

Commission de Recherche et d'Information Indépendantes sur la Radioactivité

Rapport N° 15-19

CARACTERISATION RADIOLOGIQUE DU SOL ET DE L'HERBE A SAINT MARCEL D'ARDECHE

Etude réalisée par le laboratoire de la CRIIRAD dans le cadre de
l'exploitation du réseau de balises de surveillance de la radioactivité

Date de la mission de terrain : 11 décembre 2014

Date de rédaction du rapport : 30 avril 2015 (version1) / 23 juin 2016 (complément)

Responsable d'étude : **Bruno CHAREYRON**, ingénieur en physique nucléaire

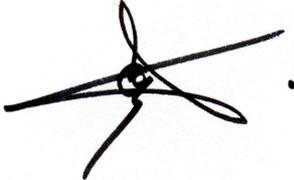
Rédacteur du rapport : **Marion JEAMBRUN**, docteur en géochimie et **Bruno CHAREYRON**

Réalisation mission de terrain : **Christian COURBON**, technicien spécialisé et **Stéphane PATRIGEON**,
technicien métrologue.

Analyses par spectrométrie gamma : **Stéphane PATRIGEON**, technicien métrologue.

Préparations des échantillons : **Jocelyne RIBOUËT**, technicienne de laboratoire.

LABORATOIRE DE LA CRIIRAD
29 cours Manuel de Falla, 26000 Valence
☎ 04 75 41 82 50 📠 04 75 81 26 48
<http://www.criirad.org> laboratoire@criirad.org

	Emetteur	Approbateur
Nom	Marion JEAMBRUN	Bruno CHAREYRON
Fonction	Responsable qualité	Directeur du laboratoire
Date	30 avril 2015	23 juin 2016
Signature		

SOMMAIRE

1	CONTEXTE ET OBJECTIFS	1
2	REALISATION DES PRELEVEMENTS.....	3
2.1	CHOIX DES STATIONS	3
2.2	REALISATION DES PRELEVEMENTS ET DES MESURES DE TERRAIN	3
3	RESULTATS DES MESURES RADIOMETRIQUES	6
3.1	OBJECTIFS	6
3.2	RESULTATS DES MESURES.....	6
3.2.1	Flux de photons.....	6
3.2.2	Débit d'équivalent de dose (H*10).....	6
3.2.3	Taux de contamination alpha-bêta-gamma	7
4	PREPARATION DES ECHANTILLONS POUR ANALYSE PAR SPECTROMETRIE GAMMA	7
4.1	CAROTTAGE EN TROIS POINTS.....	7
4.2	HORIZON DE SOL DE SURFACE ET HERBE	8
5	RESULTATS DES ANALYSES DU CAROTTAGE DE SOL	8
5.1	RADIONUCLEIDES NATURELS.....	8
5.2	RADIONUCLEIDES ARTIFICIELS.....	9
6	RESULTATS DES ANALYSES D'HERBE ET DES HORIZONS DE SURFACE	10
6.1	RADIONUCLEIDES NATURELS.....	10
6.2	RADIONUCLEIDES ARTIFICIELS.....	11
7	IMPACT DE LA CONTAMINATION ACTUELLE DES SOLS PAR LE CESIUM 137.....	11
7.1	EXPOSITION EXTERNE.....	11
7.2	EXPOSITION INTERNE	12
	ANNEXE 1 PRESENTATION DU RESEAU DE SURVEILLANCE DE LA CRIIRAD	13
	ANNEXE 2 SCHEMA EXPLICATIF DU TRAITEMENT DES ECHANTILLONS DE SOL DU CAROTTAGE EN TROIS POINTS.....	14
	ANNEXE 3 RESULTATS DES ANALYSES DE SPECTROMETRIE GAMMA REALISEES PAR LA CRIIRAD SUR LES STRATES DU CAROTTAGE DE SOL EN TROIS POINTS.....	15
	ANNEXE 4 RESULTATS DES ANALYSES DE SPECTROMETRIE GAMMA REALISEES PAR LA CRIIRAD SUR LES ECHANTILLONS D'HERBE ET DE SOL DE SURFACE	16

1 Contexte et objectifs

Contexte

Le laboratoire de la CRIIRAD gère une balise de surveillance de la radioactivité atmosphérique implantée à Saint Marcel d'Ardèche. Cet outil fait partie du réseau de surveillance de la radioactivité de l'air exploité par la CRIIRAD.

Sur la partie ardéchoise, le réseau comporte également une sonde gamma située à Saint-Agrève. Les stations situées en Drôme et en Ardèche sont exploitées grâce au soutien financier du Conseil Régional de Rhône-Alpes, du Conseil Général de l'Ardèche et du Conseil Général de la Drôme ainsi que d'autres collectivités locales (voir annexe 1). Le réseau permet d'effectuer une surveillance en continu de la radioactivité dans l'atmosphère et de déclencher automatiquement une alerte en cas de forte contamination radioactive de l'air.

L'accord cadre 2014-2016, qui précise les conditions d'exploitation de ce réseau, prévoit que le suivi de la radioactivité de l'air soit complété par des prélèvements et des analyses portant sur d'autres compartiments de l'environnement (précipitations, sols, bioindicateurs, etc.).

Sur la période 2014-2015, le laboratoire de la CRIIRAD s'est attaché à contrôler la contamination des sols et du couvert végétal dans l'environnement proche de chaque station de surveillance du réseau.

Objectifs

Déterminer la radioactivité actuelle de différents compartiments de l'environnement permet d'obtenir un état de référence. En cas de contamination future, la comparaison aux données de référence permettra d'évaluer l'intensité des dépôts de substances radioactives au niveau du couvert végétal et du sol. La connaissance des dépôts, exprimés en Becquerel par mètre carré, est indispensable pour en déduire les mesures à prendre pour protéger au mieux la population.

Rappel sur l'intérêt des carottages de sol

Suite à la catastrophe de Tchernobyl, en avril 1986, le laboratoire de la CRIIRAD s'est attaché à reconstituer les dépôts de substances radioactives sur le territoire français. La mise au point, en 1987, d'un protocole de prélèvement de sol par carottage a permis de rendre compte de la distribution verticale de la contamination, d'évaluer la migration en profondeur des radionucléides et de reconstituer les activités surfaciques de 1986.

Parmi les radionucléides artificiels présents dans les retombées de Tchernobyl, trois présentaient un enjeu sanitaire spécifique : l'iode 131, le césium 134 et le césium 137.

Ces radionucléides ont des périodes physiques très différentes, respectivement 8 jours (iode 131), 2 ans (césium 134) et 30 ans (césium 137). La période physique d'un élément radioactif est le temps nécessaire pour que sa radioactivité soit divisée par 2. Au bout de deux périodes elle est divisée par 4 et il faut attendre 10 périodes pour que la radioactivité soit divisée par 1 000.

Dans les premières années après les retombées de Tchernobyl, l'iode 131 n'était plus détectable dans les sols contrairement au césium 134 et au césium 137. Le césium 134 pouvait être imputable aux retombées de Tchernobyl, le césium 137 quant à lui pouvait provenir des retombées de Tchernobyl mais aussi de celles, antérieures, imputables aux essais nucléaires militaires (particulièrement intenses dans les années 50-60). Connaissant le ratio des activités du césium 137 et du césium 134 dans les retombées de Tchernobyl, il était alors possible, à partir de la mesure du césium 134, de déterminer la part du césium 137 imputable aux retombées de Tchernobyl, et celle imputable aux retombées des essais nucléaires. D'une manière générale, la contamination liée aux retombées globales ne permettait pas de distinguer l'impact, à l'échelle locale, des rejets chroniques de césium 134 et 137 des centrales électronucléaires françaises.

