⁹⁾.

Le devenir des dépôts en milieu urbain détermine l'évolution du débit de dose dans l'air à l'origine de l'exposition externe de la majeure partie de la population qui vit en ville. La figure 43 est issue de travaux effectués par le *RisØ National Laboratory* danois à la suite de l'accident de Tchernobyl et reportés dans

l'UNSCEAR (UNSCEAR, 2008). Elle présente la distribution des dépôts secs et pluvieux sur différentes composantes du milieu urbain : toitures, voiries, murs, arbres et sols (espaces verts), ainsi que leur devenir 14 ans après. Ces importances relatives sont comparées à celles du sol auquel est attribuée la valeur unitaire (normalisation par le dépôt sur des sols herbeux).

Contrairement aux sols qui retiennent l'essentiel des dépôts pluvieux, ceux-ci ruissellent sur les surfaces artificielles urbaines et la majeure partie se retrouve dans le réseau de collecte des eaux pluviales. En revanche, en raison de la hauteur des habitations, les dépôts secs peuvent être plus importants que sur le sol mais ils se répartissent entre les toitures qui en retiennent la majeure partie et la voirie, les dépôts sur les surfaces verticales étant beaucoup plus faibles. En raison de leur hauteur et de leur masse foliaire, les arbres peuvent intercepter 4 fois plus les dépôts secs qu'un sol, mais retiennent très peu les dépôts pluvieux en raison de l'égouttement des feuilles.

Le césium retenu se fixe par adsorption à la surface des matériaux artificiels ; il ne pénètre pas dans la profondeur des matériaux comme dans un sol. Il en résulte que les eaux pluviales et de nettoyage peuvent facilement le solubiliser et surtout qu'il est entraîné par l'usure de la surface des matériaux. Cette décontamination plus rapide des surfaces artificielles que des sols a également été observée après l'accident de Fukushima.

Distribution relative du césium

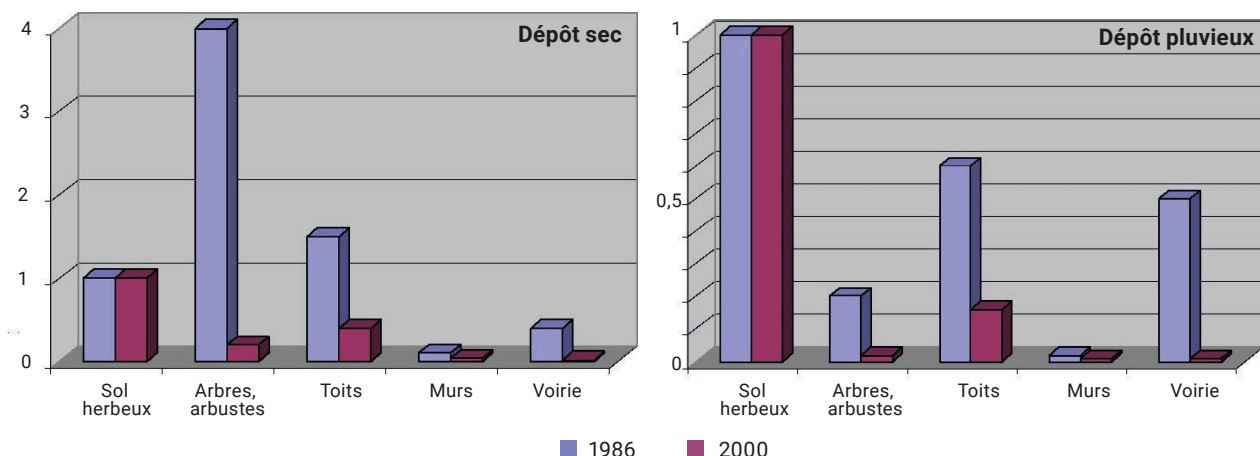


Figure 43. Distribution des dépôts secs et pluvieux sur les différentes composantes d'un milieu urbain et situation 14 ans plus tard (UNSCEAR, 2008).

(49) Les surfaces verticales (murs) ont moins intercepté les dépôts, le rayonnement venant de la voirie diminue avec la hauteur même s'il peut exister une contribution de certaines toitures aux étages se trouvant immédiatement au-dessous.

4 LE STRONTIUM 90

4 1 ORIGINE, ACTIVITÉS DANS L'AIR ET DÉPÔTS

Le strontium 90 est un radionucléide de 29 ans de période radioactive, dont la présence dans l'environnement français provient quasi exclusivement⁽⁵⁰⁾ des retombées des essais atmosphériques d'armes nucléaires. Seule l'installation de La Hague en rejette suffisamment dans ses effluents pour influencer son environnement immédiat.

Lors des retombées des essais nucléaires, son activité dans l'air était très proche de celle du césium 137 avec un rapport d'activités $^{137}\text{Cs}/^{90}\text{Sr}$ de 1,3 (courbe orange de la figure 1 page 5). En 1963, au plus fort des retombées des essais nucléaires américano-soviétiques, cette activité du strontium 90 dans l'air était de l'ordre de 1 000 $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$ d'air. Au cours des années 1970, elle fluctuait entre 1 $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$ et 40 $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$ lors des pics successifs liés aux explosions nucléaires chinoises. Elle a diminué régulièrement depuis le dernier essai nucléaire chinois d'octobre 1980 jusqu'au début des années 2000, et diminue moins vite depuis. Ces dernières années, l'activité volumique du strontium 90 dans l'air est entretenue à un niveau assez constant, de l'ordre de 0,01 à 0,1 $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$, par la combustion de biomasse⁽⁵¹⁾.

Par ailleurs, comme le césium 137 les dépôts radioactifs ont été principalement pluvieux⁽⁵²⁾ et proportionnels aux hauteurs moyennes des précipitations annuelles. Il en résulte que la carte des dépôts de strontium 90 sur la France (figure 44) est identique à celle des dépôts de césium 137 dus aux retombées des essais nucléaires (figure 2).

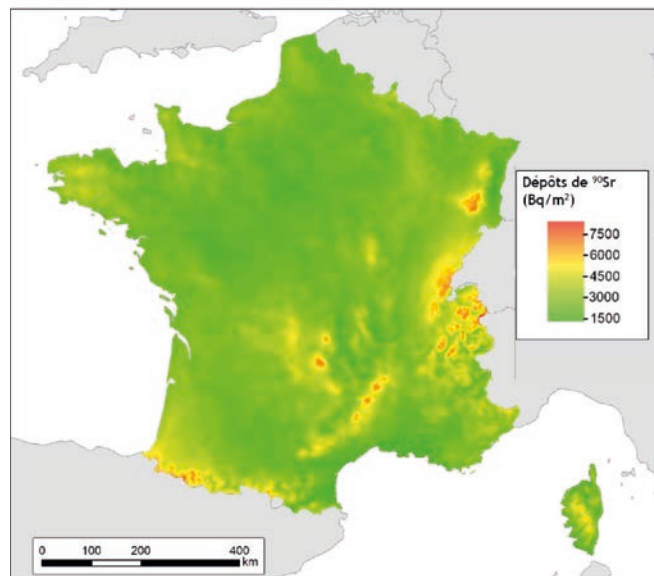


Figure 44. Carte des activités surfaciques de strontium 90 déposées sur les sols français à l'issue⁽⁵³⁾ des essais atmosphériques d'armes nucléaires.

(50) Le strontium 90 émis dans l'air lors de l'accident de Tchernobyl s'est principalement déposé dans un rayon de quelques dizaines de kilomètres autour du réacteur accidenté, et il n'a quasiment pas été décelé dans l'air en France en mai 1986. Les dépôts estimés sont très faibles ; il n'y a pratiquement pas eu d'émission de strontium 90 par voie atmosphérique lors de l'accident de Fukushima.

(51) Le strontium 90 contenu dans la biomasse est libéré dans l'air lors de son incinération (utilisation de bois de chauffage, incendies de forêt...).

(52) Le dépôt sec n'aurait représenté qu'entre 25 et 30 % du dépôt total.

(53) L'essentiel des dépôts résulte des essais américano-soviétiques arrêtés en 1963 mais dont les retombées se sont prolongées en 1964 et 1965. Les essais chinois qui se sont prolongés jusqu'en 1980 ont très peu ajouté à ces dépôts. On peut donc considérer que « l'issue des retombées des essais nucléaires atmosphériques » date de 1965.

4 2 ORIGINE DES DONNÉES DE STRONTIUM 90 EXPLOITÉES DANS CE BILAN

La mesure du strontium 90 est d'un intérêt limité pour la surveillance radiologique de l'environnement car en dehors de certaines installations du site de La Hague, il est peu ou pas rejeté par les installations nucléaires. Notamment, il n'est pas présent dans les effluents atmosphériques et liquides des CNPE d'EdF, mais il fait partie des rejets liés au démantèlement de ces installations.

Par ailleurs, le strontium 90 et son descendant radioactif à l'équilibre⁽⁵⁴⁾, l'yttrium 90, sont des émetteurs bêta purs ; ils n'émettent pas de rayonnement gamma. Sa mesure est assez aisée dans les liquides (eau, lait...) dans lesquels elle est réalisée en France depuis le début des années 1960⁽⁵⁵⁾. Concernant les échantillons solides (filtres d'aérosols, végétaux, animaux), une méthode permettait la mesure de ce radionucléide lorsque les activités massiques à mesurer étaient élevées comme c'était le cas lors des retombées des essais nucléaires. Depuis, les concentrations en strontium 90 dans l'environnement ont fortement diminué comme cela sera montré dans ce qui suit. Mesurer les très faibles concentrations observées depuis le début des années 1980 et l'arrêt des essais nucléaires, nécessite un traitement radiochimique des échantillons qui n'a été mis en place par l'IRSN pour la surveillance radiologique de l'environnement que dans les années 1990.

En raison de la durée et du coût de son analyse et surtout du faible intérêt de sa mesure dans l'environnement depuis la fin des retombées des essais nucléaires, les analyses de strontium 90 dans l'environnement sont désormais très peu nombreuses, notamment en comparaison de celles de césium 137. Elles proviennent principalement du plan de surveillance de l'IRSN (pour le lait et les céréales) ainsi que des bilans radioécologiques décennaux effectués par l'IRSN à la demande d'EdF dans l'environnement des CNPE⁽⁵⁶⁾ (pour le lait et les herbages). Par ailleurs, peu d'études et recherches sur le strontium 90 ont été réalisées en France à partir d'analyses environnementales.

Plus encore que pour le césium 137, les constats radiologiques régionaux ont permis ces dix dernières années de maintenir la connaissance que l'on a du bruit de fond du strontium 90 dans certaines composantes de l'environnement, en augmentant le nombre de résultats de mesure disponibles et la variété des types d'échantillons analysés : c'est notamment le cas pour les légumes, les fruits et la viande.

4 3 LE STRONTIUM 90 DANS LES SOLS

- Comportement et évolution des activités massiques au cours des dernières décennies _

Les dépôts de strontium 90 liés aux retombées des essais nucléaires ont constitué des stocks dans les sols qui sont devenus le réservoir à partir duquel ce radionucléide est transféré à toutes les autres composantes de l'environnement : l'air par remise en suspension (notamment éolienne et par combustion de biomasse), les cours d'eau et le milieu marin par drainage des bassins versants, la flore (principalement par transfert racinaire), la faune et l'Homme par ingestion d'aliments.

La figure 45 présente l'évolution des activités massiques de strontium 90 dans les sols mesurées par l'IRSN depuis 1974. Elle montre que, comme les dépôts, les teneurs des sols en ce radionucléide sont très liées aux précipitations moyennes annuelles. À Bussy-le-Grand, où les précipitations moyennes annuelles sont de 970 mm, les activités massiques du strontium 90 dans les sols sont 6 fois plus élevées que celles des sols du Vésinet où les précipitations moyennes annuelles sont de 640 mm. Par ailleurs, ces activités mesurées entre 1975 et 1997 témoignent de niveaux qui ont pu atteindre en 1963, lors de l'arrêt des essais nucléaires atmosphériques américano-soviétiques, 10 Bq/kg sec soit 1 800 Bq/m² au Vésinet et 60 Bq/kg sec soit 10 800 Bq/m² à Bussy-le-Grand. Ces activités surfaciques sont globalement cohérentes avec celles indiquées sur la carte de la figure 44.

(54) En raison de sa courte période de 2,7 jours, l'yttrium est considéré comme étant à l'équilibre avec le strontium 90 dans l'environnement ; ce qui signifie que son activité est égale à celle du strontium 90.

(55) En raison de l'accessibilité de sa mesure dans l'eau et le lait, le strontium 90 a été le radionucléide de référence pour quantifier les retombées des essais atmosphériques d'armes nucléaires partout dans le monde au travers de données acquises par un réseau mondial international dont chaque pays contributeur envoyait un rapport annuel à l'UNSCEAR.

(56) Le strontium 90 n'étant pas présent dans les effluents des CNPE les résultats acquis autour des CNPRE sont représentatifs du bruit de fond hérité des retombées anciennes.

Strontium 90 dans les sols de prairie

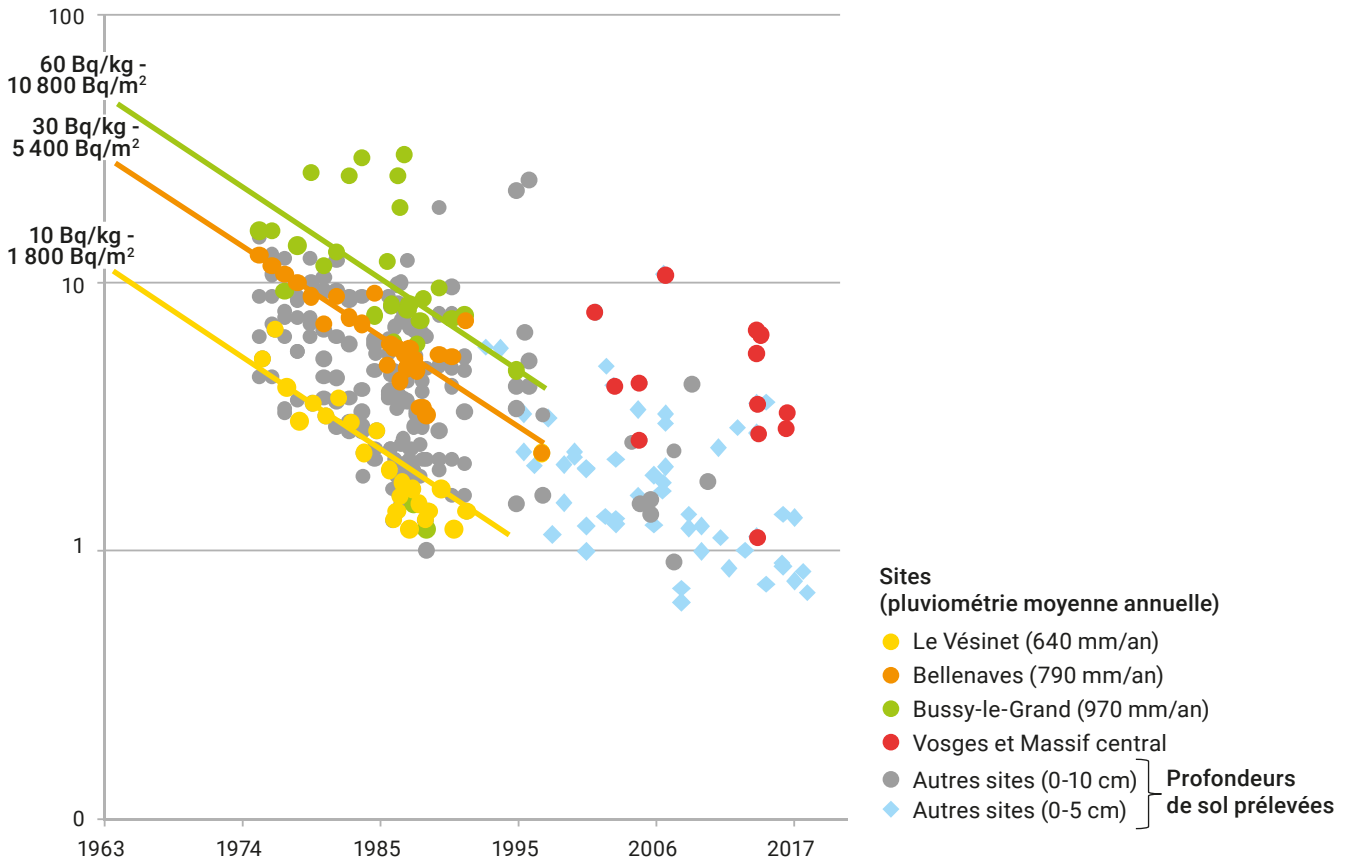


Figure 45. Évolution des activités massiques de strontium 90 dans des échantillons de sols français analysés par l'IRSN depuis 1975.

En raison d'une plus forte solubilité dans les eaux douces qui sera montrée plus loin, le strontium déposé sur les sols français lors des retombées des essais nucléaires y est beaucoup plus mobile que le césium 137 et donc plus sujet à la migration vers la profondeur sous l'action de la percolation de l'eau de pluie. De ce fait, une certaine homogénéité des activités massiques a pu être atteinte sur 10 à 30 cm y compris dans des sols non remaniés (non labourés). Cette migration plus rapide du strontium 90 explique que ce radionucléide peut être présent en quantité mesurable au-delà de 40 cm, voire 70 cm de profondeur dans certains sols et que l'on peut supposer qu'une partie du strontium a pu être solubilisée et diluée dans les eaux souterraines.

La figure 45 montre que la diminution des teneurs en strontium 90 dans les 5 à 10 cm de surface des sols est rapide, au regard notamment de celle du césium 137. Ceci résulte de la migration vers la profondeur mais aussi de la solubilisation du strontium présent dans les sols et son entraînement vers les cours d'eau. La figure 46 montre cependant que cette diminution se ralentit ces 30 dernières années.

La comparaison des résultats portant sur les 5 premiers cm de surface avec ceux portant sur les 10 cm de surface, confirme une certaine homogénéité et continuité. Par ailleurs, des carottages de sols ont été effectués en 2013-2014 dans le cadre du constat radiologique sur les zones de rémanence élevée des retombées des essais nucléaires. Les profils de contamination présentés dans la figure 47 confirment que le strontium a pu migrer à plus de 40 cm et que cette migration a induit une relative homogénéité sur cette profondeur.

Strontium 90 dans les sols de prairie (0-5 cm)

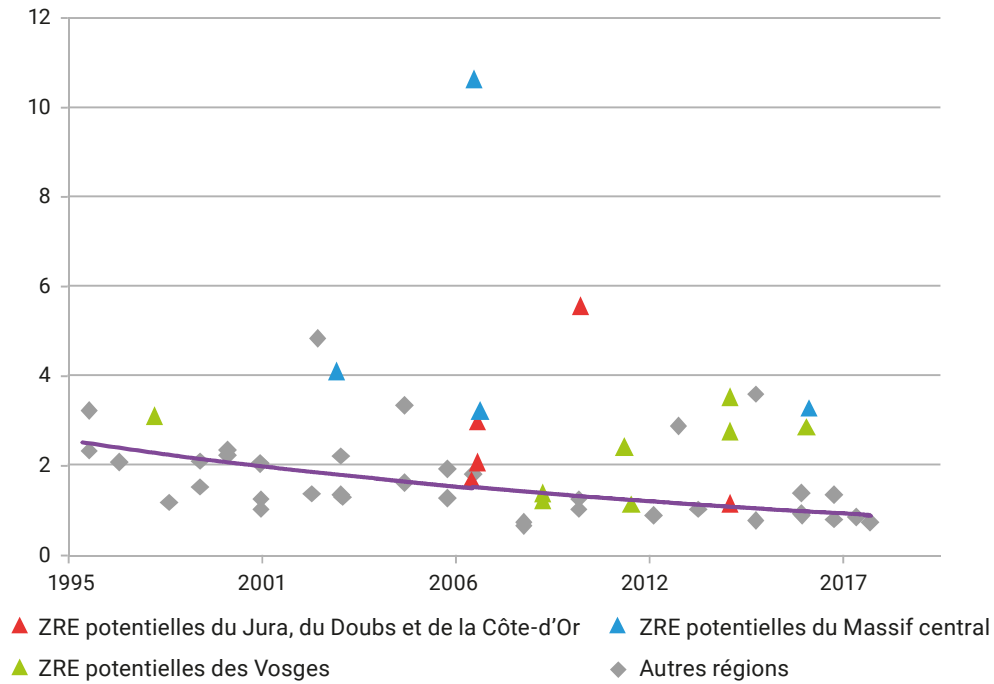


Figure 46. Évolution des activités massiques de strontium 90 dans des échantillons de sols français analysés par l'IRSN depuis 1995.

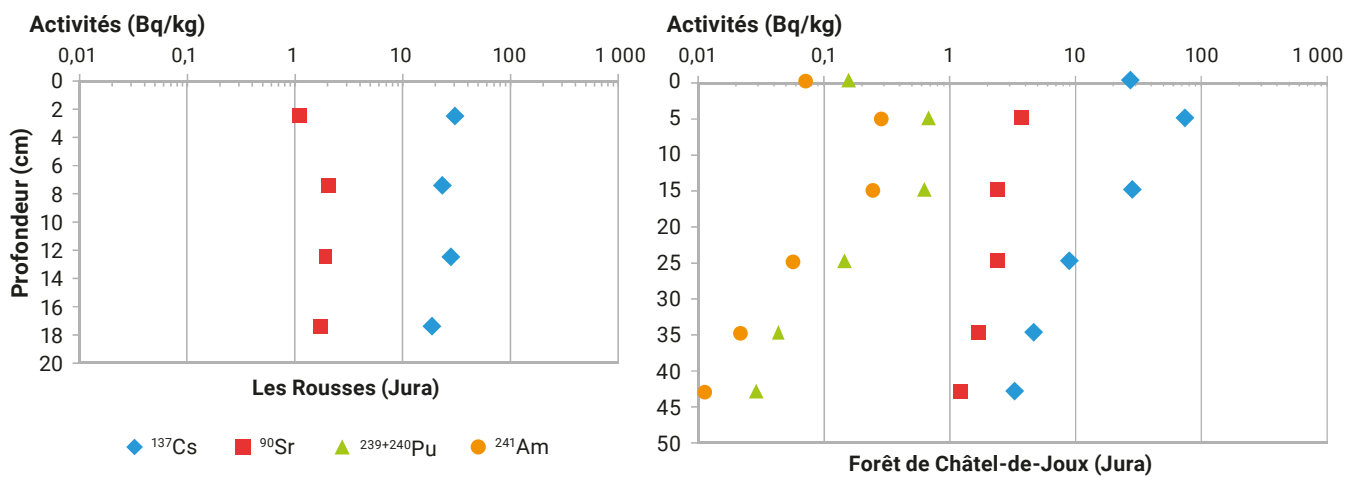


Figure 47. Évolution des activités massiques du strontium 90, de césium 137, de plutonium 239+240 et d'américium 241, en fonction de la profondeur du sol (profils de contamination).

Sur la période 2008-2018, les activités massiques de strontium 90 dans les sols sont comprises entre 0,7 et 5,6 Bq/kg pour une moyenne de 1,7 Bq/kg sec ; les valeurs les plus élevées, dépassant 2 Bq/kg proviennent majoritairement des zones les plus touchées par les retombées des essais nucléaires, celles où les précipitations moyennes annuelles sont les plus élevées. Il n'est cependant pas possible de distinguer des zones de rémanence élevée comme cela avait été le cas pour le césium 137. Plusieurs raisons peuvent être invoquées. Les dépôts radioactifs sur la France consécutifs aux essais nucléaires ont été beaucoup moins contrastés que ceux consécutifs à l'accident de Tchernobyl ; la migration rapide du strontium et plus ou moins accentuée d'un type de sol à l'autre, a contribué à effacer le contraste initial ; cependant, le nombre de données sur ces zones de rémanence potentiellement élevée est insuffisant pour révéler cet écart.

4 4

LE STRONTIUM 90 DANS LES DENRÉES

Comportement et évolution des activités depuis 1961

Le strontium 90, analogue chimique du calcium, est un élément dont l'intensité des transferts en milieu terrestre est variable bien qu'on le retrouve dans toutes ses composantes. Il peut être transféré aux végétaux par interception des aérosols atmosphériques et des gouttes d'eau de pluie contaminés, mais ce transfert se limite essentiellement aux légumes feuilles (salades, épinards...). En effet, son transfert depuis les feuilles qui interceptent les dépôts, vers les parties consommées du végétal (grain, fruit, racines ou tubercule) est plus faible que celui du césium. En revanche son absorption racinaire est plus importante ; de l'ordre de 10 fois plus importante. Les activités de strontium 90 dans les denrées alimentaires d'origine animale (viande et lait notamment) résultent de son incorporation par les animaux

lors de l'ingestion d'aliments (eau et fourrages). Toutefois, si son transfert au lait (et produits laitiers), riche en calcium, est intense, son transfert aux muscles et donc aux viandes est faible ; il est principalement transféré au squelette⁽⁵⁷⁾ (en tant qu'analogie chimique du calcium).

Dans les premières années des retombées des essais nucléaires, la contamination en strontium 90 de la chaîne alimentaire humaine a principalement résulté de l'interception des dépôts radioactifs par les feuilles des végétaux, notamment les végétaux cultivés, puis par la consommation de ceux-ci par les animaux d'élevage ou sauvages. L'accumulation du strontium 90 dans les sols a ensuite amené une augmentation du transfert racinaire dont la contribution à la contamination des végétaux est devenue équivalente à celle du transfert foliaire. En 1963, au maximum des retombées des essais nucléaires⁽⁵⁸⁾, les activités de strontium 90 dans les denrées agricoles et issues de l'élevage ont approché 1 Bq/kg et ont dépassé cette valeur dans les légumes feuilles (jusqu'à 20 Bq/kg frais), le lait (jusqu'à 10 Bq/L) et les céréales (jusqu'à 10 Bq/kg) sur les zones les plus touchées du territoire (où les hauteurs de pluie moyennes annuelles sont les plus élevées). Dès l'arrêt des essais américano-soviétiques, ces activités massiques résultant dès lors essentiellement du transfert racinaire, ont régulièrement diminué. Les brèves augmentations des activités dans l'air après les essais chinois au cours des années 1970, n'ont eu d'influence que sur la contamination des légumes feuilles et des herbages (comme indiqué plus haut, le strontium 90 migre peu au sein de la plante et donc vers les autres parties consommées des plantes).

La figure 48 présente à titre d'illustration, les évolutions des activités de strontium 90 dans les herbages depuis 1961. Ces résultats sont exprimés en Bq/kg de végétaux secs⁽⁵⁹⁾. Les activités massiques mesurées dans des échantillons prélevés à Vioménil (1 200 mm de pluie par an) et à Sauveterre (600 mm/an) dans les années 1960 et 1970, illustrent la variabilité liée aux dépôts, elle-même liée à celle des précipitations moyennes annuelles. Comme pour les sols, l'écart pouvait atteindre un facteur 5 à 6. Dans les années 1960, la contamination en strontium 90 des herbages de Vioménil pouvait atteindre 5 000 à 6 000 Bq/kg sec, alors qu'à Sauveterre elle n'a pas dépassé 1 000 Bq/kg sec.

(57) La surveillance du strontium dans les animaux s'est souvent faite au travers d'analyses d'os d'animaux, d'arêtes de poissons et même de dents de lait humaines.

(58) Nous ne disposons pas de résultats de mesures au cours des années 1950, mais même en 1953-56 au plus fort des retombées de cette décennie, les niveaux de césium 137 dans les denrées n'ont pas atteint les niveaux de 1963. Ils ont ensuite fortement diminué après le moratoire de 1959 qui a stoppé temporairement les essais atmosphériques américano-soviétiques, avant que les essais atmosphériques reprennent en 1961 (voir les activités dans le lait en 1961 sur la figure 48).

(59) Comme dans le cas d'un sol, la teneur en eau d'un échantillon d'herbe est très variable au moment du prélèvement et au moment de l'arrivée au laboratoire. C'est pourquoi les protocoles d'analyse de l'IRSN et de Subatech prévoient leur séchage en étuve avant leur mesure. Le rapport de poids frais/sec moyen est de l'ordre de 5.

La diminution des activités massiques de strontium 90 dans les herbages depuis 1963 est liée à celle des sols (figure 45). Cette diminution est assez constante depuis 1963 jusqu'à la fin des années 1990, si l'on excepte des activités ponctuellement plus élevées au cours des années 1970, liées aux bouffées d'air contaminé consécutives à chacun des essais nucléaires chinois (figure 1 page 5) (durant ces bouffées, à la contamination des végétaux par le sol venait s'ajouter celle résultant de l'interception par les feuilles du strontium 90 présent dans l'air et dans l'eau de pluie). Comme la diminution de l'activité des sols (figures 45 et 46), celle des activités massiques de strontium 90 dans les herbages se ralentit depuis le début des années 2000.

La figure 48 montre également que la variabilité augmente au fil des décennies ; à la variabilité liée aux dépôts initiaux viennent s'ajouter celle de la nature des sols dont la capacité de rétention du strontium est variable, ainsi que celle du transfert racinaire. Ces deux causes de variabilités supplémentaires atténuent les différences spatiales liées aux dépôts initiaux.

Toutefois, on observe que parmi les activités les plus élevées figurent celles mesurées dans des échantillons prélevés dans le Puy-de-Dôme (losanges violets), dans les Vosges (losanges verts) et surtout en altitude (carrés orange d'Isola 2000) où les dépôts ont été les plus importants. Il existe donc, comme pour le césium 137 mais dans une moindre mesure, des zones de rémanence élevée du strontium 90 hérité des retombées des essais nucléaires. On note également que, comme cela avait également été constaté pour le césium 137, cette rémanence n'est pas très sensible dans le Jura et le Doubs. De manière générale, les zones de rémanence élevée sont plus difficiles à caractériser que pour le césium 137, d'une part du fait d'un moindre écart avec les autres régions de France, et d'autre part du fait du nombre très limité de résultats acquis sur des échantillons qui en proviennent.

Strontium 90 dans les herbages (Bq/kg sec)

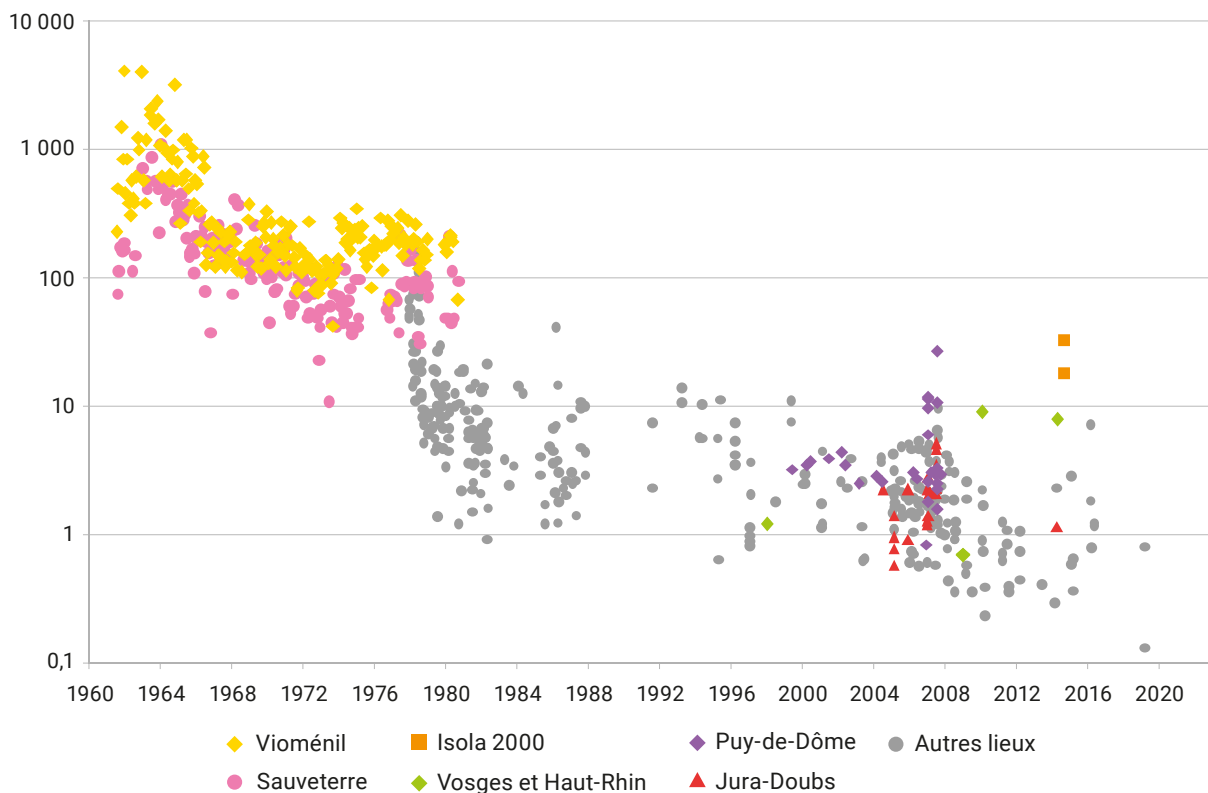


Figure 48. Évolution des activités massiques de strontium 90 dans les herbages depuis 1961 en Bq/kg sec.

Activités de strontium 90 dans le lait

La figure 49 montre que les activités volumiques de strontium 90 mesurées par l'IRSN dans des échantillons de lait de vache depuis 1961 ont augmenté pour atteindre quelques Bq/L, et jusqu'à 8 Bq/L en 1963, dans les zones les plus touchées par les retombées des essais nucléaires, comme c'était le cas à Vioménil dans les Vosges. Dans les zones les moins touchées, comme à Sauveterre dans le Gard, elles n'ont que peu dépassé 1 Bq/L. Depuis 1963, la diminution de ces activités volumiques a été très régulière et étroitement liée à la baisse des activités massiques observée dans les sols. De plus, les augmentations liées aux bouffées de contamination de l'air consécutives aux essais nucléaires chinois, observées pour les herbages, ne sont quasiment pas discernables pour le lait, ce qui s'explique par la brièveté de ces bouffées.

Bien que les vaches ne soient pas toujours nourries principalement d'herbages, on note que les activités volumiques mesurées dans le lait sont cohérentes avec celles des herbages : en considérant une ingestion de 13 kg par jour

de matière sèche (valeur recommandée en alimentation des vaches laitières), une activité massique des herbages de l'ordre du millier de Bq/kg sec mesurée dans les années 1960 induirait bien une activité volumique du lait sur cette même période de l'ordre de la dizaine de Bq/L⁽⁶⁰⁾.

Il est encore plus difficile pour le lait que pour les herbages, mais pour les mêmes raisons, de caractériser des zones de rémanence élevée de strontium 90. Il peut cependant en exister localement, comme en témoignent les échantillons prélevés en altitude au début des années 2000 à Isola 2000 et de quelques échantillons prélevés dans les Vosges entre 2007 et 2016.

Pour la période 2008-2019, les activités volumiques de strontium 90 dans le lait mesurées par l'IRSN s'étalent de 0,007 à 0,3 Bq/L pour une moyenne de 0,045 Bq/L.

L'IRSN effectue également des analyses de strontium 90 dans du lait de chèvre. La moyenne de 0,042 Bq/L est très proche de celle du lait de vache, dans une gamme de variabilité un peu plus étroite (de 0,014 à 0,13 Bq/L) liée au fait que les échantillons sont collectés sur un nombre restreint de stations toutes localisées dans le sud-est de la France.

Strontium 90 dans le lait de vache (Bq/L)

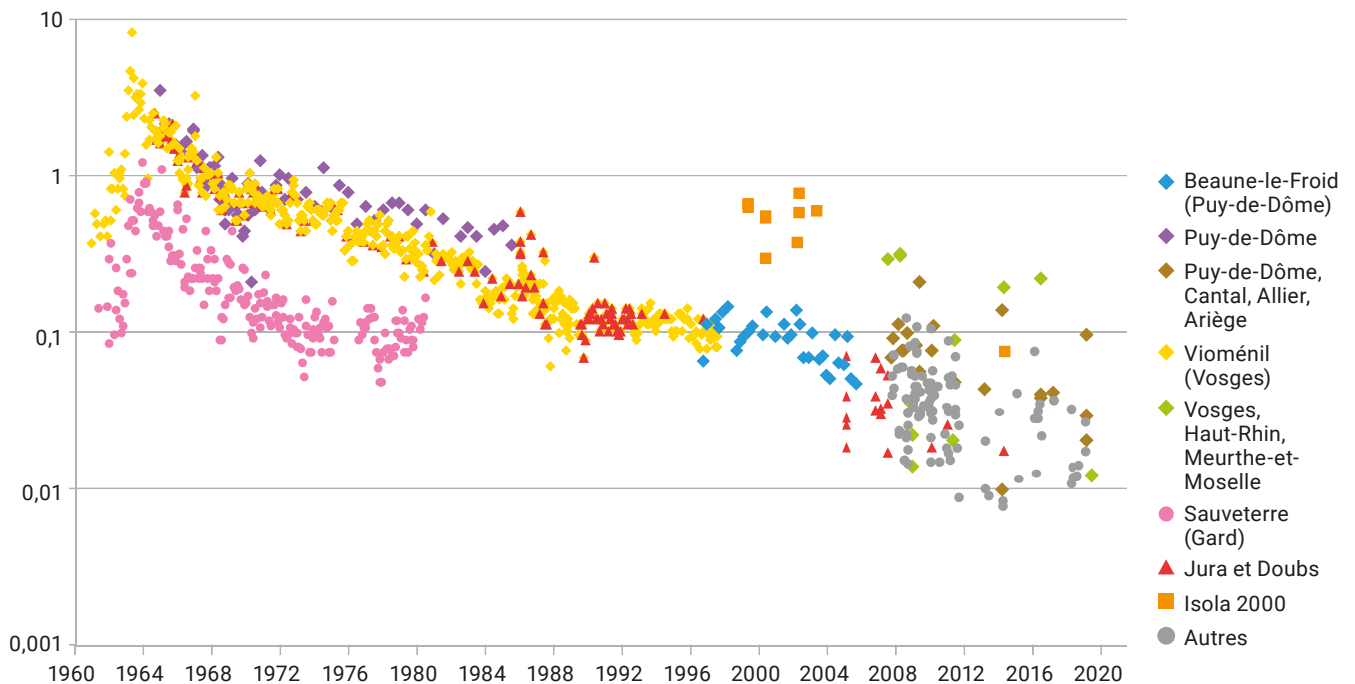


Figure 49. Évolutions temporelles des activités de strontium 90 dans le lait de vache produit en France depuis 1961 (Bq/L).

(60) En utilisant le facteur de transfert de 0,001 Bq/L par Bq ingéré par jour préconisé par l'AIEA.

Activités de strontium 90 dans les fromages

La figure 50 présente les activités massiques de strontium 90 mesurées par l'IRSN depuis 2007 dans des échantillons de fromages. Les activités de ce radionucléide varient fortement en fonction principalement de la zone de production. C'est dans les fromages produits sur les zones où les retombées des essais nucléaires ont été les plus importantes que les activités les plus élevées ont été mesurées. Avec des activités moyennes de 1,2 Bq/kg frais, 1,0 Bq/kg frais et 0,6 Bq/kg frais, les teneurs en strontium 90 de la tomme du Puy-de-Dôme, du munster d'Alsace et du saint-nectaire du Puy-de-Dôme se situent plus de dix fois au-dessus de celles des autres fromages de vache (moyenne de 0,05 Bq/kg frais). On notera également que la tome produite à Isola 2000 se situe également dans les activités les plus élevées. Bien que provenant aussi de zones plus fortement touchées par les retombées des essais nucléaires, le comté du Jura se situe en situation intermédiaire avec une moyenne de 0,2 Bq/kg frais.

Enfin, les activités des fromages de chèvre sont, de manière générale, plus élevées que celles des fromages de vache avec une moyenne de 0,4 Bq/kg frais qui se rapproche de celles des fromages de vache des zones les plus touchées par les retombées des essais nucléaires. Ceci résulte en partie du fait que les fromages de chèvre sont plus secs (moins forte teneur en eau) que les fromages de vache. La teneur en strontium 90 du fromage de brebis prélevé en altitude à Laruns dans les Pyrénées (2,7 Bq/kg sec) se distingue nettement de celle des fromages de chèvre ; son activité massique s'apparente à celle du fromage de vache d'Isola 2000.

Strontium 90 dans les fromages (Bq/kg frais)

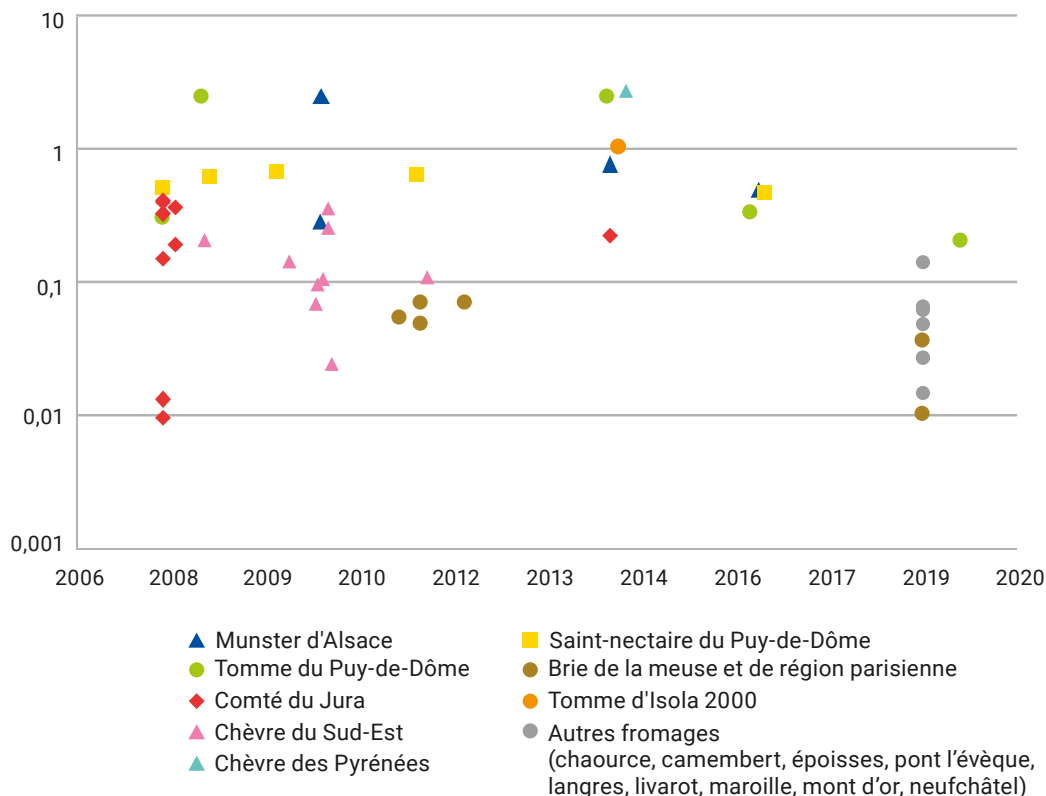


Figure 50. Activités massiques de strontium 90 mesurées par l'IRSN depuis 2008 dans des fromages (Bq/kg frais).

Activités de strontium 90 dans les denrées végétales (céréales, légumes et fruits) _

Quatre-vingt-onze des quatre-vingt-dix-neuf résultats d'analyses de strontium 90 dans des échantillons de céréales réalisés par l'IRSN depuis 2007 ont donné des résultats significatifs. Les activités massiques mesurées vont de 0,017 à 0,7 Bq/kg frais avec une moyenne de 0,17 Bq/kg frais. Les quelques échantillons prélevés sur des zones de rémanence potentiellement élevée, présentent des activités proches de la moyenne et ne se distinguent donc pas des autres échantillons.

Très peu d'analyses de strontium 90 sont effectuées dans les fruits et les légumes dans le cadre de la surveillance régulière. Aussi, la majorité des résultats de mesure acquis par l'IRSN depuis 2008 l'ont été dans le cadre des constats radiologiques régionaux sur la période 2008-2012 (Sud-Ouest, Val de Loire, Vallée du Rhône et Nord-Est) et sur la période 2017-2018 (Normandie et Hauts-de-France). Les activités de strontium 90 dans les légumes feuilles, les autres légumes et les fruits varient dans la même gamme (figure 51). Compte tenu du nombre très restreint de résultats, notamment dans les fruits, une moyenne globale pour l'ensemble des légumes et des fruits a été calculée ; elle est de 0,11 Bq/kg frais.

Activités de strontium 90 dans les viandes d'élevage et de gibiers _

Le strontium 90 est très peu transféré dans la viande, de 20 à 100 fois moins que le césium 137 par exemple. C'est pourquoi il n'est quasiment jamais analysé dans ce type de denrées. Cependant, à des fins de confirmation, une quinzaine d'analyses a été effectuée dans différentes viandes d'élevage (cochon, volaille, taureau) et de gibiers (cerfs, sangliers et canards) dans le cadre des constats radiologiques régionaux « Sud-Ouest » et « Val de Loire » ainsi que dans celui relatif aux zones de rémanence élevée des retombées anciennes. Seules les activités massiques de 3 de ces échantillons ont pu être quantifiées avec des valeurs comprises entre 0,01 et 0,03 Bq/kg frais ; il s'agit de viande de gibiers. Toutes les autres analyses, y compris celles faites sur les autres échantillons de gibiers, ont donné des résultats inférieurs à des seuils de décision compris entre 0,001 et 0,025 Bq/kg frais et le plus souvent inférieurs à 0,005 Bq/kg frais. Ces résultats confirment donc le peu d'intérêt des analyses de strontium 90 dans la viande.

Strontium 90 dans les légumes et les fruits (Bq/kg frais)

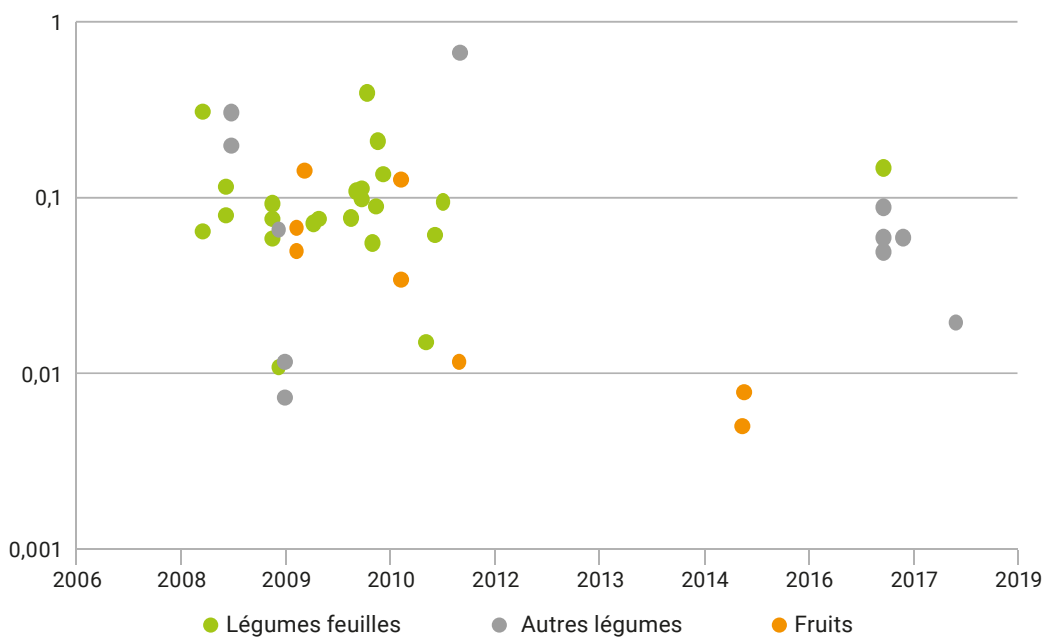


Figure 51. Activités massiques de strontium 90 mesurées par l'IRSN depuis 2008 dans des échantillons de légumes et de fruits (Bq/kg frais).

4 5 LE STRONTIUM 90 EN MILIEU AQUATIQUE CONTINENTAL

Eaux filtrées des cours d'eau

En raison de sa solubilité, le strontium est facilement entraîné des sols vers les cours d'eau dans lesquels il est très majoritairement présent sous forme soluble. En effet, près de 90 % du strontium présent dans les cours d'eau se trouvent sous forme dissoute.

Les plus anciennes analyses de strontium 90 dans des eaux de surface filtrées ont été faites dans des échantillons de la Seine et de la Loire dès 1967. La moyenne annuelle des activités volumiques mesurées mensuellement cette année-là était de 0,013 Bq/L pour la Seine et 0,019 Bq/L pour la Loire. Ces activités volumiques ont diminué de 5 à 7 fois depuis, puisque sur la période 2008-2019 elles sont en moyenne de 0,0019 Bq/L pour la Seine et 0,0046 Bq/L pour la Loire.

Cette diminution des activités dans les fleuves est liée à celle du strontium 90 dans les sols, disponible pour être mobilisé lors du ruissellement des eaux pluviales. Le fait que cette diminution soit du même ordre, voire moins rapide, que celle des teneurs en strontium 90 des sols, témoigne que ce radionucléide reste très mobilisable dans les sols (contrairement au césium 137 dont la mobilité se ralentit au fil des années).

La figure 52 montre que les teneurs en strontium 90 des eaux filtrées sont assez homogènes tout au long d'un cours d'eau et entre les grands cours d'eau français. Les moyennes sont presque toutes autour de 0,005 Bq/L dans une gamme allant de 0,002 à 0,008 Bq/L. On note que les activités sont plus élevées dans la Durance et dans l'Isère (0,011 et 0,015 Bq/L respectivement). Ceci pourrait être attribuable à la taille du cours d'eau (moindre débit et donc dilution au regard de la taille du bassin versant drainé).

Ainsi, bien que les activités de strontium 90 dans les sols soient beaucoup plus faibles que celles de césium 137, son activité dans les eaux filtrées des cours d'eau est beaucoup plus élevée (de 5 à plus de 10 fois plus élevée), en conséquence de sa plus forte solubilité.

