

## Rejets radioactifs dans l'air en cas d'accident nucléaire

A1

### Radionucléides produits dans le cœur du réacteur nucléaire

#### Quels sont les radionucléides produits ?

Pour produire de l'électricité, une centrale nucléaire utilise la chaleur dégagée dans le cœur du réacteur par les réactions de fission sur des atomes fissiles, notamment d'uranium 235 et de plutonium 239 présents dans le combustible nucléaire.

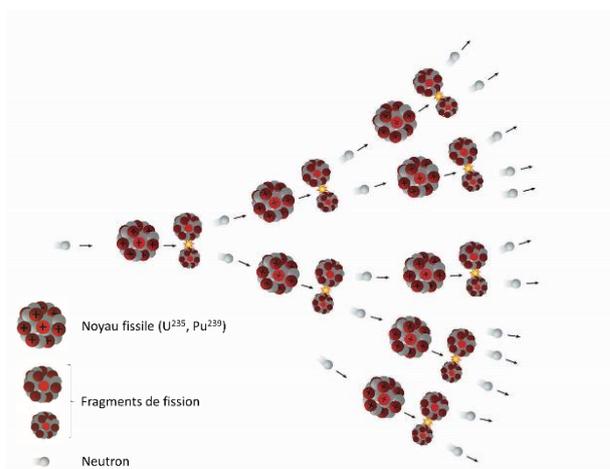
- Lorsque le noyau d'un atome fissile absorbe un neutron, il a la propriété d'éclater en 2 fragments (rarement 3), que l'on nomme **fragments de fission**. L'éclatement s'accompagne de la libération d'une grande quantité d'énergie et de l'émission de neutrons (2 ou 3 en moyenne par fission) qui pourront provoquer de nouvelles fissions, entretenant ainsi la réaction en chaîne. Les fragments issus de la fission sont des produits radioactifs très instables qui vont se désintégrer et donner naissance à d'autres produits très radioactifs. Se forment ainsi des chaînes de désintégration qui finiront par aboutir à un descendant stable. Les fragments de fission et leurs descendants radioactifs sont désignés sous le terme de **produits de fission** (notés PF). De très nombreux produits de fission ont des périodes radioactives très courtes du fait de leur grande instabilité et vont très rapidement disparaître. La désintégration de certains d'entre eux entraîne la production de substances radioactives à longue période qui vont entraîner une contamination de l'environnement sur le long terme. Plusieurs **centaines de produits de fission** sont créés dans le cœur d'un réacteur.

Parmi les produits de fission importants pour la radioprotection on peut citer : le krypton 85, le xénon 133, les iodes 131 et 133, le tellure 132, les césiums 136 et 137, le ruthénium 106, le strontium 90,...

L'illustration de la page ci-contre présente le schéma d'une réaction en chaîne sur des atomes fissiles.

*Cette fiche a pour but de présenter :*

- la nature et les propriétés des radionucléides produits dans le cœur du réacteur nucléaire
- les rejets de substances radioactives dans l'atmosphère en situation accidentelle



- D'autres composés artificiels, les **transuraniens**, sont produits dans le combustible. Ce sont des éléments chimiques dont le numéro atomique est supérieur à celui de l'uranium. On citera par exemple le neptunium 239, les plutoniums 239 et 240 ou bien encore l'américium 241. Ils résultent de l'absorption de neutrons par les atomes lourds.

- Les neutrons produits lors des réactions de fission sont très pénétrants. En interagissant avec les atomes des matériaux présents dans la cuve du réacteur (béton, métaux, eau) ils peuvent rendre radioactifs, « activer », des atomes stables. D'où leur nom de **produits d'activation** (notés PA). On peut citer : le carbone 14, les cobalts 58 et 60, le nickel 63, etc.. Se rajoutent des cas particuliers comme le césium 134 formé en partie par activation neutronique du césium 133, isotope stable produit par la désintégration du xénon 133.