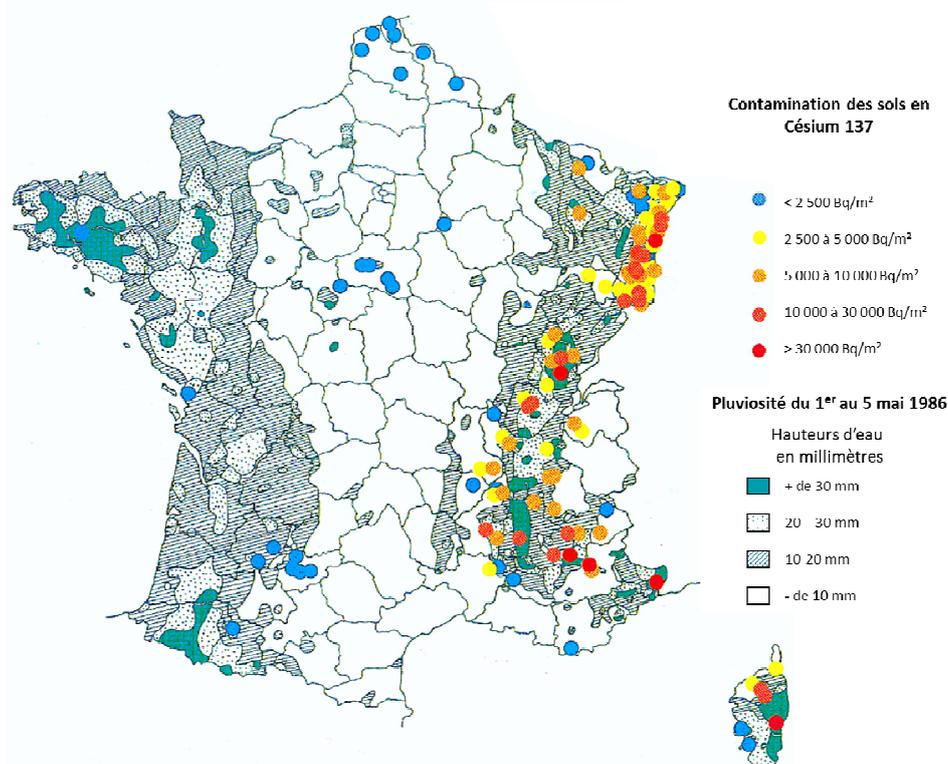
Pour que des carottages, réalisés parfois plusieurs années après les retombées de Tchernobyl, permettent de proposer une évaluation quantitative réaliste de ces retombées, le choix des terrains devait satisfaire, dans la mesure du possible, aux critères suivants :

- Terrain plat.
- Terrain n'ayant pas subi de remaniement depuis l'accident de Tchernobyl.
- Terrain dégagé, dépourvu de végétation pérenne.
- Terrain non soumis aux prélèvements de végétation (ni cultivé, ni pâturé).

Il s'agissait d'exclure les prélèvements en zone d'accumulation (point bas, sous-sol forestier, etc.) et de déperdition des radionucléides (point haut, zone cultivée avec retrait de la végétation) de façon à obtenir des conditions de « bonne conservation » des dépôts de 1986.

Sur la base de 152 carottages effectués entre 1987 et 1993, la CRIIRAD a publié une carte des retombées de Tchernobyl.

Figure 1 : carte CRIIRAD des retombées de Tchernobyl en césium 137 sur le territoire français (activité surfacique du césium 137 ramenée à mai 1986 et exprimée en Bq/m²).



Cette carte a constitué à l'époque un outil très important pour démontrer l'intensité des dépôts de césium 137 de Tchernobyl et leur variabilité spatiale en fonction de la trajectoire des masses d'air contaminé et de l'intensité des précipitations. Ces éléments, d'abord niés par les autorités, ont finalement été confirmés par les travaux ultérieurs de l'IPSN et de l'IRSN¹.

¹ Renaud, P., Métivier, J.M., 2000. Caractérisation des zones de France Métropolitaines les plus touchées par les retombées de l'accident de Tchernobyl. *Rapport IRSN/SERNAT*, 2000-33.

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

Renaud, P., Métivier, J.M., Morello, M., 2001. Modélisation de la répartition spatiale du ¹³⁷Cs dans la basse vallée du Rhône, Rapport IRSN/SERNAT 2001-17.

Renaud, P., Pourcelot, L., Métivier, J.M., Morello, M., 2003. Mapping of ¹³⁷Cs deposition over eastern France 16 years after the Chernobyl accident. *Science of The Total Environment*, **309**, 257-26.

Stratégie d'échantillonnage retenue en 2014-2015

Dans le cadre de la campagne de mesures 2014-2015, la CRIIRAD a recherché, pour chaque secteur d'étude, deux stations.

La première, pour effectuer un **carottage de sol en trois points jusqu'à 50 cm de profondeur** sur un secteur non remanié depuis 1986 et présentant, si possible, de bonnes garanties de conservation de la contamination ancienne. Il s'agit de vérifier le niveau de contamination résiduelle en césium 137 et sa répartition en fonction de la profondeur et de disposer d'une caractérisation actualisée de l'activité massique des principaux radionucléides naturels et artificiels émetteurs gamma dans les sols (état de référence).

En 2014-2015, le césium 134 de Tchernobyl a totalement disparu compte tenu de sa période courte (2 ans). Il devrait subsister par contre le **césium 137**, dont la période physique est de **30 ans**, cela signifie que moins de la moitié du césium 137 échappé du réacteur de Tchernobyl en 1986 s'est désintégrée.

La seconde, permettant de réaliser rapidement, en cas de contamination nouvelle, une évaluation des retombées surfaciques. Cette seconde station a été choisie sur la base de critères différents : accès aisé, proche de la balise. Elle pourra être retenue à l'avenir pour un échantillonnage rapide du **couvert végétal et du sol superficiel (0 à 10 cm)**. En effet, en cas d'alarme de la balise, il sera nécessaire d'échantillonner rapidement ces milieux. L'analyse du couvert végétal est très importante pour anticiper les transferts à l'homme : herbe, bétail, lait-viande. Elle donne également une première estimation du dépôt sur les cultures. Le sol a été prélevé sur 10 cm de profondeur ; considérant qu'en cas d'intervention effectuée rapidement après de nouvelles retombées, les éléments radioactifs n'auraient pas le temps² d'atteindre des horizons plus profonds.

2 Réalisation des prélèvements

2.1 Choix des stations

Les stations pour les différents prélèvements ont été choisies par monsieur Christian Courbon, technicien spécialisé en charge des interventions de terrain, à l'issue d'une mission de repérage.

La station d'échantillonnage des sols par carottage en trois points a été choisie en bordure d'un ancien verger situé à 300 m de la balise.

Le site d'échantillonnage des horizons de surface et de la végétation est un terrain plat, non cultivé. Le sol y est recouvert d'une pelouse entretenue avec récupération de la tonte. Ceci signifie que la couverture en herbe est extraite régulièrement, ce qui peut conduire à une « exportation » de la contamination associée au couvert végétal.