Strontium 90 dans les eaux filtrées (Bq/L)

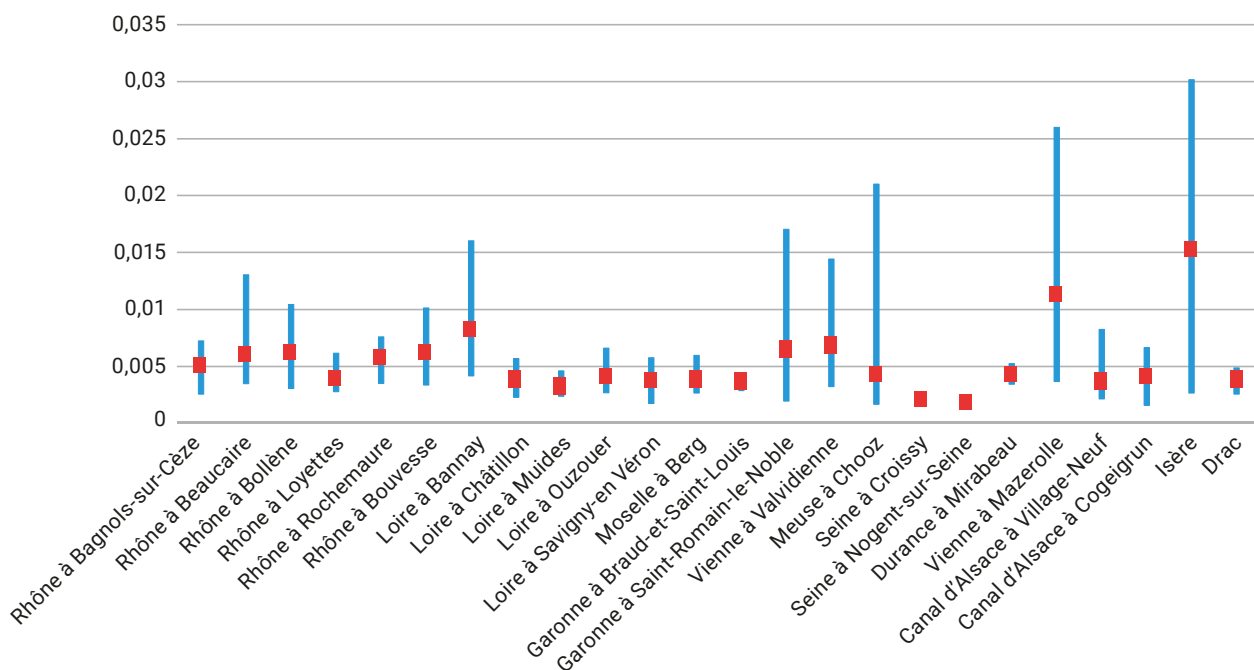


Figure 52. Activités volumiques du strontium 90 dans les eaux filtrées mesurées par l'IRSN sur la période 2008-2019 (Bq/L).

Plantes aquatiques

Le transfert du strontium 90 aux végétaux aquatiques résulte de l'adsorption sur les feuilles et surtout de sa bio-assimilation qui est facilitée par sa présence sous forme dissoute dans l'eau. Néanmoins la capacité de fixation et de rétention du strontium par les plantes aquatiques est assez faible.

La figure 53 présente les activités de strontium 90 mesurées depuis 1980 dans des échantillons de plantes aquatiques. Leur diminution est similaire à celle des eaux filtrées : une diminution de 5 fois entre 1978 et 2015. Les mesures disponibles ne sont pas assez nombreuses pour permettre de comparer les teneurs dans les différents cours d'eau. Toutefois, la relative homogénéité observée dans les eaux filtrées laisse penser que cette homogénéité d'un cours d'eau à l'autre, existe aussi pour les plantes aquatiques. Sur la période 2006-2015, l'activité moyenne déduite de seulement 15 résultats de mesure est de 0,8 Bq/kg sec avec une gamme allant de 0,3 à 1,4 Bq/kg sec. Le rapport entre l'activité moyenne de strontium dans les plantes aquatiques et celle de l'eau est de l'ordre de 160 Bq/kg sec par Bq/L (L/kg sec) ; cette valeur est du même ordre que celle retenue à partir des données de la littérature qui est de 500 L/kg sec.

Les poissons

Contrairement au césium 137 et en raison de sa prépondérance sous forme dissoute dans l'eau, le transfert du strontium aux poissons se fait principalement par imbibition et dans une moindre mesure par l'alimentation. De manière générale, le strontium est faiblement accumulé par les organismes. Comme le calcium auquel il s'apparente, il est plus particulièrement transféré au squelette et aux écailles dans lesquels il s'accumule plus fortement que dans la chair.

Les analyses de strontium 90 dans les poissons fluviaux sont peu nombreuses mais régulières depuis les années 1970. Jusqu'au début des années 1990, elles étaient plus nombreuses dans le Rhône. Il s'agissait de quantifier l'influence des rejets liquides de ce radionucléide par certaines installations du site de Marcoule.

Strontium 90 dans les plantes aquatiques (Bq/kg sec)

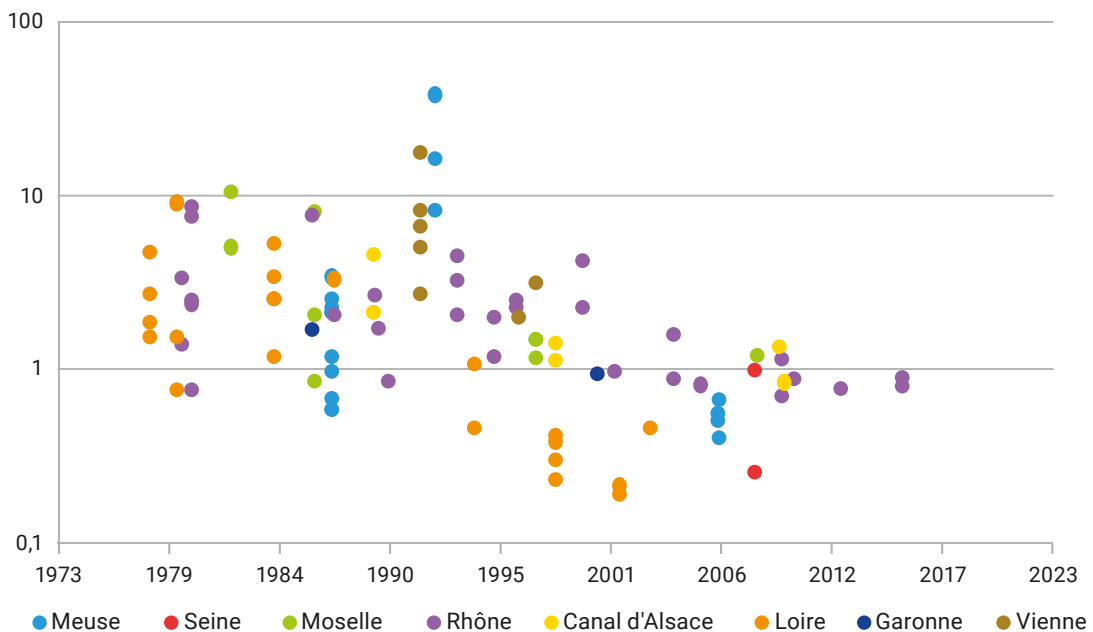


Figure 53. Évolution temporelle des activités massiques de strontium 90 dans les plantes aquatiques prélevées dans différents fleuves ou rivières depuis 1975 (Bq/kg sec).

La figure 54 montre que les activités massiques des poissons fluviaux ont fortement diminué depuis les années 1970 passant de valeurs de l'ordre de 1 Bq/kg frais à des valeurs de l'ordre de 0,01 Bq/kg frais observées depuis 2006. Cette diminution de 100 fois sur environ 30 ans, a été plus importante que celle des activités des eaux et des plantes aquatiques dont les activités ont diminué de moins de 10 fois sur la même période. Le facteur de concentration du strontium 90 entre l'eau et les poissons, aurait donc évolué sans que l'on puisse avancer d'explication : il était de l'ordre de 50 L/kg frais en 1970, il est de l'ordre de 2 L/kg frais actuellement. Ces deux valeurs sont bien sûr dans la très large gamme des valeurs indiquées dans la littérature (de 1 à 1 000 L/kg). À noter que des valeurs similaires, de 2 à 80 L/kg ont été reportées dans la rivière Técha en Russie dans les années 1990.

Bien que les activités massiques des poissons pêchés en aval de Marcoule, potentiellement soumis à l'influence des rejets du site, ne se distinguent pas nettement des autres dans leur évolution, un écart apparaît sur la période la plus récente.

C'est pourquoi, l'activité moyenne de strontium 90 dans les poissons fluviaux sur la période 2006-2018 a été calculée en excluant les résultats relatifs aux poissons pêchés en aval de Marcoule ; l'activité massique moyenne ainsi calculée est de 0,015 Bq/kg frais dans une gamme allant de 0,007 à 0,035 Bq/kg frais.

Les sédiments

Les analyses de strontium 90 dans les sédiments de cours d'eau français sont extrêmement rares ; 19 seulement ont été effectuées par l'IRSN depuis 2008 dont 14 dans le cadre des constats radiologiques « Normandie et Hauts-de-France » (3 analyses) et surtout « Sud-Ouest » (11 analyses). Cet ensemble de données n'a permis de quantifier que 9 fois les activités massiques qui vont de 0,4 à 1,4 Bq/kg sec pour une moyenne de 0,8 Bq/kg sec.

Strontium 90 dans les poissons fluviaux (Bq/kg frais)

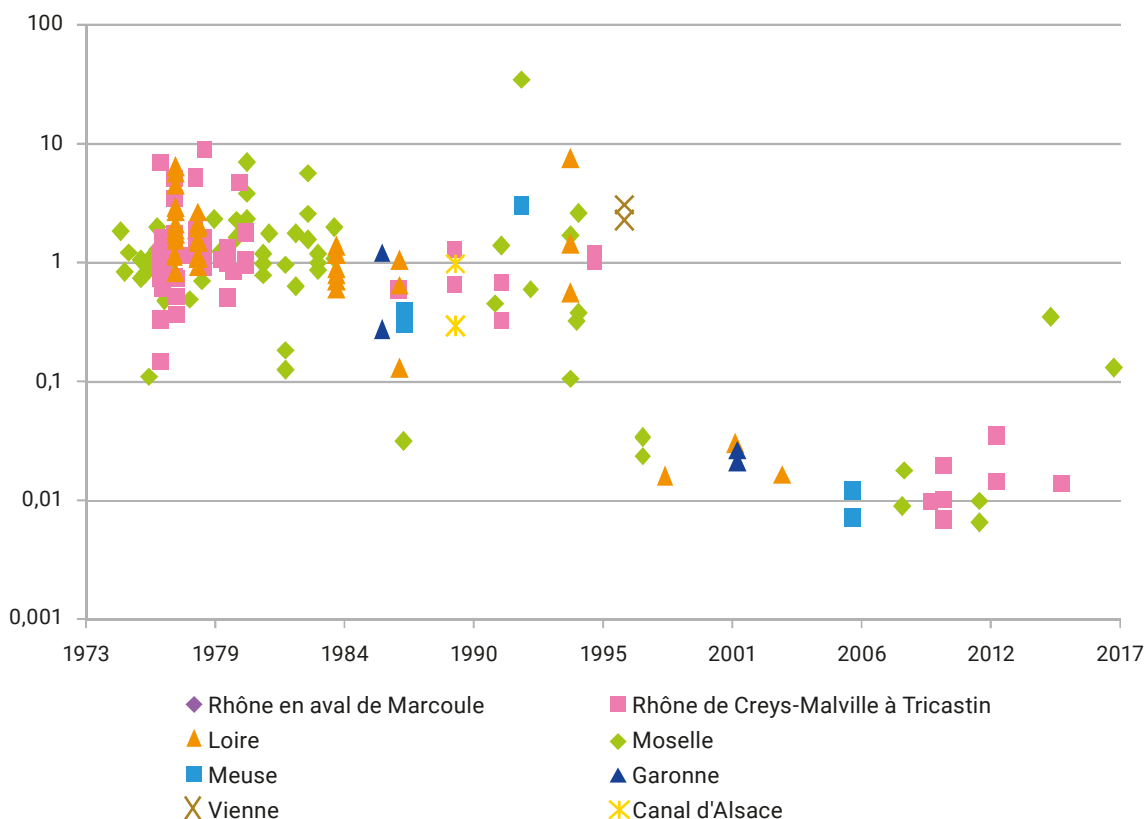


Figure 54. Évolution temporelle des activités de strontium 90 mesurées dans des poissons de fleuves et de rivières français depuis 1973 (Bq/kg frais).

4 6 LE STRONTIUM 90 EN MILIEU MARIN

Les activités de strontium 90 en milieu marin sont extrêmement faibles et le plus souvent non mesurables même au moyen des meilleures techniques disponibles. C'est pourquoi les analyses effectuées par l'IRSN ne portent quasiment que sur des échantillons provenant de la Manche et de la mer du Nord potentiellement influencées par les rejets liquides du site de La Hague et des environs des installations de la Marine nationale de Brest et de l'Île Longue. Même sous ces influences potentielles, les activités dans la chair des poissons, des crustacés et des mollusques, sont presque toutes au-dessous des seuils de décision qui sont le plus souvent compris entre 0,005 et 0,04 Bq/kg frais. Ainsi, sur 38 analyses de poissons réalisées par l'IRSN depuis 2008, seules 7 ont permis de quantifier des activités comprises entre 0,02 et 0,2 Bq/kg frais ; il s'agit de poissons pêchés à proximité de La Hague et dans le port de Brest. De même, sur 92 analyses de moules, huîtres et patelles, seule l'activité massique d'un échantillon de patelle prélevé à Jobourg a pu être quantifiée avec une valeur de 0,05 Bq/kg frais. À noter que les échantillons de moules de Méditerranée, dont la teneur en strontium relève indubitablement du bruit de fond de ce radionucléide ont tous donné des résultats inférieurs à des seuils de décision de 0,01 à 0,03 Bq/kg frais. Les activités massiques de strontium les plus élevées mesurées dans des organismes marins par l'IRSN l'ont été dans des crustacés de la Manche : 7 activités massiques comprises entre 0,14 et 12 Bq/kg frais. Il n'est pas possible de déterminer la contribution des rejets de La Hague à ces activités.

En revanche, les activités les plus élevées mesurées dans des sédiments de la Manche, supérieures à 1 Bq/kg et allant jusqu'à 55 Bq/kg sec, sont indubitablement influencées par les rejets de ce site.

Pour essayer de combler cette lacune sur la connaissance du bruit de fond du strontium 90 en milieu marin et considérant que ce radionucléide s'accumule essentiellement dans cette partie des organismes, 33 échantillons de squelette de poissons ont été analysés en 2013 dans le cadre du constat « Méditerranée ». Malgré cette accumulation, la plupart des résultats de mesures sont inférieurs aux seuils de décision compris entre 0,01 et 0,06 Bq/kg de squelette. Les activités massiques mesurées dans 7 échantillons sont comprises entre 0,09 et 2,2 Bq/kg de squelette.

4 7 EXPOSITIONS DE LA POPULATION AU STRONTIUM 90 PRÉSENT DANS L'ENVIRONNEMENT FRANÇAIS

Le strontium 90 ne génère pas d'exposition externe et les doses liées à son inhalation sont négligeables au regard de celles liées à son incorporation par ingestion de denrées. Le tableau 4 fournit, pour ce radionucléide, les informations similaires à celles figurant dans le tableau 1 pour le césium 137. Comme indiqué dans l'introduction, les données disponibles ne permettent pas, comme cela a pu être le cas pour le césium 137, de discerner des zones de rémanence élevée et de leur attribuer des valeurs spécifiques d'activités massiques dans les denrées qui y sont produites. Elles ne permettent pas non plus de distinguer les activités massiques de certaines catégories de denrées. Ainsi, une même activité massique moyenne a été attribuée aux légumes fruits et aux légumes racines, de même pour le lait de chèvre et le lait de vache, ainsi que pour les différents types de viandes.

La valeur du facteur de dose par unité d'incorporation (DPUI) utilisée ($2,8 \cdot 10^{-8}$ Sv/Bq ingéré), est celle fixée par l'arrêté du 1^{er} septembre 2003 du *Journal officiel de la République française*.

Tableau 4. Doses efficaces par incorporation de strontium 90 liées à l'ingestion de denrées produites en France pour un adulte en 2020.

Catégories de denrées	Activités massique ou volumique (Bq/kg frais ou Bq/L)	Rations (kg/an)	Doses efficaces ($\mu\text{Sv}/\text{an}$)	Contributions (%)
Dérivés céréaliers	0,17	31	$1,6 \cdot 10^{-1}$	12
Légumes feuilles	0,4	24	$3 \cdot 10^{-1}$	23
Légumes fruits	0,11	60	$2 \cdot 10^{-1}$	15
Légumes racines	0,11	38	$1,2 \cdot 10^{-1}$	10
Lait de vache*	0,04	59	$6,9 \cdot 10^{-2}$	5
Lait de chèvre	0,04	5,5	$5,6 \cdot 10^{-3}$	0,4
Fromages chèvre/brebis	0,39	1,1	$1,3 \cdot 10^{-2}$	1,0
Fromages de vache	0,39	13	$1,5 \cdot 10^{-1}$	12
Viande de bœuf**	0,01	21	$6,4 \cdot 10^{-3}$	0,5
Porc	0,01	30	$9,1 \cdot 10^{-3}$	0,7
Viande de volaille	0,01	16	$5 \cdot 10^{-3}$	0,4
Fruits	0,05	55	$8 \cdot 10^{-2}$	6,1
Vins et cidres	0,05	27	$3,9 \cdot 10^{-2}$	3,0
Poissons de mer	0,05	11	$1,7 \cdot 10^{-2}$	1,3
Mollusques et crustacés***	0,03	1,6	$1,5 \cdot 10^{-3}$	0,1
Poissons de rivière	0,03	0,6	$5,4 \cdot 10^{-4}$	0,04
Viande de gibier	0,4	0,4	$1,2 \cdot 10^{-4}$	0,01
Champignons sauvages	2,5	2,5	$8,8 \cdot 10^{-3}$	0,7
Eau	0,005	730	$1,1 \cdot 10^{-1}$	8,6

* Et produits laitiers frais (yaourts, fromages frais...).

** Et viande de mouton.

*** L'activité massique moyenne est celle des coquillages, les activités des crustacés et des céphalopodes étant le plus souvent non quantifiables et inférieures à cette valeur.

La dose efficace totale due à l'incorporation de strontium 90 par ingestion de denrées produites au cours des 10 dernières années est estimée à 1,3 $\mu\text{Sv}/\text{an}$. Bien que les activités de strontium 90 dans les sols soient moins élevées que celles de césium 137 (pas de retombées de l'accident de Tchernobyl et plus forte migration vers la profondeur), la dose due au strontium 90 par ingestion de denrées est du même ordre et même plus élevée que celle due au césium 137 (hors zone de rémanence élevée). Ceci résulte d'une part d'un transfert racinaire plus important du strontium 90 vers les denrées végétales (légumes, fruits, et céréales) et d'un transfert important vers le lait (et malgré un faible transfert aux viandes), et d'autre part, par un facteur de dose du strontium 90, 2 fois plus élevé que celui du césium 137. Ainsi, ce sont les denrées végétales, les fruits ainsi que le lait et les fromages qui contribuent à plus de 80 % de la dose efficace totale due à l'incorporation de ce radionucléide.

Le strontium 90 étant majoritairement soluble dans l'eau douce (contrairement au césium 137 qui y est majoritairement sous forme particulaire), l'ingestion d'eau de boisson contribue à 9 % de la dose totale (figure 55). Compte tenu des contributions assez homogènes des types de denrées à cette dose totale, il n'est pas utile de considérer de scénario particulier lié à des pratiques spécifiques comme cela avait été le cas pour le césium 137 (ingestion de gibiers et de champignons).

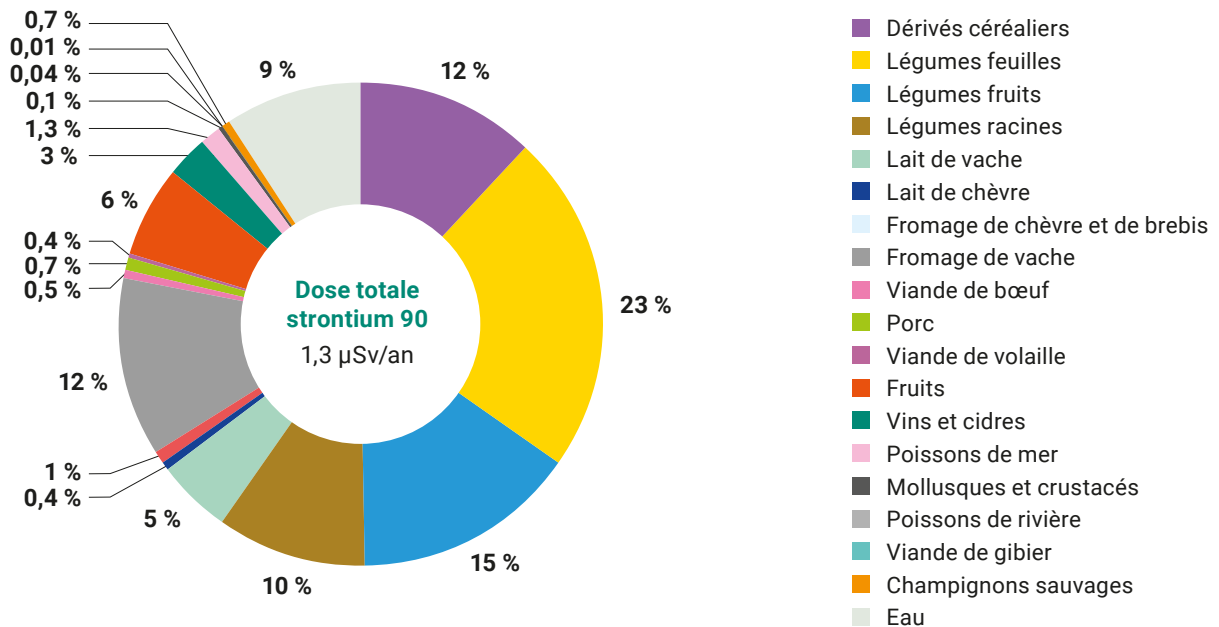


Figure 55. Doses efficaces totales pour des adultes liées à l'incorporation de strontium 90 par ingestion de denrées produites en France entre 2008 et 2019 (en $\mu\text{Sv}/\text{an}$) et contribution des différentes catégories de denrées (en %).



Prélèvements en mer sur un navire de l'Ifremer (Constat radiologique régional « Méditerranée »).

LES ISOTOPES DU PLUTONIUM ET L'AMÉRICIUM 241

5 1

ORIGINE ET RAPPORTS D'ACTIVITÉS ISOTOPIQUES

Les retombées atmosphériques anciennes : les essais nucléaires et la désintégration du satellite SNAP-9A

La présence d'isotopes du plutonium (plutonium 238, 239, 240 et 241) et d'américium 241 dans l'environnement, résulte principalement des retombées des essais atmosphériques d'armes nucléaires. L'américium n'a pas été produit directement lors des explosions, mais résulte de la désintégration du plutonium 241 (période radioactive de 14 ans).

Pour des raisons métrologiques qui seront explicitées plus loin, il est d'usage de considérer ensemble les plutoniums 239 et 240 et de sommer leurs activités. Cette paire constitue la référence vis-à-vis des retombées des autres isotopes, notamment au travers des rapports d'activités isotopiques qui seront également présentés plus loin.

La courbe rouge de la figure 1 page 5 montre l'évolution de l'activité volumique de plutonium 239+240 dans l'air métropolitain français depuis 1959. En 1963, au plus fort des retombées des essais nucléaires américano-soviétiques, cette activité était de l'ordre de $10 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$ d'air. Au cours des années 1970, elle fluctuait entre $0,3 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$ et $3 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$ lors des pics d'activités successifs liés aux explosions nucléaires chinoises. Elle a diminué régulièrement depuis le dernier essai nucléaire chinois d'octobre 1981 jusqu'au début des années 1990, et diminue moins vite depuis. Ces dernières années, l'activité volumique du plutonium 239+240 dans l'air est entretenue à un niveau assez constant de l'ordre de $0,0001$ à $0,01 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$ par la remise en suspension de poussières provenant du sol, lui-même marqué en plutonium (voir paragraphe suivant).

Comme le césium 137 et le strontium 90, les dépôts radioactifs de plutonium se sont principalement effectués lors des pluies⁽⁶¹⁾ et sont donc proportionnels aux hauteurs moyennes de précipitations annuelles. Il en résulte que la carte des dépôts de plutonium 239+240 sur la France (figure 56) ressemble

à celle du strontium 90 en termes de répartition spatiale, mais avec des activités de l'ordre de 100 fois moindres, car le plutonium était 100 fois moins abondant dans l'air que le strontium 90. Ainsi, sur la majeure partie du pays, les activités surfaciques de strontium 90 déposées ont été inférieures à $100 \text{Bq}/\text{m}^2$, ne dépassant que rarement $175 \text{Bq}/\text{m}^2$ sur les zones les plus pluvieuses.

Le 21 avril 1964, un satellite de navigation américain équipé d'un générateur auxiliaire SNAP-9A (*System for Nuclear Auxiliary Power Generator*) s'enflamme lors de sa rentrée dans l'atmosphère au-dessus de l'océan indien, libérant ainsi une activité en ^{238}Pu presque double de celle due à l'ensemble des essais militaires pour ce radionucléide. 80 % des retombées se sont faites dans l'hémisphère sud entre 1965 et 1973 ; ce long temps de résidence dans l'atmosphère est lié à l'altitude élevée de l'explosion (46 km). Les 20 % des retombées qui ont eu lieu sur l'hémisphère nord ont conduit à des dépôts très faibles, de l'ordre de $1 \text{Bq}/\text{m}^2$. Les conséquences de cet événement sur les activités de plutonium 238 dans l'environnement apparaissent surtout au travers des rapports d'activités isotopiques étudiés dans le paragraphe suivant. Enfin, certains sites nucléaires ont marqué de manière très locale leur environnement en actinides (voir chapitre 5.2 page 80).

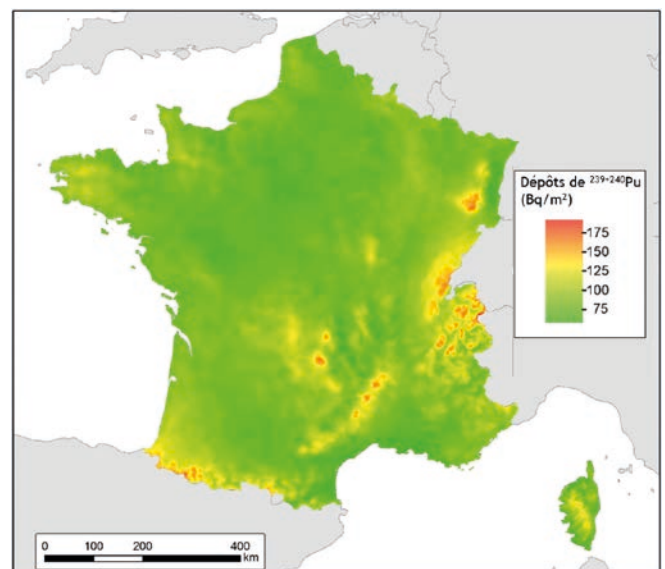


Figure 56. Carte des activités surfaciques de plutonium 239+240 déposées sur les sols français à l'issue⁽⁶²⁾ des essais atmosphériques d'armes nucléaires.

(61) Le dépôt sec n'aurait représenté qu'entre 25 et 30 % du dépôt total.

(62) L'essentiel des dépôts résulte des essais américano-soviétiques arrêtés en 1963 mais dont les retombées se sont prolongées en 1964 et 1965. Les essais chinois qui se sont prolongés jusqu'en 1980 ont très peu ajouté à ces dépôts. On peut donc considérer que « l'issue des retombées des essais nucléaires atmosphériques » date de 1965.

Rapports d'activités isotopiques

Les différents isotopes du plutonium possèdent des propriétés physico-chimiques identiques et, dans l'environnement ils ont des propriétés bio-géochimiques similaires. En conséquence, ils sont transférés dans les mêmes proportions entre les différentes composantes de l'environnement (atmosphère, sol, végétaux, animaux, etc.). Il en résulte que les rapports isotopiques ($^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$, $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$, $^{241}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$) sont conservés dans toutes les différentes matrices analysées. Ces rapports isotopiques résultent de la teneur des isotopes fissiles (^{239}Pu et ^{241}Pu) qui, à l'origine, composent les bombes et de l'activation neutronique lors de l'explosion qui produit également du plutonium. Ils ont ensuite évolué avec l'apport de plutonium 238 lors de la désintégration du satellite, puis sous l'effet des périodes radioactives (désintégration de ^{241}Pu et formation de ^{241}Am , par exemple).

Lors d'une explosion nucléaire, les plutoniums 239 et 240 sont produits dans des proportions proches et le rapport de leurs activités isotopiques $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$, initialement de 0,18, n'a quasiment pas évolué depuis en raison de leurs longues périodes radioactives : 24 100 ans et 6 580 ans respectivement. Comme indiqué précédemment, ces deux radioéléments sont considérés ensemble sous la notation « plutonium 239+240 » et leurs activités sont sommées.

La production de plutonium 238 lors des essais nucléaires a été 40 fois plus faible que celle du plutonium 239+240, d'où un rapport d'activités isotopiques $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ égal à 0,025. Dans l'hémisphère nord, l'apport de plutonium 238 lié à la désintégration du satellite SNAP-9A en 1964 a conduit à augmenter ce rapport d'activités qui est passé de 0,025 à 0,03. Cette valeur du rapport d'activités isotopiques $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ de 0,03, caractérise les retombées globales de plutonium liées aux essais nucléaires et à la désintégration du satellite. À noter que la décroissance du plutonium 238 (période radioactive de 87,7 ans) a entraîné une très faible diminution de ce rapport d'activités qui est passé de 0,03 en 2008 à 0,028 en 2020.

Le plutonium 241 a été l'isotope du plutonium le plus abondant dans les retombées des essais nucléaires, avec une activité initiale 13 fois plus élevée que celle de plutonium 239+240. Les activités de ce radionucléide, de 14 ans de période radioactive, ont fortement décru par décroissance radioactive depuis le début des années 1960 (diminution de 16 fois pour près de 4 périodes). Cette diminution a entraîné celle du rapport $^{241}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ qui était de 1,6 en 2008 et qui se situe en 2020 à 0,9.

Rapports d'activités isotopiques (sans dimension)

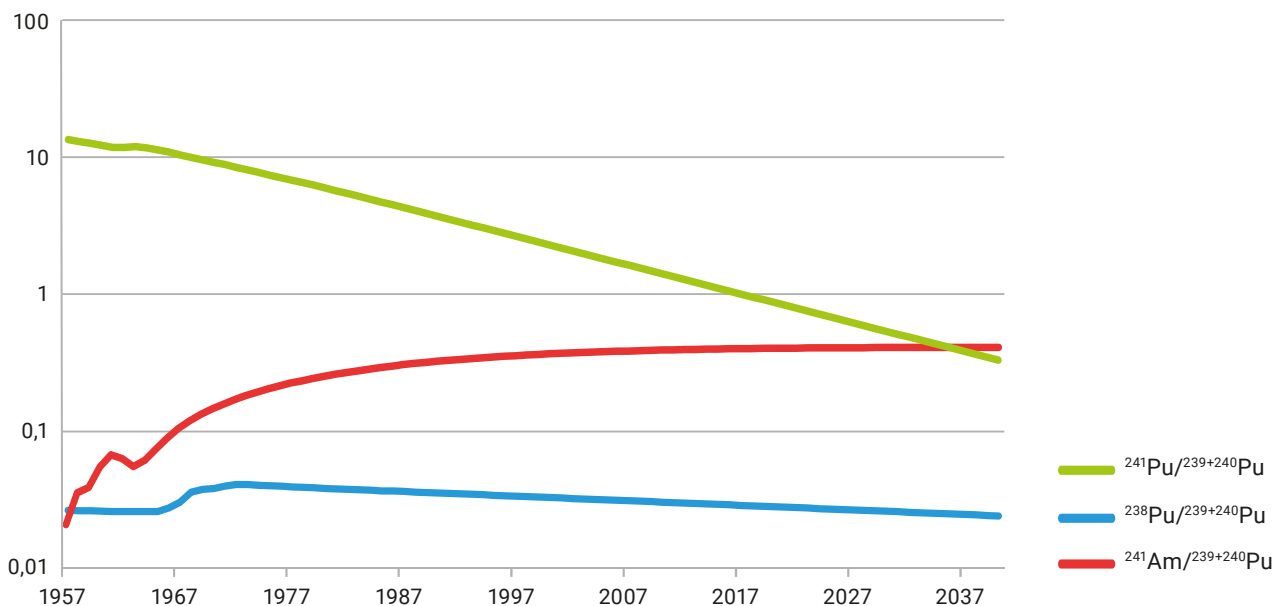


Figure 57. Évolution dans le temps des rapports d'activités isotopiques des isotopes du plutonium et de l'américium 241.

L'évolution de l'activité de l'américium 241 résulte de sa production par désintégration du plutonium 241 et de sa disparition par décroissance radioactive (période de 430 ans). Le rapport d'activité $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ est quasiment stable autour de 0,39 sur la période 2008-2020 ; il devrait commencer à diminuer à partir de 2036 (il n'y aura alors plus assez de plutonium 241 pour que la production d'américium 241 compense sa disparition par décroissance radioactive).

L'américium et le plutonium étant deux éléments chimiques différents, le rapport de leurs activités isotopiques n'est pas, *a priori*, conservé dans les différentes composantes de l'environnement. Toutefois, l'américium et le plutonium ont des comportements similaires en milieu terrestre et notamment dans les sols et le rapport d'activités $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ sera quand même regardé dans l'exploitation des données disponibles. En raison de solubilités différentes, ce n'est pas le cas en milieu aquatique, que ce soit en milieu d'eau douce ou en milieu marin.

5 2 L'INFLUENCE DES REJETS DES INSTALLATIONS NUCLÉAIRES

De 1959 à 1997, du plutonium a été produit et traité sur le site de Marcoule. Il s'agissait tout d'abord de produire du plutonium à usage militaire (jusqu'en 1993), puis du plutonium pour la filière électro-nucléaire. Durant cette période, les installations concernées ont rejeté ce radioélément par voie atmosphérique et liquide. Les rejets atmosphériques passés sont à l'origine d'un bruit de fond local spécifique qui concerne une zone de l'ordre de 6 km d'extension nord-sud et 3 km d'extension est-ouest autour du site. Par ailleurs, le Rhône en aval du site et jusqu'à son delta immergé en mer (prodelta) a été influencé par les rejets liquides, ainsi que certaines zones plus restreintes de Camargue sur lesquelles se sont déversés des sédiments du Rhône lors d'épisodes de crues suivies de ruptures de digues notamment en octobre 1993 et janvier 1994.

Dans la zone autour du site de Marcoule, les activités surfaciques de plutonium 239+240 des sols dépassent 100 Bq/m² et très localement 200 Bq/m², alors qu'ailleurs, en basse vallée du Rhône, elles sont inférieures à 60 Bq/m². Dans cette zone, les rapports d'activités isotopiques $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ mesurés dans les sols sont proches de 0,05 (une valeur significativement différente de la valeur de 0,03 caractéristique des retombées globales) et qui correspond au rapport isotopique des rejets atmosphériques liés à la production de plutonium à usage militaire. En revanche, dans les sédiments et les sols des zones inondées de Camargue, les rapports d'activités sont compris entre 0,03 et 0,3, cette dernière valeur étant caractéristique du retraitement du combustible utilisé de la filière électronucléaire.

Aujourd'hui, peu d'installations nucléaires rejettent suffisamment de plutonium ou d'américium 241 pour influencer leur environnement. Celles dont les rejets de transuraniens sont les plus importants sont implantées sur le site de La Hague. Cependant, les activités rejetées sont souvent trop faibles pour que cette influence soit décelable par la mesure en termes d'augmentation des activités massique ou volumique dans les différentes composantes de l'environnement ; elle est cependant décelable en Manche au moyen des rapports d'activités isotopiques. Cette influence n'est pas étudiée dans le présent bilan consacré à l'étude du bruit de fond radiologique. À noter que des teneurs en plutonium supérieures à celles attendues ont été décelées très localement autour de l'usine de Malvési⁽⁶³⁾ dans des sols et les sédiments ; elles sont caractérisées par ailleurs par des rapports $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ plus faibles que le rapport des retombées globales (0,18). Ces activités de plutonium proviennent des rejets de l'usine qui a traité de l'uranium du combustible utilisé provenant de Marcoule, entre 1960 et 1982.

Enfin, des « contaminations historiques » à proximité de certaines installations nucléaires du CEA de Cadarache, qui proviennent d'incidents de fonctionnement au cours des années 1960 à 1990 et recensés par le HCTISN (notamment des débordements de cuves d'effluents liquides) sont à l'origine de la contamination des sédiments du ravin de la Bête, petite rivière qui s'écoule sur le centre et qui aboutit dans la Durance. Comme dans les cas précédemment cités, cette contamination par le site est caractérisée par des activités en plutonium plus élevées qu'attendu et des rapports des isotopes du plutonium différents de ceux des retombées globales.

(63) L'usine de Malvési a traité par le passé de l'uranium de retraitement qui contenait du plutonium.

5 3 COMPOTEMENTS DANS L'ENVIRONNEMENT

Une très faible mobilité et de très faibles intensités de transfert caractérisent le comportement du plutonium et de l'américium dans l'environnement. Ils ont tous deux une très forte propension à se fixer sur les particules de sol dans lequel ils sont donc très peu mobiles avec des vitesses de migration le plus souvent inférieures à 1 mm/an, parmi les plus faibles de tous les radionucléides artificiels. Contrairement à tous les autres radionucléides qui constituent le bruit de fond des radionucléides artificiels dans l'environnement et qui sont, soit des isotopes de composants majeurs de l'environnement (tritium et carbone 14), soit des analogues chimiques d'éléments importants (césium 137 et strontium 90), le plutonium et l'américium ne sont pas utiles aux organismes vivants et ne font pas l'objet de transferts spécifiques. Leurs facteurs de transfert racinaire, sont très faibles, de l'ordre de 1 000 à 100 000 fois plus faibles que ceux du césium 137 et du strontium 90. À noter que ceux de l'américium sont théoriquement plus élevés que ceux du plutonium. Ces facteurs de transferts appliqués à des activités dans les sols faibles, conduisent à des activités massiques dans les végétaux également très faibles. Les plus élevées sont mesurées dans les feuilles des végétaux et résultent plus du dépôt foliaire de micro-particules de sols (remise en suspension et éclaboussement) que du transfert racinaire. De la même manière, ces radionucléides sont extrêmement peu transférés aux denrées d'origine animale avec là encore des intensités de transferts 100 à 10 000 fois moindres que ceux du césium 137 par exemple (avec un transfert de l'américium au lait qui serait plus faible que celui du plutonium alors que ce serait l'inverse pour les viandes). La très faible part de leurs activités incorporées par l'alimentation qui est retenue, est transférée principalement au squelette.

Le plutonium et l'américium sont transférés au milieu aquatique continental, puis au milieu marin, fixés sur des particules de sol emportées par les eaux pluviales. En milieu d'eau douce comme en milieu marin, ils se trouvent essentiellement (plus de 90 %) sous forme particulaire (matières en suspension et sédiments). Comme en milieu terrestre, leurs transferts vers les organismes vivants sont très faibles et la faible part qui y est retenue par les organismes se fixe dans le squelette ou les coquilles.

Le comportement de ces deux éléments en milieu aquatique, notamment leur solubilité (répartition entre les phases solide et particulaire) et leurs transferts aux organismes, présentent suffisamment de similitudes pour que l'examen des rapports d'activités $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ présente un intérêt.

Les conséquences de cette similitude comportementale et notamment la conservation des rapports d'activités dans les différentes composantes de l'environnement, sont encore renforcées par le fait que l'américium 241 est progressivement produit à partir du plutonium 241 (dont le comportement est celui des autres isotopes du plutonium). Les rapports d'activités $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ sont présentés et commentés dans les paragraphes relatifs à l'américium 241.

5 4 MÉTROLOGIE ET ORIGINE DES DONNÉES DE PLUTONIUM ET D'AMÉRICIUM 241 EXPLOITÉES DANS CE BILAN

Les isotopes 238, 239 et 240 du plutonium sont des radioéléments émetteurs alpha et sont mesurables soit par spectrométrie alpha, soit par ICPMS (spectrométrie de masse). Ces deux techniques nécessitent une purification de l'échantillon environnemental analysé qui consiste à isoler le plutonium qu'il contient en ôtant progressivement toute la matière de l'échantillon par une succession de réactions chimiques. Les énergies des particules alpha émises par le plutonium 239 et le plutonium 240 étant très proches, ces deux radioéléments ne peuvent pas être discriminés par spectrométrie alpha. C'est pourquoi, c'est l'activité globale des deux radionucléides qui est quantifiée par cette technique et qui est attribuée à l'ensemble plutonium 239+240 ($^{239+240}\text{Pu}$). La spectrométrie alpha permet également la mesure du plutonium 238 et donc de calculer le rapport d'activité isotopique $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ qui détermine l'origine du plutonium présent dans l'échantillon.

Certaines études nécessitent de quantifier séparément les deux isotopes 239 et 240 afin de calculer le rapport $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$. C'est alors l'ICP-MS qui est utilisée. Cette technique a été plus récemment mise en œuvre à l'IRSN. Par ailleurs, il est fréquent que les très faibles activités de plutonium 238 ne soient pas mesurables ou que les incertitudes métrologiques liées à la spectrométrie alpha ne permettent pas de calculer le rapport $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$. On a alors recours à l'ICP-MS.

Les analyses de transuraniens sont peu nombreuses du fait que les CNPE n'en rejettent pas en fonctionnement normal, et que hormis certaines installations du site de La Hague, les rejets des sites industriels ou de recherche sont aujourd'hui trop faibles pour induire une influence décelable par la mesure. Les analyses relatives à la surveillance des conséquences des rejets du site de La Hague, notamment en Manche, ayant été écartées de cette étude consacrée au bruit de fond,

les résultats de mesures exploités dans ce bilan ont été acquis principalement dans le cadre des constats radiologiques régionaux, ainsi que dans celui d'études spécifiques (études liées à la répartition géographique des retombées des essais nucléaires et à leur rémanence, bilans des rejets passés du site de Marcoule) pour ce qui concerne le milieu terrestre, dans le cadre des études réalisées par l'IRSN pour le compte d'EdF pour le milieu aquatique continental et dans le cadre de la surveillance effectuée par l'IRSN en milieu marin.

5 5

LE PLUTONIUM DANS LES SOLS

Les résultats des analyses de plutonium dans des sols portent soit sur des échantillons de surface prélevés sur 5 cm ou 10 cm de profondeur, essentiellement dans des sols de prairie ou forestiers, soit sur des échantillons prélevés sur 20 cm de profondeur principalement dans des sols cultivés, soit sur différentes strates de sols d'épaisseurs variables prélevées par carottage. Les résultats acquis sur des carottes de sols dans le cadre d'études spécifiques (notamment celles qui ont permis d'étudier la relation entre les activités déposées et les hauteurs de précipitations annuelles à l'origine de la carte précédente) ou dans le cadre du constat sur les zones de rémanence élevée, montrent que le plutonium a peu migré vers la profondeur depuis les retombées des essais nucléaires. La figure 47 page 65 montre ainsi que l'essentiel des activités déposées est toujours contenue dans les 15 centimètres de surface et que les activités massiques de plutonium 239+240 diminuent de manière importante avec la profondeur. Il en résulte que les résultats des analyses portant sur des profondeurs différentes doivent être interprétés séparément.

La figure 58 présente 229 résultats d'activités massiques mesurées depuis 1993 par l'IRSN dans des échantillons de différents types de sols prélevés sur 5 cm (99 résultats), 10 cm (48 résultats) et 20 cm de profondeur (82 résultats). Ces trois graphiques montrent que, contrairement à celles de strontium 90, et dans une moindre mesure celles de césium 137, les activités massiques de plutonium n'ont pas diminué de manière perceptible au cours des 3 dernières décennies.

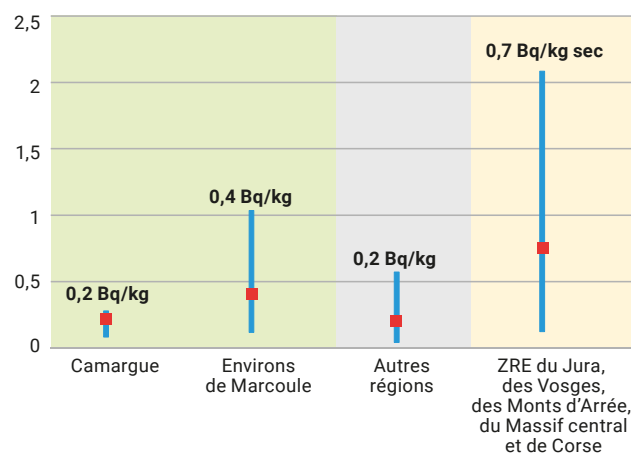
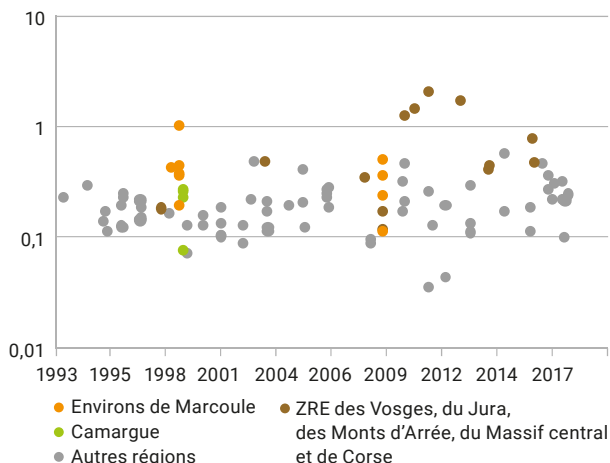
Dans les trois lots, avec des activités massiques moyennes, allant de 0,6 à 1 Bq/kg sec, les échantillons provenant des zones de rémanence élevée des retombées des essais nucléaires (ZRE des Vosges, du Jura, des Monts d'Arrée, du Massif central et de Corse) se distinguent des échantillons provenant des autres régions de France dont les activités sont comprises entre 0,2 et 0,4 Bq/kg sec. En revanche, les échantillons provenant de Camargue ou des environs de Marcoule ne se distinguent pas nettement de ceux provenant d'autres régions françaises en termes d'activités massiques. Ainsi, les activités ajoutées par les rejets atmosphériques passés du site, que l'on mettra plus loin en évidence grâce aux rapports d'activités isotopiques, ne compensent pas le fait que les précipitations dans la basse vallée du Rhône étant parmi les plus faibles de France, les retombées des essais nucléaires y ont été également parmi les plus faibles.

Pour les couches de 0 à 10 cm et de 0 à 20 cm, considérant qu'elles devaient contenir la majeure partie des activités de plutonium initialement déposées, des inventaires d'activités surfaciques moyennes ont été estimées à partir des activités massiques mesurées, en utilisant une masse volumique du sol en place générique de 1 600 kg/m³. Ces estimations sont comprises entre 30 et 70 Bq/m² pour la majeure partie du pays et dépassent 100 Bq/m² pour atteindre 170 Bq/m² dans les zones de rémanence élevée des essais nucléaires. Ces estimations sont en très bonne concordance avec la carte de la figure 56.

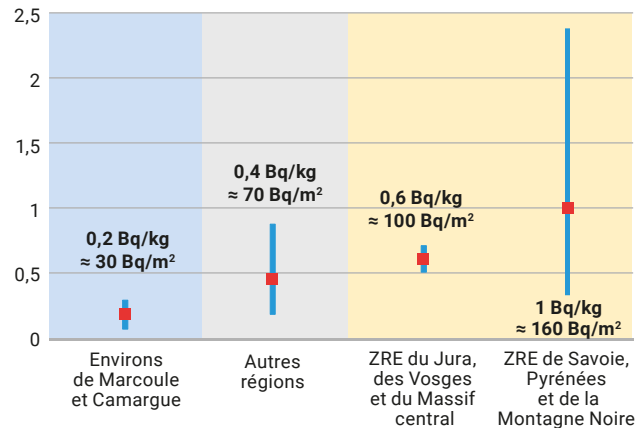
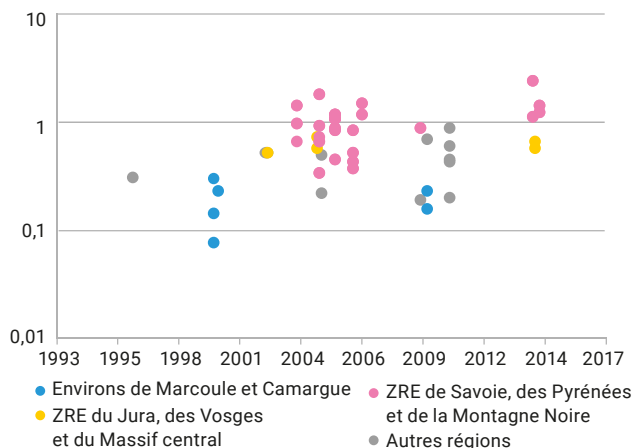
Les activités de plutonium 238 sont suffisamment élevées dans les sols pour être mesurées et pour que les rapports d'activités isotopiques $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ puissent être calculés. La figure 59 montre qu'en dehors des zones de Camargue et des environs de Marcoule influencés par les rejets passés de ce site, ces rapports d'activités sont très resserrés autour de la valeur théorique de 0,03 avec une légère diminution sur les 30 dernières années conforme à celle attendue du fait de la décroissance radioactive du plutonium 238. Dans les zones régulièrement inondées des environs de Marcoule ainsi que dans les zones situées à proximité des ruptures de digues lors des inondations de 1993 et 1994, les rapports d'activités $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ dépassent 0,06 et atteignent un maximum de 0,21. Un rapport d'activité de 0,06 indique que près de 10 % du plutonium 239+240 et près de 50 % du plutonium 238 proviennent des rejets liquides de Marcoule ; pour un rapport de 0,21 les contributions des rejets liquides passés de Marcoule aux activités massiques de plutonium 239+240 et de plutonium 238 mesurés sont respectivement de 65 % et de près de 95 %⁽⁶⁴⁾.

(64) L'utilisation d'une équation de mélange entre le rapport de 0,03 caractéristique des retombées anciennes d'une part et celui de 0,3 caractéristique des rejets liquides de Marcoule d'autre part, permet de déterminer précisément les contributions de ces deux origines aux activités massiques mesurées.

Plutonium 239+240 dans des sols de prairie entre 0 et 5 cm de profondeur (Bq/kg sec)



Plutonium 239+240 dans des sols de prairie et forestiers entre 0 et 10 cm de profondeur (Bq/kg sec)



Plutonium 239+240 dans les sols de toute nature (prairie, cultivé, forestiers...) entre 0 et 20 cm de profondeur (Bq/kg sec)

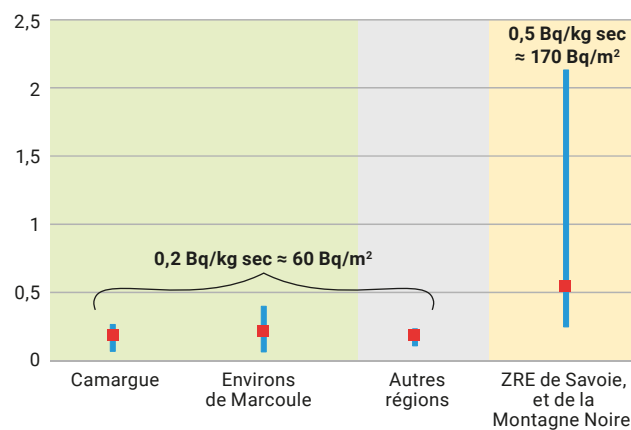
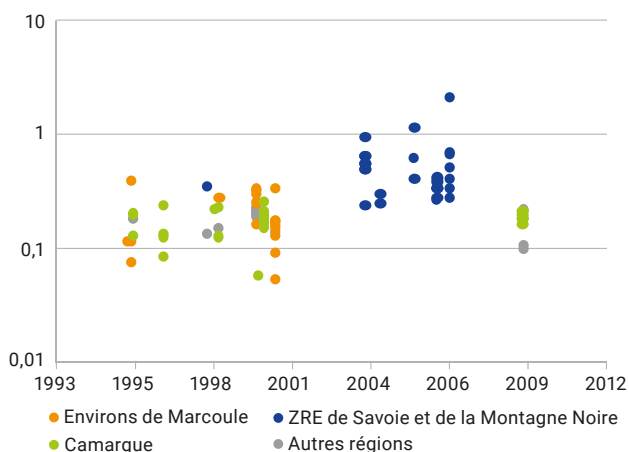


Figure 58. Activités massiques de plutonium 239+240 mesurées dans des couches de différentes profondeurs de différents types de sols (en Bq/kg sec) et estimation des activités surfaciques correspondantes (Bq/m²).