#### Quelles sont les propriétés des différents radionucléides produits ?

##### - Mode de désintégration et rayonnements émis :

Les produits de fission et d'activation comportent généralement un excès de neutrons. Ils vont donc se désintégrer majoritairement en mode  $\beta^-$  (par transformation d'un neutron en proton et en émettant

un électron, voir fiche G1) pour évoluer vers un élément plus stable. Si le noyau formé par la désintégration se trouve dans un état excité (c'est le cas le plus souvent), des rayonnements gamma ou X sont émis pour évacuer le surcroît d'énergie.

Exemples de produits de fission émetteur  $\beta^-$ : le césium 137, le strontium 90, le krypton 85, l'iode 131. Le strontium 90 n'émet pratiquement que du rayonnement  $\beta$  (pas de rayonnement gamma, contrairement aux 3 autres isotopes précités).

Exemples de produits d'activation émetteur  $\beta^-$  : le cobalt 60, le nickel 63, le carbone 14 ou encore le chlore 36.

Les transuraniens, qui ont des noyaux très lourds, se désintègrent en général en émettant une particule  $\alpha$ , composée de 2 protons et de 2 neutrons. C'est le cas des plutoniums 239 et 240. Certains transuraniens se désintègrent en émettant une particule  $\beta^-$  : c'est le cas du plutonium 241 qui donne naissance à l'américium 241.

### - Période radioactive :

La période radioactive d'un radionucléide est le temps nécessaire pour que son activité soit divisée par 2. Après 2 périodes, elle est divisée par 4 ; après 3 périodes par 8 ; après 4 périodes par 16 ; etc. La connaissance de l'activité initiale d'un radionucléide, et de sa période, va permettre de suivre l'évolution de son activité dans le temps grâce à la loi de décroissance (voir fiche G1), et donc de pouvoir estimer les risques d'exposition aux radiations qu'il émet. La période radioactive des radionucléides présents dans le réacteur peut être très variable, de quelques fractions de secondes à plusieurs millions voire milliards d'années. Quelques exemples sont donnés dans le tableau ci-dessous :

Radionucléides	Période radioactive	Radionucléides	Période radioactive
Iode 132	2,3 heures	Strontium 90	28,79 ans
Iode 133	20,8 heures	Césium 137	30 ans
Césium 136	13 jours	Iode 129	15,7 millions d'années
Tellure 132	3,2 jours	Américium 241	432,6 ans
Iode 131	8 jours	Plutonium 240	6 561 ans
Baryum 140	12 jours	Uranium 235	704 millions d'années
Niobium 95	35 jours	Uranium 238	4,5 milliards d'années

Même si la période de certains radionucléides est très courte leur impact peut être très significatif dans les premières heures suivant un accident.

- **Les risques** associés aux radionucléides présents dans les rejets seront fonction du mode d'exposition : irradiation externe, contamination externe ou contamination interne. Lorsque les produits radioactifs sont incorporés, les risques sont notamment fonction de la porte d'entrée (inhalation, ingestion...), de la nature des produits radioactifs, de leur forme physico-chimique, de leur temps de séjour, des organes affectés et de l'âge des personnes exposées (Voir fiches G3, A5, S6, AL3).

Pour rendre compte de ces différences de **radiotoxicité**, la CIPR (Commission Internationale de Protection Radiologique) a défini des facteurs de dose (Sv/Bq) qui permettent de convertir l'activité incorporée en dose efficace et d'apprécier ainsi le risque au corps entier. Ils sont établis pour deux voies d'exposition (inhalation et ingestion) et pour plusieurs groupes d'âge. Du fait de la dimension plus petite de leurs organes, et parfois de particularités physiologiques, les coefficients de dose établis pour les enfants sont généralement plus élevés que ceux définis pour les adultes. La discussion sur les incertitudes concernant les facteurs de dose est approfondie dans les fiches A5 et AL3.