Les **coordonnées GPS** des deux stations sont :

- N 44.33435° E 004.63808° pour la station d'échantillonnage des sols par carottage en trois points.
- N 44.33136° E 004.63996° pour la station d'échantillonnage de l'herbe et des horizons de sol de surface ;

L'emplacement des deux stations d'échantillonnage est précisé sur la figure 2 page suivante.

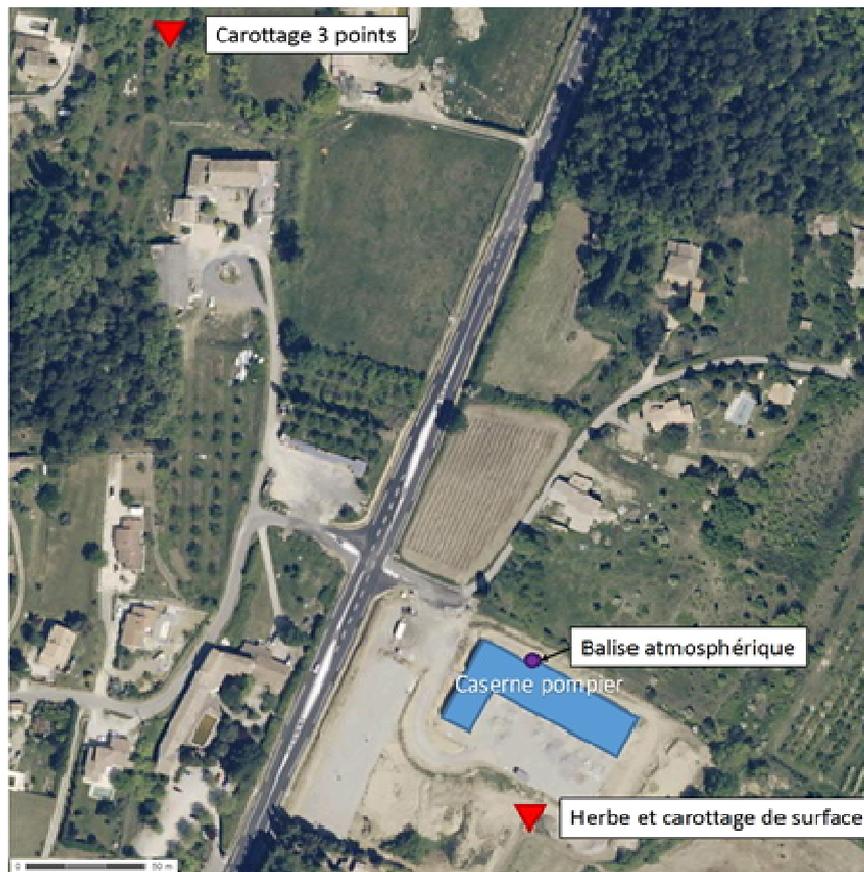
2.2 Réalisation des prélèvements et des mesures de terrain

Les mesures radiométriques et de débit de dose, *in situ* et le carottage de sol en trois points ont été effectués le **11 décembre 2014** par monsieur Christian Courbon, technicien spécialisé, et monsieur Stéphane Patrigeon, technicien métrologue du laboratoire de la CRIIRAD.

Le **sol de référence** a été prélevé par carottage (tube calibré d'un diamètre de 68 mm). Trois carottes (A, B et C) ont été effectuées aux sommets d'un triangle équilatéral de 1 m de côté.

² A moins de conditions très spécifiques : pluies diluviennes par exemple.

Figure 2 : Localisation des stations de prélèvements et de la balise atmosphérique.



Chaque carotte comporte six strates constituant six échantillons :

- 0 - 5 cm (avec racines)
- 5 - 10 cm
- 10 - 20 cm
- 20 - 30 cm
- 30 - 40 cm
- 40 - 50 cm

A proximité de la balise (cf. figure 2), un prélèvement de la végétation de surface (**herbe**) a été effectué au ciseau sur 0,04 m² (carré de 20 cm de côté) suivi d'un prélèvement en deux points des horizons de surface (0 - 5 cm et 5 - 10 cm) à l'aide d'un carottier de jardin (diamètre de 62,5 mm).

Les prélèvements sont illustrés par les photographies page suivante.

Photo 1 : Réalisation du carottage de sol en trois points.



Photo 2 : Prélèvement d'herbe.



Photo 3 : Prélèvement des horizons de surface au même emplacement que le prélèvement d'herbe.



3 Résultats des mesures radiamétriques

3.1 Objectifs

La majorité des radionucléides émet en se désintégrant des **rayonnements gamma**. Il s'agit de rayonnements de nature électromagnétique qui, compte tenu de leur énergie (plusieurs dizaines de keV à plusieurs MeV) peuvent parcourir plusieurs mètres, voire dizaines de mètres dans l'air (et au-delà). Ils sont responsables de l'exposition externe. Il existe un flux de rayonnement gamma naturel en surface du sol, même en l'absence d'ajout de substances radioactives dans le sol.

On peut distinguer une composante tellurique, liée à la désintégration des radionucléides primordiaux contenus dans le sol (uranium 238, uranium 235, thorium 232 et leurs descendants et potassium 40) et une composante liée au rayonnement cosmique. Localement, en l'absence de pollution spécifique, les variations spatiales du flux de rayonnement gamma en surface sont liées essentiellement aux variations des caractéristiques radiochimiques du sol.

La mesure du flux de rayonnement gamma à la surface du sol d'un site permet de vérifier l'absence de contamination surfacique importante par des radionucléides émetteurs de rayonnement gamma. L'utilisation d'un contaminomètre alpha-bêta-gamma permet de compléter le diagnostic.

3.2 Résultats des mesures

Des mesures radiamétriques ont été effectuées le 11 décembre 2014 au niveau des deux stations d'échantillonnage et à leurs abords.

3.2.1 Flux de photons

Le flux de rayonnement gamma, exprimé en coups par seconde (c/s), a été mesuré au moyen d'un scintillomètre de type DG5 (marque Novelec, appareil CRIIRAD N°1). Le détecteur est un scintillateur organique couplé à un photomultiplicateur. Il enregistre les rayonnements gamma à partir de 50 keV. La réponse en fonction de l'énergie est de $\pm 10 \%$ de 100 keV à 700 keV et de $\pm 50 \%$ de 60 keV à 1,3 MeV. La constante de temps de détection est de 0,1 seconde et la constante de temps de mesure de 2 secondes. Le temps mort est de 33 microsecondes.

Station d'échantillonnage du sol par carottage en trois points :

- Contact du sol = 55 à 75 c/s
- 1 m du sol = 50 à 75 c/s

Station d'échantillonnage de l'herbe et des horizons de surface :

- Contact du sol = 65 à 85 c/s
- 1 m du sol = 60 à 80 c/s

3.2.2 Débit d'équivalent de dose (H*10)

Le débit d'équivalent de dose (H*10) a été mesuré avec un compteur proportionnel compensé en énergie Berthold LB123D. Cet appareil est constitué d'une électronique de mesure et d'affichage universel LB 1230 reliée à une sonde LB 1236. La plage de mesure s'étend de 0,05 $\mu\text{Sv/h}$ à 10 mSv/h sur une plage d'énergie allant de 30 keV à 2 MeV. La réponse en fonction de l'énergie est de $\pm 30 \%$ pour le césium 137 à 661,7 keV. Le mouvement propre de l'appareil est de 0,0175 $\mu\text{Sv/h}$. Chaque résultat est en réalité la moyenne d'au moins 3 mesures de 100 secondes de laquelle est soustrait automatiquement le mouvement propre de l'appareil.