Rapports d'activités isotopiques $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ (sans dimension)

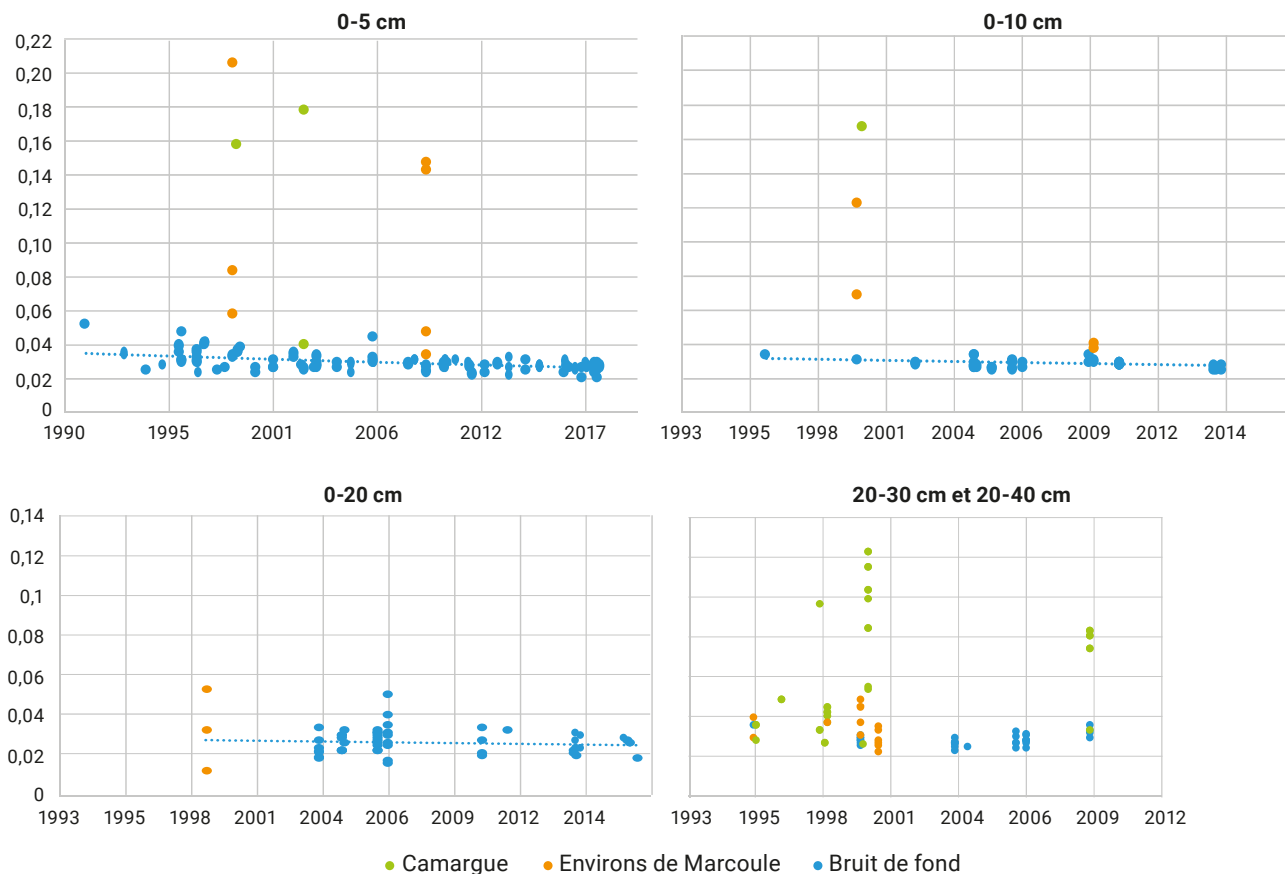


Figure 59. Rapport d'activités isotopiques $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ observés dans les sols français.



Prélèvement d'algues en Manche
(Constat radiologique régional « Normandie et Hauts-de-France »).

5 6 LE PLUTONIUM DANS LES HERBAGES

Sur les 183 analyses de plutonium 239+240 réalisées par l'IRSN dans des herbages depuis 1993 dans le cadre de la surveillance de routine et dans celui des bilans décennaux réalisés à la demande d'EdF, 103 ont permis de quantifier l'activité massique.

Ces résultats significatifs, présentés dans la figure 60 sont compris entre 0,0001 et 0,1 Bq/kg sec pour une moyenne de 0,009 Bq/kg sec. Dans cette importante dispersion, les échantillons d'herbes prélevés dans les environs de Marcoule et dans les zones inondées de Camargue ne se distinguent pas de ceux prélevés ailleurs.

Seulement 27 de ces échantillons ont permis de quantifier l'activité massique de plutonium 238 permettant de calculer les rapports d'activités $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$. Ils sont présentés dans la figure 61. Seize de ces rapports sont compris entre 0,017 et 0,07 pour une moyenne de 0,035 conforme à la valeur caractéristique des retombées atmosphériques globales et égale à celle observée dans les sols. Dix résultats sont plus élevés et compris entre 0,1 et 0,4. Deux des échantillons correspondants (0,38 et 0,15) proviennent de zones inondées de Camargue et des environs de Marcoule, trois autres (0,37, 0,26 et 0,11) ont été prélevés en bord de Manche et sont probablement influencés par des embruns marqués par les rejets liquides de La Hague, un sixième (0,41) a été prélevé près du site du Tricastin et les quatre derniers présentaient des incertitudes métrologiques importantes (entre 50 et 100 %) en raison de très faibles teneurs en plutonium 238. Il faut noter qu'aucun de ces échantillons ne se distinguait par son activité massique dans la figure 60.

Plutonium 239+240 dans les herbages (Bq/kg sec)

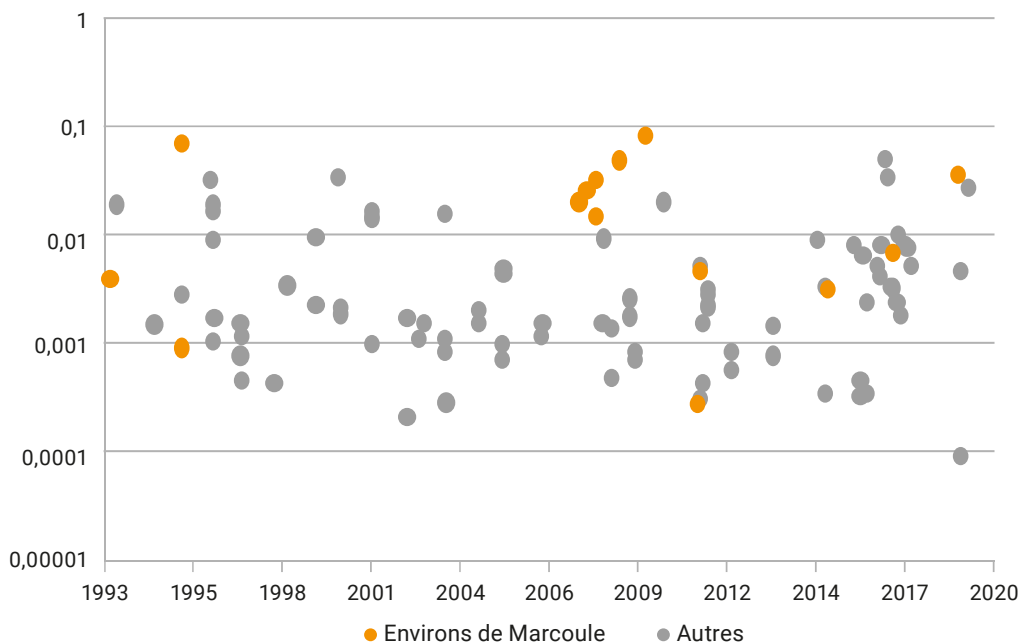


Figure 60. Chronique temporelle des activités massiques de plutonium 239+240 dans des herbages (Bq/kg sec).

Rapports d'activités $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ dans les herbages (sans dimension)

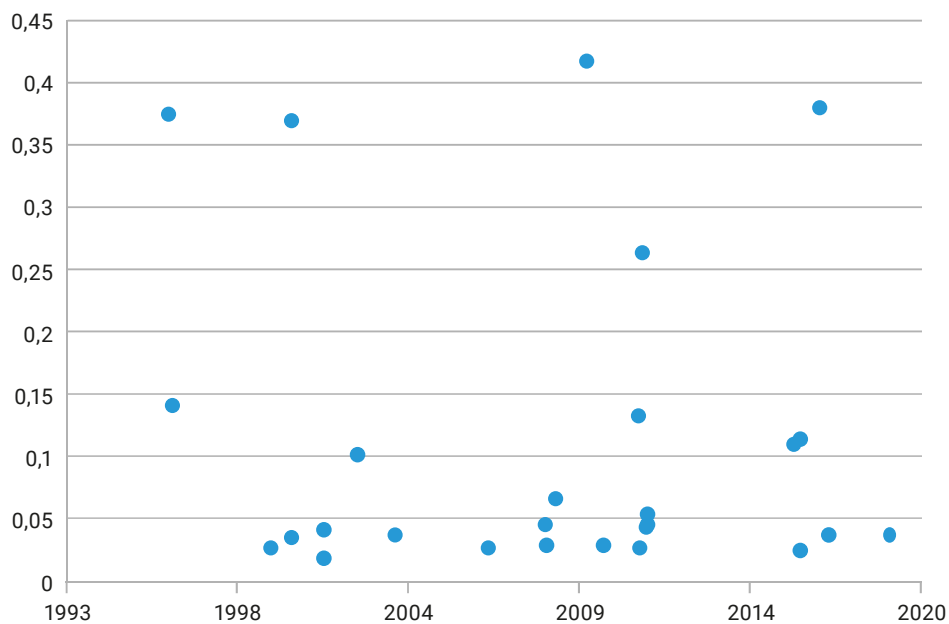


Figure 61. Rapports d'activités $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ observés dans des herbages.



Carottage de sol maraîcher
(Constat radiologique régional « Nord-Est »).

5 7 LE PLUTONIUM DANS LES DENRÉES VÉGÉTALES ET D'ORIGINE ANIMALE

Plus de la moitié (52/84) des analyses de plutonium 239+240 effectuées par l'IRSN dans des denrées terrestres depuis 2008 l'ont été dans le cadre des constats radiologiques régionaux : entre 2008 et 2011 pour les constats « Val de Loire », « Sud-Ouest », « Vallée du Rhône » et « Nord-Est » et en 2017 dans le cadre du constat « Normandie et Hauts-de-France ». Les analyses effectuées dans le cadre des bilans radioécologiques décennaux réalisés par l'IRSN à la demande d'EDF, ainsi que les résultats acquis dans le cadre de la surveillance des environs de Marcoule, complètent ce jeu de données.

En raison des très faibles intensités de transfert qui caractérisent ce radioélément (voir page 81 le paragraphe « Comportements dans l'environnement ») et de la faible teneur des sols en plutonium, 60 % des échantillons analysés présentaient des activités de plutonium 239+240 trop faibles pour être quantifiées (< SD) même au moyen de meilleures

techniques disponibles. La figure 62 présente les résultats de ces analyses. Elle montre des teneurs en plutonium effectivement très faibles et particulièrement variables. Les plus élevées, supérieures à 0,01 Bq/kg frais, concernent des échantillons de thym connu pour avoir des activités massiques plus élevées que les autres feuillages pour la plupart des radionucléides⁽⁶⁵⁾. Les teneurs en plutonium des légumes varient fortement, entre 0,00001 et 0,01 Bq/kg frais, sans qu'il ne soit possible de relier cette variabilité à la région d'origine ou une variété. Comme attendu, les plus faibles teneurs sont celles du lait, de l'ordre de 0,00001 Bq/L. Parmi les 2 seuls échantillons de céréales dans lesquels le plutonium a pu être quantifié, celui dont l'activité massique est la plus élevée (0,00006 Bq/kg) est un échantillon de riz prélevé en Camargue dans une zone inondée lors de la rupture d'une digue. Le plutonium n'est habituellement pas analysé dans la viande car les teneurs seraient trop faibles pour être mesurées. Toutefois, cet élément étant plus particulièrement transféré vers le foie et les sangliers étant connus pour présenter des teneurs en radionucléides plus élevées que celles des animaux d'élevage, les deux échantillons de foie de sanglier analysés ont fournis des résultats faibles mais significatifs autour de 0,0003 Bq/kg frais qui majorent probablement de beaucoup les activités de plutonium présentes dans les muscles (viande).

Activités de plutonium 239+240 dans des denrées (Bq/kg frais ou Bq/L)

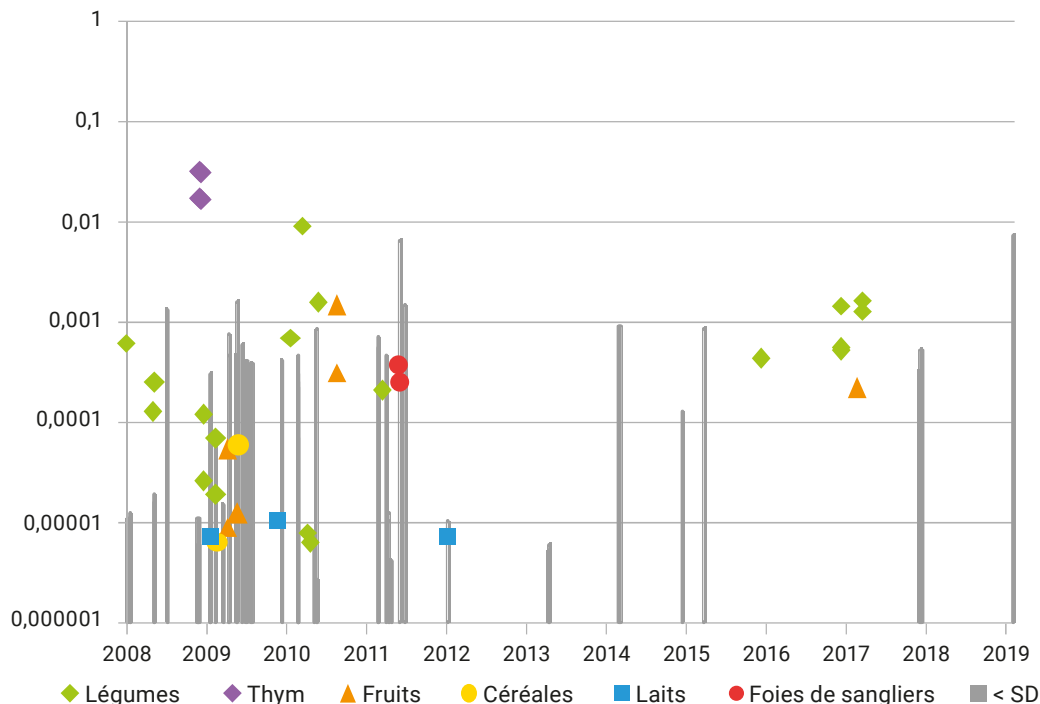


Figure 62. Activités massiques et volumiques de plutonium 239+240 mesurées par l'IRSN depuis 2008 dans les échantillons de denrées terrestres (Bq/kg frais ou Bq/L). Les « bâtons » représentent des seuils de décision.

(65) La principale raison est que le thym est un végétal relativement sec dont la masse est faible comparée à sa surface foliaire ; par ailleurs le thym, très sensible à la contamination foliaire par remise en suspension et éclaboussement, est une plante vivace pluriannuelle.

Les activités massiques de plutonium 238 dans les denrées, plus de 30 fois inférieures à celles de plutonium 239+240, ne sont que très rarement mesurables. On ne dispose depuis 2008 pour ce radioélément que de 10 mesures significatives représentatives du bruit de fond des retombées atmosphériques globales, comprises entre 0,000001 et 0,001 Bq/kg frais, avec des incertitudes métrologiques très importantes, atteignant 100 %, en raison de ces très faibles niveaux. La connaissance du bruit de fond de ce radioélément ne peut désormais résulter que de celle du plutonium 239+240 via le rapport d'activité isotopique, dont la fiabilité a été montrée pour les sols.

5 8

LE PLUTONIUM EN MILIEU AQUATIQUE CONTINENTAL

- L'eau des fleuves et des rivières -

Les niveaux d'activités de plutonium 239+240 en milieu aquatique continental sont extrêmement faibles. Seule la Station Observatoire du Rhône en Arles (SORA) de l'IRSN, qui prélève des échantillons d'eau de très gros volumes, permet, avec une métrologie performante, de mesurer ce radionucléide dans l'eau. Dans les eaux brutes du Rhône en aval de Marcoule, les activités volumiques de plutonium sont de l'ordre de 0,001 Bq/m³ (soit 10⁻⁶ Bq/L) lorsque la charge de particules en suspension (MES) est faible (de l'ordre de 1 mg/L). Elles peuvent atteindre cependant 0,1 Bq/m³ (soit 10⁻⁴ Bq/L), voire 1 Bq/m³ en cas de crue et donc de charge en MES très importante (1 à 3 g/L). Ainsi, l'activité fixée sur des matières en suspension dans l'eau est toujours majoritaire avec des valeurs allant de 0,03 à 2 Bq/kg sec. La fraction d'américium dissoute est assez constante, de l'ordre de 0,001 Bq/m³ (soit 10⁻⁶ Bq/L) et devient négligeable dès lors que la charge en MES n'est pas très faible. En raison de la rémanence des rejets passés de Marcoule en aval du Rhône, ces valeurs sont probablement majorantes de celles que l'on peut trouver dans les autres cours d'eau français.

L'activité massique de plutonium a pu être quantifiée dans plus de 95 % des 154 échantillons de plantes aquatiques analysées par l'IRSN depuis 1979. Ces résultats sont présentés dans la figure 63.

- Les végétaux aquatiques -

Au cours des années 1980, les activités en plutonium des plantes aquatiques prélevées en aval de Marcoule, comprises entre 1 et 10 Bq/kg sec pour une moyenne de 2 Bq/kg sec, étaient de l'ordre de 100 fois supérieures à celles des plantes prélevées en amont dans ce même fleuve ou dans les autres cours d'eau dont les valeurs moyennes varient de 0,01 à 0,1 Bq/kg secs. Bien que les rejets de Marcoule aient diminué au cours des années 1990 et cessé en 1997, la rémanence de leur influence peut être encore observée dans certains échantillons. Les échantillons de plantes aquatiques prélevés dans des lacs d'altitude se distinguent notablement avec une moyenne de 8 Bq/kg sec. Ces milieux clos ont concentré et retenu les dépôts plus élevés survenus en altitude lors des retombées des essais nucléaires.

- Les poissons -

Au cours des années 1970 et jusqu'au milieu des années 1990, les activités de plutonium 239+240 étaient suffisamment élevées pour être mesurées dans tous les échantillons de poissons prélevés dans le Rhône en aval de Marcoule sous influence des rejets de ce site (figure 64). Dans les années 1980, au maximum de ces rejets, les activités de plutonium y étaient comprises entre 0,01 et 0,1 Bq/kg frais. Depuis les activités en plutonium de poissons prélevés en aval du Rhône sont plus faibles mais restent parmi les plus élevées. Seulement 40 % des 125 analyses effectuées depuis le début des années 1990 ont permis de quantifier les activités massiques de plutonium 239+240 dans les poissons ; ces résultats significatifs sont très faibles allant de 0,000007 à 0,00004 Bq/kg frais. Les données ne permettent pas de discerner une variabilité d'un cours d'eau à l'autre.

Plutonium 239+240 dans les plantes aquatiques (Bq/kg sec)

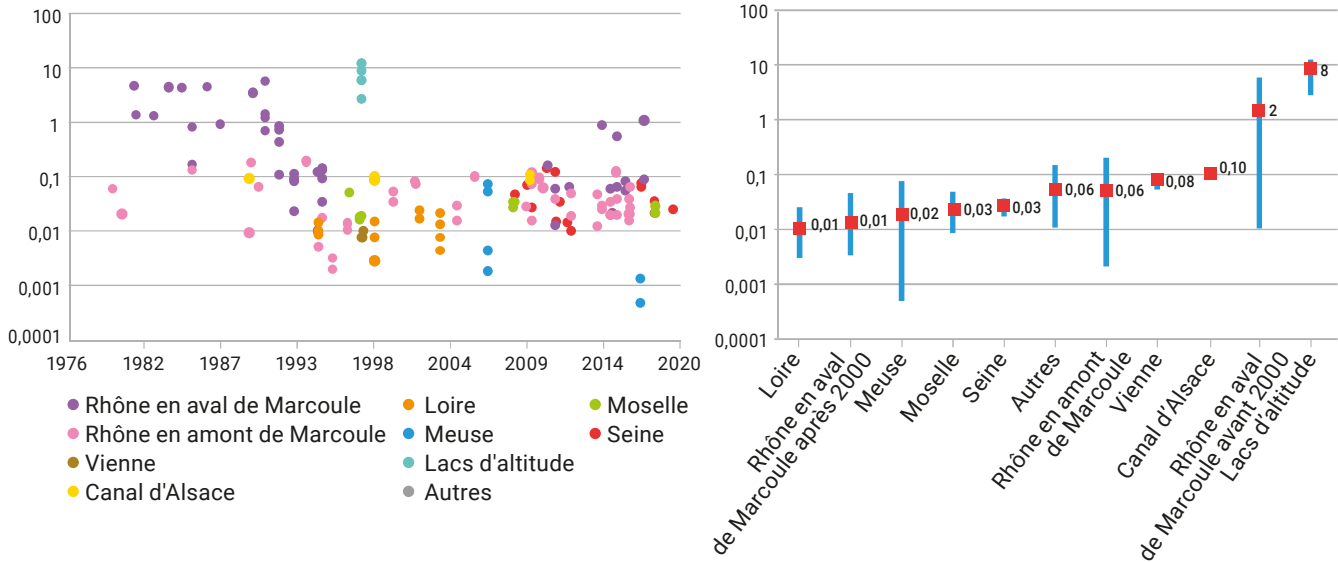


Figure 63. Activités massiques de plutonium 239+240 dans les cours d'eau français (Bq/kg sec).

Plutonium 239+240 dans les poissons d'eau douce (Bq/kg frais)

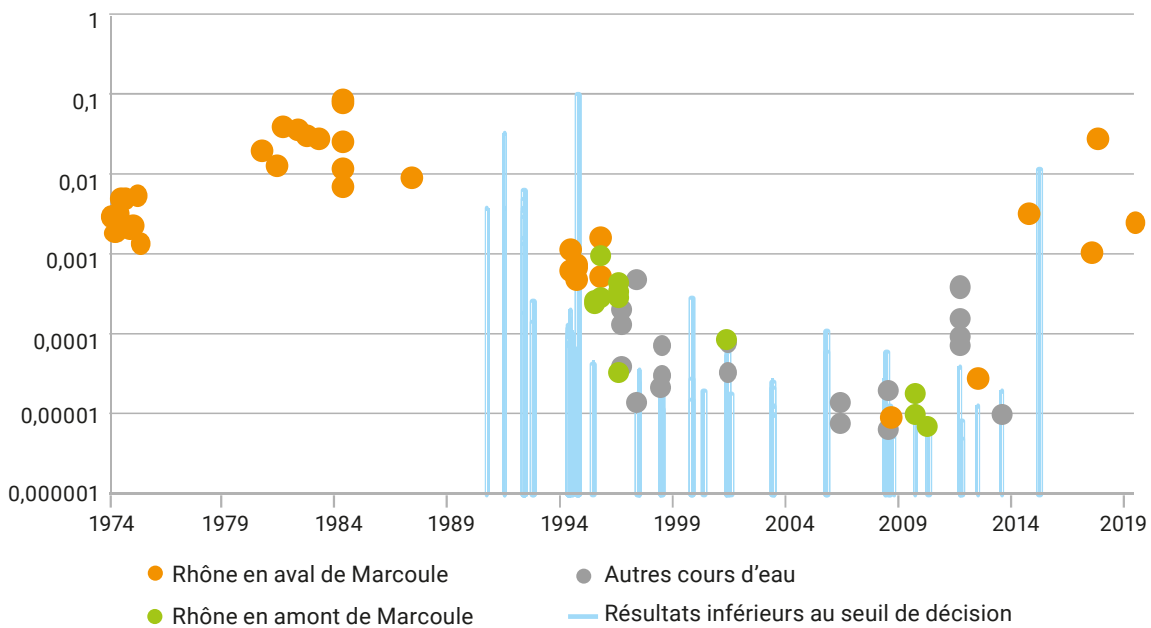


Figure 64. Activités de plutonium 239+240 dans des échantillons de poissons d'eau douce mesurés depuis 1974 par l'IRSN (Bq/kg sec). Les « bâtons » représentent des seuils de décision.

5 9 LE PLUTONIUM EN MILIEU MARIN

Comme le césium 137 et le strontium 90, le plutonium présent en milieu marin provient d'une part des dépôts atmosphériques sur les surfaces marines (partie soluble notamment) et d'autre part du milieu terrestre par drainage des sols (apport particulière principalement), diffus sur le littoral et *via* les fleuves côtiers. La faible solubilité du plutonium en milieu marin fait qu'il restera essentiellement présent sous forme particulaire.

Dans les eaux de l'Atlantique, les concentrations en plutonium 239+240 se situent entre 6 et 9 mBq/m³. En Méditerranée, les quelques mesures réalisées par l'IRSN en 2000, ont donné des valeurs comprises entre 8 et 16 mBq/m³.

Depuis 2009, le plutonium fait l'objet d'une surveillance régulière dans les algues marines. Cette surveillance porte sur la façade Atlantique (golfe de Gascogne au niveau de Concarneau, de Pornichet et du débouché de la Gironde) ainsi que sur les rades de Brest et de Toulon (la surveillance en Méditerranée est basée sur les moules qui constituent un bio-indicateur plus disponible et ubiquiste sur ce littoral). Les résultats de ces analyses d'algues sont quasiment tous significatifs (supérieurs aux seuils de décision) avec des activités massiques de plutonium 239+240 allant de 0,003 à 0,2 Bq/kg frais en Atlantique pour une moyenne de 0,007 Bq/kg frais (figure 65). Ce qui donne une valeur moyenne du facteur

de concentration de l'ordre de 1 000 Bq/kg par Bq/L d'eau de mer/kg frais, égale à celle proposée par l'AIEA dans son document de 1985 (AIEA, 1978) et inférieure à celle de 4 000 proposée dans celui de 2004 (AIEA, 2004). Les activités des échantillons prélevés dans les rades de Brest et de Toulon (de 0,009 à 0,3 Bq/kg frais) figurent parmi les plus élevées. Ceci résulte très probablement du fait qu'il s'agit de milieux relativement clos dans lesquels les apports diffus de plutonium hérité des retombées anciennes par les bassins versants et les petits fleuves côtiers peuvent se concentrer. Les rapports d'activités ²³⁸Pu/²³⁹⁺²⁴⁰Pu ne peuvent être calculés que pour 7 échantillons, les teneurs en plutonium 238 étant le plus souvent trop faibles pour être quantifiées ; ceux des deux échantillons provenant des rades de Brest et de Toulon, autour de 0,1, sont plutôt moyens dans une variabilité importante allant de 0,07 à 0,6 pour les autres échantillons en raison d'incertitudes importantes sur les activités de plutonium 238 mesurées.

Les activités de plutonium 239+240 mesurées dans les coquillages (moules et huîtres principalement) sont comprises entre 0,0002 et 0,01 Bq/kg frais pour une moyenne de 0,002 Bq/kg frais. Ce qui donne une valeur moyenne du facteur de concentration de l'ordre de 300 Bq/kg par Bq/L d'eau de mer (L/kg), plus proche de celle de 1 000 L/kg proposée par l'AIEA en 1978 (AIEA, 1978) que de la valeur de 3 000 L/kg proposée par ce même organisme en 2004 (AIEA, 2004). On n'observe pas de distinction notable entre les différentes provenances et notamment pour les échantillons prélevés dans les rades.

Plutonium 239+240 dans les algues (Bq/kg frais)

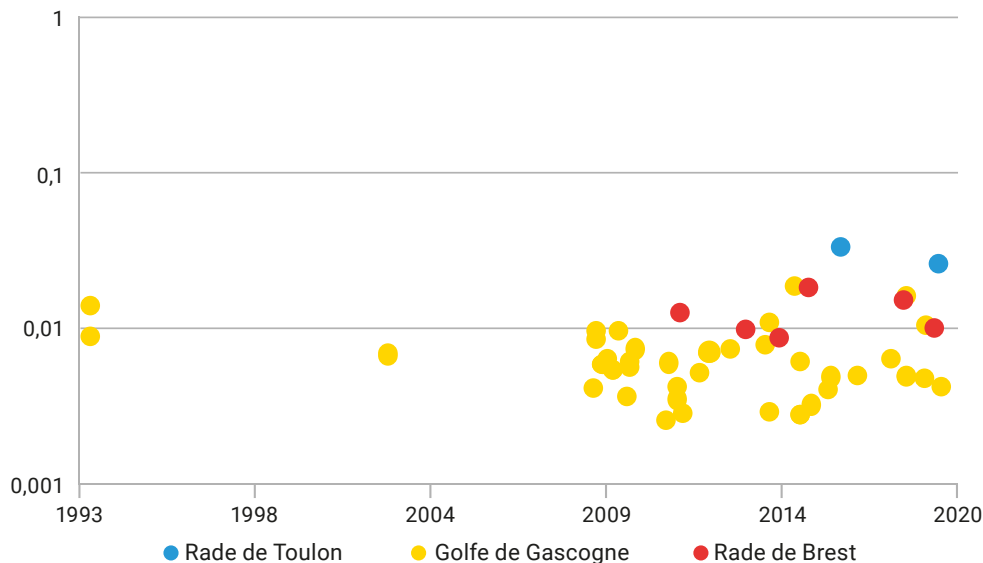


Figure 65. Activités massiques de plutonium 239+240 mesurées dans des algues (Bq/kg frais).

De manière cohérente avec leurs facteurs de concentration respectifs, les activités massiques de plutonium dans les 5 échantillons de poissons pêchés en Méditerranée, comprises entre 0,00006 et 0,0005 Bq/kg frais pour une moyenne de 0,0001 Bq/kg frais, sont notablement plus faibles que celles des coquillages. La valeur moyenne du facteur de concentration, de l'ordre de 10 Bq/kg par Bq/L d'eau de mer, est égale à celle proposée par l'AIEA en 1978.

Les activités de plutonium 238 mesurées dans les moules de Méditerranée permettent de calculer le rapport d'activités isotopiques $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ pour 25 échantillons (figure 67). La valeur de ce rapport a diminué au cours des 20 dernières

années pour les échantillons prélevés sous influence des apports rhodaniens ; il était de l'ordre de 0,1 en 2001 (à noter qu'il y avait encore de très faibles rejets de Marcoule au début des années 2000) et s'est fortement rapproché de la valeur de référence des retombées anciennes en 2019 avec une valeur de 0,04. La proportion de particules en suspension marquées en plutonium par les rejets passés de Marcoule (remise en suspension de sédiments fluviaux) est désormais très faible en mer. Pour les autres stations de prélèvement, les rapports d'activités autour de 0,03 correspondent au bruit de fond hérité des retombées anciennes : en légère baisse en raison de la période radioactive du plutonium 238.

Plutonium 239+240 dans les coquillages et les poissons (Bq/kg frais)

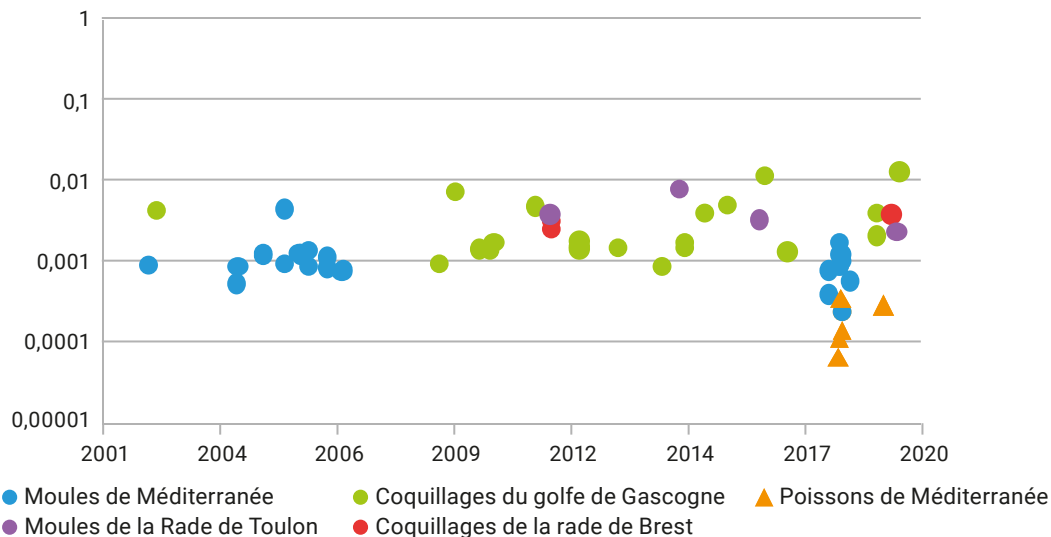


Figure 66. Activités massiques de plutonium 239+240 mesurées dans les coquillages et les poissons marins (Bq/kg frais).

Rapports d'activités $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ dans les moules de Méditerranée (sans dimension)

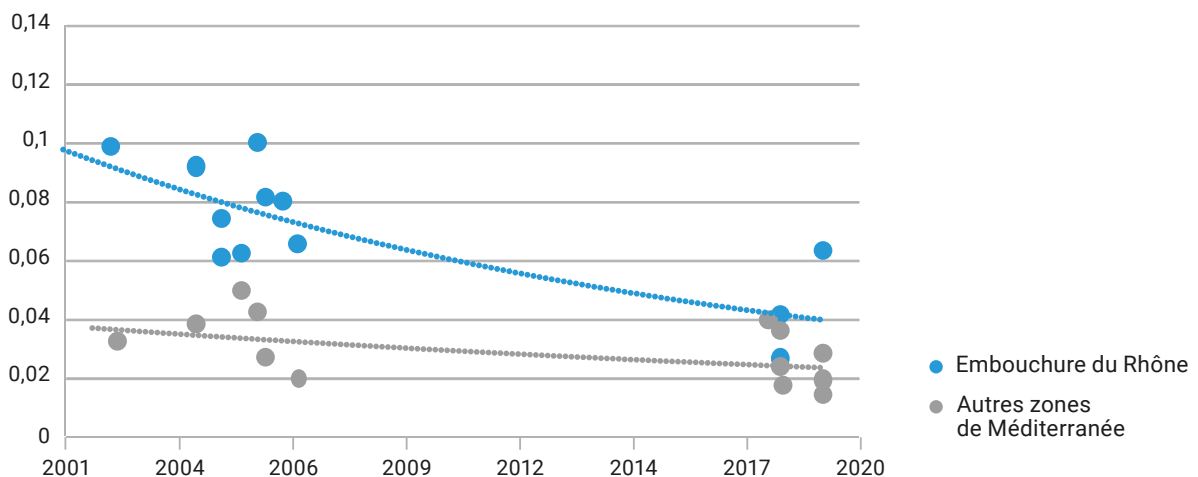


Figure 67. Rapports d'activités $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ observés dans les moules de Méditerranée.

5 10 L'AMÉRICIUM 241 DANS LES SOLS

La figure 68 présente 291 résultats d'activités massiques d'américium 241 mesurées depuis 1993 par l'IRSN dans des échantillons de différents types de sols prélevés sur 5 cm (140 résultats), 10 cm (69 résultats) et 20 cm de profondeur (82 résultats). Ces trois graphiques montrent que, comme celles de plutonium, les activités massiques de ce radionucléide n'ont pas diminué de manière perceptible au cours des 3 dernières décennies.

Dans les trois lots, avec des activités massiques moyennes allant de 0,5 à 3,5 Bq/kg sec dans les 5 et 10 cm de profondeurs, les échantillons provenant des zones de rémanence élevée des retombées des essais nucléaires (ZRE des Vosges, du Jura, des Monts d'Arrée, du Massif central, des Pyrénées et de Corse) se distinguent des échantillons provenant des autres régions de France dont les activités sont comprises entre 0,1 et 0,3 Bq/kg sec dans ces mêmes couches. En revanche, les échantillons provenant de Camargue ou des environs de Marcoule ne se distinguent pas nettement de ceux provenant d'autres régions françaises en termes d'activités massiques. Ainsi, les activités ajoutées par les rejets atmosphériques passés du site, que l'on mettra plus loin en évidence grâce aux rapports d'activités isotopiques, ne compensent pas le fait que les précipitations dans la basse vallée du Rhône étant parmi les plus faibles de France, les retombées des essais nucléaires y ont été également parmi les plus faibles.

Bien que l'américium et le plutonium soient deux éléments chimiques différents et que leurs comportements dans les sols puissent être différents, ils se caractérisent tous deux par une forte propension à se fixer sur les particules de sol et à s'immobiliser dans les couches de surface. C'est pourquoi, l'étude de leur rapport d'activité isotopique dans les sols fait sens. La figure 69 présente les rapports d'activités isotopiques $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ pour les 223 échantillons dans lesquels ces deux radionucléides ont pu être mesurés. 85 % de ces rapports d'activités sont compris entre 0,3 et 0,5 pour des moyennes quasiment toutes égales à 0,4, quelle que soit la profondeur de la strate de sol considérée (graphique de droite). Ce qui signifie que l'américium et le plutonium migrent avec la même vitesse : extrêmement faible. Cette valeur de 0,4 est tout à fait conforme à celle attendue du fait de la formation de l'américium 241 par désintégration du plutonium 241 et de sa décroissance radioactive (voir la figure 56). On note par ailleurs une augmentation de ce rapport, de 0,3 au début des années 1990 à 0,4 à la fin des années 2010. Cette augmentation est liée à la production d'américium 241 par désintégration de plutonium 241 sur ce laps de temps. Les rapports d'activités $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ les plus élevés, supérieurs à 0,7 et indiqués en rouge dans la figure 69 ont été prélevés en Camargue dans une zone inondée par une rupture de digue et sur laquelle des sédiments marqués par les rejets passés de Marcoule se sont déversés sur les sols.

Rapports d'activités $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ (sans dimension)

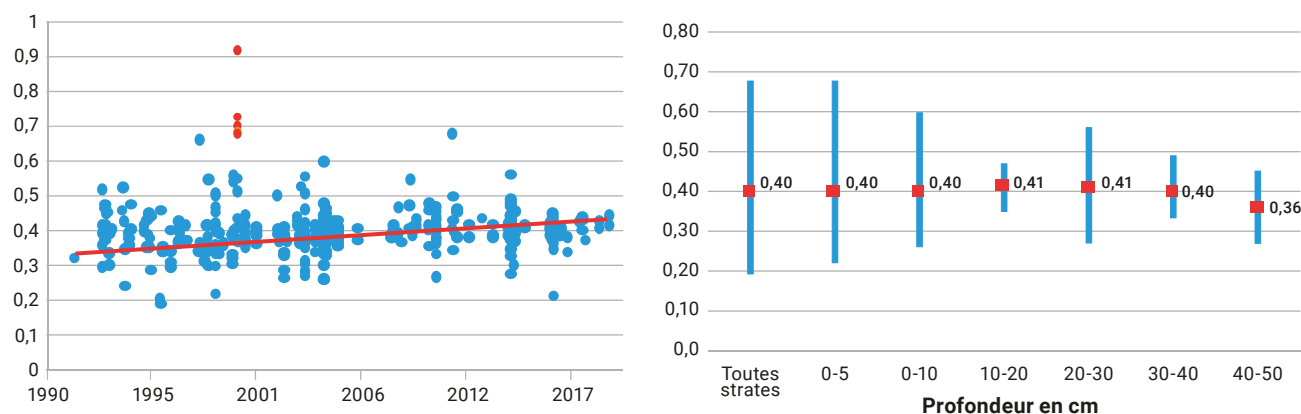
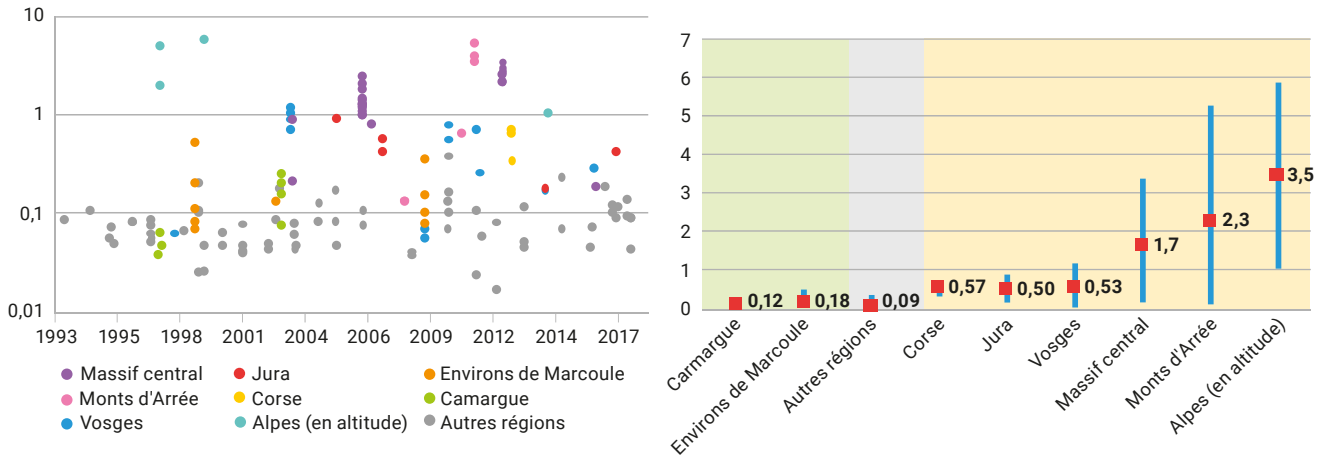
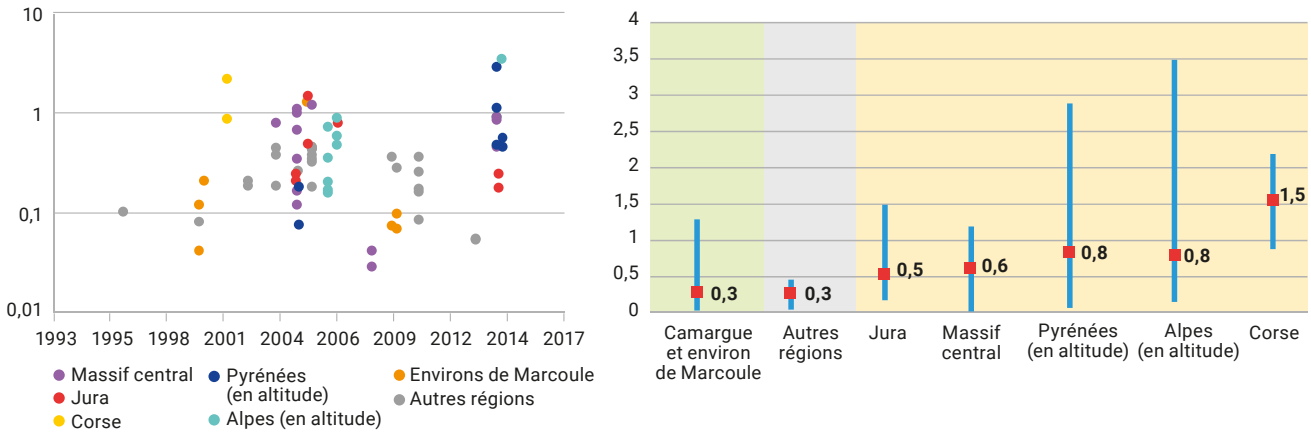


Figure 69. Rapports d'activités $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ dans des sols à différentes profondeurs. Les ronds rouges correspondent à des sols prélevés en Camargue dans des zones inondées par les eaux du Rhône.

Américium 241 dans des sols de toute nature entre 0 et 5 cm de profondeur (Bq/kg sec)



Américium 241 dans des sols de toute nature entre 0 et 10 cm de profondeur (Bq/kg sec)



Américium 241 dans des sols de toute nature entre 0 et 20 cm de profondeur (Bq/kg sec)

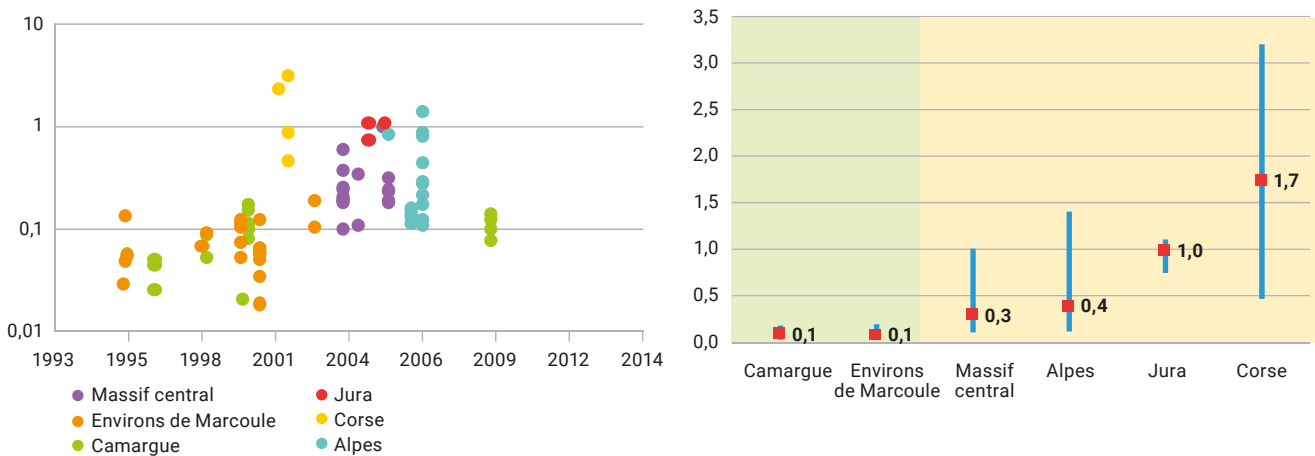


Figure 68. Activités massiques d'américium 241 dans des échantillons de sols prélevés à différentes profondeurs (Bq/kg sec).

5 11 L'AMÉRICIUM 241 DANS LES DENRÉES VÉGÉTALES ET D'ORIGINE ANIMALE

Comme celles de plutonium, les activités massiques d'américium 241 dans les végétaux (herbages et denrées agricoles notamment) et dans les denrées d'origine animale (lait et viandes) sont si faibles qu'elles se trouvent le plus souvent non quantifiables par la mesure (inférieures aux seuils de décision) même en utilisant les meilleures techniques disponibles. Ainsi, sur 360 analyses d'américium 241 dans des céréales effectuées depuis 2008, aucune n'a donné de résultat significatif, la plupart des seuils de décision se situant au-dessus de 0,01 Bq/kg sec alors que les activités réelles sont probablement à des niveaux 100 à 1 000 fois inférieurs. De même, sur 485 analyses de légumes feuilles effectuées sur cette même période, seulement 9 ont permis de quantifier les activités massiques. La figure 70 présente l'ensemble des activités massiques et volumiques d'américium 241 mesurées par l'IRSN depuis 2008. La plupart de ces résultats,

acquis entre 2008 et 2011 l'ont été dans le cadre des constats radiologiques régionaux ou d'études particulières en zone de rémanence élevée. Les 3 résultats acquis sur des légumes feuilles entre 2016 et 2018 l'ont été dans le cadre de la surveillance régulière effectuée par l'IRSN au voisinage de Marcoule. Les activités sont comprises entre 0,000005 et 0,0002 Bq/kg frais. Les 6 résultats plus élevés, compris entre 0,0005 et 0,004 Bq/kg frais, sont des légumes feuilles, sensibles à la contamination foliaire par des particules de sol (remise en suspension et éclaboussement), également prélevés au voisinage de Marcoule.

Comme pour le plutonium, devant la difficulté à disposer de mesure d'américium 241 dans de la viande compte tenu des très faibles niveaux attendus, des foies, organe auquel de nombreux radionucléides sont plus particulièrement transférés, de sangliers, animaux qui habituellement présentent les niveaux de contamination les plus élevés, ont été échantillonnés. Ces analyses permettent de disposer de deux valeurs qui pour les raisons explicitées ci-dessus, sont probablement supérieures aux activités massiques d'américium 241 dans les viandes et notamment dans les viandes d'élevage.

Américium 241 dans des denrées (Bq/kg frais ou Bq/L)

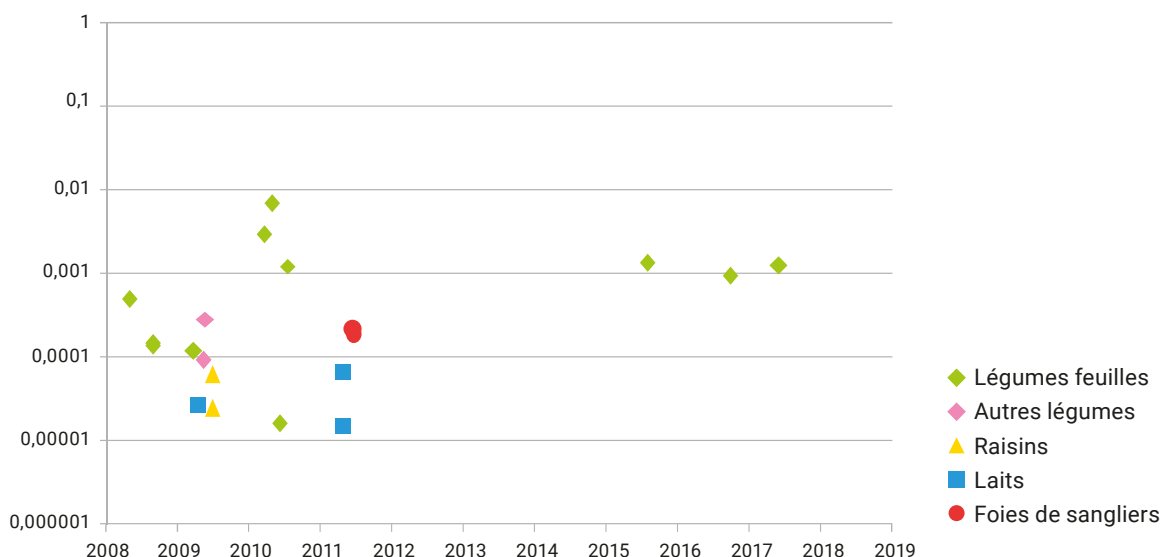


Figure 70. Activités massiques et volumiques d'américium 241 mesurées par l'IRSN depuis 2008 dans les échantillons de denrées terrestres (Bq/kg frais ou Bq/L).