Le tableau ci-après présente des exemples de coefficients de dose tirés de la directive Euratom 96/29 du Conseil Communautaire concernant les risques liés à l'ingestion de Cs137, I131 et Pu239 pour un nourrisson (âge inférieur à 1 an) et un adulte (âge supérieur à 17 ans).

Sur ces exemples, on se rend compte de la différence de radiotoxicité entre les 3 radioéléments : pour 1 Bq d'iode 131 ingéré par le nourrisson, la dose reçue sera 8,5 fois plus importante que s'il s'agit du césium 137. Pour le plutonium 239, elle sera 200 fois plus importante.

On voit également l'importance de l'âge. La dose reçue pour chaque becquerel ingéré sera dans tous les cas supérieure pour le nourrisson par rapport à l'adulte (avec un facteur multiplicatif de 1,6 pour le césium 137, 8,2 pour l'iode 131 et près de 17 pour le plutonium 239).

### Coefficients de dose incorporée par ingestion pour les personnes du public ( $\mu\text{Sv/Bq}$ )

Élément	Radionucléide	Période physique	$\leq 1$ an	$> 17$ ans
			$\mu\text{Sv/Bq}$	$\mu\text{Sv/Bq}$
Iode	I-131	8,04 jours	0,180	0,022
Césium	Cs-137	30,0 ans	0,021	0,013
Plutonium	Pu-239	24 100 ans	4,200	0,250

Source : Directive Euratom 96/29

### Rejets de radionucléides dans l'atmosphère en situation accidentelle

Pour déterminer le potentiel de risque lié à un rejet accidentel, il est essentiel de connaître le **terme-source**, c'est-à-dire la nature et la quantité des radionucléides présents dans les rejets atmosphériques.

L'évaluation du terme-source est difficile : les premières estimations sont en effet très imprécises, compte tenu du

manque de données pendant (et même juste après) l'accident. Cette question du terme-source entraîne des débats pendant des années et fait l'objet de nombreux travaux scientifiques.

L'estimation du terme-source repose sur les 3 éléments suivants :

1) la détermination de **l'inventaire du cœur** au moment de l'accident. Il dépend du type de réacteur, de sa puissance, de la nature du combustible, du temps de séjour du combustible dans le cœur (taux de combustion),...

2) **les mesures dans l'environnement**. Tout le contenu du cœur n'est pas rejeté dans l'air : pour estimer la fraction rejetée dans l'environnement, les scientifiques vont s'appuyer sur les mesures effectuées dans le panache (nuage) radioactif ainsi qu'au niveau des dépôts.

3) **la modélisation**. A partir des données recueillies lors des 2 étapes précédentes, il s'agira d'affiner, par calcul, le terme-source au moyen de modèles mathématiques.

Il convient également de tenir compte du **scénario de l'accident** (les rejets ne vont pas évoluer de la même façon selon qu'il s'agisse d'un incendie, d'une explosion,...), de la **durée et de la cinétique des rejets** (sont-ils continus comme à Tchernobyl ou discontinus comme à Fukushima).

Les évaluations du terme-source peuvent donc être très variables selon les hypothèses prises en compte et les modèles utilisés. Cependant, un schéma général logique se dégage : les rejets les plus importants vont concerner les radionucléides les plus mobiles. Ceci a été confirmé lors des accidents de Tchernobyl et Fukushima.

### Sous quelles formes physico-chimiques peuvent être rejetés les radionucléides ?

Parmi les formes les plus mobiles, on retrouve d'abord les **gaz**. Certains gaz appelés « **gaz rares** » sont chimiquement inertes : ils ne peuvent pas s'associer à d'autres molécules présentes dans leur environnement. C'est ce qui les rend très difficile à piéger par des dispositifs classiques de filtration. Comme ils sont inertes, on ne les retrouvera pas dans la chaîne alimentaire. En revanche, ils présenteront un risque d'irradiation en cas d'exposition directe au panache. On peut citer les isotopes du **xénon** (xénon 133, xénon 135) et du **krypton** (krypton 85, krypton 88).