Station d'échantillonnage du sol par carottage en trois points :

- Moyenne au contact du sol = 0,10 $\mu\text{Sv/h}$
- Moyenne à 1 m du sol = 0,11 $\mu\text{Sv/h}$

Station d'échantillonnage de l'herbe et des horizons de surface :

- Moyenne au contact du sol = 0,10 $\mu\text{Sv/h}$
- Moyenne à 1 m du sol = 0,087 $\mu\text{Sv/h}$

3.2.3 Taux de contamination alpha-bêta-gamma

Le taux de contamination a été mesuré avec un contaminomètre alpha-bêta-gamma MCB2 de marque Canberra (mesure durant 30 secondes). Cet appareil est constitué d'un détecteur Geiger Müller équipé d'un capot métallique permettant de discriminer les rayonnements alpha et, dans une moindre mesure, bêta des rayonnements gamma. Le rendement de détection est compris entre 17 et 50 % selon le type de rayonnement. Les résultats sont exprimés en coups par seconde (c/s).

Station d'échantillonnage du sol par carottage en trois points :

- Contact du sol, sans capot (alpha-bêta-gamma) = 0 à 1,8 c/s
- Contact du sol, avec capot (bêta-gamma) = 0 à 1,8 c/s

Station d'échantillonnage de l'herbe et des horizons de surface :

- Contact du sol, sans capot (alpha-bêta-gamma) = 0 à 2,8 c/s
- Contact du sol, avec capot (bêta-gamma) = 0 à 1,6 c/s

Ces résultats restent dans la gamme des niveaux de radioactivité correspondant au bruit de fond naturel dans la région. Ils serviront, à l'avenir, de référence pour ce site.

4 Préparation des échantillons pour analyse par spectrométrie gamma

La spectrométrie gamma permet de détecter et de quantifier de nombreux radionucléides naturels (potassium 40, descendants de l'uranium 238, du thorium 232 et de l'uranium 235) et artificiels (césium 137, cobalt 60, iode 131, américium 241, etc.).

Le laboratoire de la CRIIRAD dispose de 2 chaînes de Spectrométrie Gamma HPGe type N (EGG / ORTEC, GMX-N). Efficacité relative 22,3 à 24 % à 1,33 MeV. La résolution typique est de 1,72 keV de largeur à mi-hauteur sur le pic à 1,33 MeV du cobalt 60. Les détecteurs sont refroidis en permanence à l'azote liquide. Les chaînes de détection (haute tension, détecteurs, amplificateur, PC de contrôle) sont situées dans une salle dédiée et climatisée qui n'est accessible qu'au personnel du laboratoire. Le laboratoire de la CRIIRAD est agréé par l'Autorité de sûreté nucléaire pour les mesures de radioactivité de l'environnement — portée détaillée de l'agrément disponible sur le site internet de l'Autorité de sûreté nucléaire.

4.1 Carottage en trois points

Lorsqu'il s'agit d'étudier l'impact de retombées anciennes, il est préférable de procéder à des analyses sur le sol après dessiccation et tri. La dessiccation permet en effet d'améliorer l'homogénéisation de l'échantillon et la précision de la mesure. Pour la caractérisation de retombées anciennes, l'allongement du temps écoulé entre le prélèvement et la mesure, dû à l'étape de dessiccation, ne présente aucun impact métrologique étant donné que les radionucléides recherchés ont des périodes longues.

Les trois carottes de sol sont regroupées et homogénéisées par strate. Chaque échantillon est ensuite soumis à une dessiccation à l'étuve à 105°C jusqu'à l'obtention d'une masse constante. Les strates sont ensuite concassées afin de désagglomérer les mottes de terre, puis tamisées à 2 mm afin d'éliminer les cailloux. Seule la fraction inférieure à 2 mm est conditionnée en géométrie Marinelli (500 cc) et fait l'objet d'une analyse par spectrométrie gamma.

L'annexe 2 illustre par un schéma explicatif le traitement des échantillons de sol prélevés par carottage en trois points.

4.2 Horizon de sol de surface et herbe

En cas d'intervention en urgence suite à une alarme de la balise, ou d'une manière générale pour caractériser des retombées récentes, il est préférable de réaliser des analyses sur matière fraîche (sans dessiccation). En effet, de telles mesures permettent de réduire le temps de préparation des échantillons au laboratoire, et ainsi de détecter des radionucléides à courte période. Par ailleurs, la mesure sur matière fraîche permet de limiter la déperdition des radionucléides volatils. Il est en outre possible de disposer des résultats dans les meilleurs délais et de réduire l'exposition du personnel en charge du traitement des échantillons au laboratoire.

NB : Pour les sols, il est intéressant de comparer les résultats obtenus pour le césium 137 selon le protocole classique (analyse en géométrie Marinelli 500 cc après dessiccation) avec ceux obtenus dans le cadre du protocole d'urgence (analyse directe sur matière fraîche en géométrie 250 cc).

Les échantillons de sol de surface prélevés en deux points sont regroupés par strate. La première strate de 0 à 5 cm, constituée de terre, de racine et d'herbe est homogénéisée sommairement avant son conditionnement en géométrie B250. Une fois conditionné en B250, les échantillons sont analysés sans délais à l'état frais par spectrométrie gamma.

5 Résultats des analyses du carottage de sol

Les résultats des analyses du carottage de sol sont détaillés en annexe 3.

5.1 Radionucléides naturels

Les principaux résultats, exprimés en Bq/kg sec, concernant les radionucléides naturels dans les 6 strates de sol sont regroupés dans le Tableau 1.

	0 - 5 cm	5 - 10 cm	10 - 20 cm	20 - 30 cm	30 - 40 cm	40 - 50 cm	Moyenne
Chaîne de l'Uranium 238							
Thorium 234 ³	25 ± 8	24 ± 8	20 ± 7	21 ± 7	19 ± 6	19 ± 6	21 ± 3
Radium 226 ⁴	18 ± 3	18 ± 3	17 ± 3	19 ± 3	17 ± 3	19 ± 3	18 ± 1
Plomb 210 ⁵	80 ± 14	31 ± 8	17 ± 5	21 ± 6	18 ± 6	19 ± 6	31 ± 25
Uranium 235	< 2,1	< 1,9	< 1,6	< 7	< 1,7	< 1,8	
Chaîne du Thorium 232							
Actinium 228	17 ± 4	19 ± 4	22 ± 4	17 ± 3	19 ± 4	20 ± 4	19 ± 2
Plomb 212	19 ± 3	19 ± 3	20 ± 3	19 ± 3	18 ± 2	21 ± 3	19 ± 1
Potassium 40	241 ± 37	240 ± 36	240 ± 34	263 ± 38	251 ± 36	256 ± 37	249 ± 10

Tableau 1 : Activités des radionucléides naturels dans les différentes strates du sol en Bq/kg sec.