Comme pour les sols et en raison de caractéristiques et comportements similaires (activités massiques dans les sols assez proches, très faibles transferts sol-plantes, l'étude des rapports d'activités $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ peut se révéler intéressante pour les végétaux. La figure 71 présente les 70 rapports d'activités isotopiques calculés pour les herbages. Si l'on excepte les 8 valeurs les plus élevées, supérieures à 1 et atteignant 3,5, et la valeur la plus faible de 0,2, pour lesquelles il est difficile d'avancer des explications, les valeurs se situent entre 0,3 et 1 pour une moyenne de 0,5. Ceci montre que les intensités des transferts entre le sol et les herbages sont suffisamment proches pour que le rapport d'activités isotopiques moyen observé dans les sols (0,4) soit quasiment conservé.

Il en est de même dans les denrées. Ainsi, si l'on excepte 2 échantillons de légumes feuilles et un échantillon de raisins provenant des environs de Marcoule et probablement marqués par les rejets passés de ce site, les rapports d'activités $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ des 13 échantillons de légumes, de viande de sangliers et de lait qui ont pu être calculés, sont compris entre 0,3 et 1 pour une moyenne de 0,4 égale à la valeur théorique issue des retombées atmosphériques globales de ces deux radionucléides et qui est aussi celle observée dans les sols et les végétaux terrestres. De ce fait, bien que les résultats de mesure d'américium 241 dans les denrées soient rares, les activités massiques de ce radionucléide relevant du bruit de fond des retombées globales peuvent être estimées à partir des activités massiques de plutonium 239+240 en utilisant le rapport d'activités isotopiques moyen de 0,4.

Rapports d'activités $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ (sans dimension)

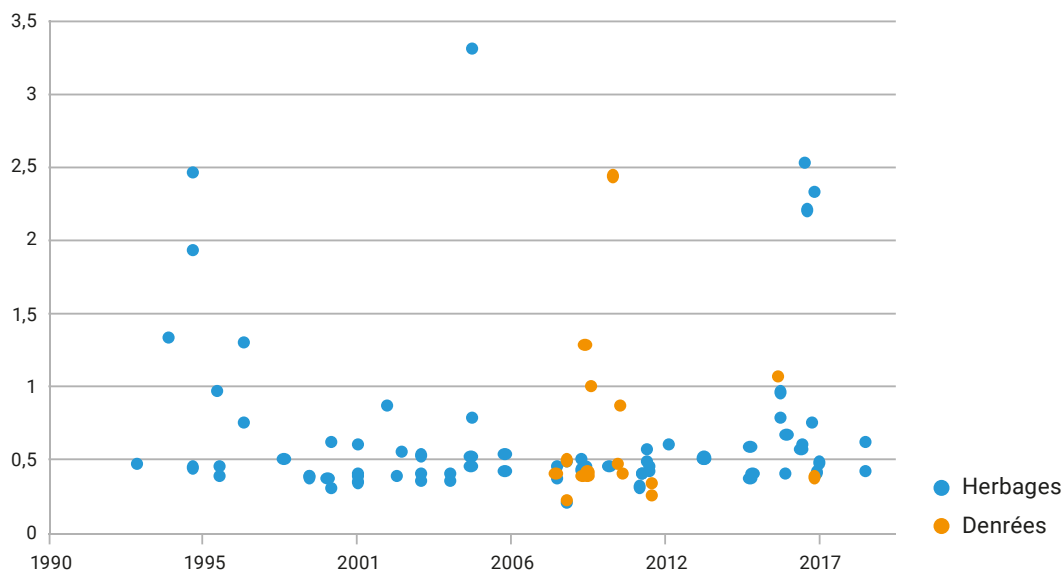


Figure 71. Rapports d'activités $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ dans les herbages et les denrées terrestres.

5 12 L'AMÉRICIUM 241 EN MILIEU AQUATIQUE CONTINENTAL

- Les eaux des fleuves et des rivières _

Comme ceux de plutonium, les niveaux d'activités de l'américium 241 en milieu aquatique continental sont extrêmement faibles. Seule la Station Observatoire du Rhône en Arles (SORA) de l'IRSN permet de prélever des quantités d'eau suffisantes, associées à une métrologie performante pour mesurer ce radionucléide dans l'eau. Dans les eaux brutes du Rhône en aval de Marcoule, les activités volumiques d'américium 241 sont de l'ordre de $0,001 \text{ Bq/m}^3$ (soit 10^{-6} Bq/L) lorsque les charges de particules en suspension (MES) sont faibles. Elles peuvent atteindre cependant $0,1 \text{ Bq/m}^3$ (soit 10^{-4} Bq/L), voire 1 Bq/m^3 en cas de crue et donc de charge en MES très importante (1 à 3 g/L). Ainsi, l'activité fixée sur des matières en suspension dans l'eau est toujours majoritaire avec des valeurs allant de 0,03 à 2 Bq/kg secs. La fraction d'américium dissoute est assez constante, de l'ordre de $0,001 \text{ Bq/m}^3$ (soit 10^{-6} Bq/L) ; elle est négligeable devant la fraction particulaire sauf quand la charge en MES est extrêmement faible. En raison de la rémanence des rejets passés de Marcoule en aval du Rhône, ces valeurs sont probablement majorantes de celles que l'on peut trouver dans les cours d'eau français.

- Les végétaux aquatiques _

La figure 72 qui présente les activités massiques de l'américium 241 dans les plantes aquatiques, ressemble beaucoup à la figure 63 relative au plutonium. Jusqu'au début des années 1990, les teneurs en américium 241 des plantes prélevées dans le Rhône en aval de Marcoule, comprises entre 0,1 et 10 Bq/kg sec, étaient nettement plus élevées que celles des plantes prélevées dans le Rhône en amont et dans les autres grands cours d'eau français. Elles ont diminué durant les années 1990 et se situent aujourd'hui dans la gamme des activités héritées des retombées globales anciennes mesurées en amont du site : entre 0,002 et 0,4 avec une moyenne de 0,05 Bq/kg sec. Dans la Seine, la Meuse, la Moselle ou la Loire, les activités massiques moyennes de l'américium 241 dans les plantes aquatiques se situent autour de 0,01 Bq/kg. Parmi les autres cours d'eau figurent des rivières de plus petits débits comme le Roudour Hir, la Douffine et l'Odet en Bretagne ou la Saulx dans la Meuse dont les plantes aquatiques présentent des teneurs plus

élevées en américium. Enfin, les plantes aquatiques des lacs d'altitude sur lesquels les retombées des essais nucléaires ont été plus élevées en raison de la pluviométrie, dont les eaux se sont moins renouvelées et dont les sédiments ont accumulé les dépôts initiaux, présentent les activités les plus élevées avec une moyenne de 4 Bq/kg sec.

Cette similitude entre les figures 72 et 63 est confirmée par les rapports d'activités $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ présentés dans la figure 73. Si on excepte les échantillons prélevés dans le Rhône en aval des sites du Tricastin et de Marcoule, les rapports d'activités $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ fluctuent entre 0,2 et 0,7 pour une moyenne de 0,4 exactement égale à la valeur théorique de la rémanence des retombées des essais nucléaires, et ceci quel que soit le cours d'eau. On peut en conclure que l'américium et le plutonium présentent des comportements très similaires en milieu aquatique continental. En aval des sites du Tricastin et de Marcoule, ils sont en moyenne plus élevés (0,6 et 0,8 respectivement) et surtout beaucoup plus fluctuants (entre 0,15 et 1,6) en raison de la variabilité de la rémanence des rejets passés de ces sites.

- Les poissons _

Sur 947 échantillons de poissons d'eau douce analysés depuis 1984 par l'IRSN, seulement 47 présentaient une activité massique d'américium 241 suffisante pour être quantifiée. Ces 47 résultats significatifs ont été principalement acquis dans le cadre des bilans radioécologiques décennaux réalisés par l'IRSN à la demande d'EdF. Depuis 1995, les activités dans le Rhône en amont de Marcoule et dans les autres cours d'eau sont comprises entre 0,00001 et 0,001 Bq/kg frais pour une moyenne de 0,0002 Bq/kg frais. En aval de Marcoule, les activités sont plus élevées et comprises entre 0,0003 et 0,004 Bq/kg frais pour une moyenne de 0,001 Bq/kg frais.

La dizaine de rapports d'activités isotopiques $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ qui ont pu être calculés depuis 1995 sont compris entre 0,13 et 1,9 pour une moyenne de 0,8. Malgré leur faible nombre et leur grande variabilité liée à des incertitudes métrologiques importantes, ces rapports d'activités dans les poissons confirment le comportement similaire de l'américium et du plutonium en milieu aquatique continental qui a été montré au travers des résultats acquis sur les plantes aquatiques.

Américium 241 dans les plantes aquatiques (Bq/kg sec)

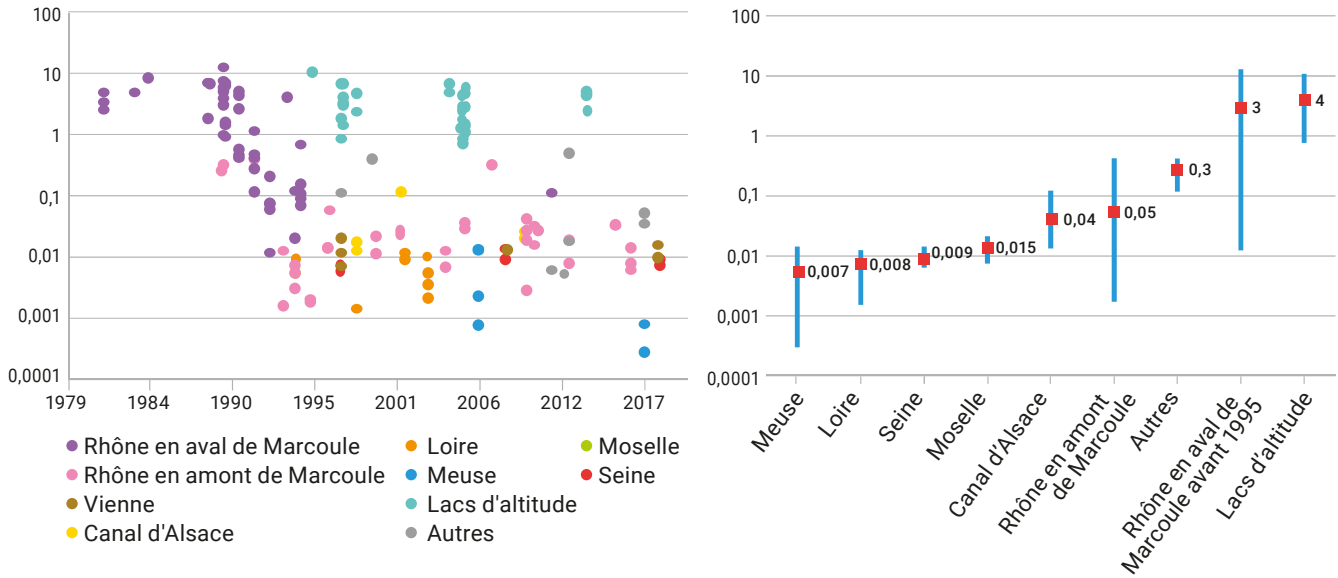


Figure 72. Activités massiques d'américium 241 mesurées par l'IRSN depuis 1979 dans les échantillons de plantes aquatiques (Bq/kg sec).

Rapports d'activités $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$

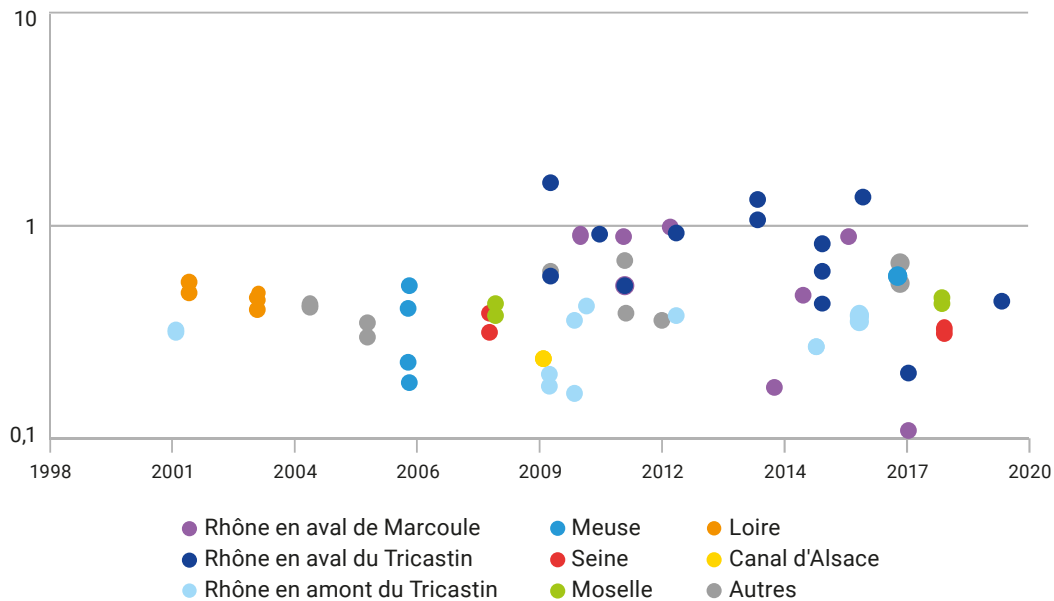


Figure 73. Chronique des rapports d'activités $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ dans les plantes aquatiques.

5 13 L'AMÉRICIUM 241 EN MILIEU MARIN

Les connaissances sur l'américium en milieu marin sont minces et les données d'activités massiques et volumiques sont rares.

Dès lors, comme en milieux terrestre et aquatique continental, et bien que l'américium puisse avoir un comportement différent de celui du plutonium en milieu marin, il est intéressant d'étudier les rapports d'activités $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$. Ceux-ci ont pu être calculés pour 12 échantillons d'algues, 33 échantillons de coquillages et 4 échantillons de poissons prélevés en différents points du littoral français hors Manche et mer du Nord potentiellement influencés par les rejets du site de La Hague. Ces rapports, présentés dans la figure 74 sont compris entre 0,1 et 1,4 avec une moyenne de 0,5, très proche de la valeur théorique de 0,4 issue des retombées anciennes. Compte tenu de la proportion élevée de résultats inférieurs aux seuils de décision et des incertitudes métrologiques importantes à de si faibles niveaux d'activité, la connaissance du bruit de fond de l'américium 241 en milieu marin peut donc être déduite de celle du plutonium 239+240, et réciproquement.

5 14 EXPOSITIONS DE LA POPULATION AUX ACTINIDES PRÉSENTS DANS L'ENVIRONNEMENT

Les actinides ne peuvent induire d'exposition externe. Même le rayonnement gamma de l'américium 241 est trop faible pour générer une exposition externe significative. Les activités volumiques en actinides de l'air (de l'ordre du nBq/m^3 pour $^{239+240}\text{Pu}$) induisent des doses négligeables (de l'ordre de $2 \cdot 10^{-3} \text{ nSv}/\text{an}$) au regard de celles liées à leur incorporation par ingestion de denrées.

Le tableau 5 fournit les valeurs d'activités massiques et volumiques ainsi que les quantités de denrées annuellement ingérées utilisées pour estimer la dose due à l'incorporation de plutonium 239+240. La valeur du facteur de dose par unité d'incorporation (DPUI) utilisé, $2,5 \cdot 10^{-7} \text{ Sv}/\text{Bq}$ ingéré, est celle fixée par l'arrêté du 1^{er} septembre 2003 du *Journal officiel de la République française*.

Sur la base du nombre très restreint de résultats de mesure et bien qu'une dose efficace puisse être calculée, on en retiendra l'ordre de grandeur : $50 \text{ nSv}/\text{an}$.

Rapports d'activités $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ en milieu marin (sans dimension)

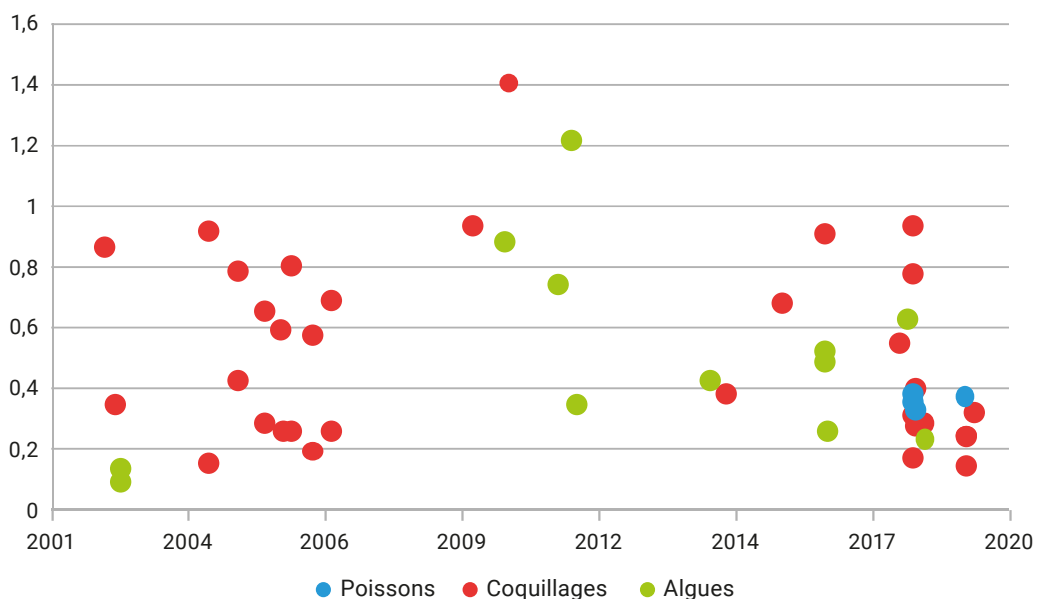


Figure 74. Rapports d'activités $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ en milieu marin.

En raison d'activités massiques dans les denrées 30 fois inférieures à celles des plutoniums 239+240 pour un facteur de dose par ingestion pratiquement égal ($2,3 \cdot 10^{-7}$), la dose par ingestion de plutonium 238 est négligeable au regard de celle due au plutonium 239+240. De même, si aujourd'hui les activités de plutonium 241 sont du même ordre que celles de plutonium 239+240 (voir la figure 57 page 79), le facteur de dose par unité d'incorporation de plutonium 241, d'une valeur de $4,8 \cdot 10^{-9}$ Sv/Bq est 50 fois inférieur à celui du plutonium 239+240. La dose due au plutonium 241 est donc également négligeable.

Compte tenu d'un nombre de données d'activités massiques encore plus restreint, la dose due à l'américium 241 est déduite de celle due au plutonium 239+240 en utilisant un rapport d'activités isotopiques $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ de 0,4 dont la validité a été montrée dans les sols et dans les denrées.

La valeur du facteur de dose par unité d'incorporation (DPUI) de l'américium 241 étant de $2,0 \cdot 10^{-7}$ Sv/Bq ingéré, la dose due à l'incorporation d'américium 241 est ainsi estimée à 15 nSv/an.

Ainsi, la dose totale due aux actinides présents dans l'environnement est estimée à 65 nSv/an. Cette dose est négligeable au regard de celle 20 fois supérieure due au strontium 90 et celle près de 1 000 fois supérieure due au césium 137.

En raison du très faible transfert des actinides dans les denrées issues de l'élevage et par conséquent des faibles teneurs en actinides de ces denrées, la quasi-totalité de la dose due à l'incorporation d'actinides résulte de la consommation de denrées végétales : céréales, légumes et fruits.

Tableau 5. Doses efficaces par incorporation de plutonium 239+240 liées à l'ingestion de denrées produites en France pour un adulte en 2020.

Catégories de denrées	Activités massique ou volumique (Bq/kg frais ou Bq/L)	Rations (kg/an)	Doses efficaces ($\mu\text{Sv}/\text{an}$)	Contributions (%)
Dérivés céréaliers	$9,9 \cdot 10^{-4}$	31	$7,7 \cdot 10^{-3}$	14
Légumes feuilles	$1,0 \cdot 10^{-3}$	24	$6,2 \cdot 10^{-3}$	12
Légumes fruits	$1,0 \cdot 10^{-3}$	60	$1,6 \cdot 10^{-2}$	29
Légumes racines	$1,0 \cdot 10^{-3}$	38	$9,9 \cdot 10^{-3}$	18
Lait de vache*	$9,8 \cdot 10^{-6}$	59	$1,5 \cdot 10^{-4}$	0,3
Lait de chèvre	$9,8 \cdot 10^{-6}$	5,5	$1,4 \cdot 10^{-5}$	0,03
Fromages chèvre/brebis	$9,8 \cdot 10^{-6}$	1,1	$2,7 \cdot 10^{-6}$	0,01
Fromages de vache	$9,8 \cdot 10^{-6}$	13	$3,2 \cdot 10^{-5}$	0,06
Viande de bœuf**	$2,1 \cdot 10^{-4}$	21	$1,1 \cdot 10^{-3}$	2
Porc	$2,1 \cdot 10^{-4}$	30	$1,6 \cdot 10^{-3}$	3
Viande de volaille	$2,1 \cdot 10^{-4}$	16	$8,6 \cdot 10^{-4}$	2
Fruits	$4,1 \cdot 10^{-4}$	55	$5,7 \cdot 10^{-3}$	11
Vins et cidres	$4,1 \cdot 10^{-4}$	27	$2,8 \cdot 10^{-3}$	5
Poissons de mer	$4,2 \cdot 10^{-4}$	11	$1,2 \cdot 10^{-3}$	2
Mollusques et crustacés***	$6,0 \cdot 10^{-4}$	1,6	$2,4 \cdot 10^{-4}$	0,4
Poissons de rivière	$4,4 \cdot 10^{-4}$	0,6	$6,6 \cdot 10^{-5}$	0,1
Viande de gibier	$2,1 \cdot 10^{-4}$	0,4	$2,1 \cdot 10^{-5}$	0,04
Champignons sauvages	$7,8 \cdot 10^{-4}$	2,5	$4,9 \cdot 10^{-4}$	1
Eau	-	730	-	-

* Et produits laitiers frais (yaourts, fromages frais...).

** Et viande de mouton.

*** L'activité massique moyenne est celle des coquillages, les activités des crustacés et des céphalopodes étant le plus souvent non quantifiables et inférieures à cette valeur.

LE CARBONE 14 DANS L'ENVIRONNEMENT FRANÇAIS

6 1 RAPPELS SUR LE CARBONE 14 DANS L'ENVIRONNEMENT

Généralités

Le carbone est naturellement présent sur Terre sous la forme de deux isotopes stables : le carbone 12 (98,9 %) et le carbone 13 (1,1 %) et d'une quantité infime (en masse) de carbone 14, son principal radio-isotope, émetteur bêta, de période radioactive 5 734 ans. La fraction de carbone 14 dans le carbone total est si faible (de l'ordre de 10-12 kg de carbone 14 par kilogramme de carbone total) qu'il est d'usage de l'exprimer en Becquerel par kilogramme de carbone (Bq/kg de C).

Le carbone 14 d'origine naturelle est produit en permanence dans les hautes couches de l'atmosphère sous l'action des rayons cosmiques (notamment par activation de l'azote 14). L'activité de carbone 14 par unité de masse de carbone qui résulte de cette production cosmogénique se situait, au début des années 1950, autour de 226 Bq/kg de C. Cette valeur résulte, d'une part de l'équilibre séculaire entre la production de carbone 14 cosmogénique et son piégeage à l'issue du

cycle du carbone (notamment dans la matière organique et dans la sédimentation calcaire océanique), et d'autre part de la teneur de l'air en dioxyde de carbone d'origine fossile. En effet, depuis le début de l'ère industrielle, la combustion de matière organique fossile (charbon, pétrole, gaz) dans laquelle le carbone 14 a disparu par décroissance radioactive (depuis sa formation il y a plusieurs centaines de millions d'années), entraîne une diminution, par dilution, de la teneur en carbone 14 du carbone total.

Du carbone 14 a par ailleurs été massivement produit lors des essais atmosphériques d'armes nucléaires. Par conséquent, son activité a rapidement augmenté du début des années 1950 jusqu'en 1963, où, au plus fort des retombées de ces essais, elle a atteint près de 420 Bq/kg de C comme en témoignent les activités mesurées dans des végétaux prélevés sur l'ensemble de la planète (figure 75).

Avec l'arrêt des essais atmosphériques d'armes nucléaires, dont le dernier a eu lieu en 1980, cette activité par unité de masse de carbone a diminué du fait de l'augmentation rapide du niveau de carbone dans l'air (CO₂ notamment) liée surtout à la combustion de matière organique fossile. Sur la période 2015-2017 (BR 2015-2017), cette activité était en moyenne de 227 Bq/kg de C, très proche du niveau naturel qui existait avant les essais atmosphériques. Cette activité constitue le « bruit de fond radiologique » actuel du carbone 14 dans l'atmosphère, hors de toute influence anthropique locale.

Carbone 14 en milieu terrestre (Bq/kg de carbone)

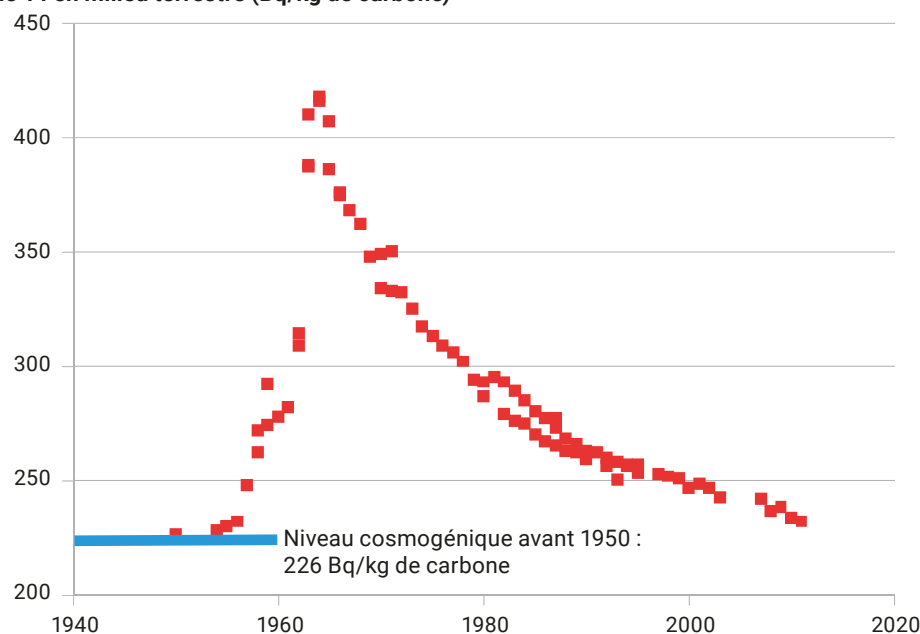


Figure 75. Évolution de l'activité de carbone 14 par unité de masse de carbone dans les végétaux correspondant au bruit de fond radiologique de ce radionucléide entre 1950 et 2004 (Roussel-Debet, 2007).

L'influence anthropique locale peut se traduire, soit par une teneur en carbone 14 plus élevée (augmentation des Bq/kg de C), ce qui peut être le cas à proximité d'une installation nucléaire qui rejette du carbone 14, soit par une teneur en carbone 14 plus faible (diminution des Bq/kg de C), qui peut-être rencontré à proximité d'une industrie qui rejette de grandes quantités de CO₂ d'origine fossile.

Dans l'environnement, le carbone 14 existe sous deux formes principales, l'une minérale (¹⁴CO₂ gazeux et ¹⁴CH₄ dans l'air, ¹⁴CO₂ dissous et carbonates dans les eaux), l'autre sous forme de matière organique constituée de composés carbonés fabriqués par les organismes vivants. Comme le carbone stable, le carbone 14 sous forme de dioxyde de carbone (CO₂) présent dans l'air sous forme gazeuse ou dans l'eau sous forme dissoute suit le cycle du carbone. Il est incorporé par les végétaux lors de la photosynthèse, devenant ainsi du carbone organique qui se transfère par la chaîne alimentaire. Les animaux incorporent du carbone 14 par ingestion de matière organique (végétale ou animale) et excrètent du CO₂ par la respiration lorsqu'ils sont vivants et lorsqu'ils meurent, leur matière organique subit une dégradation (minéralisation) qui re-émet du CO₂ directement ou après un certain temps de rétention dans les sols ou dans les sédiments.

Le carbone 14 en milieu terrestre

En radioécologie et notamment pour la surveillance radiologique du carbone 14 dans l'environnement, on considère que les mécanismes qui interviennent dans le devenir du carbone organique s'opèrent de la même manière pour le carbone 14 que pour le carbone 12 (sans tenir compte de la discrimination isotopique). Il résulte de ce postulat simplificateur que l'activité de carbone 14 par unité de masse de carbone des organismes végétaux et animaux terrestres équivaut à l'activité moyenne de l'air dans lequel ils vivent, si cette activité dans l'air est assez constante, ce qui est le cas à l'échelle d'une année en dehors de toute influence anthropique locale.

La figure 76 montre ainsi que la diminution de l'activité en carbone 14 en moyenne annuelle mesurée sur les végétaux en France (valeurs reportées dans la publication de Roussel-Debet (2014)) est tout à fait corrélée à l'augmentation de la teneur en CO₂ de l'air observée sur la station observatoire de référence de Mauna Loa (en μMol de CO₂/mol d'air) et donc à la diminution du ¹⁴CO₂ atmosphérique.

Carbone 14 dans les végétaux terrestres (Bq/kg de carbone)

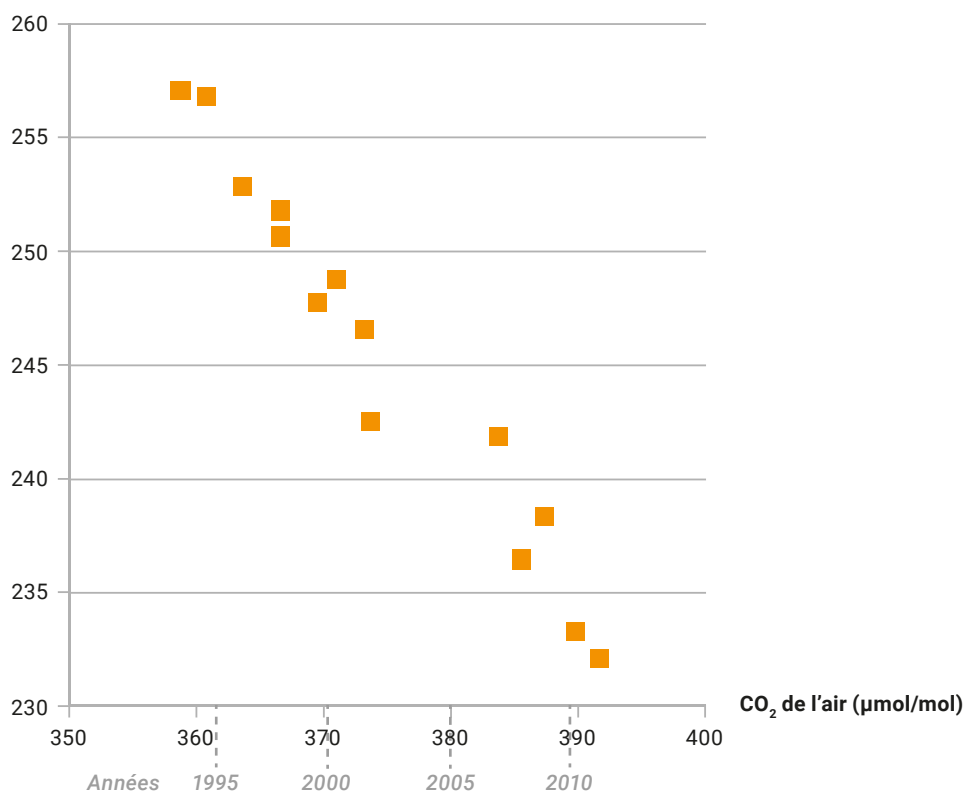


Figure 76. Corrélation entre la diminution de la teneur en carbone 14 mesurée dans des végétaux prélevés en France de 1994 à 2011 (Bq/kg de C) et l'augmentation de la teneur en dioxyde de carbone de l'air (μmol de CO₂/mol d'air).

- Le carbone 14 en milieu aquatique continental _

De même que le carbone 14 issu des retombées des essais nucléaires s'est dilué dans le compartiment atmosphérique avec l'augmentation du CO₂ d'origine fossile qui en est dépourvu, le carbone 14 dissous en milieu aquatique continental peut se trouver dilué dans des carbonates anciens présents dans le milieu qui en sont également dépourvus. Cependant, si la teneur en CO₂ de l'air peut être considérée en moyenne comme relativement homogène, conduisant à une activité de carbone 14 par unité de masse de carbone homogène à l'échelle planétaire, la teneur en carbonates est très variable d'un cours d'eau à l'autre et même suivant le tronçon d'un même cours d'eau ; il en résulte que l'activité de carbone 14 par unité de masse de carbone dans un cours d'eau est le plus souvent plus faible et plus variable que celle observée en milieu atmosphérique et terrestre.

- Le carbone 14 en milieu marin _

En milieu marin, les activités de carbone 14 sont influencées par les activités (contemporaines) de l'air et par la dissolution de carbonates (coquillés) comme en milieu aquatique continental, mais également par la ré-émission de dioxyde de carbone issu de la décomposition d'une matière organique ancienne qui a sédimenté avant de remonter à la surface (pompe biologique) et dont la teneur en carbone 14 plus élevée, correspond à celle de l'air à une période antérieure.

- Relation entre l'activité par unité de masse de carbone et les activités massiques _

À partir de l'activité de carbone 14 par unité de masse de carbone (Bq/kg de C), l'activité volumique de l'air peut être obtenue en prenant en compte la teneur en carbone de l'air (exprimée en kg de C/m³) (Renaud, 2019) ; il en est de même de l'activité massique (Bq/kg frais) d'une denrée végétale ou animale qui peut être déduite en prenant en compte sa teneur en carbone (kg de C/kg frais). Ceci permet d'évaluer les activités de carbone 14 incorporées par inhalation (généralement négligeable) ou par ingestion de denrées afin d'estimer l'exposition de la population (dose) au carbone 14 présent dans l'environnement. Le tableau 6 indique, à titre d'illustration, les activités massiques correspondant au bruit de fond radiologique actuel du carbone 14, hors influence de toutes activités industrielles locales, pour différents types de denrées ainsi que l'activité volumique de ce radionucléide dans l'air. Elles ont été établies sur la base des teneurs en carbone (kg de carbone par kilogramme de denrées fraîches) moyennes, minimales et maximales retenues par l'AIEA et pour une activité de 227 Bq/kg de C (la variabilité autour de cette valeur de 227 Bq/kg de C sera discutée plus loin dans ce document).

Les éléments permettant de calculer de manière simple les activités massiques à partir des activités de carbone 14 par unité de masse de carbone sont fournis en annexe.

Tableau 6. Activités massiques de carbone 14 dans différents types de denrées (Bq/kg de denrée fraîche) et dans l'air, estimées pour le bruit de fond radiologique de 227 Bq/kg de C observé sur la période 2015-2017.

Type de denrée	Activité massique de carbone 14 en Bq/kg frais		
	Moyenne	Min	Max
Légumes feuilles	7	4	15
Céréales	91	86	107
Racines et tubercules	10	5	22
Fruits	23	9	36
Lait	15	14	16
Viande de bœuf	45	36	66
Viande de porc	68	39	125
Viande de volaille	54	-	-
Poissons	18	-	-
Air	0,45 Bq/m ³		

6 2 LA SURVEILLANCE PAR L'IRSN DU CARBONE 14 DANS L'ENVIRONNEMENT

Le carbone 14 est, avec le tritium, l'un des deux radionucléides les plus rejetés dans les effluents liquides et gazeux des installations nucléaires. À ce titre, sa concentration dans l'environnement fait l'objet d'une surveillance qui est le plus souvent effectuée par la mesure de l'activité du carbone 14 dans des échantillons de végétaux et de produits animaux (feuilles d'arbres, herbe, légumes feuilles et lait principalement), la surveillance du carbone 14 dans l'air restant, encore aujourd'hui, difficile à mettre en œuvre⁽⁶⁶⁾.

Le carbone 14 étant déjà présent dans l'environnement du fait de sa production naturelle et de la rémanence des retombées des essais nucléaires, le principe de cette surveillance est de comparer les activités de carbone 14 dans des échantillons prélevés à proximité des installations nucléaires à celles d'échantillons prélevés hors de leur influence (dont l'activité en carbone 14 se trouve au niveau du « bruit de fond radiologique » de ce radionucléide).

Cependant, à l'exception de quelques sites nucléaires, notamment ceux de La Hague et de Marcoule, les rejets gazeux de carbone 14 des installations nucléaires françaises sont trop faibles pour que leur influence dans l'environnement soit décelable par des mesures d'activités massiques (exprimées en Bq/kg frais). C'est notamment le cas autour des centres nucléaires de production d'électricité (CNPE) et de la plupart des sites de recherche. Ceci est dû à la forte variabilité naturelle de ces activités massiques (teneurs en eau variables) qui ne permet pas de distinguer l'activité potentiellement ajoutée du fait des rejets par rapport à celle du bruit de fond. En revanche, l'activité de carbone 14 par unité de masse de carbone (Bq/kg de C) correspondant au « bruit de fond radiologique » est très peu variable et est connue de manière assez précise (voir paragraphe suivant) ; elle constitue ainsi un bon indicateur pour déceler les très faibles influences locales liées aux rejets des installations nucléaires.

La surveillance par l'IRSN du carbone 14 dans l'environnement de la plupart des sites nucléaires français s'est mise en place progressivement à partir du milieu des années 1990. Celles fournissant des résultats exprimés en termes d'activités par unité de masse de carbone avec de faibles incertitudes ont permis de caractériser le bruit de ce radionucléide et de distinguer la très faible influence de la plupart des installations nucléaires⁽⁶⁷⁾. Ces techniques et leurs performances sont présentées en annexe.

Les résultats de mesure du carbone 14 exploités dans cette étude sont exprimés en Bq/kg de carbone et proviennent quasiment exclusivement de l'IRSN et de Subatech ; les analyses effectuées par les exploitants nucléaires dans le cadre de la surveillance radiologique réglementaire, ne permettent pas de caractériser le bruit de fond radiologique de ce radionucléide. Les différents cadres dans lesquels les données de l'IRSN ont été acquises sont précisés ci-après pour chaque compartiment de l'environnement ; les mesures réalisées par Subatech et exploitées dans cette étude ont été acquises dans le cadre de la surveillance complémentaire effectuée à la demande d'EDF.

6 3 LE BRUIT DE FOND RADIOLOGIQUE DU CARBONE 14 DANS L'ENVIRONNEMENT FRANÇAIS

Comme indiqué précédemment, le réservoir du carbone 14 a toujours été l'air, assurant une répartition relativement homogène de son niveau d'activité sur l'ensemble du territoire. En revanche, ce niveau évolue assez rapidement à l'échelle des dernières décennies. Aussi, contrairement au césium 137, au strontium 90 et aux isotopes du plutonium objets des chapitres précédents, ce n'est pas sa variabilité spatiale qui sera étudiée, mais son évolution dans le temps au sein des trois grands compartiments de l'environnement : le milieu terrestre, également représentatif du compartiment atmosphérique, le milieu aquatique continental et le milieu marin.

(66) Les dispositifs qui permettent le prélèvement du carbone 14 atmosphérique par barbotage nécessitent une maintenance importante. Seuls, le commissariat à l'énergie atomique et aux énergies alternatives (CEA) et Orano (La Hague) effectuent en routine une surveillance du carbone 14 dans l'air autour de certains de ces sites. L'IRSN travaille sur la mise au point de piègeurs passifs du ¹⁴CO₂ de l'air peu contraignants qui pourront être plus facilement déployés pour assurer une surveillance de routine.

(67) Auparavant et encore dans les décennies suivantes, des analyses de carbone 14 dans l'environnement ont été réalisées au moyen de techniques initialement développées pour le contrôle des rejets des installations nucléaires. Pertinentes pour les très fortes activités de carbone 14 présentes dans ces rejets, elles ne permettraient pas, en raison d'incertitudes métrologiques beaucoup trop élevées, de conclure sur une possible influence d'une installation nucléaire dans l'environnement.

En milieu terrestre

Une première étude sur l'évolution du bruit fond radiologique de ce radionucléide en France en milieu terrestre a été réalisée en 2006 et a porté sur la période 1994-2004 (Roussel-Debet, 2006). Cette étude a consisté à comparer les activités de carbone 14, exprimées en Bq/kg de C, mesurées sur des échantillons collectés en zone potentiellement influencée par les CNPE (situées sous les vents dominants et à proximité des sites d'EdF) à celles d'échantillons collectés en dehors des vents dominants et à plus de 10 km des CNPE. À cette époque, la connaissance du bruit de fond radiologique du carbone 14 ne faisait pas l'objet de mesures spécifiques, mais la comparaison avec des données de la littérature internationale a montré que les activités de carbone 14 des échantillons collectés à distance des CNPE (plus de 10 km) pouvaient être considérées comme représentatives du bruit de fond de ce radionucléide. Les moyennes annuelles des activités de carbone 14 par unité de masse de carbone correspondantes pour la période 1994-2004 sont représentées sur la figure 77. Elles montrent que la baisse de l'activité de ce radionucléide

par unité de masse de carbone, due à l'augmentation du dioxyde de carbone d'origine fossile, s'est poursuivie durant cette période.

À partir de 2006, le bruit de fond du carbone 14 dans l'environnement français a fait l'objet d'un suivi spécifique par l'IRSN, basé sur des prélèvements de feuilles d'arbres⁽⁶⁸⁾ (63 analyses entre 2006 et 2018) et d'herbages (5 analyses sur cette même période) dont les résultats d'analyse sont représentés par des losanges bleus dans la figure 77. Ces prélèvements proviennent de différents points du territoire, mais principalement de Bretagne, de Vendée et du Puy-de-Dôme et ont fait l'objet d'un examen détaillé sur la période 2004-2011 (Roussel-Debet, 2014).

Les analyses dédiées au bruit de fond du carbone 14 (hors influence d'une installation nucléaire) dans les denrées sur cette même période, sont beaucoup moins nombreuses (17 analyses, représentées par des triangles gris). Les constats radiologiques et notamment le constat régional « Sud-Ouest » avec 19 échantillons de différents types de denrées prélevés entre 2009 et 2011 (triangles rouges sur la figure 77) a permis d'augmenter leur nombre : des légumes (salades, pommes

Carbone 14 en milieu terrestre (Bq/kg de carbone)

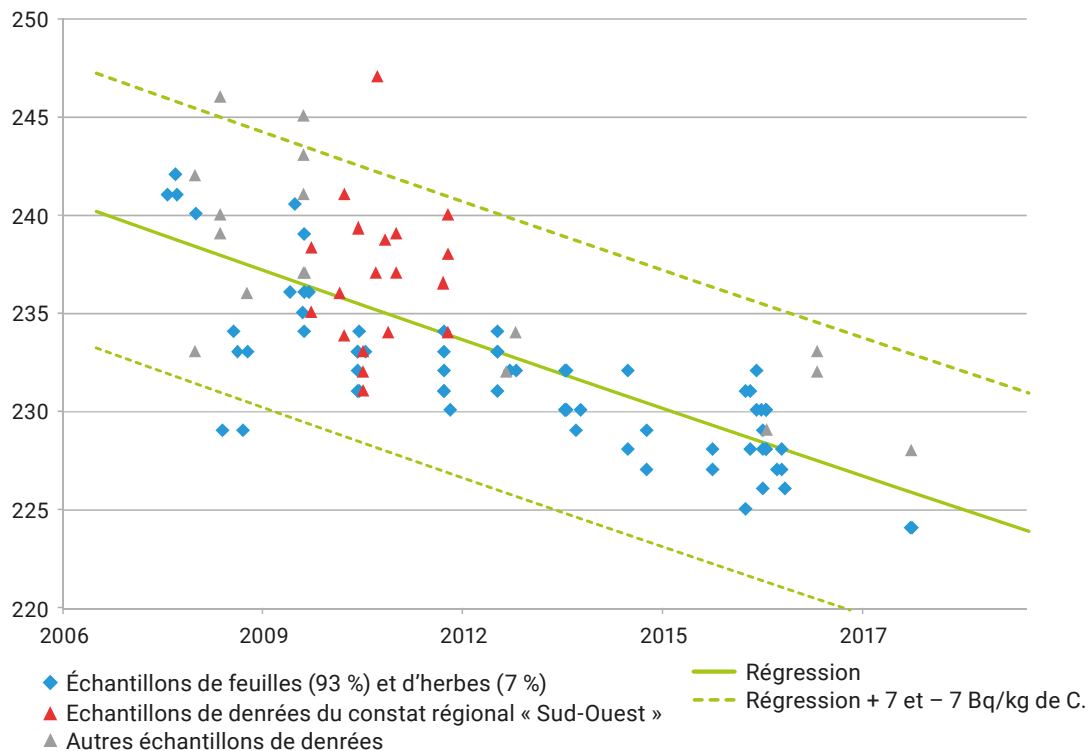


Figure 77. Évolution des activités de carbone 14 par unité de masse de carbone correspondant au bruit de fond de ce radionucléide en milieu terrestre entre 2006 et 2018.

(68) L'intérêt de ce type d'échantillon est d'être représentatif de l'activité moyenne de l'air en carbone 14 durant une période plus longue (celle de croissance des feuilles des arbres) que ne l'est celle associée à des denrées agricoles.

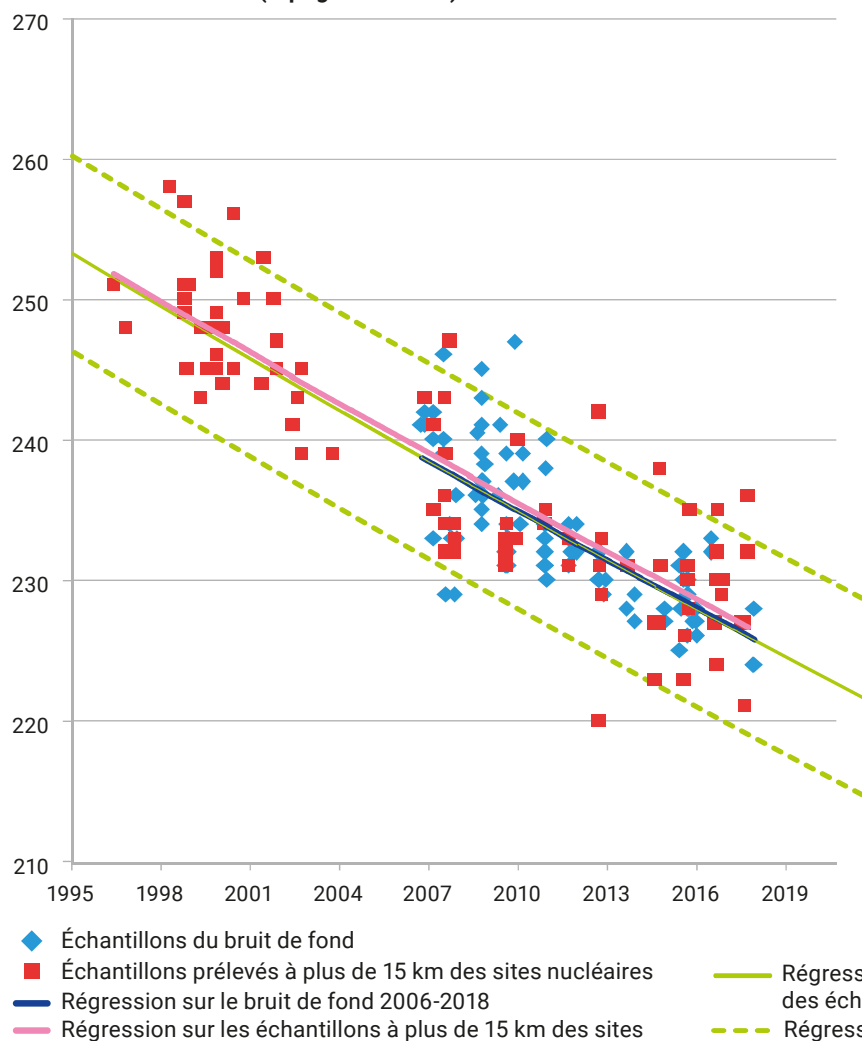
de terre, asperges, haricots secs), des fruits (pruneaux, prunes, melons, kiwis, pommes), des viandes d'élevage (bovins, canards, poulets) et du gibier (chevreuils). L'ensemble de ces résultats d'analyses de denrées confirme que les activités en carbone 14 par unité de masse de carbone sont bien indépendantes de la nature du prélèvement et donc que les résultats acquis sur des échantillons de feuilles d'arbres dans le cadre du suivi du bruit de fond de ce radionucléide, sont bien représentatifs des denrées alimentaires de toutes natures.

L'ensemble des 104 résultats d'analyses portant sur le bruit de fond radiologique du carbone 14 acquis depuis 2006 montre que la diminution de la concentration de ce radionucléide dans les organismes vivants se poursuit ; elle est le reflet de celle de l'air qui est liée à l'augmentation du dioxyde de carbone

d'origine fossile. Par une analyse statistique (régression exponentielle), ce jeu de données permet de disposer de valeurs de référence annuelles de l'activité de carbone 14 par unité de masse de carbone, de leur évolution, et de la variabilité autour de ces valeurs de référence. Ainsi, 95 % des 104 résultats d'analyses acquis depuis 2006 sont compris dans une gamme définie par la valeur de référence plus ou moins 7 Bq/kg de C, ce qui correspond à une variabilité de seulement 3 % autour des valeurs de référence.