D'autres substances gazeuses présentent une grande réactivité chimique, qui leur permet de s'associer à d'autres molécules. C'est le cas des halogènes gazeux, comme l'iode (iode 129, iode 131) qui a la particularité de se fixer à la glande thyroïde. Les iodures présentent également une mobilité importante dans l'air et sont solubles dans l'eau.

Pour pouvoir mesurer l'iode 131 sous forme gazeuse, il est nécessaire de le piéger au préalable avec un dispositif de filtre spécifique à charbon actif.

D'autres substances radioactives sont rejetées dans l'air sous forme d'**aérosols**, c'est-à-dire de fines particules en suspension dans l'air. En fonction de leur taille, de leur masse, de leurs propriétés chimiques et de leur période physique, elles se disperseront à plus ou moins grande distance. Leur transfert au niveau du sol et dans la chaîne alimentaire sera également variable (voir fiches S1 et AL1).

Les césiums 134 et 137 sont principalement rejetés sous forme d'aérosols. L'iode 131 sous forme gazeuse et sous forme d'aérosols. On peut également retrouver dans les rejets atmosphériques des **particules chaudes** qui sont des condensats d'agglomérats métalliques (familles du ruthénium et du baryum notamment) et/ou des micro-fragments de combustibles. Ce sont des particules de très petite masse, dont la taille varie de quelques microns à une dizaine de microns, et qui concentrent une très forte activité. Ces particules peuvent présenter un risque très élevé en cas d'inhalation.

### Quels sont les radionucléides principaux rejetés en cas d'accident ?

Qu'il s'agisse des catastrophes de Tchernobyl ou de Fukushima, les radionucléides rejetés dans l'atmosphère en plus grande quantité ont été ceux qui présentent la plus grande « mobilité » :

- les gaz rares, en particulier le xénon 133
- les iodures et les tellures radioactifs
- les césiums radioactifs

Ceci est illustré par exemple par le tableau<sup>1</sup> ci-après à propos de l'accident de Tchernobyl.

<sup>1</sup> Extrait du tableau concernant l'estimation du terme-source de l'accident de Tchernobyl :

<https://www.oecd-nea.org/rp/chernobyl/c02.html>. Ce tableau n'est pas exhaustif mais tient compte des principaux radionucléides.

On distingue<sup>2</sup> :

1/ **les gaz rares** (xénon 133, krypton 85,...). Compte tenu de leur très grande volatilité, la quasi-totalité des gaz présents dans le cœur peuvent être rejetés en cas d'exposition directe du cœur à l'atmosphère (cas de Tchernobyl où, suite à l'explosion du réacteur N°4, 100 % du xénon 133 a été rejeté ce qui représente une quantité colossale de radioactivité : 6 500 PBq (soit 6 500 millions de milliards de Bq). Le scénario ayant été différent à Fukushima (pas d'explosion des cœurs mais une fusion avec explosion d'hydrogène), la proportion de rejets de xénon 133 était plutôt de l'ordre de 60 % avec une activité estimée de l'ordre de 7 320 PBq<sup>3</sup> (cumul sur les 3 réacteurs accidentés).

2/ **les isotopes de l'iode** (iode 129, iode 131) et du **tellure** (tellure 132) très mobiles et volatiles. Dans le cas de Tchernobyl, l'estimation du rejet d'iode 131 à l'atmosphère est de l'ordre de 1 760 PBq (environ 50 à 60 % de l'inventaire du cœur) et de 1 150 PBq pour le tellure 132 (25 à 60 % de l'inventaire du cœur). Plus faibles à Fukushima, les quantités estimées restent néanmoins très élevées : de l'ordre de 124 PBq pour l'iode 131 (environ 2% de l'inventaire des cœurs des 3 réacteurs) et 29 PBq pour le tellure 132 (0,3% de l'inventaire). Les rejets d'iode ont été préférentiellement sous forme gazeuse<sup>4</sup>.