Dans les différentes strates de sol, les activités massiques des radionucléides naturels des chaînes de l'uranium 238, du thorium 232 et celle du potassium 40 sont inférieures aux valeurs médianes des sols évaluées par l'UNSCEAR (2000⁶) à 35 Bq/kg pour l'uranium 238, 30 Bq/kg pour le thorium 232 et 400 Bq/kg pour le potassium 40.

Les chaînes de désintégration de l'uranium 238 et du thorium 232 sont globalement à l'équilibre, aux marges d'incertitude près, à l'exception du **plomb 210** qui est présent en excès dans la strate de surface (0 - 5 cm). Ce

³L'activité étant évaluée à partir de raies gamma de faible énergie, les valeurs publiées constituent des valeurs par défaut, compte tenu des phénomènes d'auto-atténuation.

⁴Valeur par défaut, voir rapport d'essai en annexe.

⁵ L'activité étant évaluée à partir de raies gamma de faible énergie, les valeurs publiées constituent des valeurs par défaut, compte tenu des phénomènes d'auto-atténuation.

⁶ UNSCEAR (2000). SOURCES AND EFFECTS OF IONIZING RADIATION Volume I : SOURCES.

phénomène d'excès, déjà observé par de nombreux scientifiques (Greeman & Rose, 1990⁷ ; Von Gunten *et al.*, 1996⁸) provient de l'existence du radon 222 gazeux, descendant de l'uranium 238. Ce radionucléide migre des sols vers l'atmosphère et donne naissance, lors de sa désintégration, à des radionucléides solides qui se redéposent à la surface du sol. Du fait de sa période physique (22,3 ans), le plomb 210 va ainsi enrichir les horizons de surface.

5.2 Radionucléides artificiels

Un seul radionucléide artificiel émetteur gamma a été détecté dans certains des échantillons de sol analysés. Il s'agit du **césium 137**, produit de fission émetteur bêta-gamma de période physique égale à 30 ans.

Dans le tableau 2 sont reportées les activités massiques ou les limites de détection pour le césium 134 et 137, ainsi que l'activité surfacique du césium 137, calculée à partir des données suivantes :

- activité massique mesurée,
- masse totale d'échantillon prélevée à laquelle est soustraite la masse de la fraction supérieure à 2 mm (masse de cailloux ne contenant pas de césium 137),
- surface prélevée : il s'agit dans le cas présent de trois fois la surface du carottier d'un diamètre de 68 mm.

Dans tous les échantillons de sol issus du carottage en trois points, l'activité du césium 134 est inférieure aux limites de détection.

L'activité massique en **césium 137** varie de < 0,1 Bq/kg sec pour la strate de 40 à 50 cm, à **23 ± 3 Bq/kg sec** pour la strate de 0 à 5 cm. Les activités les plus fortes étant présentes dans les horizons de surface.

L'activité totale cumulée sur les différentes strates correspond à un dépôt résiduel de césium 137 de **5 592 Bq/m²**.

	0 - 5 cm	5 - 10 cm	10 - 20 cm	20 - 30 cm	30 - 40 cm	40 - 50 cm	Total
¹³⁴ Cs (Bq/kg sec)	< 0,15	< 0,14	< 0,12	< 0,13	< 0,12	< 0,14	
¹³⁷ Cs (Bq/kg sec)	23 ± 3	16 ± 2	9 ± 1	6 ± 1	0,6 ± 0,3	< 0,1	
¹³⁷ Cs (Bq/m ²)	1 376 ± 191	1 339 ± 190	1 695 ± 248	1 067 ± 191	114 ± 56	< 23	5 592 ± 898

Tableau 2 : Activité massique (en Bq/kg sec) du césium 134 et du césium 137 et activité surfacique (en Bq/m²) du césium 137 dans les différentes strates de sol.

Comparaison avec les mesures CRIIRAD antérieures

Des carottages de sol réalisés par la CRIIRAD de 1988 à 1989, en 7 sites en Ardèche, avaient permis d'estimer l'activité surfacique totale en césium 137 (ramené à mai 1986) entre **7 461 Bq/m²** (Boulieu les Annonay) et **22 670 Bq/m²** (Mirabel). Ce césium 137 provenait des retombées de Tchernobyl et de l'activité résiduelle issue des dépôts antérieurs (retombées des essais nucléaires particulièrement intenses dans les années 50-60). La valeur indiquée correspondait à l'activité théorique, en mai 1986, déduite des mesures sur les carottages effectués plusieurs années après les retombées, corrigées de la décroissance radioactive.

⁷ Greeman, D., & Rose, A. (1990). Form and behaviour of radium, uranium and thorium in central Pennsylvania soils derived from dolomite. *Geophysical Research Letters*, 17, p. 833.

⁸ Von Gunten, H. R., Surbeck, H., & Rössler, E. (1996). Uranium Series Disequilibrium and High Thorium and Radium Enrichments in Karst Formations. *Environmental Science and Technology*, 30, p. 1268.

De fait de ces dépôts anciens, il est logique de détecter, dans le cadre de la campagne de mesure 2014-2015 une contamination persistante⁹ des sols par le césium 137. Rappelons que la période physique du césium 137 est de 30 ans, c'est-à-dire que sa radioactivité est divisée par 2 au bout de 30 ans.

Compte tenu du temps écoulé depuis mai 1986, l'activité surfacique du césium 137 à cette époque, à la station de Saint-Marcel d'Ardèche, devait être d'au moins **10 800 Bq/m² (valeur corrigée de la décroissance)**. Mais compte tenu de la déperdition, elle pouvait être nettement supérieure.

En effet, outre la décroissance par désintégration, le césium 137 contenu dans les sols fait l'objet de différents mécanismes de redistribution de la contamination tels que, par exemple, le lessivage en profondeur ou le ruissellement de surface par les pluies, et le transfert aux végétaux.

La déperdition du césium 137 au cours du temps (en dehors de sa décroissance par désintégration) est très difficile à estimer, car elle dépend de nombreux paramètres (granulométrie du sol, proportion d'argiles, composition chimique du sol, compacité, type de végétation, usage du sol, etc..) et est donc susceptible d'être très différente d'un sol à l'autre.

En effectuant un suivi, à plusieurs années d'intervalles, sur des sols identiques, le laboratoire de la CRIIRAD a mis en évidence des facteurs de déperdition très variables. Les valeurs mentionnées ci-dessous sont données à titre indicatif, car malgré le soin apporté au choix des stations, il est très difficile de garantir, à plusieurs années d'intervalle, que les carottages sont effectués exactement au même endroit :

- Etude portant sur 8 sites en Alsace, qui ont fait l'objet d'un carottage en 1988, puis en 1990-1991 : le facteur de déperdition moyen était de 1,5 (valeur maximale constatée : 2,5).
- Etude portant sur 28 sites en Alsace¹⁰, qui ont fait l'objet d'un carottage en 1990-1991 et en 1998 : le facteur de déperdition moyen était de **1,6** (moyenne calculée sur 27 sites en excluant un résultat atypique supérieur à **18,9**).

On obtient, sur la base de ces deux études, un facteur de déperdition moyen de 1,5 fois 1,6 soit 2,4. Cela signifie qu'il faut multiplier les activités surfaciques en césium 137 relevées en 1998 par un facteur 2,4 en moyenne pour reconstituer la valeur de 1988. Il faut ensuite multiplier ce résultat par un facteur 1,26 correspondant à la décroissance du césium 137 sur les 10 années écoulées.