La mise en perspectives de ces données avec celles acquises à plus de 15 km des CNPE (figure 78), permet de compléter le jeu de données par 97 résultats supplémentaires et de commencer la chronique en 1996, soit 10 ans avant la mise en place par l'IRSN du suivi du bruit de fond radiologique du carbone 14. Les trois analyses statistiques de régression

Carbone 14 en milieu terrestre (Bq/kg de carbone)



Année	Valeurs et gammes de référence
1994	255 ± 7
1995	254 ± 7
1996	253 ± 7
1997	251 ± 7
1998	250 ± 7
1999	249 ± 7
2000	248 ± 7
2001	246 ± 7
2002	245 ± 7
2003	244 ± 7
2004	243 ± 7
2005	241 ± 7
2006	240 ± 7
2007	239 ± 7
2008	238 ± 7
2009	237 ± 7
2010	235 ± 7
2011	234 ± 7
2012	233 ± 7
2013	232 ± 7
2014	231 ± 7
2015	230 ± 7
2016	228 ± 7
2017	227 ± 7
2018	226 ± 7
2019	225 ± 7
2020	224 ± 7
2021	223 ± 7
2022	222 ± 7

(valeur prévisionnelle)

Figure 78. Évolution des activités de carbone 14 par unité de masse de carbone correspondant au bruit de fond radiologique de ce radionucléide en milieu terrestre entre 1996 et 2018.

exponentielle faites sur les 3 jeux de données (jeu de données relatif au bruit de fond sur la période 2006-2018, jeu de données acquises à plus de 15 km des CNPE sur la période 1996-2018 et jeu de données global des 201 résultats) fournissent des résultats très proches (lignes bleue, rose et vertes). Ceci confirme les résultats de l'étude de 2004 qui montrait que les données acquises à plus de 15 km des CNPE ne sont pas influencées par les rejets de ces sites et sont représentatives du bruit de fond radiologique. L'exploitation de l'ensemble des résultats de mesure permet d'asseoir la connaissance de l'évolution des niveaux de référence sur un jeu de données plus important (201 données) et qui couvre une période de 22 ans. Il est important de noter que 93 % des résultats de cet ensemble se trouvent encore dans la même gamme de variation de ± 7 Bq/kg de C autour des valeurs de référence annuelles qui sont indiquées dans la figure 77.

Enfin, l'analyse de régression prévoit que si l'augmentation de la concentration de l'air en CO_2 provenant de combustibles fossiles, se poursuit, les teneurs en carbone 14 des organismes vivants vont continuer de diminuer en deçà de la valeur de 226 Bq/kg de C qui constituait, avant l'ère nucléaire, le bruit de fond naturel cosmogénique de ce radionucléide.

En milieu aquatique continental

Des échantillons d'eau, de plantes aquatiques, de sédiments et de poissons sont régulièrement prélevés pour analyse de leur teneur en carbone 14 par l'IRSN dans le cadre de sa mission de surveillance radiologique du territoire, de prestations, notamment pour EDF, ainsi que pour des études et recherches. Ces échantillons sont principalement prélevés dans les grands cours d'eau qui reçoivent les rejets des installations nucléaires, en amont et en aval de chaque site. Parmi ces échantillons, seuls ceux prélevés en amont de toutes les installations nucléaires implantées sur le cours d'eau peuvent être considérés comme relativement représentatifs du bruit de fond radiologique. La figure 79 présente les 444 résultats d'analyses réalisées par l'IRSN sur des échantillons d'eau, de plantes aquatiques, de poissons et de sédiments prélevés depuis 1994 dans le Rhône, la Loire, la Seine, la Garonne, la Vienne, la Moselle et la Meuse, en amont respectivement des sites de Creys-Malville, Belleville-sur-Loire, Nogent-sur-Seine, Golfech, Civaux, Cattenom et Chooz. La figure 79 présente également quelques résultats, principalement de sédiments, acquis sur d'autres cours d'eau dans le cadre d'études spécifiques ou lors du constat régional sur la vallée du Rhône, notamment l'Ardèche, la Durance, l'Isère, la Cèze, le Fiers, le Guiers, la Saône, l'Hérault...

Carbone 14 en milieu aquatique continental (Bq/kg de carbone)

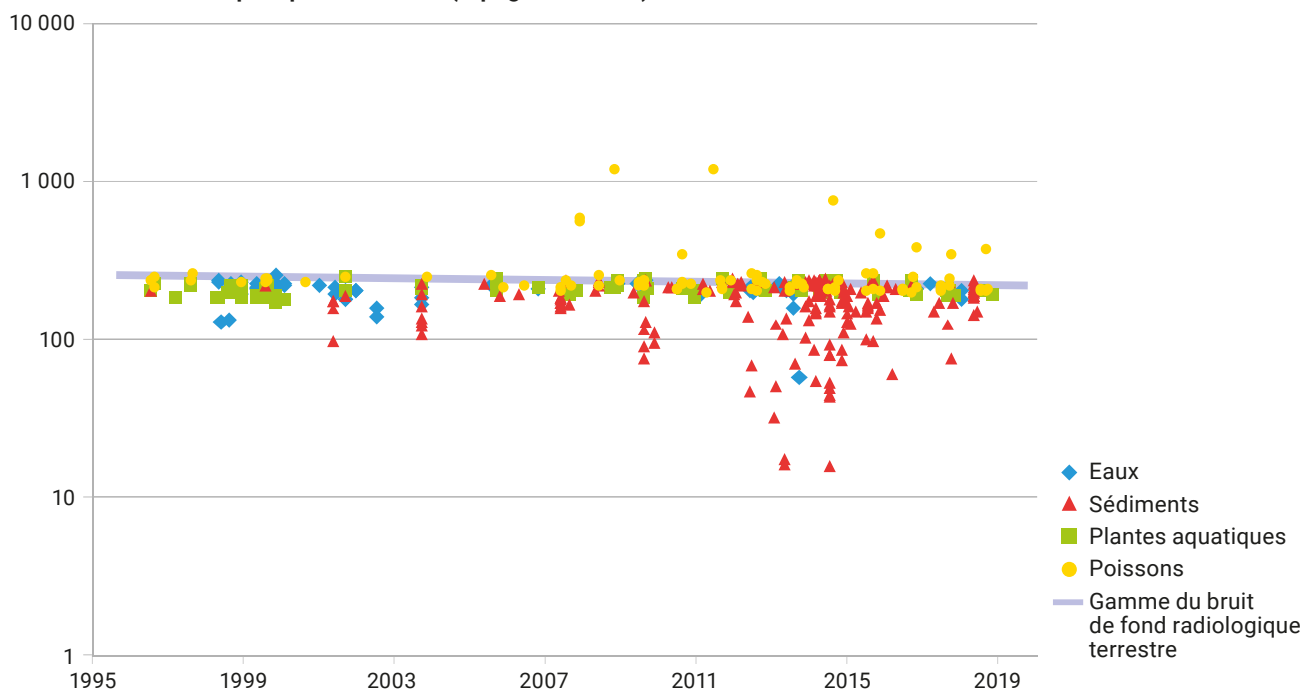


Figure 79. Activités de carbone 14 par unité de masse de carbone représentatives du bruit de fond radiologique de ce radionucléide mesurées par l'IRSN dans des cours d'eau français (Bq/kg de carbone).

Enfin, la gamme des valeurs de référence de l'activité de carbone 14 par unité de masse de carbone correspondant au bruit de fond radiologique de ce radionucléide en milieu terrestre obtenue précédemment est également représentée.

Comme attendu, les activités de carbone 14 dans les cours d'eau sont plus faibles et surtout beaucoup plus variables qu'en milieu terrestre en raison de la dilution de ce radionucléide dans des carbonates anciens qui en sont dépourvus ou qui en présentent de très faibles concentrations. Ainsi, la plupart des activités de carbone 14 dans les échantillons d'eau et de plantes aquatiques sont comprises entre les valeurs de référence terrestres (225 à 250 Bq/kg de C sur la période) et 150 Bq/kg de C. Les activités mesurées sur les sédiments peuvent être encore inférieures, jusqu'à de très faibles valeurs, inférieures à 50 Bq/kg de C ; c'est notamment le cas des sédiments de la Céze dans le Gard qui présente la plus grande variabilité d'activités de carbone 14 (entre 16 et 224 Bq/kg de C) et de la Durance. Ceci s'explique par le fait que les sédiments sont en partie constitués de carbonates dont la teneur en ^{14}C dépend de leur ancienneté et de leur genèse. Les activités de carbone 14 dans les échantillons de poissons sont pour la plupart comprises entre les valeurs de référence terrestres et 200 Bq/kg de C, à l'exception d'une dizaine de résultats situés au-dessus de la gamme des valeurs de référence, dont deux atteignent 1 200 Bq/kg de C et qui seront commentées plus loin.

Les résultats acquis sur les plantes aquatiques immergées sont les plus pertinents pour caractériser le bruit de fond en un point particulier du cours d'eau. Contrairement aux poissons, les plantes sont représentatives de l'endroit où elles se développent ; leur représentativité temporelle est plus large qu'un prélèvement ponctuel d'eau et meilleure qu'un échantillon de sédiments dont on ne connaît ni l'âge, ni la genèse. Les données acquises depuis la fin des années 1990 sur les plantes aquatiques en amont des cours sur lesquels sont implantées des installations nucléaires, permettent de disposer de chroniques, dont quatre sont fournies à titre d'illustration dans la figure 80. Ces chroniques montrent qu'en un point donné du cours d'eau, les activités de carbone 14 sont peu variables et diminuent au fil des années en suivant la même tendance qu'en milieu terrestre. Leur niveau dépend de la nature du sous-sol du bassin versant drainé par le cours d'eau. Ainsi, Le Roudour qui se situe en amont du site nucléaire de Brennilis en Bretagne, coule sur un substrat granitique et présente vraisemblablement une faible teneur en carbonate ; le carbone 14 d'origine terrigène y est donc peu dilué et sa concentration dans les plantes y est du même niveau qu'en milieu terrestre. À l'inverse, le canal d'Alsace, le Rhône et la Moselle drainent des formations calcaires ; les activités en carbone 14 des plantes y sont respectivement inférieures au bruit de fond terrestre de, 25 à 30 Bq/kg de C en amont de Fessenheim, 35 Bq/kg de C en amont de Creys et 40 Bq/kg de C en amont de Cattenom.

Carbone 14 dans les plantes aquatiques (Bq/kg de carbone)

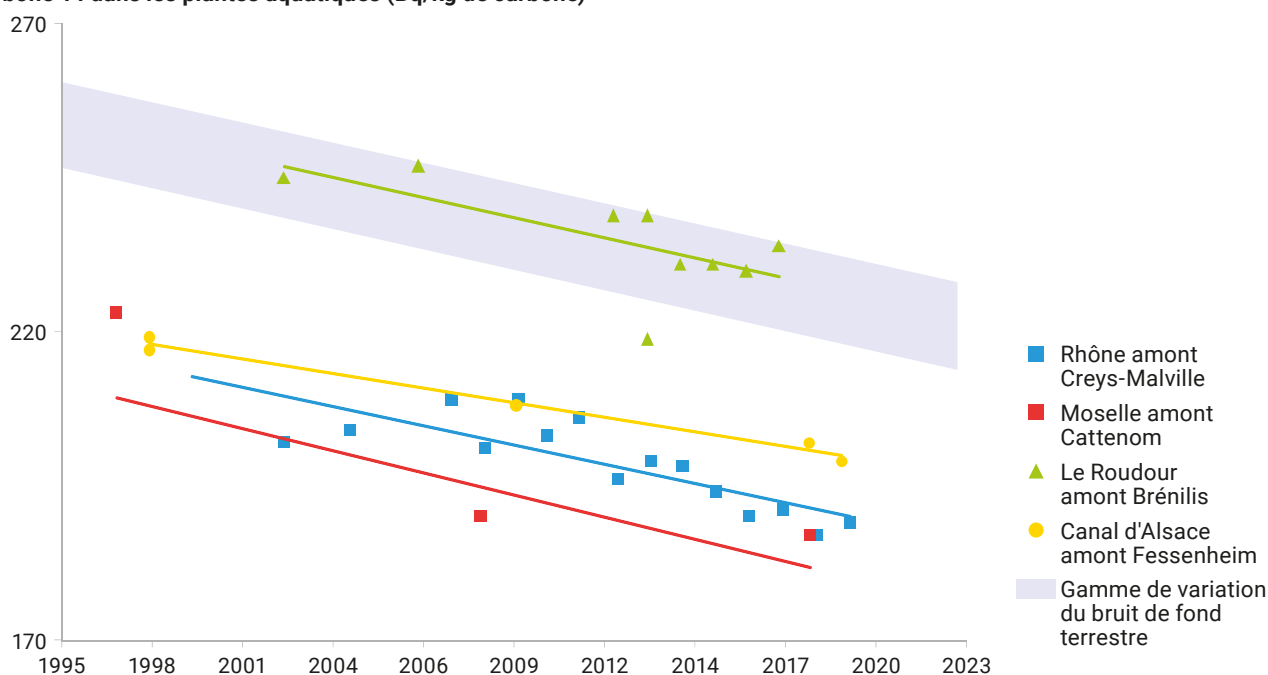


Figure 80. Évolution des activités de carbone 14 par unité de masse de carbone dans les plantes aquatiques du Roudour en amont de Brennilis, du canal d'Alsace en amont de Fessenheim, du Rhône en amont de Creys-Malville et de la Moselle en amont de Cattenom.

Contrairement au cas des sédiments, les données sur le carbone 14 dans les plantes aquatiques d'autres cours d'eau que ceux qui reçoivent les rejets d'installations nucléaires sont rares et ne concernent généralement qu'une ou deux années. Les constats radiologiques « Sud-Ouest » et « Nord-Normandie » ont permis d'étoffer la connaissance que l'on a de la variabilité de leur teneur en carbone 14. Le constat radiologique « Sud-Ouest » illustre la variabilité au fil d'un même cours d'eau avec le cas de l'Adour entre l'amont de Tarbes et l'aval de sa confluence avec le Gave de Pau, soit sur près de 200 km. Dans le cas du bassin versant de la Vienne, on observe un net écart entre les eaux du Clain à faible teneur en carbone 14 (autour de 180 Bq/kg de C et donc à forte teneur en carbonates anciens) et celles de la Vienne et de l'Issoire qui drainent des sols du Massif central dans lesquels les activités de ce radionucléide sont proches des niveaux caractéristiques du milieu terrestre, à l'instar du Roudour en Bretagne dont les résultats ont été présentés dans la figure 80. Enfin, la figure 81 présente également des résultats acquis pour de petits cours d'eau des Hauts-de-France et de la Normandie.

Les figures 82 et 83 détaillent les activités de carbone 14 mesurées dans des échantillons de poissons. La figure 82 montre que les poissons prélevés en amont de certaines installations, peuvent avoir été marqués par des rejets du fait de leur circulation entre l'amont et l'aval ou du fait du mélange des eaux aval et amont à certaines périodes. Ainsi, sur les 10 prélèvements réalisés en amont des sites nucléaires dont les résultats dépassent très nettement les valeurs de référence du bruit de fond, 8 correspondent à des échantillons prélevés en amont du CNPE de Nogent, les deux autres ayant été pêchés en amont de Chooz et de Cattenom. La figure 83 montre que la diminution des teneurs en carbone 14 liée à la dilution dans des carbonates anciens, observée pour les plantes aquatiques et surtout pour les sédiments, est également observable pour les poissons dont les activités de ce radionucléide par unité de masse de carbone sont souvent plus faibles que les valeurs de référence en milieu terrestre.

Carbone 14 dans les plantes aquatiques (Bq/kg de carbone)

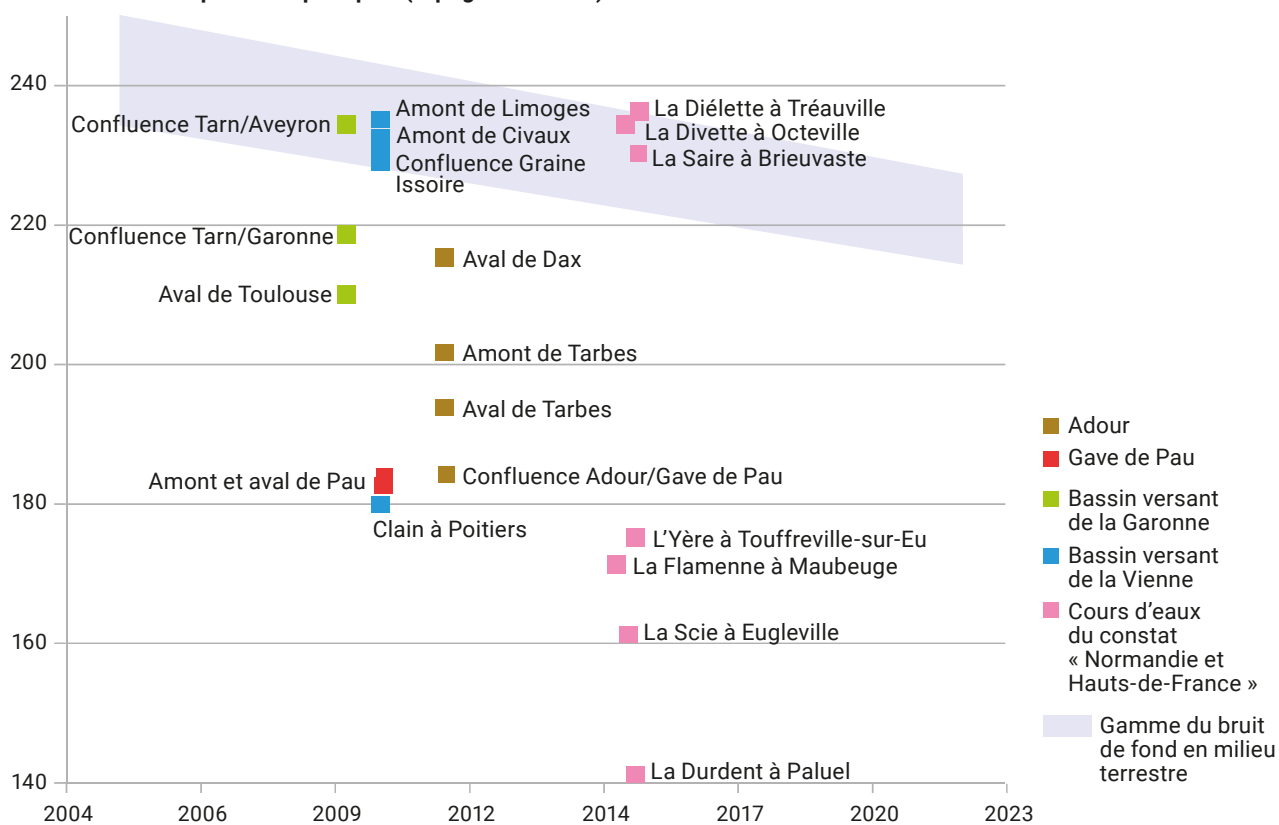


Figure 81. Activités de carbone 14 par unité de masse de carbone dans des plantes aquatiques prélevées dans le cadre des constats radiologiques « Normandie et Hauts-de-France » et « Sud-Ouest ».

Carbone 14 dans les poissons fluviaux (Bq/kg de carbone)

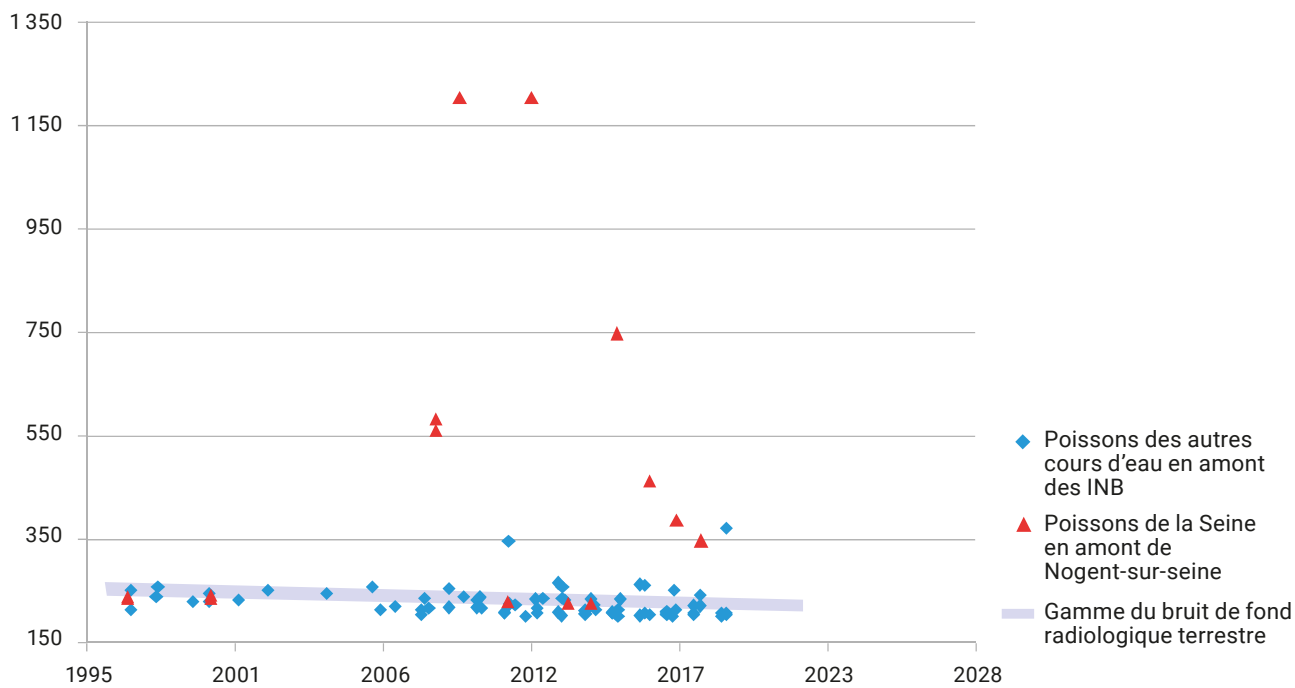


Figure 82. Activités de carbone 14 par unité de masse de carbone dans des poissons prélevés dans la Seine, la Meuse, la Moselle, le Rhône, la Loire, la Garonne et la Vienne en amont de toute installation nucléaire.

Carbone 14 dans les poissons fluviaux (Bq/kg de carbone)

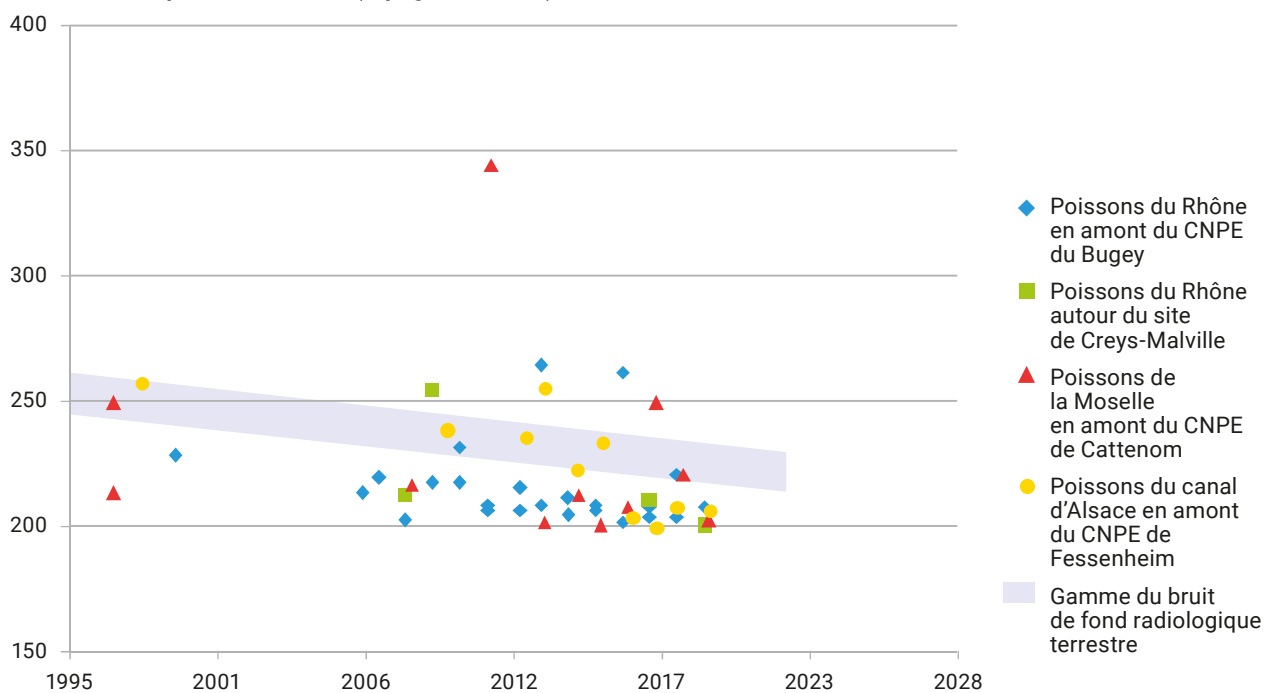


Figure 83. Activités de carbone 14 par unité de masse de carbone dans des poissons prélevés dans la Moselle, le Rhône et le canal d'Alsace en amont des CNPE de Cattenom, Bugey et Fessenheim.

En milieu marin

La surveillance du carbone 14 en milieu marin a débuté en 2009 avec, comme pour les autres compartiments, l'évolution de techniques de mesures et des stations de prélèvements réparties sur l'ensemble des côtes du territoire métropolitain (Méditerranée, Atlantique, Manche et mer du Nord). Deux études permettent toutefois de disposer de résultats de mesure avant cette date : une étude effectuée entre 2000 et 2002 qui portait sur les transferts de ce radionucléide en milieu marin et pour laquelle différents échantillons avaient été prélevés près de Concarneau et de La Rochelle (Fievet *et al.*, 2006), et le constat régional « Méditerranée » réalisé entre 2007 et 2009.

Parmi l'ensemble des résultats disponibles à l'IRSN, seuls les 141 résultats supposés représentatifs du bruit de fond sont présentés sur la figure 84 ; en ont été écartés les résultats sur la Manche et la mer du Nord, influencés par les rejets de La Hague (Fievet *et al.*, 2006) et les résultats acquis sur les poissons, pour lesquels on peut toujours suspecter une influence potentielle en raison de leur possible migration dans des zones situées à proximité des débouchés des fleuves marqués par les rejets d'installations nucléaires (la Seine et la Garonne).

La figure 84 montre également que le phénomène de dilution du carbone 14 dans des carbonates anciens, déterminant pour le milieu aquatique continental, n'a pas d'effet visible dans le milieu marin côtier. Les activités de carbone 14 par unité de masse de carbone mesurées en milieu marin sont très proches de celles mesurées en milieu terrestre, quoique légèrement supérieures et plus variables. Il est possible que ce léger excès apparent de carbone 14 par rapport au bruit de fond terrestre soit la conséquence d'un décalage dans le temps. Les niveaux observés en milieu marin pourraient être « en retard » sur ceux observés en milieu terrestre. Ceci pourrait s'expliquer par le fait que la source de carbone 14 en milieu marin est notamment imputable à des apports détritiques d'une matière organique terrestre qui s'est formée quelques années auparavant à partir du $^{14}\text{CO}_2$ atmosphérique. Cette matière organique a sédimenté avant de se dégrader, libérant alors le $^{14}\text{CO}_2$ qui est ensuite ramené en surface par des phénomènes désignés sous le terme de « pompes biologiques ». En analysant l'apport des données acquises plus récemment, on peut noter qu'un décalage de seulement 4 années, assorti d'une variabilité de ± 10 Bq/kg de carbone, permet de déterminer une gamme de référence du carbone 14 en milieu marin qui couvre plus de 90 % des 141 activités mesurées. Parmi les 12 résultats de mesure qui se situent en dehors de cette gamme, figurent trois valeurs très nettement au-dessus des autres, comprises entre 284 et 292 Bq/kg de C.

Carbone 14 en milieu marin (Bq/kg de carbone)

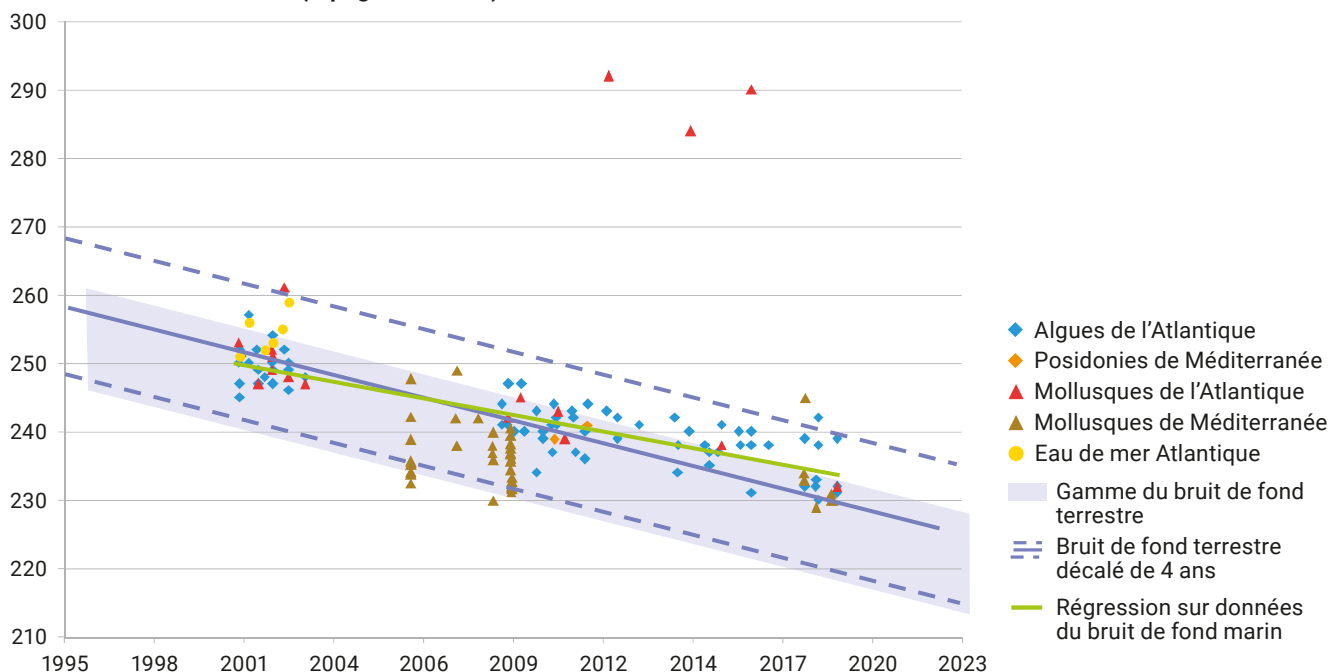


Figure 84. Activités de carbone 14 par unité de masse de carbone dans des algues, des plantes aquatiques et des mollusques (moules et huîtres essentiellement) marins des côtes françaises de l'Atlantique et de Méditerranée.

Deux des 3 échantillons d'huîtres correspondants proviennent du Château d'Oléron et le troisième de La Plaine-sur-Mer (à noter qu'aucun autre résultat présenté sur la figure ne provient de ces deux localités).

Enfin, on peut noter que la courbe exponentielle de régression obtenue à partir des données marines (courbe verte) est très proche de la courbe correspondant au bruit de fond du carbone 14 en milieu terrestre décalé de 4 ans : les écarts maximums sont de seulement 2 Bq/kg de C en 2001 et 4 Bq/kg de C en 2018.

La courbe verte indique l'exponentielle de l'analyse de régression basée sur les données marines. L'écart entre cette courbe et la courbe violette en trait plein qui représente l'exponentielle du milieu terrestre décalée de 4 ans, n'est que de 2 Bq/kg de C en 2001 et 4 Bq/kg de C en 2019.

Les résultats acquis dans le cadre du constat « Méditerranée » permettent de mieux connaître la variabilité qui existe autour de la valeur de référence annuelle en raison de leur nombre (38 résultats sur seulement 4 ans) et du nombre de stations de prélèvement (29 stations réparties régulièrement tout au long des côtes françaises de Méditerranée dont 11 en Corse).

La figure 85 montre cette diminution des teneurs en carbone 14 en milieu marin au travers de 2 chroniques de moules prélevées dans l'Atlantique (Concarneau) et en Méditerranée (Banyuls) et 2 chroniques d'algues prélevées en Atlantique (Concarneau et Pornichet).

La figure 86 présente les teneurs en carbone 14 mesurées dans 49 échantillons de poissons pêchés dans l'Atlantique et en Méditerranée depuis 2001. 75 % de ces activités se situent dans la gamme du bruit de fond déterminée précédemment pour les algues et les mollusques marins. On note toutefois que 5 résultats de poissons pêchés dans l'Atlantique se distinguent par des teneurs en carbone 14 très nettement supérieures.

Carbone 14 dans les algues et les moules (Bq/kg de carbone)



Figure 85. Activités de carbone 14 par unité de masse de carbone dans des algues prélevées à Pornichet et Concarneau, et dans des moules prélevées à Concarneau et Banyuls.

Carbone 14 dans les poissons de mer (Bq/kg de carbone)

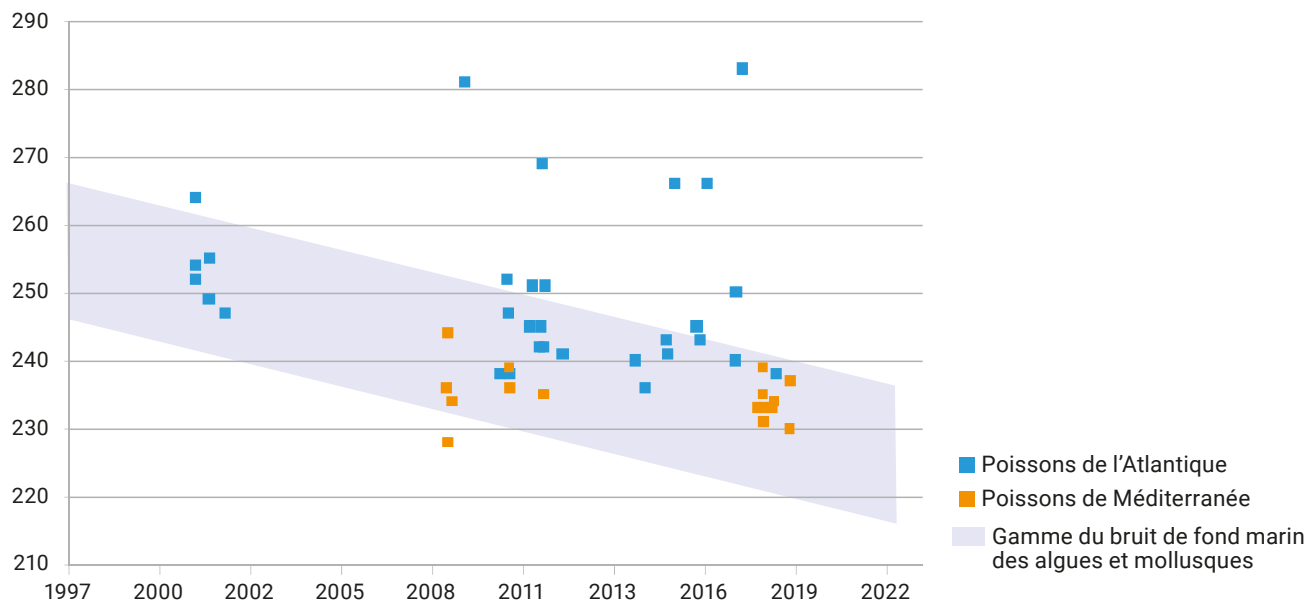


Figure 86. Activités de carbone 14 par unité de masse de carbone dans des poissons pêchés en différents points des côtes de l'Atlantique et de Méditerranée.

6 4 EXPOSITION DE LA POPULATION AU BRUIT DE FOND RADIOLOGIQUE DU CARBONE 14 DANS L'ENVIRONNEMENT

L'exposition au carbone 14 présente dans l'environnement résulte essentiellement de son incorporation par ingestion de denrées ; le carbone 14 n'induit pas d'exposition externe et la dose liée à son inhalation est négligeable au regard de celle liée à l'ingestion de denrées (elle ne représente que 4/10 000^e de la dose par ingestion).

La dose due à l'incorporation de carbone 14 par ingestion de denrées peut donc être estimée de quatre manières :

- à partir de l'activité massique dans les denrées déduite de l'activité par unité de masse de carbone et en utilisant une ration alimentaire comme pour les autres radionucléides présentés précédemment ;
- en considérant que, quelles que soient les habitudes alimentaires, la quantité de carbone incorporée quotidiennement par un individu est assez constante⁽⁶⁹⁾ et en y appliquant l'activité de carbone 14 par unité de masse de carbone ;
- en utilisant une méthode simplifiée proposée par l'AIEA⁽⁷⁰⁾ ;
- en appliquant directement l'activité par unité de masse de carbone à la teneur en carbone de l'organisme humain⁽⁷¹⁾.

Une reconstitution des doses efficaces reçues par des adultes et des enfants, dues au bruit de fond du carbone 14 dans l'environnement, a été réalisée par l'IRSN et publiée en 2007 (Roussel-Debet, 2007) en utilisant les deux premières méthodes.

(69) La valeur préconisée par la CIPR est de 300 g de carbone par jour.

(70) La formule simplifiée fournie par l'AIEA est : Dose (Sv/an) $a = 5 \cdot 10^{-6}$ (Sv/an par Bq/g) $\times 10^{-3}$ kg/g.

(71) En considérant une masse de carbone de 16 kg pour un adulte et une activité de 226 Bq/kg de C, on estime à 3 616 Bq l'activité de carbone 14 dans le corps humain. L'énergie émise par une désintégration du carbone 14 étant de $7,92 \cdot 10^{-15}$ J et en considérant une masse corporelle de 73 kg (homme de référence de la CIPR) la dose annuelle est estimée à : $3\,616 \text{ Bq} \times 7,92 \cdot 10^{-15} \text{ J} \times 86\,400 \text{ s/j} \times 365 \text{ j/an} / 73 \text{ kg} = 12 \text{ } \mu\text{Sv/an}$.

La figure 87 présente l'évolution de ces doses efficaces annuelles de 1950 à 2004. Les doses estimées pour l'année 1950, et notamment celle de 12 $\mu\text{Sv}/\text{an}$ estimée pour des adultes, peuvent être considérées comme représentatives de celles liées au carbone 14 naturel cosmogénique (peu d'essais atmosphériques d'armes nucléaires ont eu lieu avant 1950), avec une activité de carbone 14 par unité de masse de carbone qui était de 226 Bq/kg de C à l'époque. Du fait des explosions nucléaires, ces doses ont quasiment doublé pour atteindre en 1964, 23 $\mu\text{Sv}/\text{an}$ pour les adultes et 28 $\mu\text{Sv}/\text{an}$ pour des enfants de 2 à 7 ans. Elles ont ensuite régulièrement diminué en raison de la diminution des essais et de la dilution du carbone 14 dans une quantité de plus en plus importante de dioxyde de carbone d'origine fossile. En 2004, avec une activité de 242 Bq/kg de C, les doses dues au bruit de fond du carbone 14 étaient presque revenues au niveau de celles de l'année 1950 (de 7 % plus élevées seulement). Deux points sont à souligner : la très bonne concordance avec les estimations faites par l'UNSCEAR et la concordance entre les résultats des quatre méthodes qui convergent notamment vers une dose de 12 $\mu\text{Sv}/\text{an}$ pour une activité 226 Bq de carbone 14 par unité de masse de carbone.

L'activité de carbone 14 par unité de masse de carbone étant redevenue en 2018 égale à cette valeur de 226 Bq/kg, la dose efficace pour un adulte est de 12 $\mu\text{Sv}/\text{an}$.

En 1963, la dose due au carbone 14 hérité des essais nucléaires représentait presque 50 % de la dose totale due à ce radionucléide. Cette dose a ensuite diminué de pair avec l'activité par unité de masse de carbone liée à l'augmentation du carbone d'origine fossile. Cependant, pour le carbone 14 issu des essais nucléaires, à cette dilution générale s'ajoute celle liée à la production annuelle de carbone 14 cosmogénique depuis 1963. Il en résulte que la dose due au carbone 14 hérité des essais nucléaires ne représente plus en 2018 qu'environ 6 % de la dose totale due à ce radionucléide : soit une dose de 0,72 $\mu\text{Sv}/\text{an}$ (12 $\mu\text{Sv}/\text{an} \times 0,06$). Dans cette étude, cette dose est arrondie à 1 $\mu\text{Sv}/\text{an}$ (elle avait été estimée par l'UNSCEAR à 1,7 $\mu\text{Sv}/\text{an}$ pour un adulte en 1999).

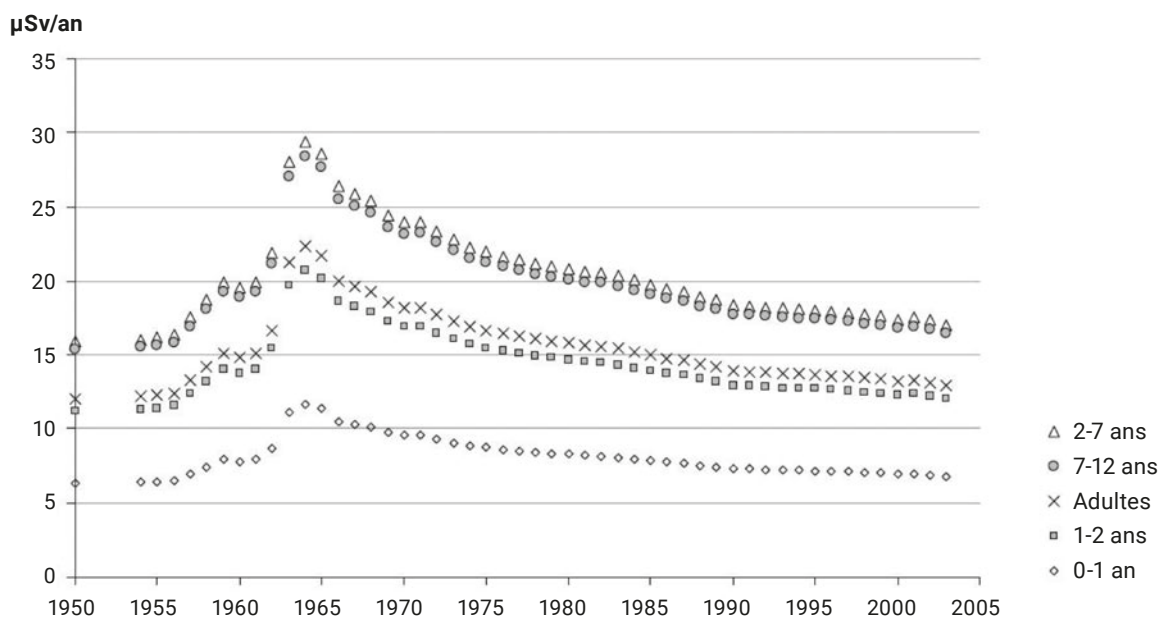


Figure 87. Évolution des doses dues au bruit de fond du carbone 14 dans l'environnement estimées entre 1950 et 2005 ($\mu\text{Sv}/\text{an}$).

7 LE TRITIUM DANS L'ENVIRONNEMENT FRANÇAIS

7 1 RAPPELS SUR LE TRITIUM DANS L'ENVIRONNEMENT

Origine et évolution de l'activité volumique du tritium dans la vapeur d'eau atmosphérique

Le tritium est l'isotope radioactif de l'hydrogène ; sa période radioactive est de 12,3 ans. Il est naturellement produit dans la haute atmosphère sous l'effet du rayonnement cosmique. Dans l'air, les principales formes du tritium sont la vapeur d'eau tritiée (HTO) qui est la forme la plus abondante puisque 99 % du tritium produit dans la haute atmosphère est oxydé en HTO, l'hydrogène tritié (HT) et le méthane tritié (CH₃T). Avant que du tritium ne soit artificiellement produit, l'activité volumique du tritium dans la vapeur d'eau atmosphérique résultant de sa production naturelle, était de l'ordre de 0,1 à 0,6 Bq/L. Pour une teneur en eau de 10 g par mètre cube d'air, cette activité correspond à une activité volumique du tritium dans l'air de 0,001 à 0,006 Bq/m³ d'air.

À partir de 1945 et jusqu'en 1963, du tritium a été massivement produit et libéré dans l'air lors des explosions atmosphériques d'armes nucléaires. La figure 88 présente l'évolution des activités volumiques des eaux de pluie qui en a résulté. Il s'agit des moyennes annuelles des activités volumiques mensuelles mesurées dans les eaux de pluie collectées à Ottawa, Thonon-les-Bains et Opme-Romagnat (les moyennes annuelles permettent de lisser les fluctuations mensuelles liées en partie à la saisonnalité de la production de tritium cosmogénique).

L'activité volumique du tritium dans la vapeur d'eau atmosphérique a atteint son maximum en 1963 au plus fort des retombées de ces essais avec près de 600 Bq/L, avant de diminuer progressivement du fait de la décroissance radioactive et de l'intégration du tritium dans le cycle de l'eau et dans celui de la matière organique (voir paragraphe « Intégration du tritium dans les cycles de l'eau et de la matière organique »). Cette diminution a été rapide entre 1964 et le début des années 1970, plus lente au cours des 30 années suivantes, et n'est quasiment plus perceptible depuis le début des années 2000. L'activité volumique du tritium dans l'eau de pluie se situe autour de 1 Bq/L depuis 20 ans.

Activités de tritium (HTO) dans l'eau de pluie (Bq/L)

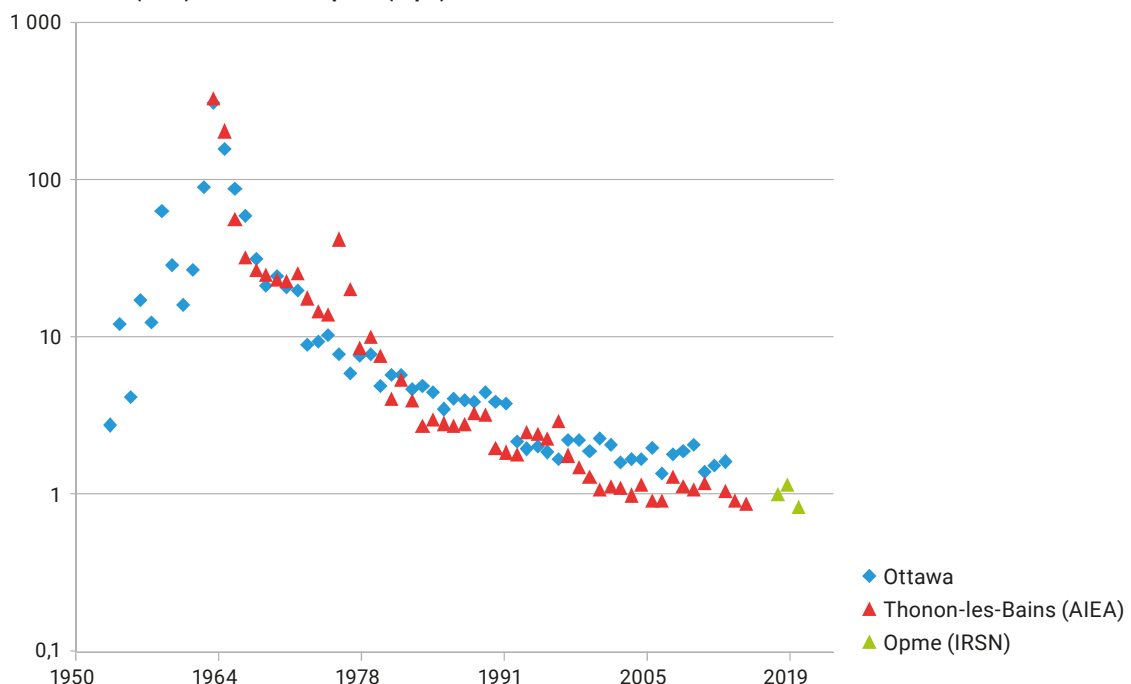


Figure 88. Évolution de l'activité volumique de moyenne de l'eau de pluie (Bq/L) mesurée à Ottawa et Thonon-les-Bains de 1953 à 2015.

La source initiale du tritium étant l'air dont le brassage troposphérique et stratosphérique est permanent, cette évolution de la teneur en tritium de la vapeur d'eau atmosphérique, et donc de l'eau de pluie, a été homogène à l'échelle de l'hémisphère nord (donc de la France) comme en témoigne la proximité des activités volumiques du HTO des eaux de pluie collectées au Canada (Ottawa) et en France (Thonon-les-Bains).

Intégration du tritium dans les cycles de l'eau et de la matière organique _

L'eau tritiée atmosphérique (HTO de la vapeur d'eau et de l'eau de pluie) est transférée à toutes les composantes de l'environnement *via* le cycle de l'eau : eaux de surface (cours d'eau, lacs...), eaux souterraines, eaux marines et eau présente dans les organismes vivants (eau des tissus biologiques). L'eau des tissus biologiques pouvant être extraite par séchage de la matière organique fraîche, le HTO qu'elle contient peut donc aussi s'exprimer en Bq/L d'eau de séchage (ou de dessiccation).

Les échanges de HTO entre les différentes composantes de l'environnement sont rapides et tendent à établir un équilibre, c'est-à-dire une égalité des activités volumiques entre les milieux en contact. Par exemple, quelques heures suffisent pour atteindre un état d'équilibre entre l'activité volumique de HTO dans l'eau de la plante et l'activité volumique de HTO dans la vapeur d'eau atmosphérique. En radioécologie opérationnelle, on peut considérer que l'activité volumique de HTO dans une plante est égale à l'activité volumique moyenne du HTO dans la vapeur d'eau de l'air au cours des heures précédentes. Il en est de même pour les plantes aquatiques et l'eau.

L'incorporation de tritium dans les molécules de matière organique des plantes (qu'il s'agisse de plantes terrestres ou aquatiques) se fait essentiellement lors de la photosynthèse qui produit, sous l'action de l'énergie solaire, du tritium organiquement lié (TOL) à partir du HTO présent dans l'air (les autres formes de tritium dans l'air ne participent pas à la photosynthèse). L'activité volumique de TOL dans une plante peut s'exprimer en Bq/L d'eau de combustion, l'eau de combustion étant l'eau qui est récupérée lors de la combustion (incinération) de la matière organique sèche

(à laquelle l'eau libre tissulaire a été préalablement retirée par séchage). La photosynthèse ne discriminant pas notablement les différents isotopes de l'hydrogène et l'absorption racinaire de HTO dans le flux d'eau provenant du sol ne contribuant quasiment pas à la production du TOL⁽⁷²⁾, on peut considérer que l'activité volumique de TOL dans une plante est égale à l'activité volumique moyenne de HTO dans l'air dans laquelle elle s'est développée. Il s'agit d'un élément essentiel du transfert du tritium aux végétaux qui permet d'estimer l'activité volumique de TOL dans une plante à partir de celle de HTO dans la vapeur d'eau atmosphérique ou dans l'eau ou, à l'inverse, de rendre compte de l'activité en HTO de l'air ou de l'eau à partir d'une mesure de TOL dans un végétal.

Les animaux terrestres incorporent du tritium principalement par l'ingestion d'aliments solides (incorporation de HTO et de TOL contenus dans les végétaux) et surtout d'eau d'abreuvement (HTO)⁽⁷³⁾. Dans le cas des animaux aquatiques, l'incorporation par ingestion est également prédominante sur l'imbibition (contact direct entre l'eau et l'organisme). Près de 97 % du tritium (TOL + HTO) présent dans l'organisme d'un animal⁽⁷⁴⁾ étant éliminé en quelques jours par voies urinaire et fécale, ainsi que par transpiration et respiration ; on peut considérer, en première approximation, que l'activité volumique de tritium, HTO ou TOL, dans un produit animal, est du même ordre de grandeur que celles des denrées qu'il a consommées dans les jours précédents. Si, de plus, les activités volumiques de HTO et de TOL dans les aliments consommés par l'animal sont « en équilibre » avec l'activité volumique de HTO dans la vapeur d'eau de l'air, alors les activités volumiques de TOL et de HTO dans les produits animaux (lait, viande et œuf) sont également « en équilibre » avec le HTO de l'air.