3/ **les isotopes du césium** qui sont rejetés sous forme d'aérosols. Dans le cas de Tchernobyl, les rejets de césium 134 et 137, représenteraient 20 à 40 % de l'inventaire du cœur du réacteur, soit une activité de l'ordre de 85 PBq pour le césium 137 et de 54 PBq pour le césium 134. A Fukushima, les rejets auraient concerné environ 1,3 % de l'inventaire du cœur des 3 réacteurs accidentés (de l'ordre de 9 PBq pour le césium 134 et une valeur identique pour le césium 137). 4/ les intermédiaires, qui sont moins mobiles : ce sont par exemple les isotopes du **strontium** (strontium 89 et 90), du **ruthénium** (ruthénium 103 et 106) ou encore le **baryum 140**. Pour Tchernobyl, les rejets estimés varient de 10 PBq pour le **strontium 90** à 240 PBq pour le baryum 140, ce qui représente environ 3,5 à 6 % de l'inventaire du cœur.

5/ les produits réfractaires (non volatiles) : comme le **zirconium 95**, ou les **cériums 141 et 144**. Pour Tchernobyl, les rejets estimés sont de l'ordre de 196 PBq pour le zirconium 95 et une valeur identique pour le cérium 141 (environ 3,5 % de l'inventaire du cœur).

Dans le cas de Tchernobyl, du fait de la mise à l'air libre du combustible nucléaire et de l'explosion, il y a également eu dispersion d'isotopes de l'**uranium** et des **transuraniens** (isotopes du neptunium, du plutonium et du curium notamment). Les rejets estimés en plutonium 239 et 241 ont été respectivement de 0,03 PBq et environ 6 PBq, soit 3,5% de l'inventaire du cœur.

Estimation des rejets de radionucléides lors de l'accident de Tchernobyl (liste non exhaustive)

Inventaire du cœur le 26 avril 1986			Rejet total durant l'accident	
Radionucléide	Période radioactive	Activité (1 PBq = 1 million de milliards de Bq)	Part de l'inventaire du cœur (%)	Activité en PBq (1 PBq = 1 million de milliards de Bq)
Xe 133	5,3 jours	6 500	100	6500
I 131	8 jours	3 200	50 - 60	~1760
Te 132	78 heures	2 700	25 - 60	~1150
Cs 134	2 ans	180	20 - 40	~54
Cs 137	30 ans	280	20 - 40	~85
Sr 89	52 jours	2 300	4 - 6	~115
Sr 90	28 ans	200	4 - 6	~10
Ba 140	12,8 jours	4 800	4 - 6	~240
Mo 99	67 h	4 800	>3.5	>168
Ru 103	39,6 jours	4 800	>3.5	>168
Ru 106	1 an	2 100	>3.5	>73
Zr 95	1,4 heure	5 600	3.5	196
Ce 141	33 jours	5 600	3.5	196
Ce 144	285 jours	3 300	3.5	~116
Np 239	2,4 jours	27 000	3.5	~95
Pu 238	86 ans	1	3.5	0.035
Pu 239	24 400 ans	0.85	3.5	0.03
Pu 240	6 580 ans	1.2	3.5	0.042
Pu 241	13,2 ans	170	3.5	~6

Source : <https://www.oecd-neo.org/rp/chernobyl/c02.html>

Table 1. Current estimate of radionuclide releases during the Chernobyl accident (modif. from 95De)

<sup>2</sup>Les estimations de rejets doivent être considérées comme des ordres de grandeur et sont données ici à titre indicatif. Il y a en effet de fortes disparités selon les sources bibliographiques.

<sup>3</sup> Terada, H., G. Katata, M. Chino et al. Atmospheric discharge and dispersion of radionuclides during the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident. J Environ Radioact 112 :141-154 (2012).

<sup>4</sup>De l'ordre de 80 % par exemple pour ce qui concerne les retombées de Fukushima mesurées par la CRIIRAD en Vallée du Rhône.