- Etude portant sur 5 sites en Alsace¹¹, qui ont fait l'objet d'un carottage en 1990-1991 et en 2014 : le facteur de déperdition moyen était de **1,36** (valeur maximale **1,8**).
- Etude portant sur 5 sites en région Rhône-Alpes, qui ont fait l'objet d'un premier carottage en 1988, 1990 ou 2000 et d'un second en 2015 : le facteur de déperdition moyen était de **1,8** (valeur maximale **2,8**).

6 Résultats des analyses d'herbe et des horizons de surface

6.1 Radionucléides naturels

Les principaux résultats concernant les radionucléides naturels dans l'herbe et les horizons de surface sont regroupés dans le tableau 3 (exprimés en Bq/kg frais).

Dans l'échantillon d'herbe, les teneurs en radionucléides naturels sont inférieures aux limites de détection de la méthode utilisée, excepté pour le **béryllium 7** dont l'activité est de **190 ± 60 Bq/kg frais**. Le béryllium 7 est un radionucléide d'origine cosmogénique dont la période radioactive est de 53,3 jours.

Les activités des radionucléides naturels d'origine tellurique mesurées dans les horizons de surface du sol sont cohérentes avec les activités mesurées dans les premières strates du carottage en trois points si l'on considère un taux de matière sèche de 85 % (les taux de matières sèches mesurés étaient compris entre 79 et 90%).

⁹ Une très faible fraction du césium 137 détecté en 2014-2015 pourrait provenir en outre des retombées de la catastrophe de Fukushima qui ont atteint la France à partir de la fin du mois de mars 2011. Cependant, l'absence de niveaux mesurables de césium 134 dans la couche superficielle du sol ne permet pas de distinguer la part de césium 137 liée aux retombées de Fukushima.

¹⁰ Rapport CRIIRAD N°99-11 Bilan des retombées de Tchernobyl dans les sols de la région Alsace (1999).

¹¹ Rapport CRIIRAD N°15-15 Contamination radioactive des sols alsaciens (2015).

Radioactivité naturelle	Herbe	Sol 0 - 5 cm	Sol 5 - 10 cm
Chaîne de l'Uranium 238			
Thorium 234	< 150	< 35	< 21
Radium 226 ¹²	< 26	18 ± 4	15 ± 3
Plomb 210 ¹³	< 100	23 ± 11	17 ± 7
Uranium 235	< 39	< 4,8	< 3,2
Chaîne du Thorium 232			
Actinium 228	< 108	20 ± 6	18 ± 4
Plomb 212	< 20	18 ± 3	18 ± 3
Potassium 40	< 700	< 300	< 270
Béryllium 7	190 ± 60	< 11	< 2

Tableau 3 : Activité des radionucléides naturels dans l'échantillon d'herbe et les horizons de sol de surface en Bq/kg frais.

6.2 Radionucléides artificiels

Les échantillons ayant été analysés sans délai à l'état frais, les conditions sont propices à la mesure de l'iode 131, radionucléide volatil de période courte (8 jours).

Les activités massiques de l'iode 131, du césium 134 et du césium 137 sont présentées dans le Tableau 4.

	Herbes	Sol 0 - 5 cm	Sol 5 - 10 cm
¹³¹ I (Bq/kg frais)	< 2,7	< 0,43	< 0,26
¹³⁴ Cs (Bq/kg frais)	< 2,6	< 0,32	< 0,19
¹³⁷ Cs (Bq/kg frais)	< 3,2	< 0,44	< 0,27

Tableau 4 : Activité massique (en Bq/kg frais) de l'iode 131, du césium 134 et du césium 137 dans l'herbe et les horizons de surface du sol.

Dans l'herbe et les horizons de surface du sol, les activités des radionucléides artificiels émetteurs gamma, y compris le césium 137 sont inférieures aux limites de détection (< 3,2 Bq/kg frais pour l'herbe et de < 0,44 et < 0,27 Bq/kg frais pour les horizons de surface du sol).

7 Impact de la contamination actuelle des sols par le césium 137

7.1 Exposition externe

A partir des teneurs en radionucléides naturels et artificiels émetteurs gamma mesurées dans la strate superficielle (0 - 5 cm) du carottage de sol en trois points, il est possible d'estimer le débit de dose théorique à 1 mètre du sol, comme présenté dans le tableau 5.

On obtient une estimation¹⁴ théorique de **0,065 µSv/h**. Dans le cadre de cette estimation, **environ 4,4 % de cette exposition externe est imputable au césium 137 artificiel.**

¹² Le radium 226 est évalué par défaut à partir de ses descendants le plomb 214 et le bismuth 214, l'équilibre séculaire entre ces radionucléides n'étant pas atteint.

¹³ L'activité étant évaluée à partir de raies gamma de faible énergie, les valeurs publiées constituent des valeurs par défaut, compte tenu des phénomènes d'auto-atténuation.

¹⁴ A noter que la valeur mesurée sur le terrain, à 1 m au-dessus du sol, avec la sonde LB 1236 est de 0,11 µSv/h. Compte tenu des marges d'incertitude de la mesure, qui sont de l'ordre de 30 %, et des incertitudes sur la modélisation, ce résultat est compatible avec la valeur théorique calculée.

Radionucléides	Facteur de conversion nGy/h par Bq/kg	Activité mesurée (Bq/kg sec)	Débit de dose théorique à 1 m nGy/h
Uranium 238 / Radium 226	0,386	18	6,9
Thorium 232	0,523	17	8,9
Potassium 40	0,038	241	9,2
Rayonnement cosmique	-	-	37,5
Césium 137	0,12	23	2,8
Total général (μSv/h)			0,065
Total naturel (μSv/h)			0,062
Ajout dû au Cs 137			4,4%

Tableau 5 : Reconstitution du débit de dose à 1 mètre du sol à partir des activités mesurées dans la strate superficielle du carottage de sol en trois points.

L'exposition externe imputable au césium 137 encore présent dans le sol reste donc dans la gamme des très faibles doses de rayonnements ionisants, avec un surcroît d'exposition qui est actuellement de l'ordre de **quelques μSv/an**. Des activités plus importantes seraient probablement relevées dans des zones propices aux phénomènes d'accumulation (fonds de fossé, pieds de gouttières, base de certains arbres) et dans les sols en milieu forestier (du fait d'une interception plus importante, par la canopée, des particules radioactives présentes dans l'atmosphère et d'une meilleure « conservation » de la contamination).