Relation entre l'activité volumique de HTO et de TOL et l'activité massique d'échantillons végétaux ou animaux _

L'activité massique de tritium dans une composante de l'environnement et notamment dans un échantillon, exprimée en Bq/kg ou en Bq/L, est la somme de l'activité massique en TOL et de l'activité massique en HTO. Toutefois, dans le cas d'une denrée alimentaire, la radiotoxicité du tritium incorporé sous forme de TOL étant plus de 2 fois supérieure à celle

(72) L'absorption racinaire de HTO du sol sert principalement à la transpiration de la plante. Toutefois, en cas de teneurs en tritium très différentes entre l'activité volumique de l'eau du sol et celle de l'air (au moins un ordre de grandeur d'écart), la teneur en tritium de l'eau du sol peut influencer sur celle de la plante. Par ailleurs, les échanges entre TOL et HTO dans la plante sont limités : moins de 30 % du TOL peut redevenir du HTO.

(73) Les incorporations par inhalation et par transfert transcutané du tritium présent dans la vapeur d'eau de l'air sont beaucoup plus faibles et souvent négligées.

(74) Quelques pour cent sont éliminés plus lentement, en quelques dizaines à la centaine de jours. Cette connaissance résulte principalement d'études portant sur des animaux supérieurs, des mammifères notamment ; toutefois, des études menées sur des poissons montrent des comportements métaboliques similaires.

du tritium incorporé sous forme de HTO, il est nécessaire de considérer séparément ces deux composantes de l'activité massique totale pour estimer les doses liées à l'ingestion de denrées.

L'activité massique (Bq/kg ou Bq/L) de TOL d'un échantillon biologique, d'une denrée alimentaire par exemple, peut être déduite de l'activité volumique de TOL mesurée dans l'eau de combustion de sa matière organique (Renaud, 2019), en utilisant la quantité d'eau produite lors de la combustion de la matière organique sèche ; de même, l'activité massique de HTO d'un échantillon biologique peut être déduite de l'activité de HTO mesurée dans l'eau de séchage de l'échantillon, en utilisant la teneur en eau de l'échantillon de matière organique fraîche⁽⁷⁵⁾. Les relations simples permettant ces conversions sont indiquées dans (Renaud, 2019).

À titre d'illustration, la figure 89 présente les activités massiques en HTO et TOL de différentes catégories de denrées correspondant à une activité volumique de 1 Bq/L d'eau de séchage et 1 Bq/L d'eau de combustion. L'application d'une règle de proportionnalité (« règle de 3 ») permet de déduire de manière fiable et suffisamment précise (au regard de la variabilité naturelle des activités de tritium dans l'environnement qui sera montrée dans la suite de ce document) les activités massiques correspondant à une autre valeur d'activité volumique. En raison de leur forte teneur en eau, c'est l'activité massique de HTO qui prédomine pour la plupart des aliments ; pour les aliments les plus secs comme les céréales, c'est l'activité massique de TOL qui est prédominante.

Il est intéressant de noter que les activités massiques de tritium total exprimées en Bq/kg frais sont assez proches de celles exprimées en Bq/L d'eau de combustion ou de distillation : elles en sont inférieures de l'ordre de 15 % seulement, à l'exception des céréales pour lesquelles cet écart atteint 35 %. Les activités exprimées en Bq/L présentées dans la suite de ce chapitre fournissent en première approche, une bonne indication des activités massiques en tritium total⁽⁷⁶⁾.

Tritium dans les denrées alimentaires (Bq/kg frais)

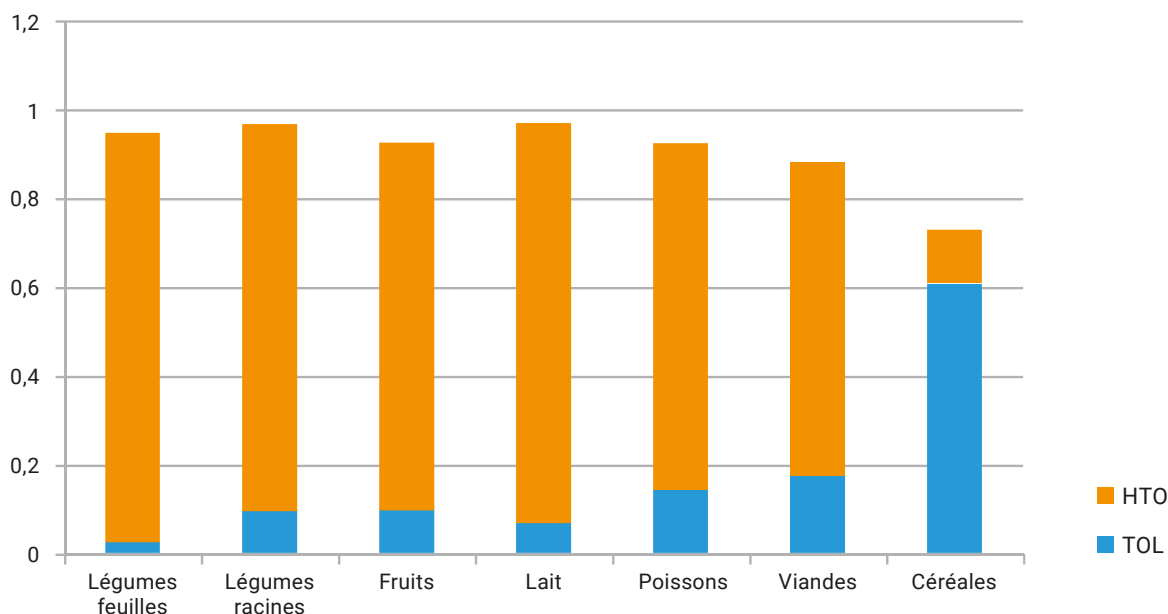


Figure 89. Activités massiques de tritium, en Bq/kg frais, correspondant à une activité volumique de 1 Bq/L d'eau de séchage ou d'eau de combustion.

(75) Le volume d'eau produit par la combustion de 1 kg de matière organique sèche est de 0,6 L (AIEA). L'exploitation des données pour la présente étude montre qu'elle peut être de 0,5 et rarement en deçà.

(76) Les concentrations en TOL sont parfois exprimées dans certains documents en termes d'activités massiques (Bq de TOL/kg frais) ; il est important de noter que ces activités sont par nature très inférieures aux activités de tritium total comme le montre la figure 89, et n'en sont donc pas du tout représentatives. C'est pourquoi, pour éviter d'éventuelles erreurs d'interprétation, ce type d'expression de résultat n'est pas utilisé dans le présent document.

Équilibres et généralités sur le « bruit de fond » du tritium dans l'environnement

Il résulte des mécanismes de transfert du tritium présentés précédemment, que dans un environnement où l'activité volumique de l'air évolue peu, un équilibre tend à s'établir entre les activités en tritium des différentes composantes de l'environnement : air, eau de pluie, eau de surface, végétaux, animaux... Cet équilibre devrait se traduire par des activités volumiques de tritium très proches entre 2 composantes de l'environnement qui interagissent entre elles, et des activités de TOL et de HTO (en Bq/L de d'eau de combustion et Bq/L d'eau de séchage) également proches (rapport TOL/HTO voisin de 1).

Depuis le début des années 1990 et en dehors de l'influence des rejets d'une installation nucléaire (qui se limite souvent à un rayon de quelques kilomètres autour d'un site), la diminution de l'activité en tritium de l'air est suffisamment lente pour qu'un tel équilibre commence à s'installer. Il faut toutefois signaler que des déséquilibres peuvent être constatés, notamment entre des activités de HTO récentes et des activités de TOL anciennes (Eyrolle *et al.*, 2014). Par exemple, le tronc d'un arbre peut présenter des activités de TOL plus élevées car au moment où le bois s'est formé, la teneur en tritium de l'air était plus élevée. De ces rémanences de périodes plus anciennes peuvent résulter « des décalages dans le temps » des activités de tritium observées dans certaines composantes de l'environnement par rapport à l'atmosphère. C'est le cas des sols ou des sédiments qui contiennent de la matière organique ancienne. De même, la teneur en HTO de l'air dans lequel se développent les plantes peut être influencée par le dégazage du tritium plus ancien contenu dans la matière organique des sols. Ces phénomènes sont également susceptibles de conduire à des rapports TOL/HTO légèrement supérieurs à 1⁽⁷⁷⁾.

En raison de sa capacité à « diluer » le tritium atmosphérique ou terrigène, le milieu marin a été beaucoup moins impacté que les milieux atmosphérique et terrestre par les retombées des essais atmosphériques d'armes nucléaires ; les activités en tritium des eaux marines loin des côtes, n'ont que doublé passant de 0,1 Bq/L avant 1953 à 0,2 Bq/L au début des années 1960. Les faibles teneurs en tritium des eaux marines peuvent influencer par des embruns, celles du milieu atmosphérique y compris en milieu terrestre côtier. À l'inverse, le milieu marin côtier est influencé par les apports de matière organiques détritiques d'origine terrestre. Cette influence se traduit pour

certaines organismes, notamment les coquillages, par des activités de tritium plus proches de celles observées en milieu terrestre que de celles de l'eau de mer.

Certaines eaux souterraines profondes ont été peu influencées par les retombées des essais nucléaires et présentent des teneurs en tritium plus faibles que celles observées en milieu atmosphérique et terrestre, dont certaines se trouvent au niveau du bruit de fond naturel cosmogénique.

En alimentant les cours d'eau, ces eaux souterraines peuvent en diminuer la concentration en tritium (Ducros *et al.*, 2017), notamment par rapport aux eaux de pluie. Les activités en tritium des organismes des milieux aquatiques continentaux (cours d'eau, lacs...) sont déterminées par celles des eaux et des sédiments (qui comme indiqué plus haut contiennent de la matière organique plus ancienne à teneur en tritium plus élevée) dans des proportions variables. De plus, certaines plantes aquatiques semi-immergées peuvent être influencées par le milieu atmosphérique dans lequel elles se développent en partie.

Enfin, du tritium a été rejeté par l'industrie horlogère française et suisse dans certains cours d'eau de l'est de France jusqu'au début des années 2000. Ces industries sont essentiellement implantées sur le bassin versant du Rhône et en particulier, sur sa partie la plus en amont, ainsi que sur le Doubs (Besançon et Morteau en France, La Chaux-de-Fond en Suisse). La rémanence de ce marquage est encore décelable aujourd'hui et constitue un bruit de fond local spécifique. Le tritium « horloger » s'est accumulé dans les sédiments ; c'est cette accumulation qui explique pourquoi, aujourd'hui encore, les teneurs en tritium des sédiments et des matières en suspension du Rhône, diminuent de plus de 100 fois depuis l'amont de Creys-Malville jusqu'à l'aval de Marcoule, alors que celles de l'eau ne cessent d'augmenter de l'amont à l'aval sous influence des rejets des installations nucléaires. Ce tritium « horloger » est transféré aux organismes (plantes et poissons) susceptibles de présenter des teneurs en tritium plus élevées que le bruit de fond habituel (Morereau *et al.*, 2020).

Les résultats des mesures présentés et commentés dans les paragraphes suivants permettront d'illustrer l'effet résultant de l'ensemble des phénomènes présentés dans ce chapitre 7.1.

(77) Des déséquilibres importants résultant de la présence de tritium lié artificiellement à des molécules spécifiques ont été constatés (ASN, 2009). Ces déséquilibres qui résultent de rejets industriels ne concernent pas le bruit de fond du tritium.

7 2 LA SURVEILLANCE PAR L'IRSN DU TRITIUM DANS L'ENVIRONNEMENT

Le tritium est, avec le carbone 14, l'un des deux radionucléides les plus rejetés dans les effluents liquides et gazeux des installations nucléaires. À ce titre, sa concentration dans l'environnement fait l'objet d'une surveillance importante qui s'est mise en place progressivement à partir du milieu du début des années 1980.

Le tritium étant déjà présent dans l'environnement du fait de sa production naturelle et de la rémanence des retombées des essais nucléaires, le principe de cette surveillance est de comparer les activités de tritium dans des échantillons prélevés sous influence potentielle des installations nucléaires à celles d'échantillons prélevés hors de leur influence (dont l'activité se trouve au niveau du « bruit de fond radiologique » de ce radionucléide).

La connaissance du bruit de fond du tritium dans l'environnement est donc déterminante pour déceler et quantifier l'influence des installations nucléaires sur leur environnement.

En France, cette connaissance repose principalement sur des analyses réalisées par l'IRSN dans le cadre de sa mission de surveillance, dans le cadre d'études et de recherches, ainsi que dans celui de la surveillance complémentaire réalisée à la demande d'EdF, et auxquelles s'ajoutent les données acquises par Subatech dans ce dernier cadre. Les analyses effectuées par les exploitants nucléaires dans le cadre de la surveillance radiologique réglementaire ne permettent pas le plus souvent, de quantifier le bruit de fond du tritium dans l'environnement.

En milieu terrestre, les analyses effectuées par l'IRSN portent principalement sur des échantillons de feuilles d'arbres et d'herbages considérés comme représentatifs du bruit de fond commun à l'ensemble de ce milieu, ainsi que d'analyses d'échantillons de légumes feuilles et de lait. Les analyses des échantillons végétaux rendent compte de la teneur en tritium de l'air dans lequel ils se sont développés⁽⁷⁸⁾ et donc de celle des autres végétaux et notamment des denrées alimentaires (voir paragraphe « Intégration du tritium dans les cycles de l'eau et de la matière organique »). Les constats radiologiques régionaux avaient notamment pour objectif de vérifier cette hypothèse en élargissant la variété des denrées analysées.

Ils ont également permis d'augmenter le nombre d'analyses sur des échantillons prélevés loin des installations nucléaires. Enfin, le constat régional « Nord-Est » a permis de faire le point sur la rémanence du tritium « horloger ».

À l'exception de quelques sites nucléaires (La Hague, Valduc, Bruyères-le-Châtel et Grenoble), les rejets gazeux de tritium des installations nucléaires françaises sont trop faibles pour que leur influence dans l'environnement soit quantifiable, et même décelable, au travers de mesures d'activités massiques (exprimées en Bq/kg frais). C'est notamment le cas autour des centres nucléaires de production d'électricité (CNPE) et de la plupart des sites de recherche. Ceci est dû à la forte variabilité naturelle de ces activités massiques (en liaison notamment avec la variabilité de la teneur en eau) qui ne permet pas de distinguer l'activité potentiellement ajoutée du fait des rejets par rapport à celle du bruit de fond. En revanche, l'activité volumique du tritium dans les eaux de séchage et de combustion (Bq/L) correspondant au « bruit de fond radiologique » est moins variable (voir paragraphe suivant) ; elle constitue ainsi un meilleur indicateur pour déceler les très faibles influences locales liées aux rejets des installations nucléaires.

En raison de leur plus grande fiabilité et représentativité temporelle (voir paragraphe « Intégration du tritium dans les cycles de l'eau et de la matière organique »), les analyses de TOL sont plus pertinentes pour la surveillance du tritium dans l'environnement et donc pour la caractérisation du bruit de fond de ce radionucléide. Les premières techniques permettant d'analyser le TOL dans les matrices biologiques avec des seuils de décision suffisamment bas pour caractériser le bruit de fond du tritium et avec des incertitudes suffisamment faibles pour estimer les activités ajoutées du fait des rejets des installations, ont été déployées à partir du début des années 1990. Depuis, de nouvelles techniques ont été mises au point successivement afin de suivre la diminution de ce bruit de fond ; les plus récentes qui permettent de mesurer le niveau très bas du bruit de fond en milieu marin (0,1-0,2 Bq/L) datent de moins d'une décennie.

(78) Jusqu'à récemment, la surveillance du tritium dans l'air était difficile à mettre en œuvre ; les dispositifs qui permettent le prélèvement du tritium par barbotage nécessitent une maintenance importante. Des piègeurs passifs plus faciles à mettre en œuvre et moins coûteux, ont été développés par l'IRSN ces dernières années. Le déploiement de ces dispositifs s'est pour le moment limité à des campagnes tests autour de certains sites nucléaires : La Hague, Gravelines (dans le cadre notamment du constat radiologique « Normandie et Hauts-de-France »), Valduc et Saint-Alban.

7 3

LE BRUIT DE FOND RADIOLOGIQUE DU TRITIUM DANS L'ENVIRONNEMENT FRANÇAIS

Comme pour le carbone 14, le réservoir initial du tritium qui alimente toutes les composantes de l'environnement est l'air assurant une répartition relativement homogène de son niveau d'activité sur l'ensemble du territoire. En revanche, ce niveau diminue d'une année sur l'autre. Aussi, comme pour le carbone 14 et contrairement au césium 137, au strontium 90 et aux isotopes du plutonium, ce n'est pas sa variabilité spatiale qui sera étudiée, mais son évolution dans le temps au sein des trois grands compartiments de l'environnement : le milieu terrestre, le milieu aquatique continental et le milieu marin.

En milieu atmosphérique

L'activité volumique du tritium dans la vapeur d'eau atmosphérique est principalement connue au travers de celle de l'eau de pluie, considérée comme représentative de la source initiale du tritium dans l'environnement, ainsi qu'au travers de celle de TOL dans les végétaux, considérée comme représentative de l'activité en HTO de la vapeur d'eau de l'air à proximité du sol qui est potentiellement influencée par le dégazage du tritium organique présent dans les sols (voir paragraphe « Relation entre l'activité volumique de HTO et de TOL et l'activité massique d'échantillons végétaux ou animaux »).

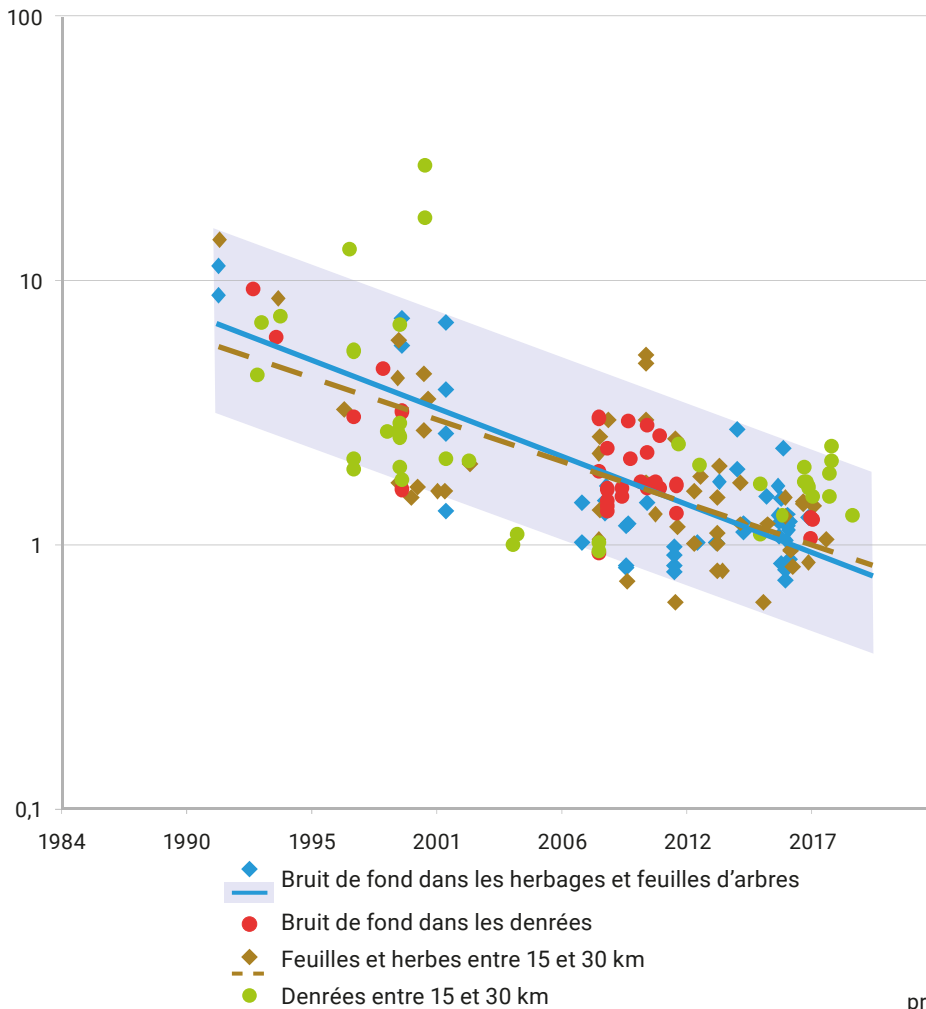
L'évolution des activités du tritium dans les eaux de pluie prélevées à Thonon-les-Bains et Ottawa est commentée dans la figure 88 (voir paragraphe « Origine et évolution de l'activité volumique du tritium dans la vapeur d'eau atmosphérique »). À noter que depuis 2017, l'IRSN effectue un suivi de l'activité du tritium dans l'eau de pluie prélevée à Opme-Romagnat dans le Puy-de-Dôme. Les eaux de pluie prélevées sur cette station située à plus de 100 km de tout site nucléaire rejetant du tritium et à près de 200 km du site de Valduc (dont les rejets gazeux tritiés sont les plus importants de France) peuvent être considérées comme représentatives du bruit de fond atmosphérique de ce radionucléide. Les résultats acquis par l'IRSN sur cette station confirment la relative stabilité des niveaux de tritium dans l'eau de pluie au cours des 20 dernières années.

En milieu terrestre

La figure 90 présente les 93 résultats de mesure représentatifs du bruit de fond du TOL dans les échantillons biologiques du milieu terrestre (losanges bleus et ronds rouges), acquis depuis 1991 par l'IRSN à partir de prélèvements réalisés hors influence d'une installation nucléaire. Près de 70 % des analyses correspondantes ont été effectués dans le cadre de la mission de surveillance radiologique de l'environnement de l'institut, soit pour l'obtention de chroniques temporelles (29 résultats provenant majoritairement de Bretagne et du Massif central), soit dans le cadre des constats radiologiques régionaux (32 résultats), le reste provenant d'études spécifiques ou de la surveillance complémentaire réalisée autour des CNPE à la demande d'Edf. Comme celle du carbone 14, la surveillance du tritium dans l'environnement repose très largement sur des analyses d'échantillons de feuilles d'arbres et d'herbages provenant de l'ensemble du territoire. Les constats radiologiques régionaux ont permis d'augmenter de manière importante les résultats disponibles sur des denrées (période 2008-2016). C'est plus particulièrement le cas du constat radiologique « Sud-Ouest » qui permet de disposer d'un lot de 13 résultats sur des types d'échantillons très variés : légumes (salades, pommes de terre, asperges, haricots secs), fruits (pruneaux, prunes, melons, kiwis, pommes), viandes d'élevage (bovins, canards, poulets) et gibier (chevreuils). La figure 90 présente également les 79 résultats de mesure de TOL acquis depuis 1991 par l'IRSN sur des échantillons prélevés dans un rayon de 15 à 30 km autour de sites nucléaires (losanges marron et ronds rouges), auxquels ont été retirés les résultats concernant les sites de Valduc, Marcoule, La Hague, Bruyères-le-Châtel et Grenoble-ILL susceptibles d'influencer leur environnement à cette distance. Ces résultats portant sur le voisinage éloigné des sites nucléaires, ont principalement été acquis dans le cadre de la surveillance complémentaire réalisée autour des CNPE par l'IRSN à la demande d'EdF.

Le graphique de la figure 90 montre tout d'abord la diminution au fil des années, des activités de TOL représentatives du bruit de fond dans l'environnement terrestre. Les valeurs annuelles de référence correspondant à la tendance de cette diminution (ligne bleue), déterminée à partir des mesures d'herbages et de feuilles d'arbres, sont fournies dans le tableau joint à la figure. L'activité du tritium dans les échantillons biologiques terrestres sont passés en 20 ans de 6 Bq/L en 1991 à 0,8 Bq/L en 2020 ; soit une diminution de 7 fois en 30 ans, soit plus de 2 fois plus rapidement que la diminution imputable à la décroissance radioactive de 12,3 ans (un facteur 3 sur la période). Les valeurs de référence sur la période 2007-2012 (diminution de 2 à 1,5 Bq/L sur la période) sont à comparer à la valeur moyenne de 1,4 Bq/L obtenue par Roussel-Debet (Roussel-Debet 2014) sur cette même période ; celles de

Tritium organiquement lié en milieu terrestre (Bq/L d'eau de combustion)



Année	Valeurs de référence et gammes de variation
1991	6,0 (2,8 - 13)
1992	5,7 (2,6 - 12)
1993	5,3 (2,4 - 12)
1994	4,9 (2,2 - 11)
1995	4,6 (2,1 - 10)
1996	4,3 (2,0 - 10)
1997	4,0 (1,8 - 8,9)
1998	3,8 (1,7 - 8,3)
1999	3,5 (1,6 - 7,8)
2000	3,3 (1,5 - 7,3)
2001	3,1 (1,4 - 6,8)
2002	2,9 (1,3 - 6,4)
2003	2,7 (1,2 - 5,9)
2004	2,5 (1,2 - 5,6)
2005	2,4 (1,1 - 5,2)
2006	2,2 (1,0 - 4,9)
2007	2,1 (0,94 - 4,5)
2008	1,9 (0,88 - 4,2)
2009	1,8 (0,82 - 3,9)
2010	1,7 (0,77 - 3,7)
2011	1,6 (0,72 - 3,5)
2012	1,5 (0,67 - 3,2)
2013	1,4 (0,63 - 3,0)
2014	1,3 (0,59 - 2,8)
2015	1,2 (0,55 - 2,7)
2016	1,1 (0,51 - 2,5)
2017	1,1 (0,48 - 2,3)
2018	1,0 (0,45 - 2,2)
2019	0,9 (0,42 - 2,0)
2020	0,9 (0,39 - 1,9)
2021	0,8 (0,37 - 1,8)
2022	0,8 (0,34 - 1,7)

(Valeur prévisionnelle)

Figure 90. Évolution de l'activité volumique du tritium lié à la matière organique (TOL en Bq/L) en milieu terrestre depuis 1991 dans les échantillons représentatifs du bruit de fond et dans des échantillons prélevés dans un rayon de 15 à 30 km autour des sites nucléaires français (hors sites de La Hague, Valduc, Marcoule, Bruyères-le-Châtel et Grenoble ILL). Valeurs de références annuelles issues de la courbe de tendance et gamme de variabilité.

la période 2015-2017 (diminution de 1,2 à 1 Bq/L) sont à comparer à la valeur moyenne de 1,3 Bq/L estimée sur cette même période (IRSN, 2018).

Cette diminution des teneurs en tritium des échantillons biologiques issus du milieu terrestre, va de pair avec celle de l'activité du HTO atmosphérique ; c'est ce que montre la figure 91 qui permet de comparer depuis 1991, les teneurs en tritium des eaux de pluie d'Ottawa et de Thonon-les-Bains⁽⁷⁹⁾, aux valeurs de référence acquises en milieu terrestre. Toutefois, les teneurs en tritium dans les échantillons végétaux et animaux terrestres sont en moyenne supérieures à celles des eaux de pluie. Cet écart, qui atteint au maximum un facteur 2 (en 2020 entre le milieu terrestre et les eaux de pluie d'Ottawa), s'explique en partie par le fait qu'il existe en milieu terrestre, une rémanence du TOL formé au cours d'années antérieures, dont l'activité volumique est donc plus élevée ; ce TOL est libéré dans l'air lors de la dégradation de la matière organique (voir paragraphe « Intégration du tritium dans les cycles de l'eau et de la matière organique »). Cette rémanence se traduit par un « retard apparent » des activités TOL en milieu terrestre par rapport au milieu atmosphérique

qui serait de l'ordre d'une dizaine d'années. Les pentes de diminution sont assez proches.

La figure 90 montre également la variabilité autour des valeurs de référence annuelles du bruit de fond du TOL : 90 % de l'ensemble des résultats d'échantillons de toute nature présentés sont compris dans une gamme délimitée par la moitié et le double des valeurs de référence (plus précisément entre les valeurs de référence divisées par 2,2 et multipliées par 2,2). Dans le graphique, cette gamme de variabilité est représentée par le bandeau bleu.

Les résultats d'analyses de denrées acquis dans le cadre des constats radiologiques régionaux, confirment que les activités de TOL sont bien indépendantes de la nature du prélèvement ; notamment, les résultats d'analyses de denrées ne se distinguent pas notablement de ceux portant sur des échantillons de feuilles d'arbres et d'herbages. Le suivi du tritium en milieu terrestre *via* les analyses de ces deux types d'échantillons, effectuées dans le cadre du suivi du bruit de fond de ce radionucléide, sont donc bien représentatives des denrées alimentaires de toutes natures.

Tritium en milieux atmosphérique et terrestre (Bq/L)

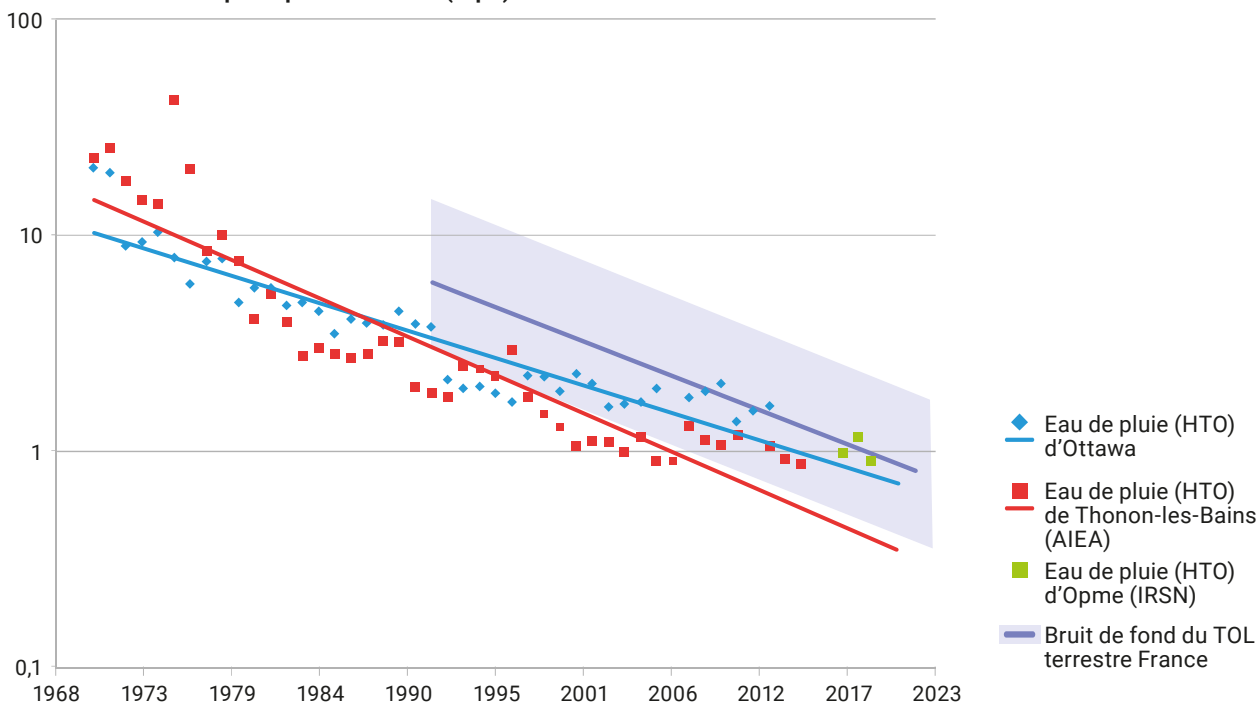


Figure 91. Évolutions comparées des activités de HTO dans les eaux de pluie d'Ottawa et de Thonon-les-Bains (Bq/L) et les activités de TOL (Bq/L d'eau de combustion) dans les échantillons de végétaux et produits animaux terrestres prélevés en France.

(79) Les courbes de tendance des eaux de pluie ont été déterminées depuis 1970, excluant les années 1960 durant lesquelles la diminution était plus rapide

Enfin, la figure 90 montre qu'en dehors des sites de La Hague, Valduc, Marcoule (jusqu'à ces dernières années), Bruyères-le-Châtel et Grenoble-ILL, les rejets atmosphériques tritiés des installations nucléaires n'influencent pas les activités en tritium de leur environnement terrestre au-delà de 15 km ; les activités de TOL mesurées dans des échantillons prélevés dans un rayon de 15 à 30 km autour de la plupart des sites nucléaires, à l'exception de ceux précités, sont similaires en moyenne et en gamme de variabilité à celles mesurées hors de toute influence potentielle d'une installation nucléaire.

Les résultats de HTO dans les eaux de séchage des échantillons issus du milieu terrestre, moins pertinents pour la surveillance car de moindre représentativité temporelle (voir paragraphe « Intégration du tritium dans les cycles de l'eau et de la matière organique »), sont moins nombreux. Toutefois, le rapport entre les activités de TOL et activités de HTO peut être calculé pour 67 échantillons analysés depuis 1996. Les rapports d'activités TOL/HTO moyens et leurs gammes de variabilité sont les mêmes pour les échantillons représentatifs du bruit de fond et ceux prélevés entre 15 et 30 km des sites nucléaires (figure 92) ; le rapport TOL/HTO moyen pour l'ensemble de ce lot d'échantillons est de 1,4⁽⁸⁰⁾, conformément à ce qui était attendu ; soit une valeur proche quoique supérieure à 1 (voir paragraphe « Relation entre l'activité volumique de HTO et de TOL et l'activité massique d'échantillons végétaux ou animaux »).

Rapport d'activité TOL/HTO (sans dimension)

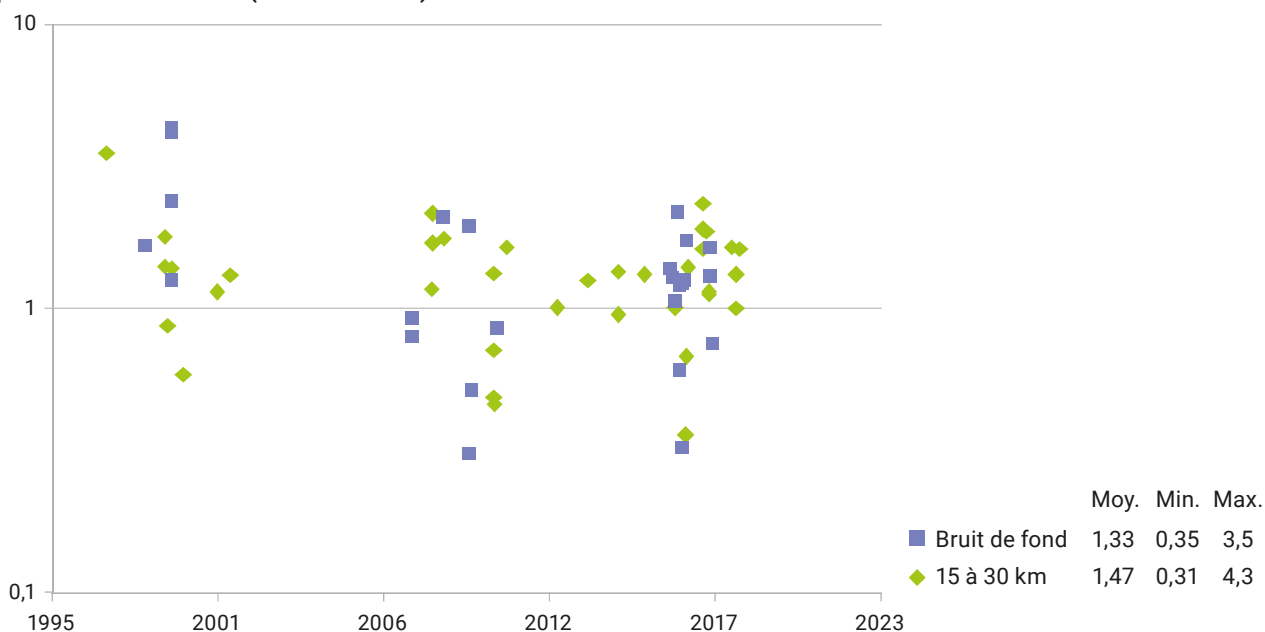


Figure 92. Évolution de l'activité volumique du tritium dans l'eau tissulaire (HTO en Bq/L) en milieu terrestre depuis 1991.

(80) Un résultat de mesure douteux portant sur un échantillon de mûres de roncier prélevées en septembre 2000 à Germigny, à 23 km du CNPE de Dampierre et présentant un rapport d'activités TOL/HTO de 9,6, a été retiré de ce lot.

En milieu aquatique continental

La figure 93 montre que les activités en tritium de l'eau des grands fleuves ou rivières en amont des installations nucléaires, sont très proches de celles des eaux de pluie sur la même période et que leur évolution au fil des années va de pair. Toutefois, une étude menée par l'IRSN de 2014 à 2016, montre que les eaux de 17 cours d'eau de moindre débit du sud de la France sont en moyenne 2 fois inférieures (Ducros *et al.*, 2018) à celles des eaux de pluie. L'écart s'explique principalement par un temps de résidence souterrain très long des eaux des nappes phréatiques qui les alimentent (voir chapitre 7.1). Les activités volumiques les plus faibles (de 0,1 à 0,2 Bq/L) observées dans ces cours d'eau peuvent être jusqu'à 10 fois inférieures à celles des eaux de pluie, et ainsi se trouver au niveau naturel cosmogénique (aucune influence des essais nucléaires).

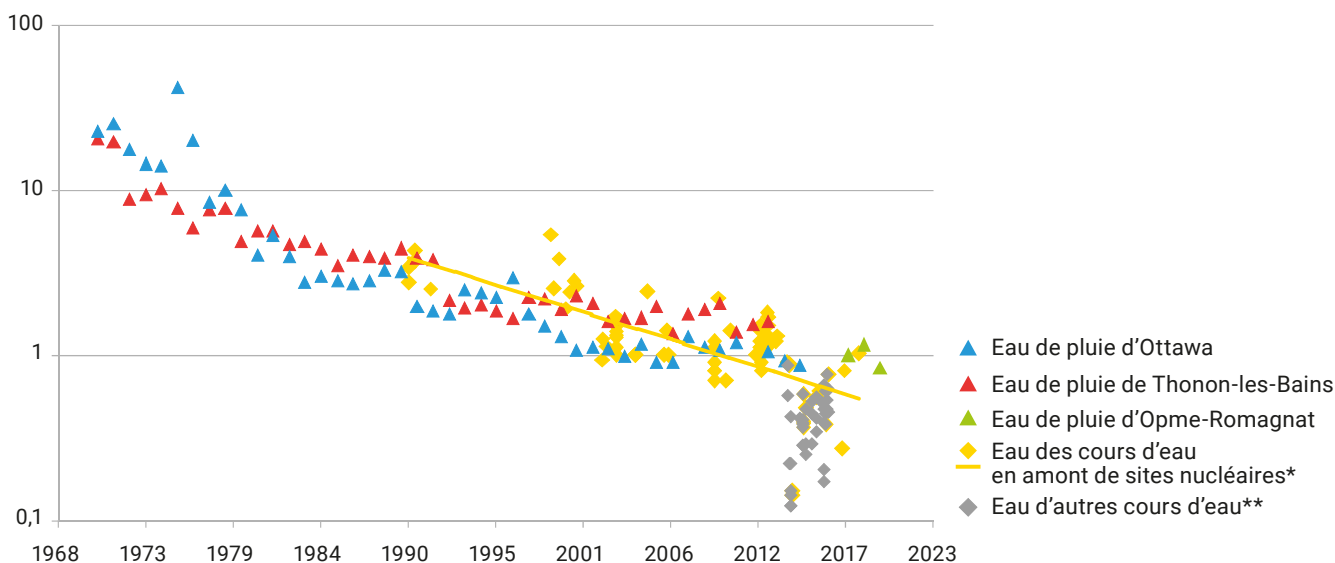
Contrairement à ce qui sera observé plus loin pour les plantes aquatiques, les poissons et les sédiments, les teneurs en tritium du Rhône en amont de Creys-Malville qui auraient pu être influencées par la rémanence des rejets passés de l'industrie horlogère, ne se distinguent pas de celles des autres grands cours d'eau.

Des échantillons d'eau, de plantes aquatiques, de sédiments et de poissons sont régulièrement prélevés pour analyse de leur teneur tritium par l'IRSN dans le cadre de sa mission de surveillance radiologique du territoire ainsi que pour des études et recherches. À ces acquisitions s'ajoutent celles

effectuées dans le cadre de la surveillance complémentaire réalisée par l'IRSN et Subatech à la demande d'EdF. Ces échantillons sont principalement prélevés dans les grands cours d'eau qui reçoivent les rejets des installations nucléaires, en amont et en aval de chaque site. Parmi ces échantillons, seuls ceux prélevés en amont de toutes les installations nucléaires implantées sur les cours d'eau peuvent être considérés comme représentatifs du bruit de fond radiologique. 163 analyses de TOL et de HTO ont été réalisées par l'IRSN et Subatech depuis 1996 sur des échantillons de plantes aquatiques prélevés dans le Rhône, la Loire, la Seine, la Garonne, la Vienne, la Moselle et la Meuse, en amont respectivement des sites de Creys-Malville, Belleville-sur-Loire, Nogent-sur-Seine, Golfch, Civaux, Cattenom et Chooz.

Les données sur le tritium dans les plantes aquatiques provenant d'autres cours d'eau que ceux qui reçoivent les rejets d'installations nucléaires sont rares. Les constats radiologiques « Sud-Ouest » (prélèvements réalisés entre 2009 et 2011) et « Normandie et Hauts-de France » (prélèvements réalisés en 2015) ont permis de combler en partie cette lacune avec 14 résultats d'analyse d'échantillons prélevés dans l'Adour, le Gave de Pau, l'Issoire, le Clain pour le constat « Sud-Ouest », l'Yères, la Somme, la Durdent, le Lys, la Diellette et la Flamenne pour le constat « Normandie et Hauts-de-France ». Par ailleurs, les 6 échantillons prélevés dans le Doubs dans le cadre du constat radiologique « Nord-Est » avaient aussi pour objectif de faire le point sur la rémanence des rejets de tritium de l'industrie horlogère (Morereau *et al.*, 2020).

Tritium dans les eaux (HTO en Bq/L)



* Rhône, Canal d'Alsace, Seine, Meuse, Durance.

** Agly, Argout, Ardèche, Argens, Aude, Cèze, Clamoux, Gapeau, Gardon, Hérault, Orb, Ouvèze, Tarn, Tech, Thoré, Var (Ducros *et al.*, 2018).

Figure 93. Activités volumiques du tritium dans les eaux de cours d'eau (Bq/L).

La figure 94 présente l'évolution des activités de tritium dans les plantes aquatiques, exprimées en Bq/L d'eau de combustion (pour le TOL) ou en Bq/L d'eau de séchage (pour le HTO). Elle permet de distinguer deux ensembles de résultats, les activités de TOL mesurées sur les échantillons prélevés dans le Rhône, le grand canal d'Alsace et le Doubs étant nettement plus élevées que les autres.

Si l'on excepte ces échantillons marqués par la rémanence des rejets tritiés de l'industrie horlogère, les activités de tritium dans les plantes aquatiques représentatives du bruit de fond sont similaires à celles observées en milieu terrestre, en termes de niveau, de tendance de leur évolution temporelle, et de gamme de variabilité. Ainsi, les courbes de tendance (violette pour le milieu terrestre et verte pour les plantes aquatiques) sont très proches et près de 90 % des teneurs en tritium mesurées dans les plantes aquatiques (hors Doubs, Rhône et canal d'Alsace) sont comprises dans la gamme de variabilité des valeurs de référence en milieu terrestre. Les activités en tritium des plantes aquatiques auront diminué de près de 8 fois au cours des 25 dernières années passant d'une valeur de référence de 6 Bq/L en 1995 à 0,8 Bq/L en 2020 ; soit deux fois plus rapidement que la décroissance liée à la période radioactive de 12,3 ans (un facteur 4 correspondant aux 2 périodes radioactives écoulées sur la période).

Contrairement à celles de carbone 14, les teneurs en tritium des plantes aquatiques sont assez homogènes et varient peu d'un cours d'eau à l'autre. Ainsi, les données acquises sur les grands fleuves et rivières sur lesquels sont implantées des installations nucléaires ne se distinguent pas de celles acquises sur de plus petits cours d'eau dans le cadre des constats régionaux.

Comme en milieu terrestre les activités de TOL et de HTO sont très proches : le rapport TOL/HTO est en moyenne de 1,6 sur la période (il était de 1,4 en milieu terrestre).

Les activités de TOL mesurées dans les échantillons du Doubs, du grand canal d'Alsace en amont de Fessenheim et du Rhône en amont de Creys-Malville, se situent toutes au-dessus de la gamme de variabilité des autres résultats ; la plupart entre 2 et 30 fois au-dessus. Ces activités témoignent de la rémanence des rejets passés des industries horlogères françaises et suisses qui constituent dans ces cours d'eau un bruit de fond local en tritium. On observe par ailleurs que ces activités plus élevées ne concernent pas le HTO. Bien que peu nombreuses et pas assez réparties dans le temps, les données semblent témoigner d'une tendance à la baisse, *a minima* liée à la décroissance radioactive.

Tritium en milieu aquatique continental (Bq/L d'eau de séchage ou de combustion)

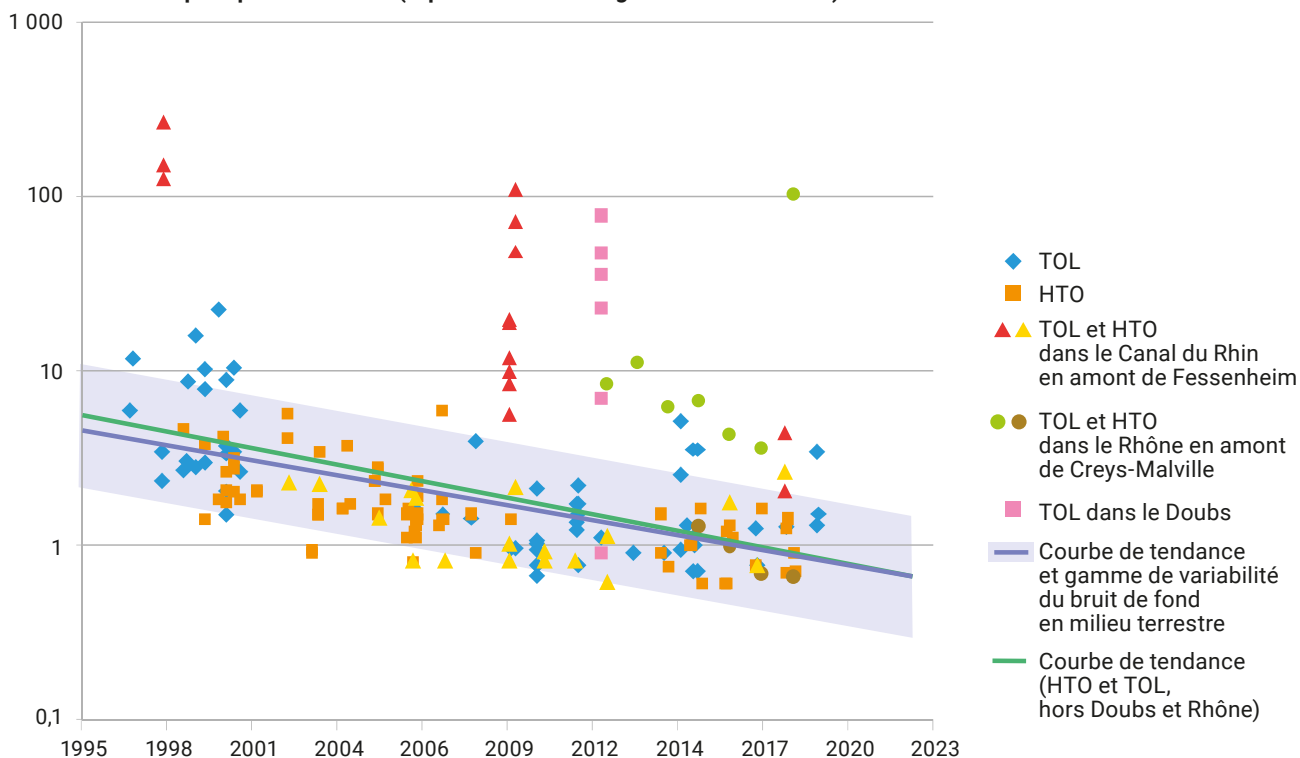


Figure 94. Évolution des activités de TOL et de HTO (en Bq/L d'eau de combustion ou de séchage) des plantes aquatiques prélevées par l'IRSN et Subatech depuis 1996 et représentatives du bruit de fond radiologique de ce radionucléide.

La figure 95 présente 126 résultats de mesure de tritium (TOL + HTO) dans des échantillons de poissons, acquis par l'IRSN et Subatech depuis 1991 en amont des points de rejets des installations nucléaires. Cette figure montre que la rémanence des rejets passés de l'industrie horlogère concerne aussi les poissons. Les activités de TOL des poissons du Rhône en amont de Creys-Malville (ronds verts) et du Rhin en amont de Fessenheim (triangles rouges) sont supérieures à celles des autres poissons (losanges gris). On observe par ailleurs que, comme pour les plantes aquatiques, ces activités plus élevées ne concernent pas le HTO.

Comme pour les plantes aquatiques, la diminution des teneurs en tritium des poissons des cours d'eau français, considérées comme représentatives du bruit de fond de ce radionucléide, est similaire à celle observée en milieu terrestre. Certains échantillons se distinguent toutefois par des activités supérieures, voire nettement supérieures. Ces échantillons indiqués par des carrés bleus, ont en commun d'avoir été pêchés à Marnays-sur-Seine et à Pont-sur-Seine en amont immédiat du CNPE de Nogent-sur-Seine. Ils se distinguent déjà par des teneurs en carbone 14 également supérieures au bruit de fond (voir paragraphe « Le bruit de fond radiologique du carbone 14 dans l'environnement français en milieu aquatique continental », figures 79 et 82 pages 106 et 109).

Ainsi, les analyses de tritium confirment que ces poissons, pêchés probablement en amont mais trop près du CNPE, sont marqués par ses rejets.

Une fois ces 3 lots d'échantillons écartés (Rhône, Canal d'Alsace et Seine), la courbe de tendance à la diminution des activités en tritium des poissons relevant du bruit de fond (courbe verte) se superpose complètement à celle observée en milieu terrestre (courbe violette) et près de 89 % des résultats acquis sur les poissons se situent dans la gamme de variabilité correspondante.

Le rapport moyen des activités TOL/HTO, calculé sur la base des seulement 17 échantillons de poissons pour lesquels les deux résultats d'analyses sont disponibles, est de 2,1 ; il est proche de celui calculé pour les aquatiques qui est de 1,6 et de celui calculé pour les échantillons biologiques du milieu terrestre qui est de 1,4.

Tritium libre et organiquement lié dans les cours d'eau (Bq/L d'eau de combustion ou de séchage)

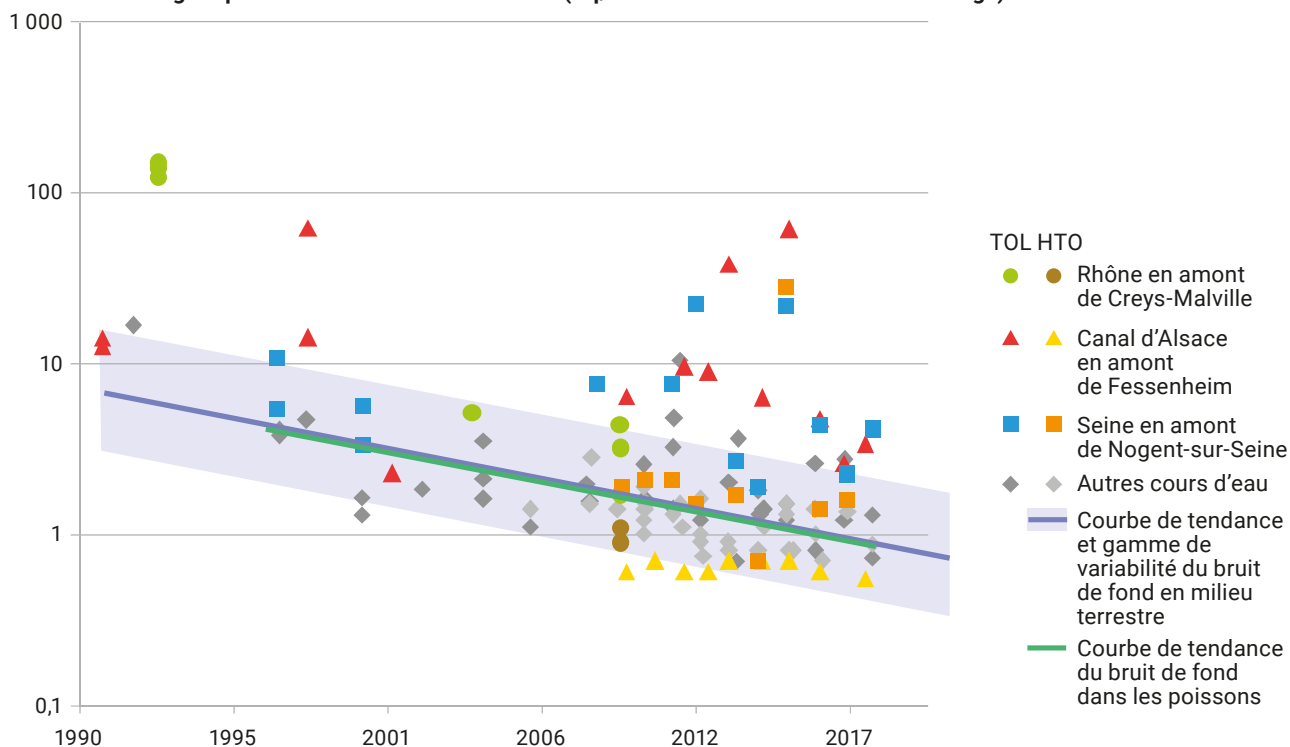


Figure 95. Évolution des activités de TOL et de HTO (en Bq/L d'eau de combustion ou de séchage) des poissons pêchés par l'IRSN et Subatech depuis 1996 en amont des sites nucléaires.

La figure 96 présente les résultats des 268 analyses de TOL effectuées depuis 1996 par l'IRSN sur des échantillons de sédiments de surface (à moins de 10 cm de profondeur)⁽⁸¹⁾. Cette figure confirme que le tritium stocké dans les sédiments des cours d'eau qui ont reçu les rejets de l'industrie horlogère, constitue bien la source de cette rémanence. Les activités de TOL dans les sédiments du Rhône en amont de Creys-Malville, du Rhin en amont de Fessenheim, ainsi que du Doubs et de la Loue (affluent du Doubs) sont pour la plupart très supérieures à celles des sédiments des autres cours d'eau. Très hétérogènes, elles vont de quelques dizaines à plusieurs dizaines de milliers de Bq/L avec un maximum de 226 000 Bq/L dans un échantillon prélevé en amont de Creys-Malville.

Les activités de TOL mesurées dans les échantillons de sédiments des autres cours d'eau sont significativement supérieures à celles observées dans les échantillons biologiques du milieu terrestre. Si les pentes des deux courbes de tendance (courbe verte pour les sédiments et courbe violette pour le milieu terrestre) sont similaires, un écart d'un facteur 2 exactement les sépare. Cet écart est très probablement lié à la persistance de matière organique plus ancienne dans les sédiments ; le mélange de matière organique plus ou moins ancienne dans les échantillons mesurés, conduit à un « décalage temporel apparent » de l'ordre de 15 ans par rapport aux échantillons biologiques terrestres. Ceci conduit à déterminer des valeurs de référence différentes de celles du milieu terrestre qui sont indiquées dans le tableau.

Tritium dans les sédiments des cours d'eau (Bq/L d'eau de combustion)

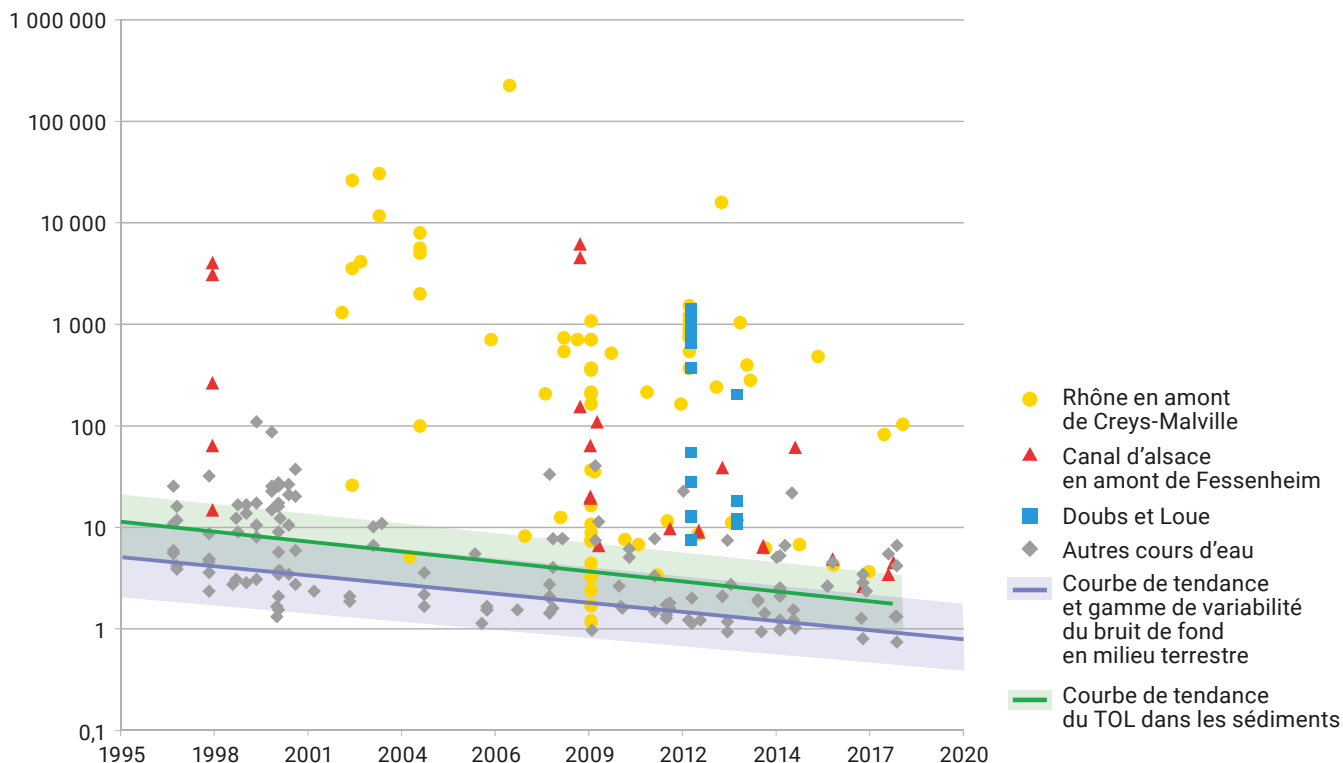


Figure 96. Évolution des activités de TOL (en Bq/L d'eau de combustion) des sédiments analysés depuis 1996 et collectés par l'IRSN en amont des sites nucléaires.

(81) Il s'agit soit d'échantillons prélevés au moyen d'un cône de Berthois qui ne prélève que sur quelques centimètres de profondeur, soit des échantillons correspondant aux couches de surface de carottes sédimentaires prélevées au moyen d'un carottier.

Les activités de TOL dans les sédiments sont également plus variables que celles des autres composantes de l'environnement étudiées précédemment. Ceci résulte principalement de l'ancienneté variable de la matière organique qu'ils contiennent. Ainsi, 90 % des activités de TOL dans les sédiments sont compris entre 0,37 et 2,7 fois les valeurs de référence (en milieu terrestre cette gamme allait de 0,45 et 2,2) ; les limites de cette gamme de variabilité sont aussi indiquées dans le tableau 7.

Tableau 7. Valeurs de référence et gamme de variabilité du TOL dans les sédiments continentaux français hors zone de rémanence des rejets de l'industrie horlogère (Bq/L).

	Valeurs de référence	X 2,7	X 0,37
1993	11,9	33,3	4,2
1994	11,0	30,7	3,9
1995	10,1	28,3	3,6
1996	9,3	26,1	3,3
1997	8,6	24,1	3,1
1998	8,0	22,3	2,8
1999	7,3	20,5	2,6
2000	6,8	19,0	2,4
2001	6,2	17,5	2,2
2002	5,8	16,1	2,1
2003	5,3	14,9	1,9
2004	4,9	13,8	1,8
2005	4,5	12,7	1,6
2006	4,2	11,7	1,5
2007	3,9	10,8	1,4
2008	3,56	9,98	1,27
2009	3,29	9,21	1,17
2010	3,03	8,50	1,08
2011	2,80	7,84	1,00
2012	2,58	7,23	0,92
2013	2,38	6,68	0,85
2014	2,20	6,16	0,79
2015	2,03	5,69	0,73
2016	1,87	5,25	0,67
2017	1,73	4,84	0,62
2018	1,60	4,47	0,57
2019	1,47	4,12	0,53
2020	1,36	3,81	0,49
2021	1,25	3,51	0,45
2022 (valeur prévisionnelle)	1,16	3,24	0,41

En milieu marin

Le milieu marin hauturier a été peu impacté par les retombées des essais atmosphériques d'armes nucléaires : les activités des eaux marines sont assez homogènes à l'échelle planétaire, de l'ordre de 0,1 à 0,2 Bq/L. En s'associant à différentes campagnes d'études pluridisciplinaires, l'IRSN a pu préciser le bruit de fond des eaux de surface dans l'Atlantique Nord (ASN, 2009). Celui-ci est aussi en baisse régulière et les eaux de surface de l'Atlantique Nord présentaient des activités volumiques de 0,13 à 0,16 Bq/L en 2002 et de 0,1 à 0,13 Bq/L en 2004.

Les valeurs mesurées en Méditerranée (IRSN, 2021) confirment cette tendance à la baisse, avec des activités volumiques allant de 0,04 à 0,095 Bq/L mesurées en 2013 en Méditerranée Nord-Occidentale et de 0,08 à 0,1 Bq/L dans les mers Adriatique, Ionienne et Tyrrhénienne en 2014. Ces niveaux correspondent au niveau naturel cosmogénique durant la période antérieure aux essais d'armes nucléaires et devraient désormais se stabiliser.

En zone côtière, les niveaux dans l'eau de surface sont similaires, sauf dans la zone d'influence des apports des fleuves côtiers drainant les bassins versants. Ainsi, aux débouchés des fleuves côtiers comme l'Argens ou le Var dont les activités atteignaient 1 à 2 Bq/L en 2014 (Eyrolle-Boyer et al., 2015), les activités volumiques des eaux de mer pouvaient être multipliées par 3 à 4 (0,17 à 0,4 Bq/L).

Dans une zone située près de l'embouchure du Rhône, les teneurs en tritium dans les eaux côtières sont 2 à 20 fois supérieures à celles observées ailleurs en Méditerranée, en raison de l'arrivée d'eau du Rhône dont l'activité moyenne mesurée par l'IRSN à la Station Observatoire du Rhône en Arles (SORA) est de l'ordre de 10 Bq/L (Antonelli & Eyrolle, 2010). Le gradient décroissant vers l'ouest des niveaux mesurés le long de la côte correspond à la dispersion du panache du Rhône sous l'effet du courant d'est en ouest qui prévaut dans le golfe du Lion. Au niveau des Saintes-Maries-de-la-Mer, située à près de 40 km à l'ouest de l'embouchure du grand Rhône, les activités de tritium dans l'eau sont encore de l'ordre de 0,2 à 0,5 Bq/L ; au niveau du Grau-du-Roi, situé 20 km encore plus à l'ouest, elles sont à nouveau dans la gamme du bruit de fond (inférieures à 0,2 Bq/L). Les teneurs en tritium diminuent aussi très rapidement dès que l'on s'éloigne de la côte en raison de la dilution des eaux du fleuve dans les eaux marines. Lors de la campagne de prélèvement réalisée en octobre 2008 sur une zone située à une distance de l'ordre de 2 à 5 km de l'embouchure du Rhône, l'activité volumique de HTO dans l'eau de mer n'a pas dépassé 0,25 Bq/L.

Les eaux marines de la Manche influencées par les rejets liquides tritiés des usines de La Hague et de Sellafield (Royaume-Uni) présentent des activités en tritium nettement supérieures ; elles passent progressivement du bruit de fond au niveau de la pointe bretonne, à 2 à 5 Bq/L à l'ouest du Cotentin et jusqu'à 10 Bq/L (soit 50 à 100 fois le bruit de fond) sur les côtes françaises à l'est du Cotentin. Cette influence est encore bien visible en mer du Nord. C'est pourquoi, les nombreuses données acquises par l'IRSN en Manche et en mer du Nord n'ont pas été utilisées dans cette étude pour caractériser le bruit de fond du tritium en milieu marin.

La figure 97 présente les activités volumiques de TOL mesurées par l'IRSN dans des échantillons d'algues prélevées à Concarneau, Pornichet et Mescher-sur-Gironde. Avec des valeurs comprises entre 0,46 et 2,6 Bq/L (0,2 à 1,2 Bq/kg sec⁽⁸²⁾), pour une moyenne de 1,2 Bq/L, elles témoignent de l'influence du milieu terrestre sur le milieu marin côtier. On note également une relative constance de ces valeurs au cours des 20 dernières années. Par ailleurs, il est intéressant de noter que les activités mesurées à Mescher-sur-Gironde sous influence potentielle des eaux de la Garonne-Gironde qui reçoivent les rejets des CNPE de Golfech et du Blayais, ne se distinguent pas notablement des activités mesurées sur Pornichet ou Concarneau.

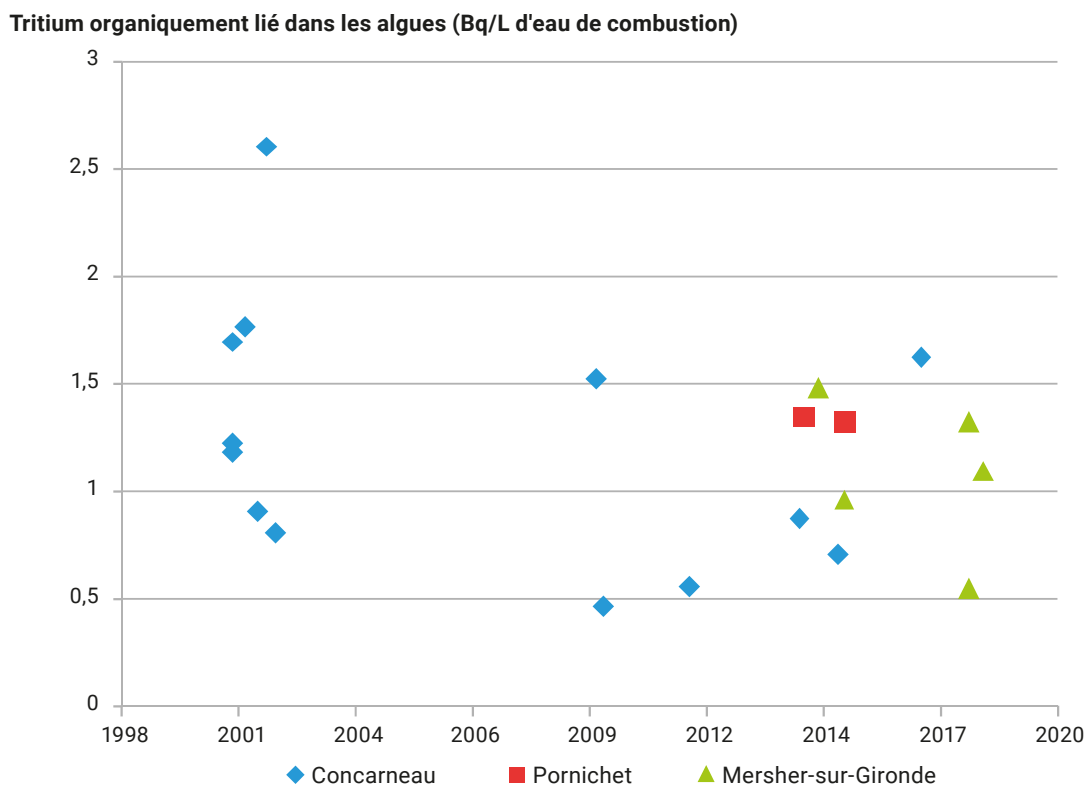


Figure 97. Activités volumiques de TOL dans des algues (Bq/L).

(82) Les algues libèrent en moyenne 0,45 L d'eau de combustion par kg de matière sèche dans une gamme allant de 0,3 à 0,6 L/kg sec.

La figure 98 présente les teneurs en tritium des 46 échantillons de coquillage prélevés sur les côtes de Méditerranée et de l'Atlantique (moules et huîtres) et mesurés par l'IRSN depuis 2001. Plus de la moitié de ces résultats ont été acquis en 2012 dans le cadre du constat régional « Méditerranée », notamment lors d'une campagne réalisée avec l'Ifremer.

Avec une moyenne de 6,9 Bq/L dans une gamme allant de 3,9 à 10,9 Bq/L, les teneurs en TOL des échantillons prélevés dans la petite rade de Toulon se distinguent nettement de celles des échantillons prélevés ailleurs, y compris de celles des échantillons de la grande rade dont les activités de TOL, comprises entre 0,7 et 2,5 Bq/L sont dans la gamme du bruit de fond côtier. La moyenne en TOL des échantillons que l'on peut considérer comme représentatifs de ce bruit de fond côtier est de 1,8 Bq/L dans une gamme allant de 0,5 à 4 Bq/L, tant en Atlantique qu'en Méditerranée. Ces valeurs sont très proches de celles des algues (moyenne de 1,2 Bq/L dans une gamme allant de 0,5 à 2,6 Bq/L pour les algues).

Avec des résultats compris entre 0,71 et 1,0 Bq/L, les 25 échantillons de moules prélevés en 2012 en 18 points des côtes françaises de Méditerranée (Corse comprise) dans le cadre du constat régional, montrent l'homogénéité des teneurs en tritium relevant du bruit de fond côtier dans cette mer ; une homogénéité suffisante pour distinguer l'échantillon prélevé à l'embouchure et donc sous influence du Rhône, qui présente une activité de 1,34 Bq/L. En revanche, les échantillons prélevés en Atlantique ne permettent pas de mettre en évidence une influence potentielle des eaux de la Loire sur les teneurs en TOL des échantillons prélevés à Pornichet qui ne se distinguent pas de celle des échantillons prélevés à Concarneau.

Tritium dans les coquillages (Bq/L d'eau de combustion)

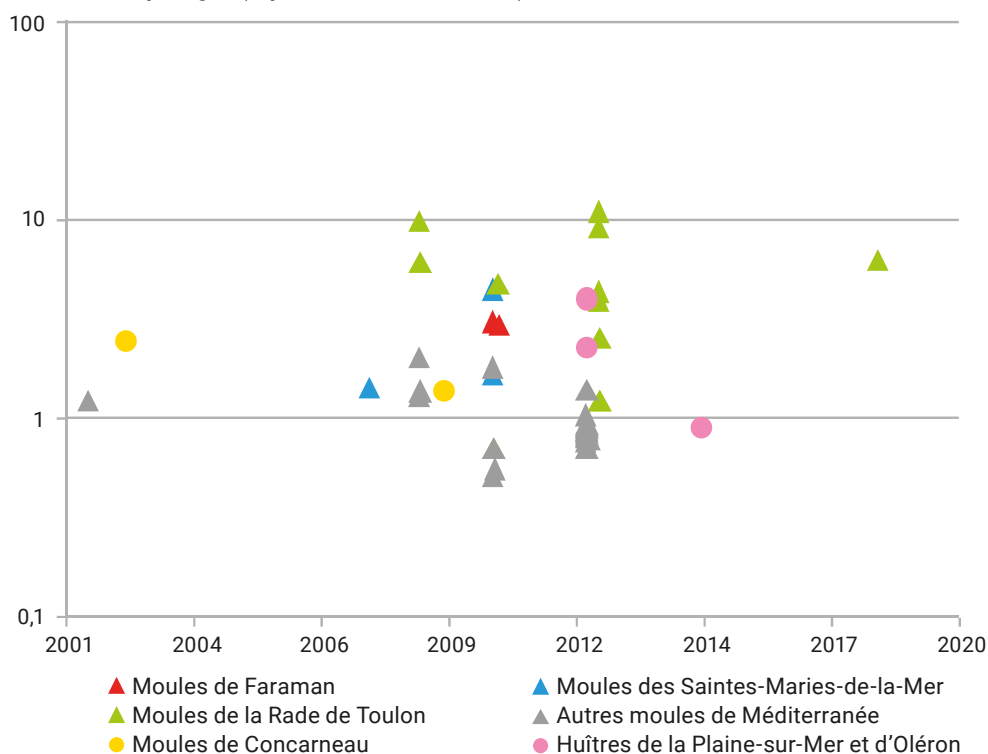


Figure 98. Activités volumiques de TOL dans des échantillons de moules et d'huîtres (Bq/L).

La figure 99 présente les 68 activités de TOL mesurées par l'IRSN depuis 2001 dans des poissons de Méditerranée et de l'Atlantique. Près des 2/3, soit 42 résultats, ont été acquis en 2012 et 2013 dans le cadre du constat régional « Méditerranée ». Ce constat a par ailleurs permis d'élargir la variété des espèces prélevées avec des pêches au chalut menées plus au large (la surveillance en Méditerranée porte principalement sur des rougets prélevés au filet à proximité des côtes).

Avec une moyenne de 1,7 Bq/L dans une gamme allant de 0,5 à 3,7 Bq/L, les teneurs en TOL mesurées dans les poissons qui relèvent indubitablement du bruit de fond de ce radionucléide en milieu marin côtier, sont très proches de celles mesurées dans les algues et les coquillages. Celles des échantillons provenant de l'Atlantique ne se distinguent pas de celles des échantillons de Méditerranée. Concernant la variabilité inter-espèces, le constat « Méditerranée » indique que les niveaux les plus élevés sont retrouvés chez des espèces de poissons benthiques (vivant sur le fond), tels que raie, roussette, grondin. Pour les autres espèces, les niveaux sont inférieurs à 1,5 Bq/L d'eau de combustion. Cette remarque suggère,

pour ces espèces, une influence par des apports de tritium terrigène dont les activités sont plus élevées que celles observées en milieu marin. Cette influence est probablement à l'origine du déséquilibre, encore plus marqué que pour les moules, entre les activités en TOL dans les poissons pêchés en 2013 dans le golfe du Lion (qui varient entre 0,7 et 3,5 Bq/L) et les activités en HTO dans l'eau de mer prélevée dans la même zone à la même période (variant de 0,04 à 0,095 Bq/L).

Sur les 6 résultats acquis sur des poissons prélevés à Toulon, un se distingue nettement avec une teneur en TOL de $12,4 \pm 1$ Bq/L et trois autres figurent dans les valeurs les plus élevées mesurées (entre $3,3 \pm 0,17$ et $4,35 \pm 0,23$ Bq/L).

Seuls trois résultats de mesure de tritium (TOL) dans des crustacés sont disponibles. Ils portent sur 2 échantillons de langoustines prélevés dans le cadre du constat « Méditerranée », et d'un échantillon de homard prélevé à Concarneau. Avec des activités de TOL allant de 0,4 à 2,6 Bq/L, ces trois résultats sont cohérents avec ceux acquis sur les algues et les coquillages représentatifs du bruit de fond du tritium dans l'environnement marin côtier.

Tritium dans les poissons marins (Bq/L d'eau de combustion)

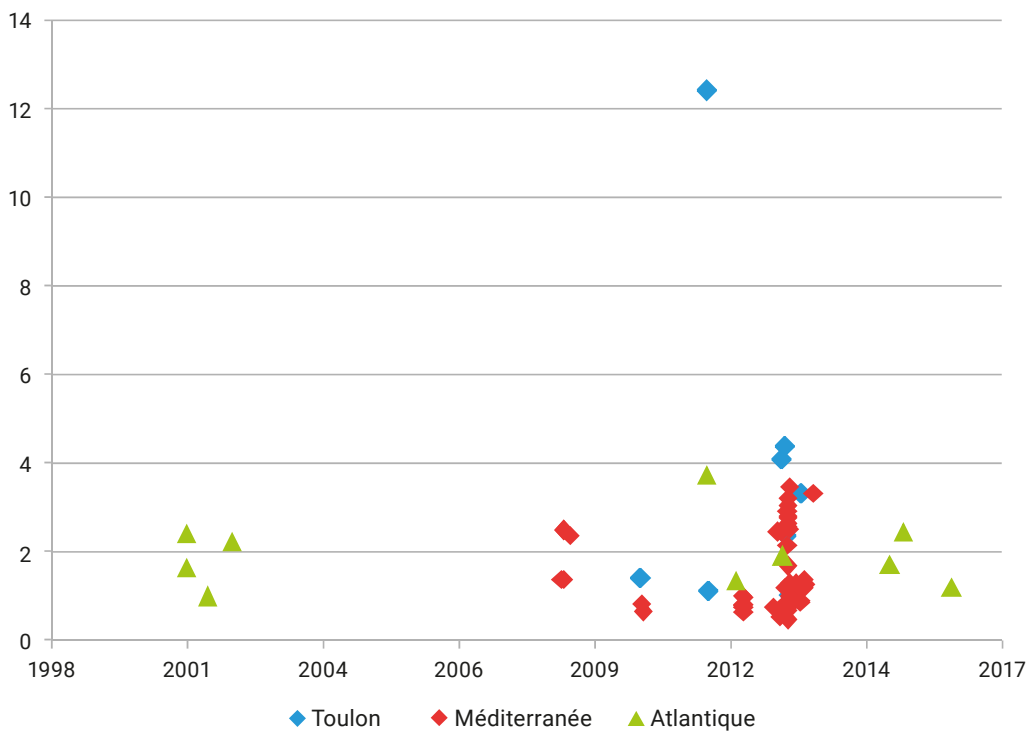


Figure 99. Activités volumiques de TOL dans des échantillons de poissons (Bq/L).

7 4

EXPOSITION DE LA POPULATION AU BRUIT DE FOND RADIOLOGIQUE DU TRITIUM DANS L'ENVIRONNEMENT

L'exposition au tritium présent dans l'environnement résulte essentiellement de son incorporation par ingestion de denrées ; le tritium n'induit pas d'exposition externe et les doses liées à son inhalation et à sa pénétration transcutanée sont négligeables au regard de celle liée à l'ingestion de denrées.

Comme indiqué au paragraphe « Relation entre l'activité volumique de HTO et de TOL et l'activité massique d'échantillons végétaux ou animaux », les activités massiques de TOL et de HTO dans les denrées alimentaires, exprimées en Bq/kg frais peuvent être déduites des activités volumiques exprimées en Bq/L d'eau de séchage pour le HTO et d'eau de combustion pour le TOL.

L'analyse de toutes les activités volumiques de TOL effectuées dans les denrées alimentaires, qu'elles soient d'origine terrestre, aquatique continentale ou marine montre qu'elles se situent autour de 1 Bq/L sur la période 2017-2019. Les mesures significatives de HTO sont peu nombreuses. Bien que les rapports TOL/HTO, autour de 1,5, situent les activités de HTO dans les denrées autour de 0,7 Bq/L, une valeur de 1 Bq/L d'eau de séchage est retenue pour calculer les activités massiques de HTO dans les denrées. C'est cette valeur qui est également retenue pour l'eau de consommation bien qu'elle soit aussi majorante par rapport aux activités mesurées dans les eaux souterraines et les eaux de surface.

Sur la base des activités massiques ainsi calculées, des rations alimentaires présentées dans le tableau 1 (chapitre césium 137) et en utilisant les facteurs de dose de $1,8 \cdot 10^{-11}$ Sv/Bq ingéré pour le HTO et $4,2 \cdot 10^{-11}$ pour le TOL (arrêté du 1^{er} septembre 2003 du *Journal officiel de la République française*), la dose pour un adulte liée à l'incorporation de tritium par ingestion de denrées est estimée à 0,02 μ Sv/an. Plus de la moitié de cette dose est liée à l'ingestion d'eau (à raison d'une consommation de 2 L/jour).

En déduisant à la valeur de 1 Bq/L, un bruit de fond cosmogénique compris entre 0,1 et 0,6 Bq/L, on en déduit que la contribution à cette dose, du tritium hérité des retombées des essais nucléaires, est comprise entre 40 et 90 %, soit entre 0,008 et 0,018 μ Sv/an. En 1963, alors que l'activité volumique du tritium était de 600 Bq/L, elle était de 12 μ Sv.



Prélèvement de feuilles de chênes
(Constat radiologique régional « Sud-Ouest »).

8 CONCLUSIONS

Le tritium, le carbone 14, le césium 137, le strontium 90, l'américium 241 et les isotopes du plutonium présents dans l'environnement, rémanent des retombées des essais atmosphériques d'armes nucléaires effectués de 1945 à 1981 (essentiellement avant 1963), de l'accident de Tchernobyl survenu en 1986 (pour le césium 137) et de la désintégration d'un satellite dans l'atmosphère en 1964 (pour le plutonium 238). Cette rémanence constitue le bruit de fond des radionucléides artificiels dans l'environnement.

À partir de l'analyse de toutes les données disponibles en France, essentiellement acquises par l'IRSN, cette étude a pour objectif de dresser le bilan de cette rémanence en termes d'activités massiques et volumiques dans les principales composantes de l'environnement français, de leur évolution, et des expositions des populations qu'elles entraînent.

Bien que l'étude porte sur la période actuelle (la dernière décennie), de nombreux éléments de mise en perspective sont fournis tant sur les activités de radionucléides mesurées que sur les doses estimées au cours des 6 dernières décennies. Les commentaires s'attachent à expliquer les observations par les connaissances en radioécologie.

Enfin, le rapport met en exergue l'apport des constats radiologiques régionaux qui ont été déterminants pour la connaissance du bruit de fond des radionucléides artificiels dans certaines composantes de l'environnement et notamment dans les denrées.

Les principaux éléments de connaissance apportés par cette étude sont regroupés dans les points thématiques présentés ci-après.

8 1 LA VARIABILITÉ SPATIALE DES CONCENTRATIONS DE CÉSIUM 137 DANS L'ENVIRONNEMENT TERRESTRE

La France métropolitaine se trouve dans la bande latitudinale où les retombées des essais nucléaires ont été les plus importantes. Les dépôts radioactifs de césium 137, de strontium 90 et d'isotopes de plutonium correspondants y ont été proportionnels aux hauteurs moyennes des précipitations annuelles : sur les zones les plus arrosées de France (précipitations supérieures à 1 200 mm/an), les dépôts radioactifs ont pu être jusqu'à 5 fois plus importants que sur les zones les plus sèches. Comme partout en Europe, les dépôts de césium 137 sur la France consécutifs à l'accident de Tchernobyl ont été encore plus hétérogènes car liés aux précipitations survenues entre le 1^{er} et le 5 mai 1986, période durant laquelle les masses d'air contaminées par cet accident ont survolé la France, ces précipitations ayant elles-mêmes été très hétérogènes notamment dans l'est du pays. Dans les zones de l'est du pays où ces pluies ont été les plus importantes, les dépôts de césium 137 ont pu être jusqu'à 50 fois plus importants que sur les zones les moins touchées de l'ouest.

Bien que ces variations spatiales se soient estompées au fil des années en raison des comportements différents des radionucléides suivant les caractéristiques de l'environnement (types de sols, climat...) et les pratiques agricoles et d'élevage, les concentrations de ces radionucléides peuvent rester encore aujourd'hui spatialement contrastées. Les mesures mettent ainsi nettement en évidence des zones de rémanence élevée (ZRE) de ces retombées anciennes. C'est plus particulièrement le cas du césium 137 dans les sols. Dans certains sols qui ont reçu des dépôts de plus 10 000 Bq/m² de ce radionucléide en mai 1986 et qui sont propices à sa rétention, les activités massiques moyennes de césium 137 peuvent être 5 à 15 fois supérieures à celles des sols des 2/3 ouest du pays. Ainsi, dans des sols de prairie des Vosges et du Massif central, les activités massiques de césium 137 se situent autour de 60 à 70 Bq/kg sec, contre 4 à 5 Bq/kg sec en Nouvelle-Aquitaine, Occitanie, Bretagne, Normandie, ou dans les Hauts-de-France. Ces écarts se répercutent dans les herbages et dans le lait des animaux qui les consomment avec des activités volumiques qui vont de 0,01 Bq/L dans le lait de Bretagne, de Normandie ou des Hauts-de-France, à 0,2 Bq/L dans celui produit dans les ZRE des Vosges et 0,6 Bq/L dans celui produit dans les ZRE du Massif central.

Mais le contraste le plus important est observé dans les denrées naturelles, champignons et gibiers notamment. Des myrtilles, des framboises et des fraises cueillies dans les ZRE de l'est de la France peuvent présenter des activités de quelques dizaines de Bq/kg frais de césium 137, alors que les fruits de verger se trouvent à des niveaux de l'ordre de 1 000 fois inférieurs. De même, si la teneur en césium 137 de la viande de bœuf se situe entre 0,01 et 0,2 Bq/kg frais, celle de sangliers chassés en ZRE peut dépasser 100 Bq/kg frais.

Les teneurs en césium 137 des produits agricoles sont en général plus homogènes et plus faibles en raison principalement des pratiques agricoles, notamment de l'utilisation d'engrais, qui tendent à estomper la variabilité spatiale des dépôts radioactifs initiaux et à diminuer le transfert du césium des sols vers les plantes. Ainsi, les activités massiques de césium 137 dans les légumes, les fruits et les céréales se trouvent majoritairement en deçà de 0,1 Bq/kg frais au cours de la dernière décennie et sont homogènes quelle que soit leur région de production.

Le césium 137 parvient aux milieux aquatiques principalement par le drainage des bassins versants. Bien que les grands cours d'eau desquels proviennent la majeure partie des échantillons analysés soient longs et traversent donc des sols touchés de manière variable par les retombées anciennes, des écarts de concentrations en césium 137 sont observés entre ceux de l'est du pays (Rhône, Moselle, Meuse, Rhin et canal d'Alsace), ceux dont seulement une partie amont du cours draine des zones modérément touchées (Loire et Vienne), et ceux circulant très majoritairement dans des territoires peu touchés par les retombées anciennes (Garonne et Seine). Ainsi, les teneurs moyennes de césium 137 des plantes aquatiques prélevées dans la Seine ou la Loire (0,7 et 0,8 Bq/kg sec respectivement) sont 2 à 3 fois plus faibles que celles prélevées dans le Rhône, la Meuse ou le canal d'Alsace (1,8 à 2,4 Bq/kg sec) et jusqu'à 4 fois moins que celles provenant de l'Isère, la Moselle ou la Meurthe (2,7 à 2,9 Bq/kg sec). Il en est de même pour les poissons : 0,02 et 0,04 Bq/kg frais pour les poissons prélevés dans la Garonne et la Seine, 0,07 Bq/kg frais pour ceux prélevés dans la Meuse et le Rhône et 0,1 Bq/kg frais pour ceux pêchés dans le Rhin ; et aussi des sédiments : 2 à 3 Bq/kg sec dans la Garonne et dans une vingtaine de petits cours d'eau du Sud-Ouest, de Normandie et des Hauts-de-France, 4 à 6 Bq/kg sec pour la Loire, le Rhône, la Meuse et le canal d'Alsace et jusqu'à 10 Bq/kg sec dans l'Isère, la Durance et la Moselle.

En milieu marin, les activités massiques et volumiques de césium 137 sont plus homogènes, en raison du caractère dispersif de ce milieu. Ainsi, sur toutes les côtes françaises, y compris en Manche, les teneurs moyennes en césium 137 des algues sont comprises entre 0,2 et 0,3 Bq/g sec, celles des coquillages sont de l'ordre de 0,01 Bq/kg frais en Méditerranée et en Atlantique, atteignent 0,02 Bq/kg frais à l'embouchure du Rhône et dépassent cette valeur en Manche sous influence des rejets de La Hague pour atteindre 0,05 Bq/kg frais (ces valeurs mesurées en Manche ne relèvent clairement plus du bruit de fond hérité des retombées anciennes).

La variabilité spatiale liée aux dépôts initiaux mise en évidence pour le césium 137 n'est observée, et dans une moindre mesure, que pour les sols dans le cas du plutonium et de l'américium 241. Ceci résulte du fait que l'hétérogénéité spatiale des retombées des essais nucléaires a été moins prononcée que celle de l'accident de Tchernobyl, que nous disposons de beaucoup moins de données sur ces radionucléides et enfin qu'ils sont très peu transférés dans les végétaux et les produits animaux. Dans le cas du strontium 90, même si les activités les plus élevées sont quelquefois mesurées dans des échantillons provenant de ZRE potentielles, la variabilité spatiale est peu discernable. Outre les pratiques agricoles déjà évoquées pour le césium et la moindre hétérogénéité des retombées des essais nucléaires déjà mentionnée pour les transuraniens, ceci résulte également du fait que ce radionucléide a plus migré vers la profondeur des sols, et ce de manière différentielle suivant leurs caractéristiques, effaçant ainsi l'hétérogénéité spatiale des concentrations de ce radionucléide qui était cependant bien visible au cours des années 1960 et 1970.

8 2 LA DIMINUTION TEMPORELLE DES CONCENTRATIONS DE STRONTIUM 90 DANS L'ENVIRONNEMENT

Le strontium 90 présent dans l'environnement français, qui provient quasi exclusivement des retombées des essais nucléaires, est caractérisé par une diminution temporelle importante de ses activités massiques et volumiques. Ainsi, les activités dans les sols ont pu diminuer de près de 2 ordres de grandeur depuis 1963, passant de quelques dizaines de Bq/kg à moins de 1 Bq/kg. Cette diminution est liée en grande partie à la plus grande solubilité de cet élément (notamment par rapport à celle du césium ou celle des transuraniens) qui facilite sa migration vers la profondeur des sols et son drainage vers les cours d'eau. Cette diminution est encore plus importante dans les végétaux et les produits animaux. Les activités massiques de strontium 90 les plus élevées observées dans les herbages ont ainsi diminué de quelques milliers de Bq/kg sec en 1963 à quelques Bq/kg sec ces dernières années. Cette diminution s'est répercutée dans le lait dans lequel les activités volumiques les plus élevées ont pu atteindre quelques Bq/L en 1963 contre moins de 0,1 Bq/L ces dernières années. La diminution de la concentration en strontium 90 dans les denrées au cours des 60 dernières années est liée d'une part à la forte diminution des apports atmosphériques lors de l'arrêt des essais américano-soviétiques en 1963, puis des essais chinois en 1980, et d'autre part à la diminution de la concentration dans les sols mentionnée précédemment.

La baisse des teneurs en strontium 90 des sols s'est également directement répercutée sur les cours d'eau dans lesquels ce radionucléide est très soluble. Ainsi, les activités volumiques de strontium 90 dissous dans les eaux de la Seine sont passées de 0,01 Bq/L en 1967 à 0,002 Bq/L sur la période 2008-2019. De même, les activités massiques de ce radionucléide dans les plantes aquatiques ont diminué de 5 fois entre 1978 et 2015 ; cette diminution a été de l'ordre de 100 fois dans les poissons, avec une gamme d'activités massiques très variable mais centrée sur 1 Bq/kg frais dans les années 1970 à des activités de l'ordre de 0,01 Bq/kg frais ces dernières années.

Malgré cette diminution temporelle, les activités de strontium 90 restent conséquentes dans certaines denrées au regard des activités initialement déposées sur les sols, notamment dans les denrées végétales et les produits laitiers. Dans les céréales, les légumes et les fruits, elles sont comprises entre 0,01 et 1 Bq/kg frais (moyennes autour de 0,1 Bq/kg frais), soit du même niveau ou jusqu'à un ordre de grandeur plus élevée que celles de césium 137, malgré des activités nettement plus faibles dans les sols que celles du césium. Ceci s'explique par des transferts entre le sol et les plantes plus importants que ceux du césium et beaucoup plus importants que ceux des transuraniens. L'importance relative de ces transferts confèrera au strontium 90 une contribution proche de celle du césium 137 dans l'exposition de la population par ingestion de denrées. En revanche le strontium 90 n'est quasiment pas transféré aux muscles et sa concentration dans les viandes est très faible et le plus souvent non mesurable.

Une diminution temporelle des activités de césium 137 a également été observée dans les sols et les denrées. Elle est cependant beaucoup plus faible que celle mentionnée pour le strontium 90.

8 3 LES TRÈS FAIBLES CONCENTRATIONS ET LES SIMILITUDES COMPORTEMENTALES DU PLUTONIUM ET DE L'AMÉRICIUM 241 DANS L'ENVIRONNEMENT

Les dépôts de plutonium consécutifs aux retombées des essais nucléaires (et à la désintégration du satellite) ont été de l'ordre de 20 fois plus faibles que ceux de strontium 90 ou de césium 137. Par ailleurs, ce radioélément ne s'est pratiquement pas déposé en France à la suite de l'accident de Tchernobyl. Comme le césium et contrairement au strontium, le plutonium migre peu vers la profondeur et se trouve toujours essentiellement dans les 10 cm de surface des sols, près de 60 ans après la fin de la principale période des essais atmosphériques. Il en résulte que sur la majeure partie du territoire, les activités massiques de plutonium à la surface des sols (dans les 20 cm de surface) sont en moyenne de 0,2 à 0,4 Bq/kg secs, soit 20 à plus de 100 fois plus faibles que celles de césium 137 mais moins de 10 fois inférieures à celles de strontium 90 (dont on a montré que les activités massiques ont fortement baissé au fil des décennies). Les données disponibles permettent de distinguer pour le plutonium, des zones de rémanence élevée des retombées anciennes (ZRE). Ces ZRE du plutonium couvrent une partie des ZRE identifiées pour le césium 137 et notamment certaines zones des Vosges, du Massif central et d'altitude dans les Alpes et les Pyrénées. Sur ces zones, les activités massiques de plutonium dans les sols peuvent en moyenne atteindre 1 Bq/kg sec, exceptionnellement 2 Bq/kg sec pour les valeurs les plus élevées.

De plus, les transferts du plutonium aux végétaux et aux denrées animales sont très faibles : de 100 000 à 100 000 fois plus faibles que ceux du césium. Il en résulte que 60 % des échantillons analysés par l'IRSN au cours de la dernière décennie présentaient des activités de plutonium 239+240 trop faibles pour être quantifiées même au moyen de meilleures techniques disponibles. Dans la plupart des denrées et lorsqu'elles sont mesurables, les activités massiques, très variables, sont le plus souvent comprises entre 0,00001 et 0,001 Bq/kg frais (ou Bq/L).

Les activités de plutonium 238 peuvent être définies par rapport à celles de plutonium 239+240. Ainsi les dépôts de plutonium 238 ont été 25 fois inférieurs à ceux de plutonium 239+240. Le rapport d'activités $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ dont la valeur était donc initialement de 0,04 (en 1970), a ensuite diminué en raison de la période radioactive du plutonium 238 pour être de 0,028 en 2020. Les plutoniums 238, 239 et 240 étant 3 isotopes d'un même élément chimique, ils ont le même comportement dans l'environnement ; leurs intensités de transfert sont les mêmes et ce rapport d'activités doit donc être théoriquement conservé dans toutes les composantes de l'environnement. Les résultats de mesure ont confirmé cette assertion. Ainsi, les rapports d'activités $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ calculés à partir des mesures de sols, de végétaux ou encore de moules se situent dans une gamme restreinte autour de 0,03. Les écarts par rapport à cette valeur correspondent soit à des échantillons influencés par les rejets passés du site de Marcoule, soit à des incertitudes métrologiques importantes liées à de trop faibles teneurs en plutonium 238.

L'américium 241 ne figurait pas dans les retombées des essais nucléaires, il a été progressivement produit par la désintégration du plutonium 241 (période radioactive de 14 ans). Les concentrations en américium 241 ont donc augmenté au fil des années pour atteindre leur maximum actuel avant de diminuer très lentement à partir de 2036 par décroissance radioactive (430 ans de période). Bien que chimiquement différent, l'américium présente de nombreuses analogies de comportement avec le plutonium : une forte propension à se fixer sur les particules ce qui diminue sa solubilité et donc sa mobilité et de très faibles transferts vers les organismes. Les résultats de mesures montrent que les activités d'américium 241 sont du même niveau que celles de plutonium 239+240 dans toutes les composantes de l'environnement. Plus encore, le rapport d'activité isotopique $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ théorique actuel de 0,4 (2,5 fois plus de plutonium 239+240 que d'américium 241) y est partout maintenu : dans les sols quelle que soit la profondeur, dans les végétaux et notamment dans les denrées, en milieu d'eau douce (plantes aquatiques et poissons) ainsi qu'en milieu marin (algues, coquillages et poissons). La connaissance du bruit de fond de l'américium 241 hérité des retombées anciennes dans l'environnement peut donc être déduite de celle du plutonium 239+240, et réciproquement.

8 4 LE RETOUR DES CONCENTRATIONS DE TRITIUM ET DE CARBONE 14 À LEUR NIVEAU NATUREL COSMOGÉNIQUE

Ces radionucléides se distinguent en plusieurs points de ceux présentés précédemment. Ils sont tout d'abord produits naturellement par interaction du rayonnement cosmique avec des atomes de la haute atmosphère (d'où le terme « cosmogénique ») ; leur libération lors des explosions nucléaires est venue s'ajouter à cette production naturelle. Par ailleurs, contrairement aux autres radionucléides dont les retombées ont été spatialement hétérogènes et pour lesquels les sols constituent le réservoir qui alimente toutes les autres composantes de l'environnement, le réservoir de tritium et de carbone 14 pour l'ensemble de la biosphère reste l'air. Ces radionucléides intègrent les végétaux par la photosynthèse et dès lors suivent les cycles de la matière organique et de l'eau (dans le cas du tritium). De ce fait, si l'on excepte une possible influence marine locale dans les zones côtières, les concentrations en tritium et en carbone sont spatialement homogènes au sein des milieux atmosphériques et continentaux (terrestres et aquatiques) d'une part, et du milieu marin d'autre part (en raison de leur forte capacité de dilution, les eaux marines ont été très peu influencées par les retombées des essais nucléaires se distinguant donc ainsi des milieux atmosphériques et continentaux). Cette homogénéité et les spécificités des transferts de ces deux radionucléides permettent de disposer d'indicateurs de concentrations spécifiques communs à toutes les composantes de l'environnement. Il s'agit pour le carbone 14, de l'activité de carbone 14 par unité de masse de carbone (Bq/kg de carbone) et pour le tritium de l'activité volumique exprimée en Bq/L d'eau, qu'il s'agisse d'eau de pluie, de cours d'eau, d'eau marine, d'eau contenue dans les organismes vivants ou d'eau issue de l'hydrogène contenu dans la matière organique. Ces indicateurs permettent de caractériser le bruit de fond de ces radionucléides dans l'environnement de manière beaucoup plus précise que les activités massiques et volumiques habituelles (Bq/kg frais ou sec ou Bq/L dans un échantillon), auxquelles elles sont cependant directement liées. Cette précision leur confère une meilleure sensibilité à détecter de très faibles influences des rejets d'une installation nucléaire et aussi la possibilité de suivre également avec précision, l'évolution temporelle des concentrations de ces deux radionucléides.

Avant les essais nucléaires, les concentrations de carbone 14 et de tritium étaient de 226 Bq/kg de carbone et de 0,1 à 0,6 Bq/L respectivement. Après avoir fortement augmenté

lors des essais atmosphériques nucléaires pour atteindre des valeurs maximales en 1963 de 420 Bq/kg de carbone et près de 600 Bq/L respectivement, elles ont ensuite diminué rapidement au cours des années 1960 et 1970, plus lentement par la suite. En milieu continental, entre 2010 et 2020, les activités de carbone 14 ont diminué de 235 à 225 Bq/kg de carbone et celle de tritium de 1,7 à 0,9 Bq/L. La diminution des concentrations en carbone 14 est due principalement à sa dilution liée à l'augmentation de la teneur de l'air en CO₂ d'origine fossile (combustion du pétrole notamment) qui en est dépourvu et à son piégeage sédimentaire partiel dans les fonds marins. Sur la même période, les activités de carbone 14 ont diminué de 240 à 228 Bq/kg de carbone ; à la même vitesse donc mais avec un retard d'environ 4 années qui s'explique en partie par la décomposition de matière organique ancienne au fond des mers et la libération de CO₂ et donc du carbone 14 qu'elle contient. On rappelle, que les concentrations du tritium en milieu marin n'ont pas été influencées par les retombées des essais nucléaires et sont restées autour de 0,1 à 0,2 Bq/L.

L'activité de carbone 14 par unité de masse de carbone est donc égale aujourd'hui à sa valeur naturelle cosmogénique d'avant les essais nucléaires. Néanmoins, on estime encore autour de 6 %, la contribution des essais nucléaires au carbone 14 présent dans l'environnement. Si l'augmentation de la teneur en CO₂ de l'air se poursuit, ce qui semble inévitable pour les années à venir, les concentrations en carbone devraient diminuer en deçà de la valeur de 226 Bq/kg de carbone antérieure aux essais nucléaires. À cette valeur de 226 Bq/kg de carbone correspond des activités massiques de l'ordre de 10 à 20 Bq/kg frais dans les légumes, les fruits, le lait et les poissons, 40 à 60 Bq/kg frais dans les viandes et 90 Bq/kg dans les céréales.