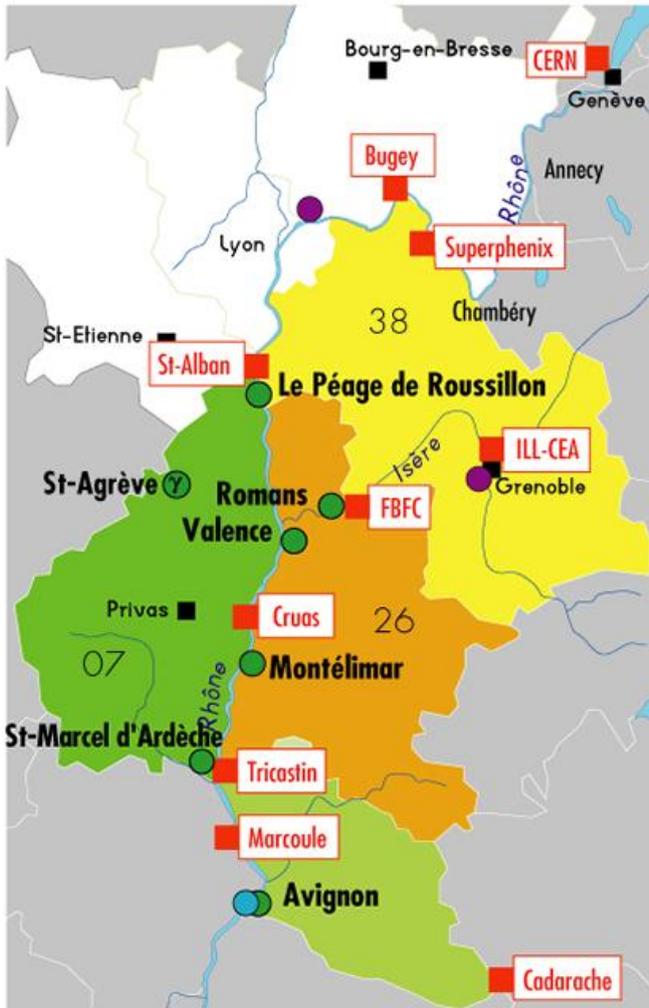
7.2 Exposition interne

L'impact résiduel de Tchernobyl et des essais nucléaires, doit s'apprécier de façon globale, en ajoutant les doses par exposition interne, et notamment par ingestion de denrées alimentaires contaminées. En effet, il faut garder à l'esprit le fait que l'exposition interne peut constituer la part la plus importante de la dose, compte tenu de la contamination résiduelle de certaines denrées issues des milieux forestiers (baies, champignons, gibiers) qui restent contaminées en France à des niveaux qui peuvent atteindre quelques dizaines à quelques centaines de becquerels par kilogramme frais. En fonction des régimes alimentaires, la consommation de ces produits peut induire une exposition non négligeable, ce qui nécessite une vigilance pendant encore de nombreuses années.

Concernant l'impact spécifique de Tchernobyl, on ne peut que déplorer que la réglementation en vigueur au niveau européen, presque 30 ans après la catastrophe de Tchernobyl, ne porte que sur les produits importés, avec des limites d'activité massique inchangées depuis 1986 et particulièrement élevées (370 Bq/kg de césium 137 dans le lait et les aliments pour nourrissons, 600 Bq/kg dans les autres produits comme, par exemple, les champignons). La réglementation aurait dû être étendue aux productions et cueillettes issues des Etats membres de l'Union européenne dont certains ont été fortement impactés par les retombées de Tchernobyl et les niveaux de contamination « admissible » auraient dû être notablement abaissés en application du principe d'optimisation et compte tenu de l'évolution des connaissances sur les effets sanitaires d'une contamination interne chronique.

ANNEXE 1

Présentation du réseau de surveillance de la CRIIRAD

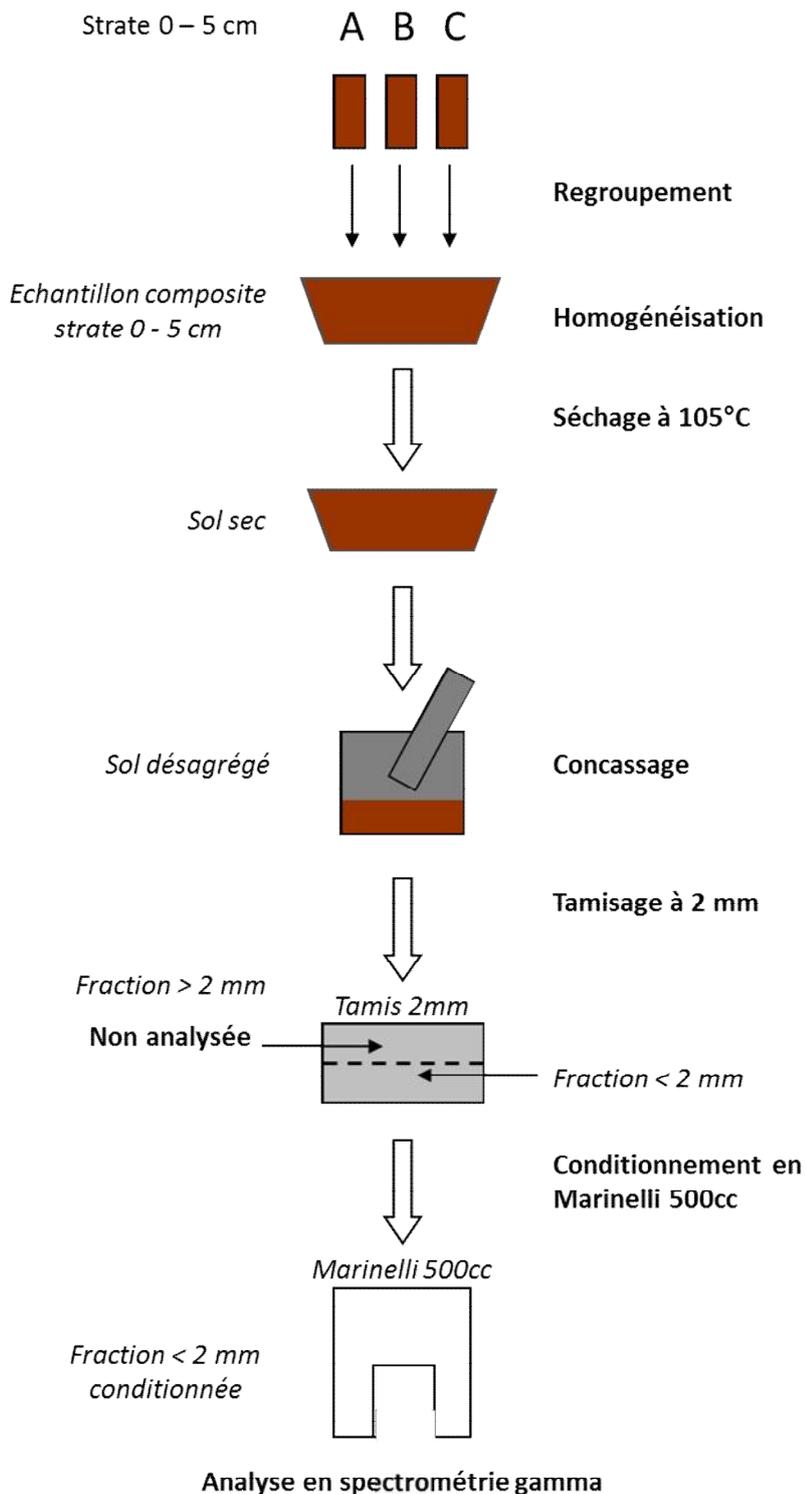


- Réseau de balises atmosphériques existant
- Balise d'eau d'Avignon
- Projet d'installation ou d'exploitation de balise
- Installations nucléaires

- Communes du réseau Montilien :**
- | | | |
|---------------------|---------------|------------------|
| Aleyrac | Saint-Montan | Loriol-sur-Drôme |
| Cliousclat | Souspierre | Rochebaudin |
| Dieulefit | Larnas | Saint-Bauzile |
| La Bégude de Mazenc | Le Poët-Laval | |

ANNEXE 2

Schéma explicatif du traitement des échantillons de sol du carottage en trois points.