En descendant en dessous de 1 Bq/L, l'activité volumique du tritium en milieux atmosphérique et continental s'est rapprochée de la valeur du bruit de fond cosmogénique, comprise entre 0,1 et 0,6 Bq/L. Il sera intéressant de suivre cette évolution dans les années à venir pour voir si elle se stabilisera effectivement au niveau qu'elle avait avant les essais nucléaires. On rappelle qu'à une activité volumique de 1 Bq/L d'eau de séchage ou de combustion de la matière organique, correspondent des activités massiques ou volumiques voisines ou légèrement inférieures à 1 Bq/kg dans les organismes vivants et notamment dans les denrées d'origine continentale.

Enfin, il est également intéressant de signaler que la présente étude permet de disposer désormais d'une gamme de variabilité assez précise autour des valeurs de référence du bruit de fond du carbone 14 et du tritium. Ces gammes de variabilité permettront de mettre plus facilement en évidence de très faibles influences des rejets des installations nucléaires.

8 5 LES EXPOSITIONS DE LA POPULATION FRANÇAISE AU BRUIT DE FOND DES RADIONUCLÉIDES ARTIFICIELS DANS L'ENVIRONNEMENT

Exposition à la rémanence des retombées des essais nucléaires atmosphériques _

En 1963, au plus fort des retombées radioactives des essais atmosphériques d'armes nucléaires, la dose moyenne reçue par la population française a été estimée à 320 μSv (0,32 mSv) sur l'année, principalement par ingestion de denrées contaminées. Cette dose a ensuite diminué grâce à l'arrêt des essais américano-soviétiques, puis des essais chinois en 1980⁽⁸³⁾. Durant toute cette période, une vingtaine de radionucléides contribuaient à cette dose, notamment des radionucléides de période courte (inférieure à 3 ans).

L'exposition actuelle de la population aux retombées des essais atmosphériques d'armes nucléaires est principalement liée à l'incorporation de strontium 90 et de carbone 14 par ingestion de denrées. La dose efficace due à l'incorporation de strontium 90 par un adulte est estimée à 1,3 $\mu\text{Sv}/\text{an}$. Celle résultant de l'incorporation de carbone 14 hérité des essais nucléaires ne représente que quelques pourcents de la dose due au carbone 14 d'origine naturelle ; une valeur majorante de 1 $\mu\text{Sv}/\text{an}$ est retenue pour la présente étude. Les doses liées à l'incorporation de tritium et d'actinides (isotopes du plutonium et américium 241) sont, au regard de celles liées au strontium 90 et carbone 14, insignifiantes pour le tritium (entre 0,008 et 0,018 $\mu\text{Sv}/\text{an}$) et négligeables pour les actinides (inférieure à 0,1 $\mu\text{Sv}/\text{an}$). S'agissant de l'exposition liée au césium 137, il n'est plus possible aujourd'hui de distinguer la contribution des essais nucléaires de celle des retombées de l'accident de Tchernobyl. Les expositions au césium 137 rémanent de l'accident de Tchernobyl étant souvent majoritaires dans l'ouest du pays et largement prédominantes dans l'est, elles sont présentées dans le chapitre suivant dédié aux retombées de cet accident.

Exposition à la rémanence des retombées de l'accident de Tchernobyl _

En 1986, la dose efficace reçue par les adultes habitant le tiers est du pays a été en moyenne de 750 μSv (soit 0,75 mSv) (mai-décembre 1986), alors qu'elle n'a pas atteint 100 μSv (soit 0,10 mSv) pour les habitants de l'Ouest. L'essentiel (70 %) de cette dose reçue en 1986 a résulté de l'ingestion de denrées contaminées, le reste ayant résulté de l'exposition externe au rayonnement du césium présent dans les sols. En raison de la diminution rapide de la contamination en césium des denrées et de la disparition de l'iode 131 par décroissance radioactive, la dose par ingestion a fortement diminué dans les mois qui ont suivi les dépôts et la contribution de l'exposition externe au rayonnement émis par les césiums 134 et 137 présents dans les sols est devenue prépondérante dès 1987. En 2006, cette dernière voie d'exposition représentait 85 % de la dose efficace totale. En raison de la décroissance radioactive du césium 134 cette exposition externe n'est désormais liée qu'au seul césium 137 et elle a diminué régulièrement au fil des années en raison principalement de la décroissance radioactive, de l'enfouissement progressif du césium dans les sols et de pertes résultant du drainage des sols.

À partir des teneurs en césium 137 mesurées entre 2008 et 2019 dans les différentes catégories de denrées, les doses liées à l'incorporation de césium 137 par ingestion ont été estimées à 1 $\mu\text{Sv}/\text{an}$ (soit 0,001 mSv/an) pour des adultes résidant hors des zones de rémanence élevée des retombées anciennes (ZRE) et à 4,0 $\mu\text{Sv}/\text{an}$ (soit 0,004 mSv/an) pour des adultes résidant en ZRE. Les denrées naturelles comme les champignons et les gibiers dont les concentrations en césium 137 peuvent être très supérieures à celles des denrées issues de l'agriculture et de l'élevage, contribuent à plus de 50 % de la dose liée à l'incorporation de césium 137 par ingestion de denrées. Une forte consommation de ces denrées peut conduire à des doses nettement supérieures aux doses par ingestion indiquées ci-dessus. Ainsi, une personne qui prendrait deux fois par mois un repas composé de 200 g de gibier et 100 g de champignons présentant les teneurs en césium 137 les plus élevées mesurées en France, recevrait une dose de 80 $\mu\text{Sv}/\text{an}$ (soit 0,08 mSv/an). Cette dose pourrait atteindre 500 $\mu\text{Sv}/\text{an}$ (soit 0,50 mSv/an) pour un très gros consommateur de ces denrées qui prendrait deux repas de ce type par semaine.

(83) Les essais français au Sahara et britanniques ont contribué de manière négligeable à ces retombées ; les essais atmosphériques français du Pacifique qui se sont prolongés jusqu'en 1974, ont essentiellement concerné l'hémisphère sud.

Les doses efficaces externes annuelles peuvent être estimées à partir des mesures de débits d'équivalent de dose du césium 137 ou d'activités massiques de ce radionucléide dans les sols. La convergence entre ces deux types d'estimation de débit de dose (les débits d'équivalent de dose directement mesurés et ceux calculés à partir des activités massiques de ce radionucléide mesurées dans les sols) est satisfaisante. Les résultats de ces estimations de doses efficaces externes montrent que hors ZRE, la population est exposée entre 3 et 6 μSv par an (soit entre 0,003 et 0,006 mSv par an). Pour la population résidant en ZRE, les doses efficaces externes dues au césium 137 sont estimées entre 10 et 40 μSv par an (soit entre 0,01 et 0,04 mSv par an).

- Exposition à la rémanence des retombées de l'accident de Fukushima _

Bien que très éloignée de la centrale nucléaire de Fukushima-Daiichi, la France métropolitaine a été affectée par des masses d'air faiblement contaminées du fait des rejets liés à l'accident survenu en mars 2011 sur cette installation. Cette influence a cependant été très faible et très limitée dans le temps, principalement entre le 20 mars et fin avril 2011. Ces concentrations ont ensuite décliné : l'iode 131 n'était plus décelable dès le mois de mai, le césium 134 quelques mois plus tard et les activités de césium 137 sont revenues dans ce délai aux niveaux qu'elles avaient avant l'accident. Les doses efficaces maximales reçues par un adulte ont été estimées inférieures à 2 μSv (soit 0,002 mSv) pour l'année 2011 ; elles sont négligeables depuis.

- Bilan dosimétrique _

Au total la dose due au bruit de fond des radionucléides artificiels dans l'environnement français métropolitain et hérités des retombées anciennes, retenue dans ce bilan, est de 46 $\mu\text{Sv}/\text{an}$ pour les 4 086 322 personnes résidant sur les zones de rémanence élevée de ces retombées (ZRE), et à 9,3 $\mu\text{Sv}/\text{an}$ pour les 60 382 470 personnes résidant sur le reste du territoire. La dose pondérée reçue par l'ensemble de la population française correspondante est de 12 $\mu\text{Sv}/\text{an}$.

L'exposition externe au césium 137 présent dans les sols est prépondérante et représente entre 64 % hors zone de rémanence et jusqu'à 86 % sur les zones de rémanence. Pour les personnes qui ne consomment pas de champignons et de gibiers provenant de ZRE, la dose due à l'ingestion de denrées est principalement liée à deux radionucléides rémanents des retombées des essais nucléaires : le strontium 90 et le carbone 14. La dose imputable au plutonium et à l'américium 241 ainsi qu'au tritium est négligeable : inférieures

à 1 % pour la majeure partie de la population et à 0,2 % pour ceux vivant en ZRE.

Certaines de ces estimations sont pénalisantes. Ainsi, ce sont les moyennes régionales les plus élevées des mesures de débit de dose dû au césium 137 qui ont été retenues tant sur les zones de rémanence élevée qu'ailleurs. De même, le faible nombre de données sur les actinides dans certaines denrées n'a pas permis d'estimer de moyennes représentatives ; les valeurs retenues pour estimer les doses sont alors majorantes (ce sont par exemple les valeurs mesurées sur des échantillons de foies, abat réputé pour présenter des activités massiques plus élevées que les muscles, qui ont été affectées aux viandes dont les activités sont trop faibles pour être mesurables).

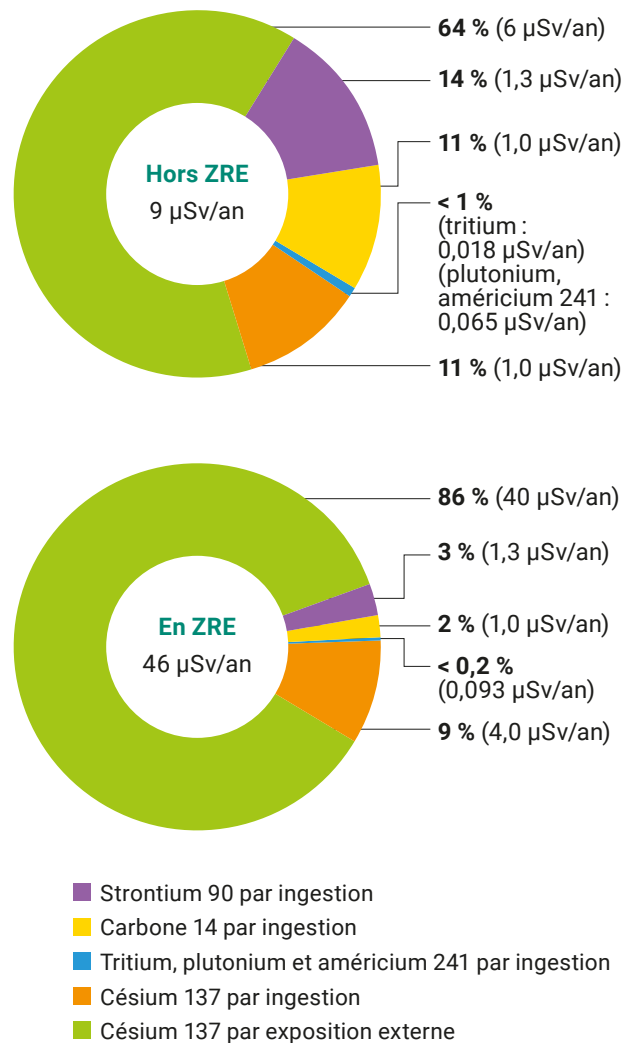


Figure 100. Bilan des doses reçues par la population française et dues au bruit de fond des radionucléides artificiels dans l'environnement.

8 6 L'APPORT DES CONSTATS RADIOLOGIQUES RÉGIONAUX

La surveillance radiologique de l'environnement porte essentiellement sur le voisinage des sites nucléaires. Hors tritium et carbone 14, et hors de la zone d'influence des rejets de La Hague, les données acquises dans ce cadre peuvent être considérées comme représentatives du bruit de fond des radionucléides artificiels. Toutefois, ces données portent sur un nombre limité de types d'échantillons : herbages, légumes feuilles et lait principalement. Par ailleurs, la quantification par la mesure des très bas niveaux d'activités massiques et volumiques correspondant à ce bruit de fond, nécessite d'utiliser les moyens métrologiques les plus performants disponibles à l'IRSN.

Les constats radiologiques régionaux avaient pour principal objectif de quantifier ces niveaux notamment dans les denrées par des prélèvements d'échantillons à distance des installations nucléaires (ou en amont dans le cas des cours d'eau).

Cet objectif a été pleinement rempli. Les constats régionaux ont fortement contribué, voire ont été déterminants, pour la connaissance du bruit de fond des radionucléides artificiels avec entre 30 % et 70 % des résultats de mesure disponibles sur la période 2008-2019 pour le césium 137 et le strontium 90 dans les légumes, les fruits, les viandes et les fromages. De plus, les niveaux de césium 137 dans les zones de rémanence élevée ont été principalement caractérisés dans le cadre du constat radiologique qui leur a été consacré. C'est notamment le cas des activités les plus élevées mesurées dans les champignons, les baies et les gibiers.

Dans le cas du tritium et du carbone 14, les analyses de denrées faites dans le cadre des constats radiologiques régionaux ont permis de confirmer l'assertion théorique que les herbages et les feuilles d'arbre prélevés dans le cadre de la surveillance de routine sont bien représentatifs des niveaux d'activités massiques et volumiques des denrées alimentaires.

Les résultats de la surveillance radiologique du milieu aquatique continental portant principalement sur les grands cours d'eau en aval des points de rejets des installations nucléaires, les constats « Sud-Ouest » et « Normandie et Hauts-de-France » permettent de disposer de données sur les eaux, les plantes aquatiques, les sédiments et dans une moindre mesure sur des poissons prélevés dans une vingtaine de plus petits cours d'eau.

Le constat radiologique « Méditerranée » a permis d'élargir la connaissance du bruit de fond, au tritium, au carbone 14 et aux actinides ; cette connaissance était auparavant essentiellement limitée au seul césium 137.

De plus, les constats radiologiques « Nord-Est » et « Vallée du Rhône » ont permis d'actualiser les connaissances des bruits de fond radiologiques liés à des rejets passés : celui du tritium rémanent des rejets des industries horlogères dans les cours d'eau de Franche-Comté, celui du plutonium dans les zones anciennement influencées par les rejets du site de Marcoule.

Enfin, les mesures du débit de dose dû au césium 137 sur les zones de rémanence élevée effectuées dans le cadre du constat radiologique dédié, ont permis de caractériser la principale contribution aux doses reçues par les populations résidant sur ces zones.

Outre les données acquises dans leur cadre, les constats radiologiques régionaux ont également été l'opportunité de synthétiser l'ensemble des données sur le bruit de fond radiologique français et de mettre à jour les estimations des doses dues à ce bruit de fond.

Bibliographie

- **Antonelli Ch. (2016).** Bilan des mesures acquises de la Station Observatoire du Rhône à Arles entre 2012 et 2015. PRP-ENV/SESURE/2016-14.
- **ASN (2010 et 2018).** Autorité de Sûreté Nucléaire : Livre blanc sur le tritium. Autorité de Sûreté Nucléaire.
- **Baudin-Jaulent Y. et Foulquier L. (1989).** Impact radioécologique de l'accident de Tchernobyl sur les écosystèmes aquatiques continentaux. Commission des communautés européennes – Radioprotection -50. Rapport XI-3522/90 FR 1989.
- **Brimo, K., Pourcelot, L., Métivier, J.M., Gonze, M.A. (2021).** Evaluation of semi-mechanistic models to predict soil to grass transfer factor of ^{137}Cs based on long term observations in French pastures. *Journal of Environmental Radioactivity*, 227, no. 106467.
- **Brimo, K., Gonze, M.A., Pourcelot, L. (2019).** Long term decrease of ^{137}Cs bioavailability in French pastures : Results from 25 years of monitoring. *Journal of Environmental Radioactivity*, 208-209, art. n°106029.
- **Calmet D., Charmasson S., Fernandez JM. et Gontier G. (1992).** Impact des retombées de l'accident de Tchernobyl sur la distribution des radionucléides anthropogènes du bassin méditerranéen nord-occidental. Rapport CEA/IPSN/DPEI CEA-R-5584. 1992.
- **Descamps B. et Baudin-Jaulent Y. (1988).** Évolution de l'impact radioécologique de l'accident de Tchernobyl dans trois bassins fluviaux français. Impact des accidents nucléaires sur l'environnement. IV^e symposium international de radioécologie, Cadarache 1988.
- **Évrard O., van Beek P., Gateuille D., Pont V., Lefevre I., et al. (2012).** Evidence of the radioactive fallout in France due to the Fukushima nuclear accident. *Journal of Environmental Radioactivity*, Elsevier, 2012, 114, pp.54-60.
- **Ducros L., Eyrolle F., Della Vedova C., Charmasson S., Leblanc M., Mayer A., Babic M., Antonelli Ch., Moutier D. et Giner F. (2018).** Tritium in rivers waters from the French Mediterranean catchments : Background levels and variability. *Science of the Total Environment* 612 pp672-682. 2018.
- **Duffa Céline (2001).** Répartition du plutonium et de l'américium dans l'environnement terrestre de la basse vallée du Rhône. Thèse de doctorat de l'université d'Aix-Marseille III.
- **Duffa C., Renaud Ph. ^{238}Pu and $^{239+240}\text{Pu}$ inventory and distribution through the lower Rhone valley terrestrial environment (Southern France). *Science of the Total Environment*. 348 (1-3). Pages 164-172. 2005.**
- **Eyrolle F., Claval D., Gontier G. and Antonelli Ch. (2008).** Radioactivity levels in major French rivers : summary of monitoring chronicles acquired over the past thirty years and current status. *Journal of Environmental Monitoring*. 10 pp800-811. 2008.
- **Eyrolle F. (2009).** Chroniques des niveaux d'activité au sein des systèmes aquatiques fluviaux français ; radionucléides émetteurs gamma, ^{90}Sr et isotopes du plutonium. Rapport DEI/SESURE/2009-29.
- **Eyrolle-Boyer F., Boyer P., Claval D. et Charmasson S. (2013).** Apparent enrichment of organically bound tritium in rivers explained by the heritage of our past. *J. of Environmental radioactivity* 136 pp162-168. 2013.
- **Eyrolle F., Claval D., Calmon Ph., Zebarki M., Cossonnet C., Gairoard S., Radaovitch O., and Leclerc E. (2015).** Tritium and ^{14}C background levels in pristine aquatic systems and their potential source of variability. *Journal of Environmental Radioactivity*. 139 pp24-32. 2015.
- **Eyrolle F., Legage H., Copard Y., Ducros L., Claval D., Saey L., Cossonnet C., Giner F. and Mourier D. (2018).** A brief history of origins and contents of organically bound tritium and ^{14}C in the sediments of the Rhône watershed. *Science of the Total Environment* 643 pp40-51. 2018.
- **Eyrolle F., Ducros., Le Dizès S., Beaugelin-Seiller., Charmasson., Boyer P., et Cossonnet C. (2018).** An update review on tritium in the environment. *Journal of Environmental radioactivity* 181 pp128-137. 2018.
- **Eyrolle F., Lepage H., Antonelli Ch., Morereau A., Cossonnet C., Boyer P. and Gurriaran R. (2020).** Radionucléides in waters and suspended sediments in the Rhône river (France) – Current contents, anthropic pressures and trajectories. *Science of the Total Environment* 723 n°137873. 2020.
- **Fievet B., Voiseux C., Rozet M., Masson M. et Bailly du Bois P. (2006).** Transfer of radioactive liquid releases from the AREVA La Hague spent fuel reprocessing plant in the English Channel. *Journal of Environmental radioactivity* 90 pp173-196. 2006

- **IAEA (1978)**. International Atomic Energy Agency : The Radiological Basis of the IAEA Revised Definition and Recommendations Concerning High-level Radioactive Waste Unsuitable for Dumping at Sea, IAEA-TECDOC-211, IAEA, Vienna.
- **IAEA (2004)**. International Atomic Energy Agency : Sediments distribution coefficient and concentration factors for biota in the marine environment. IAEA-Technical Reports Series n° 422. Vienna.
- **IAEA (2010)**. International Atomic Energy Agency : Handbook of parameter values for the prediction of radionuclide transfer interrestrial and freshwater environments. IAEA-Technical Reports Series n° 472. Vienna.
- **IRSN (2010)**. Constat radiologique régional « Val de Loire ». Rapport IRSN/DEI/SESURE/2010-22.
- **IRSN (2012)**. Constat radiologique « Vallée du Rhône ». Rapport relatif au milieu terrestre. Rapport IRSN/PRP-ENV/SESURE/2012-06.
- **IRSN (2013)**. Constat radiologique « Vallée du Rhône ». Rapport relatif au milieu aquatique. IRSN/PRP-ENV/SESURE/2013-37.
- **IRSN (2014)**. Constat radiologique « Vallée du Rhône » – Étude complémentaire du milieu atmosphérique. Rapport IRSN/PRP-ENV/SESURE/2014-38.
- **IRSN (2016)**. Constat radiologique « Rémanence de la radioactivité d'origine artificielle ». Rapport IRSN 2015-41.
- **IRSN (2020)**. Constat radiologique « Sud-Ouest ». Rapport IRSN-2020.
- **IRSN (2020)**. Constat radiologique « Nord-Est ». Rapport IRSN/2020-00449.
- **IRSN (2020)**. Constat radiologique « Méditerranée ». Rapport IRSN/2020-00895.
- **IRSN (2021)**. Constat radiologique « Normandie et Hauts-de-France ». Rapport IRSN-2021-00561.
- **IRSN (2021)**. Bilan de l'état radiologique de l'environnement français de 2018 à 2020. Rapport IRSN 2021-00765.
- **Le Roux G., Duffa C., Vray F., Renaud Ph.** Deposition of Artificial Radionuclides from Atmospheric Nuclear Weapon Tests Estimated by Soil Inventories in French Areas Low-Impacted by Chernobyl. *Journal of Environmental Radioactivity* 101 : 211 – 218. 2009.
- **Masson et al. 2020**. Europe-wide atmospheric radionuclide dispersion by unprecedented wildfires in the Chernobyl exclusion zone, april 2020. *Environmental Science & Technology*. 2021, 55, 13834-13848.ci. Technol.
- **Morereau A., Lepage H., Claval D., Cossonnet C., Ambrosi JP., Mourier D., Winiarski T., Copard Y. et Eyrolle F. (2020)**. Trajectories of technogenic tritium in the Rhône river (France). *Journal of environmental radioactivity* 106370. 2020.
- **Pourcelot, L., Steinmann, P., Froidevaux, P. 2007**. Lower variability of radionuclide activities in upland dairy products compared to soils and vegetation : Implication for environmental survey. *Chemosphere*, 66 (8), pp. 1571 – 1579
- **Pourcelot L, Renaud Ph, Louvat D, Gurriaran R et Richon P. (2003)**. Influence des points de concentration en ¹³⁷Cs sur la contamination d'une chaîne alimentaire alpine et estimation des doses associées. *Environnement Risque et Santé*. Vol 2-2. Mars-avril 2003.
- **Renaud Ph., Louvat D. et Vray F. (2003)**. Les retombées en France des essais atmosphériques d'armes nucléaires ; production, dispersion atmosphérique et dépôt des produits de fission et d'activation. Rapport IRSN/DEI/SRSURE 2003/03 – 2003.
- **Renaud Ph. et Louvat D. (2004)**. Magnitude of fission products deposits from atmospheric nuclear test fallout in France. *Health Physics*, 86 (4), 353-358. 2004.
- **Renaud Ph. Champion D. et Brenot J.** Les retombées radioactives de l'accident de Tchernobyl sur le territoire français : conséquences environnementales et exposition des personnes. Livre Éditions TEC & DOC Lavoisier, collection Sciences et Techniques. 190 pages. ISBN 978-2-7430-1027-0. 2007.
- **Renaud Ph. (2019)**. Les transferts des radionucléides dans les chaînes alimentaires : Éléments de radioécologie opérationnelle. Les Techniques de l'Ingénieur. BN3908. 2019.
- **Renaud Ph. (2019)**. Influence des rejets radioactifs normaux des installations nucléaires françaises sur leur environnement et expositions des populations : Éléments de radioécologie opérationnelle. Les Techniques de l'Ingénieur. BN3909. 2019.
- **Renaud Ph. (2020)**. Les transferts des radionucléides dans l'air, les sols et les cours d'eau : Éléments de radioécologie opérationnelle. Les Techniques de l'Ingénieur. BN3907. 2020.
- **Renaud Ph. et Bouisset P. (2020)**. Éléments de connaissance de l'IRSN concernant les retombées des essais nucléaires atmosphériques français sur la Polynésie in « Essais nucléaires et Santé : conséquences sur la Polynésie ». Éditions EDP Sciences, 2020 978-2-7598-2472-4.

- **Roussel-Debet S., Renaud Ph., et Métivier J.M.** ¹³⁷Cs in french soils : Deposition pattern and fifty years évolution (2007). *Science of the Total environment* 374 pp388-398. 2007
- **Roussel-Debet S. (2007).** Evaluation of carbone 14 dose since the end on the 1950s in metropolitan France. *Radioprotection* 42 (3) pp297-313. 2007.
- **Roussel-Debet S., Gontier G., Siclet F. et Fournier M. (2006).** Distribution of carbone 14 in the terrestrial environment close to french nuclear power plant. *Journal of Environmental Radioactivity*, 87 pp246-259. 2006.
- **Roussel-Debet S (2014).** Données utiles à l'interprétation des mesures de carbone 14 en milieu terrestre. *Radioprotection* 49 (1) pp 49-54. 2014.
- **Roussel-Debet S. (2014).** Bruit de fond du tritium en milieu terrestre. *Radioprotection* 49 (2) pp139-142. 2014.
- **Saey, L., Pourcelot L., Parache V., Roussel-Debet S., Gurriaran R., Orjollet D., Leblanc F. et Renaud Ph. (2012).** Facteurs de transfert du césium au lait et à la viande déterminés à partir de mesures faites en France en 2011 à la suite de l'accident de Fukushima-Daiichi. *Radioprotection* Vol. 48, n° 3, pages 341 à 354
- **UNSCEAR (2000).** Source and Effects of Ionizing Radiation. Volume I : Sources. pp20-287, United Nations, New York.
- **United States Environmental Protection Agency (EPA).** External exposure to radionuclides in air, water and soil ; Federal Guidance Report n° 12 ; 1993.
- **Vray F. et Renaud Ph. (2004).** Contamination de la chaîne alimentaire par les produits de fission et d'activation émis lors des essais aériens d'armes nucléaires. Rapport IRSN/DEI/SRSURE 2004/19. 2004.
- **Vray F. et Renaud Ph. (2006).** Évaluation des conséquences dosimétriques des essais aériens d'armes nucléaires en France métropolitaine ; période 1961-1978. Rapport IRSN/DEI/SESURE n° 2006/03. 2006.
- **Vray F., Debayle C. et Métivier J.M.** Étude de la dynamique du drainage du césium 137 présent sur les bassins versants des cours d'eau français (2005). Rapport IRSN/DEI/SESURE-2005-001.

Table des illustrations et des tableaux

■ Illustrations

Figure 1. Activités volumiques des principaux radionucléides mesurés dans l'air en France depuis 1959 ($\mu\text{Bq}/\text{m}^3$).....	5
Figure 2. Carte des activités surfaciques de césium 137 déposées sur les sols français à l'issue des essais atmosphériques d'armes nucléaires.	11
Figure 3. Carte des activités surfaciques de césium 137 déposées sur les sols français en mai 1986 à l'issue des retombées de l'accident de Tchernobyl (Renaud <i>et al.</i> , 2007).	11
Figure 4. Diminution de 1991 à 2016 des activités massiques et volumiques de césium 137 dans un sol de prairie (ronds rouges en Bq/kg sec), dans de l'herbe (carrés verts en Bq/kg sec) et dans du lait (losanges bleus en Bq/L) prélevés dans les environs du CNPE de Chooz (Bq/kg sec).	14
Figure 5. Évolution des activités massiques de césium 137 avec la profondeur (profils de contamination) mesurées dans deux carottes de sols de prairie et de forêt prélevées à Aubure dans le Haut-Rhin en 2014 (IRSN, 2016).	15
Figure 6. Activités massiques de césium 137, min, max et moyennes, en Bq/kg de sol sec, mesurées par l'IRSN et Subatech dans des échantillons de sols cultivés prélevés entre 2008 et 2018 sur une profondeur de 20 cm. Pour chaque ensemble géographique figure entre parenthèses, les inventaires (Bq/m^2) déduits des activités massiques, le nombre de résultats de mesure et le nombre de communes de provenance des échantillons.....	17
Figure 7. Activités de césium 137, min, max et moyennes en Bq/kg de sol sec, mesurées par l'IRSN et Subatech dans des échantillons de sols de prairie prélevés entre 2008 et 2018 (en 2006 et 2007 dans le cas de certains échantillons de Franche-Comté et du Massif central) sur une profondeur de 5 cm. Pour chaque ensemble géographique figure entre parenthèses, le nombre de résultats de mesure et le nombre de communes de provenance des échantillons.	18
Figure 8. Inventaire de césium 137, en Bq/m^2 , estimés pour 49 sols prélevés dans le cadre du constat sur les zones de rémanence élevée des retombées anciennes (IRSN, 2016).	18
Figure 9. Évolution des activités volumiques de césium 137 dans le lait de vache produit sur 4 localités de 1961 à 1982 (Bq/L).....	20
Figure 10. Évolution schématique des activités massiques et volumiques (Bq/kg frais et Bq/L) de césium 137 dans les principales catégories de denrées produites en France de 1986 à 2006 (Renaud <i>et al.</i> , 2007).	20
Figure 11. Évolution des activités volumiques (Bq/L) de césium 137 mesurées dans le lait produit en France de 1966 à 2013 (IRSN, 2016).	21
Figure 12. Activités massiques de césium 137, min, max et moyennes en Bq/kg de végétal sec, mesurées par l'IRSN et Subatech dans des échantillons d'herbages prélevés entre 2008 et 2018. Pour chaque ensemble géographique figure entre parenthèses, le nombre de résultats de mesure et le nombre de communes de provenance des échantillons.	22
Figure 13. Activités volumiques de césium 137, min, max et moyennes en Bq/L , mesurées par l'IRSN dans des échantillons de lait de vache collectés entre 2008 et 2018. Pour chaque ensemble géographique figure entre parenthèses, le nombre de résultats de mesure et le nombre de communes de provenance des échantillons.	23
Figure 14. Activités volumiques de césium 137, min, max et moyennes en Bq/L , mesurées par l'IRSN dans des échantillons de lait de vache collectés entre 2008 et 2018 dans 10 localités différentes. Le nombre de résultats de mesure est indiqué entre parenthèses.....	24
Figure 15. Activités massiques de césium 137, en Bq/kg frais, mesurées par l'IRSN dans des échantillons de fromages collectés entre 2008 et 2018. Les « bâtons » représentent les seuils de décision des mesures non significatives.	25
Figure 16. Activités massiques de césium 137, min, max et moyennes en Bq/kg frais, mesurées par l'IRSN et Subatech dans des échantillons de salades collectés entre 2008 et 2018. Le nombre de résultats de mesure et le nombre de localités sont indiqués entre parenthèses.	26
Figure 17. Activités massiques de césium 137, min, max et moyennes en Bq/kg frais, mesurées par l'IRSN et Subatech dans des échantillons de salades collectés entre 2008 et 2018 autour de 16 sites d'EdF. Le nombre de résultats de mesure et le nombre de localités sont indiqués entre parenthèses.....	27

- Figure 18.** Activités massiques de césium 137, en Bq/kg frais, dans des échantillons de légumes autres que des salades collectés entre 2008 et 2019. Les « bâtons » représentent des seuils de décision..... 28
- Figure 19.** Activités massiques de césium 137, en Bq/kg frais, mesurées par l'IRSN dans des échantillons de céréales et de colza collectés entre 2008 et 2019. Les « bâtons » représentent des seuils de décision..... 29
- Figure 20.** Activités massiques de césium 137, en Bq/kg frais, mesurées par l'IRSN dans des échantillons de fruits et de baies collectés entre 2008 et 2019. Les « bâtons » représentent des seuils de décision..... 30
- Figure 21.** activités volumiques de césium 137, en Bq/L mesurées dans des échantillons de cidres et de vins collectés entre 2008 et 2018. Les « bâtons » représentent des seuils de décision..... 31
- Figure 22.** Activités massiques de césium 137, en Bq/kg frais, mesurées dans des échantillons de viandes de bœuf, de vache de réforme et de taureau collectés entre 2008 et 2019. Les « bâtons » représentent des seuils de décision..... 32
- Figure 23.** Activités massiques de césium 137, en Bq/kg frais, mesurées dans des échantillons de viandes de porc, de volaille, de mouton et de cheval collectés entre 2008 et 2019. Les « bâtons » représentent des seuils de décision..... 33
- Figure 24.** Activités massiques de césium 137, en Bq/kg frais, mesurées par l'IRSN dans des échantillons de viandes de gibiers collectés entre 2008 et 2019..... 34
- Figure 25.** Activités massiques de césium 137, min max, et moyennes en Bq/kg frais, mesurées dans des échantillons de champignons prélevés en France entre 2008 et 2018..... 36
- Figure 26.** Activités massiques de césium 137 (en Bq/kg sec) mesurées dans des plantes aquatiques prélevées en amont (de toutes les installations nucléaires) de grand cours d'eau français de 1979 à 2018..... 39
- Figure 27.** Activités massiques de césium 137 (en Bq/kg frais) mesurées dans des échantillons de poissons prélevés en amont (de toutes les installations nucléaires) de grand cours d'eau français de 1973 à 2018..... 40
- Figure 28.** Activités massiques de césium 137 (moyennes, min et max) dans les sédiments mesurés par l'IRSN dans des cours d'eau français depuis 2008 (Bq/kg sec).....41
- Figure 29.** Activités massiques de césium 137 (min, max et moyennes en Bq/kg sec) mesurées dans des plantes prélevées dans des cours d'eau français et analysées par l'IRSN et Subatech entre 2008 et 2019... 42
- Figure 30.** Activités massiques de césium 137 (min, max et moyennes en Bq/kg frais) mesurées dans des échantillons de poissons d'eau douce analysés par l'IRSN et Subatech entre 2008 et 2019. Le nombre de résultats de mesure est entre parenthèses..... 43
- Figure 31.** Évolution des activités massiques de césium 137 dans les moules de Méditerranée de 1992 à 2015 (Bq/kg frais) (IRSN, 2020)..... 45
- Figure 32.** Évolution des activités massiques de césium 137 dans les poissons de Méditerranée de 1992 à 2015 (Bq/kg frais) (IRSN, 2020)..... 45
- Figure 33.** Activités volumiques de césium 137 dans des échantillons d'eau de mer analysés par l'IRSN entre 2008 et 2019 (en Bq/L). Le nombre de résultats de mesure figure entre parenthèses..... 46
- Figure 34.** Activités massiques de césium 137 mesurées par l'IRSN depuis 2008 (Bq/kg sec)..... 47
- Figure 35.** Activités massiques de césium 137 dans des échantillons de coquillages analysés par l'IRSN entre 2008 et 2019 (en Bq/kg frais). Le nombre de résultats de mesure figure entre parenthèses..... 48
- Figure 36.** Activités massiques de césium 137 dans des échantillons de poissons analysés par l'IRSN entre 2008 et 2019 (en Bq/kg frais). Le nombre de résultats de mesure figure entre parenthèses..... 49
- Figure 37.** Contributions des voies d'atteinte et des catégories de denrées à la dose efficace moyenne due au césium 137 présent dans l'environnement, estimée pour un adulte ne résidant pas dans les zones les plus touchées de France (Roussel-Debet *et al.*, 2007). 51
- Figure 38.** Dose efficace totale pour des adultes liée à l'incorporation de césium 137 par ingestion de denrées produites en France en 2020 en dehors des zones de rémanence élevée des retombées anciennes et contributions des différentes catégories de denrées (en %). 54

Figure 39. Dose totale liée à l'incorporation de césium 137 par ingestion de denrées produites en France en 2020 pour des adultes consommant en partie des denrées provenant des zones de rémanence élevée des retombées anciennes et contributions des différentes catégories de denrées (en %).	54	Figure 51. Activités massiques de strontium 90 mesurées par l'IRSN depuis 2008 dans des échantillons de légumes et de fruits (Bq/kg frais).....	70
Figure 40. Débits d'équivalents de dose (nSv/h) mesurés dans des zones de rémanence élevée des retombées anciennes du Jura, d'Alsace et des Vosges ; contribution des différentes sources et notamment du césium 137.	55	Figure 52. Activités volumiques du strontium 90 dans les eaux filtrées mesurées par l'IRSN sur la période 2008-2019 (Bq/L).	71
Figure 41. Débits d'équivalents de dose (nSv/h) mesurés dans des régions faiblement touchées par les retombées anciennes (région parisienne et Normandie), dans une zone de rémanence élevée des Alpes en altitude (Mercantour) et sur des « points chauds » de re-concentration du césium 137.....	56	Figure 53. Évolution temporelle des activités massiques de strontium 90 dans les plantes aquatiques prélevées dans différents fleuves ou rivières depuis 1975 (Bq/kg sec).....	72
Figure 42. Débits d'équivalents de dose dus au césium 137 (min, max et moyennes en nSv/h) mesurés dans l'environnement de 5 CNPE d'EdF.....	56	Figure 54. Évolution temporelle des activités de strontium 90 mesurées dans des poissons de fleuves et de rivières français depuis 1973 (Bq/kg frais).	73
Figure 43. Distribution des dépôts secs et pluvieux sur les différentes composantes d'un milieu urbain et situation 14 ans plus tard (UNSCEAR, 2008).....	61	Figure 55. Doses efficaces totales pour des adultes liées à l'incorporation de strontium 90 par ingestion de denrées produites en France entre 2008 et 2019 (en μ Sv/an) et contribution des différentes catégories de denrées (en %).	76
Figure 44. Carte des activités surfaciques de strontium 90 déposées sur les sols français à l'issue des essais atmosphériques d'armes nucléaires.	62	Figure 56. Carte des activités surfaciques de plutonium 239+240 déposées sur les sols français à l'issue des essais atmosphériques d'armes nucléaires.	78
Figure 45. Évolution des activités massiques de strontium 90 dans des échantillons de sols français analysés par l'IRSN depuis 1975.....	64	Figure 57. Évolution dans le temps des rapports d'activités isotopiques des isotopes du plutonium et de l'américium 241.	79
Figure 46. Évolution des activités massiques de strontium 90 dans des échantillons de sols français analysés par l'IRSN depuis 1995.....	65	Figure 58. Activités massiques de plutonium 239+240 mesurées dans des couches de différentes profondeurs de différents types de sols (en Bq/kg sec) et estimation des activités surfaciques correspondantes (Bq/m ²).	83
Figure 47. Évolution des activités massiques du strontium 90, de césium 137, de plutonium 239+240 et d'américium 241, en fonction de la profondeur du sol (profils de contamination).	65	Figure 59. Rapport d'activités isotopiques ²³⁸ Pu/ ²³⁹⁺²⁴⁰ Pu observés dans les sols français.....	84
Figure 48. Évolution des activités massiques de strontium 90 dans les herbages depuis 1961 en Bq/kg sec.	67	Figure 60. Chronique temporelle des activités massiques de plutonium 239+240 dans des herbages (Bq/kg sec)....	85
Figure 49. Évolutions temporelles des activités de strontium 90 dans le lait de vache produit en France depuis 1961 (Bq/L).	68	Figure 61. Rapports d'activités ²³⁸ Pu/ ²³⁹⁺²⁴⁰ Pu observés dans des herbages.	86
Figure 50. Activités massiques de strontium 90 mesurées par l'IRSN depuis 2008 dans des fromages (Bq/kg frais).	69	Figure 62. Activités massiques et volumiques de plutonium 239+240 mesurées par l'IRSN depuis 2008 dans les échantillons de denrées terrestres (Bq/kg frais ou Bq/L). Les « bâtons » représentent des seuils de décision.....	87
		Figure 63. Activités massiques de plutonium 239+240 dans les cours d'eau français (Bq/kg sec).....	89

- Figure 64.** Activités de plutonium 239+240 dans des échantillons de poissons d'eau douce mesurés depuis 1974 par l'IRSN (Bq/kg sec).
Les « bâtons » représentent des seuils de décision..... 89
- Figure 65.** Activités massiques de plutonium 239+240 mesurées dans des algues (Bq/kg frais). 90
- Figure 66.** Activités massiques de plutonium 239+240 mesurées dans les coquillages et les poissons marins (Bq/kg frais). 91
- Figure 67.** Rapports d'activités $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ observés dans les moules de Méditerranée..... 91
- Figure 69.** Rapports d'activités $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ dans des sols à différentes profondeurs. Les ronds rouges correspondent à des sols prélevés en Camargue dans des zones inondées par les eaux du Rhône..... 92
- Figure 68.** Activités massiques d'américium 241 dans des échantillons de sols prélevés à différentes profondeurs (Bq/kg sec)..... 93
- Figure 70.** Activités massiques et volumiques d'américium 241 mesurées par l'IRSN depuis 2008 dans les échantillons de denrées terrestres (Bq/kg frais ou Bq/L). 94
- Figure 71.** Rapports d'activités $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ dans les herbages et les denrées terrestres..... 95
- Figure 72.** Activités massiques d'américium 241 mesurées par l'IRSN depuis 1979 dans les échantillons de plantes aquatiques (Bq/kg sec)..... 97
- Figure 73.** Chronique des rapports d'activités $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ dans les plantes aquatiques..... 97
- Figure 74.** Rapports d'activités $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ en milieu marin..... 98
- Figure 75.** Évolution de l'activité de carbone 14 par unité de masse de carbone dans les végétaux correspondant au bruit de fond radiologique de ce radionucléide entre 1950 et 2004 (Roussel-Debet, 2007). 100
- Figure 76.** Corrélation entre la diminution de la teneur en carbone 14 mesurée dans des végétaux prélevés en France de 1994 à 2011 (Bq/kg de C) et l'augmentation de la teneur en dioxyde de carbone de l'air (μmol de CO_2/mol d'air). 101
- Figure 77.** Évolution des activités de carbone 14 par unité de masse de carbone correspondant au bruit de fond de ce radionucléide en milieu terrestre entre 2006 et 2018. 104
- Figure 78.** Évolution des activités de carbone 14 par unité de masse de carbone correspondant au bruit de fond radiologique de ce radionucléide en milieu terrestre entre 1996 et 2018..... 105
- Figure 79.** Activités de carbone 14 par unité de masse de carbone représentatives du bruit de fond radiologique de ce radionucléide mesurées par l'IRSN dans des cours d'eau français (Bq/kg de carbone)..... 106
- Figure 80.** Évolution des activités de carbone 14 par unité de masse de carbone dans les plantes aquatiques du Roudour en amont de Brennilis, du canal d'Alsace en amont de Fessenheim, du Rhône en amont de Creys-Malville et de la Moselle en amont de Cattenom. 107
- Figure 81.** Activités de carbone 14 par unité de masse de carbone dans des plantes aquatiques prélevées dans le cadre des constats radiologiques « Normandie et Hauts-de-France » et « Sud-Ouest ». 108
- Figure 82.** Activités de carbone 14 par unité de masse de carbone dans des poissons prélevés dans la Seine, la Meuse, la Moselle, le Rhône, la Loire, la Garonne et la Vienne en amont de toute installation nucléaire..... 109
- Figure 83.** Activités de carbone 14 par unité de masse de carbone dans des poissons prélevés dans la Moselle, le Rhône et le canal d'Alsace en amont des CNPE de Cattenom, Bugey et Fessenheim. 109
- Figure 84.** Activités de carbone 14 par unité de masse de carbone dans des algues, des plantes aquatiques et des mollusques (moules et huîtres essentiellement) marins des côtes françaises de l'Atlantique et de Méditerranée. 110
- Figure 85.** Activités de carbone 14 par unité de masse de carbone dans des algues prélevées à Pornichet et Concarneau, et dans des moules prélevées à Concarneau et Banyuls..... 111
- Figure 86.** Activités de carbone 14 par unité de masse de carbone dans des poissons pêchés en différents points des côtes de l'Atlantique et de Méditerranée..... 112

Figure 87. Évolution des doses dues au bruit de fond du carbone 14 dans l’environnement estimées entre 1950 et 2005 ($\mu\text{Sv/an}$) 113

Figure 88. Évolution de l’activité volumique de moyenne de l’eau de pluie (Bq/L) mesurée à Ottawa et Thonon-les-Bains de 1953 à 2015. 114

Figure 89. Activités massiques de tritium, en Bq/kg frais, correspondant à une activité volumique de 1 Bq/L d’eau de séchage ou d’eau de combustion. 116

Figure 90. Évolution de l’activité volumique du tritium lié à la matière organique (TOL en Bq/L) en milieu terrestre depuis 1991 dans les échantillons représentatifs du bruit de fond et dans des échantillons prélevés dans un rayon de 15 à 30 km autour des sites nucléaires français (hors sites de La Hague, Valduc, Marcoule, Bruyères-le-Châtel et Grenoble ILL). Valeurs de références annuelles issues de la courbe de tendance et gamme de variabilité. 120

Figure 91. Évolutions comparées des activités de HTO dans les eaux de pluie d’Ottawa et de Thonon-les-Bains (Bq/L) et les activités de TOL (Bq/L d’eau de combustion) dans les échantillons de végétaux et produits animaux terrestres prélevés en France. 121

Figure 92. Évolution de l’activité volumique du tritium dans l’eau tissulaire (HTO en Bq/L) en milieu terrestre depuis 1991. 122

Figure 93. Activités volumiques du tritium dans les eaux de cours d’eau (Bq/L). 123

Figure 94. Évolution des activités de TOL et de HTO (en Bq/L d’eau de combustion ou de séchage) des plantes aquatiques prélevées par l’IRSN et Subatech depuis 1996 et représentatives du bruit de fond radiologique de ce radionucléide. 124

Figure 95. Évolution des activités de TOL et de HTO (en Bq/L d’eau de combustion ou de séchage) des poissons pêchés par l’IRSN et Subatech depuis 1996 en amont des sites nucléaires. 125

Figure 96. Évolution des activités de TOL (en Bq/L d’eau de combustion) des sédiments analysés depuis 1996 et collectés par l’IRSN en amont des sites nucléaires. 126

Figure 97. Activités volumiques de TOL dans des algues (Bq/L). 128

Figure 98. Activités volumiques de TOL dans des échantillons de moules et d’huîtres (Bq/L). 129

Figure 99. Activités volumiques de TOL dans des échantillons de poissons (Bq/L). 130

Figure 100. Bilan des doses reçues par la population française et dues au bruit de fond des radionucléides artificiels dans l’environnement. 138

Tableaux

Tableau 1. Doses efficaces par incorporation de césium 137 liées à l’ingestion de denrées produites en France pour un adulte en 2020. 53

Tableau 2. Activités massiques moyennes, min et max mesurées dans les 5 cm de surface des sols de prairie dans différentes régions et ZRE françaises. Moyennes, min et max des débits d’équivalent de dose ainsi que des estimations des doses efficaces annuelles correspondantes. 58

Tableau 3. Activités massiques moyennes, min et max mesurées dans les 20 cm de surface de sols cultivés de différentes régions et ZRE françaises. Moyennes, min et max des débits d’équivalent de dose ainsi que des estimations des doses efficaces annuelles correspondantes. 60

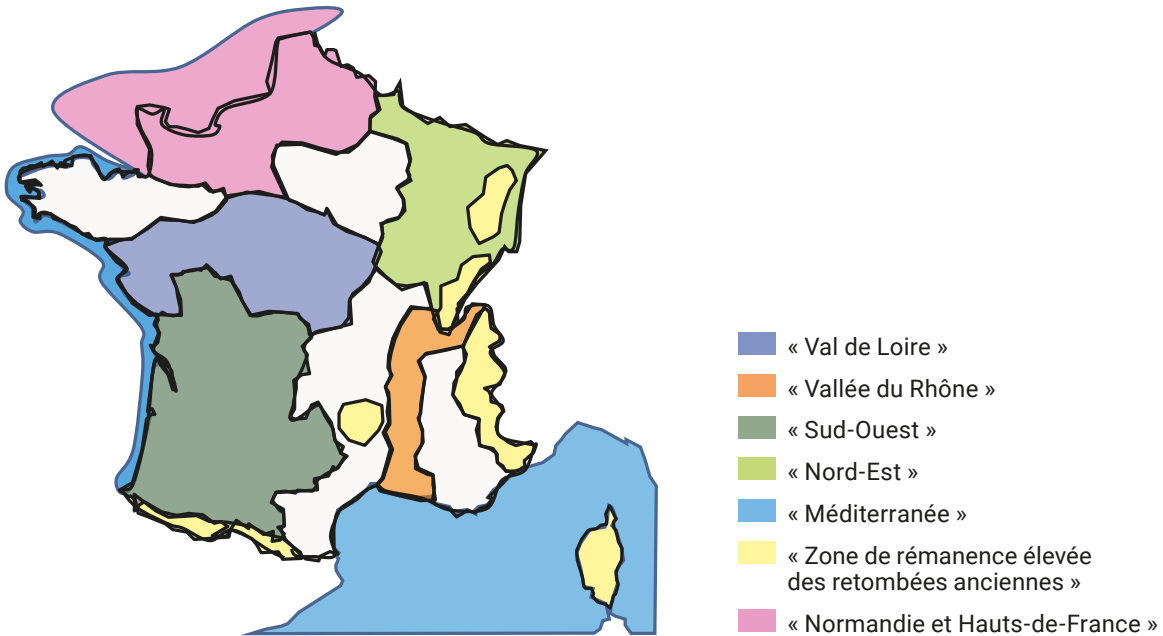
Tableau 4. Doses efficaces par incorporation de strontium 90 liées à l’ingestion de denrées produites en France pour un adulte en 2020. 75

Tableau 5. Doses efficaces par incorporation de plutonium 239+240 liées à l’ingestion de denrées produites en France pour un adulte en 2020. 99

Tableau 6. Activités massiques de carbone 14 dans différents types de denrées (Bq/kg de denrée fraîche) et dans l’air, estimées pour le bruit de fond radiologique de 227 Bq/kg de C observé sur la période 2015-2017. 102

Tableau 7. Valeurs de référence et gamme de variabilité du TOL dans les sédiments continentaux français hors zone de rémanence des rejets de l’industrie horlogère (Bq/L). 127

Carte des constats radiologiques régionaux



IRSN
Pôle Santé et Environnement
Direction de l'environnement

E-mail
contact@irsn.fr

N° du rapport
IRSN/DG 2022-00131
Tous droits réservés IRSN
Mars 2022

Photo de couverture :
IRSN

Autres photos :
IRSN

Conception graphique :
Agence Kazoar
www.kazoar.fr



31, avenue de la Division Leclerc
92260 Fontenay-aux-Roses
RCS Nanterre B 440 546 018

COURRIER

B.P. 17
92262 Fontenay-aux-Roses Cedex

TÉLÉPHONE

+33 (0)1 58 35 88 88

SITE INTERNET

www.irsn.fr

E-MAIL

contact@irsn.fr

 [@IRSNFrance](https://twitter.com/IRSNFrance), [@radioprotection](https://twitter.com/radioprotection)