ANNEXE 3

Résultats des analyses de spectrométrie gamma réalisées par la CRIIRAD sur les strates du carottage de sol en trois points.

St Marcel d'Ardèche

Date de prélèvement : 11/12/2014
 Altitude (mètre) : 100
 Coordonnées GPS : N 44,33435° E 004,63808°

	0 - 5 cm	5 - 10 cm	10 - 20 cm	20 - 30 cm	30 - 40 cm	40 - 50 cm
Code échantillon	111214B4	111214B5	111214B6	111214B7	111214B8	111214B9
N° d'analyse	C 28255	C 28265	C 28260	C 28270	C 28276	C 28279
Date d'analyse	10/04/2015	16/04/2015	14/04/2015	20/04/2015	22/04/2015	23/04/2015
Temps de comptage (s)	25 151	22 870	29 551	23 629	27 064	26 364
Géométrie	MAR500CC	MAR500CC	MAR500CC	MAR500CC	MAR500CC	MAR500CC
Masse sèche analysée (g)	532,9	612,64	668,1	647,47	664,72	631,82
Masse sèche < 2 mm (g)	649,19	941,29	2 075,05	2 075,54	1 974,01	1 908,15
Masse sèche totale (g)	649,19	941,29	2 090,61	2 075,54	1 974,01	1 908,15
Taux de matière sèche	79%	86%	88%	89%	90%	89%

Activités ramenées à la date d'analyse, exprimées en Becquerels par kilogramme sec (Bq/kg sec).

Radioactivité naturelle	0 - 5 cm	5 - 10 cm	10 - 20 cm	20 - 30 cm	30 - 40 cm	40 - 50 cm	Moyenne
Chaîne de l'Uranium 238							
Thorium 234**	25 ± 8	24 ± 8	20 ± 7	21 ± 7	19 ± 6	19 ± 6	21 ± 3
Radium 226 *	18 ± 3	18 ± 3	17 ± 3	19 ± 3	17 ± 3	19 ± 3	18 ± 1
Plomb 210**	80 ± 14	31 ± 8	17 ± 5	21 ± 6	18 ± 6	19 ± 6	31 ± 25
Uranium 235	< 2,1	< 1,9	< 1,6	< 7	< 1,7	< 1,8	
Chaîne du Thorium 232							
Actinium 228	17 ± 4	19 ± 4	22 ± 4	17 ± 3	19 ± 4	20 ± 4	19 ± 2
Plomb 212	19 ± 3	19 ± 3	20 ± 3	19 ± 3	18 ± 2	21 ± 3	19 ± 1
Potassium 40	241 ± 37	240 ± 36	240 ± 34	263 ± 38	251 ± 36	256 ± 37	249 ± 10

Activités ramenées à la date du prélèvement, exprimées en Becquerels par kilogramme sec (Bq/kg sec).

Radioactivité artificielle	0 - 5 cm	5 - 10 cm	10 - 20 cm	20 - 30 cm	30 - 40 cm	40 - 50 cm
Césium 137	23 ± 3	16 ± 2	9 ± 1	6 ± 1	0,6 ± 0,3	< 0,1
Césium 134	< 0,15	< 0,14	< 0,12	< 0,13	< 0,12	< 0,14
Cobalt 58	< 0,49	< 0,42	< 0,37	< 0,45	< 0,43	< 0,41
Cobalt 60	< 0,12	< 0,15	< 0,1	< 0,13	< 0,13	< 0,13
Manganèse 54	< 0,2	< 0,2	< 0,16	< 0,17	< 0,18	< 0,18
Antimoine 125	< 0,44	< 0,41	< 0,32	< 0,38	< 0,30	< 0,35
Cérium 144	< 1,0	< 1,0	< 0,9	< 1,0	< 0,9	< 0,9
Argent 110 m	< 0,21	< 0,19	< 0,16	< 0,18	< 0,17	< 0,18
Américium 241**	< 0,27	< 0,27	< 0,23	< 0,25	< 0,23	< 0,24
Iode 129**	< 0,27	< 0,26	< 0,22	< 0,25	< 0,22	< 0,24
Ruthénium 106	< 1,8	< 1,7	< 1,2	< 1,7	< 1,4	< 1,5

Légende :

± : marge d'incertitude

< : limite de détection

* Le Radium 226 est évalué par défaut à partir de ses descendants Plomb 214 et Bismuth 214, l'équilibre séculaire n'étant pas atteint.

** : S'agissant de raies gamma à basse énergie (< 100 keV), les valeurs publiées constituent des valeurs par défaut, compte tenu des phénomènes d'autoatténuation possibles au sein de l'échantillon.

ANNEXE 4

Résultats des analyses de spectrométrie gamma réalisées par la CRIIRAD sur les échantillons d'herbe et de sol de surface

St Marcel d'Ardèche

Date de prélèvement : 11/12/2014
 Altitude (mètre) : 87
 Coordonnées GPS : N 44.33136° E 004.63996°

	Herbe	0 - 5 cm	5 - 10 cm
Code échantillon	111214B1	111214B2	111214B3
N° d'analyse	C 28062	C 28064	C 28065
Date d'analyse	12/12/2014	15/12/2014	15/12/2014
Temps de comptage (s)	25 175	30 655	55 215
Géométrie	B250	B250	B250
Masse fraîche analysée (g)	43,71	355,28	452,34

Activités ramenées à la date d'analyse, exprimées en Becquerels par kilogramme frais (Bq/kg frais).

Radioactivité naturelle	Herbe	0 - 5 cm	5 - 10 cm
Chaîne de l'Uranium 238			
Thorium 234**	< 150	< 35	< 21
Radium 226 *	< 26	18 ± 4	15 ± 3
Plomb 210**	< 100	23 ± 11	17 ± 7
Uranium 235	< 39	< 4,8	< 3,2
Chaîne du Thorium 232			
Actinium 228	< 108	20 ± 6	18 ± 4
Plomb 212	< 20	18 ± 3	18 ± 3
Potassium 40	< 700	< 300	< 270
Béryllium 7	190 ± 60	< 11	< 2

Activités ramenées à la date du prélèvement, exprimées en Becquerels par kilogramme frais (Bq/kg frais).

Radioactivité artificielle	Herbe	0 - 5 cm	5 - 10 cm
Césium 137	< 3,2	< 0,44	< 0,27
Césium 134	< 2,6	< 0,32	< 0,19
Cobalt 58	< 2,8	< 0,36	< 0,21
Cobalt 60	< 2,8	< 0,29	< 0,18
Manganèse 54	< 2,9	< 0,37	< 0,21
Antimoine 125	< 8	< 0,9	< 0,6
Iode 131	< 2,7	< 0,43	< 0,26
Cérium 144	< 14	< 1,8	< 1,1
Argent 110 m	< 2,8	< 0,33	< 0,21
Américium 241**	< 2,8	< 0,47	< 0,29
Iode 129**	< 3,1	< 0,41	< 0,24
Ruthénium 106	< 24	< 3	< 2

Légende :

± : marge d'incertitude

< : seuil de détection

* Le Radium 226 est évalué par défaut à partir de ses descendants Plomb 214 et Bismuth 214 l'équilibre séculaire n'étant pas atteint.

** : S'agissant de raies gamma à basse énergie (< 100 keV), les valeurs publiées constituent des valeurs par défaut, compte tenu des phénomènes d'autoatténuation possibles au sein de l'échantillon.