

# ÉTUDE DES RETOMBÉES DES ESSAIS NUCLÉAIRES GUERRE FROIDE - CHAUDES PARTICULES

PIER ROBERTO DANESI

**A**u début du siècle prochain, plus de 2000 essais nucléaires de différentes puissances et de différents types auront été enregistrés. Presque tous ont été effectués pendant la période de la guerre froide, qui s'est terminée dans les années 90.

Les essais nucléaires atmosphériques ont dispersé des résidus radioactifs dans l'environnement. Ils se répartissent, en fonction de l'essai, du lieu et du rendement, entre la surface terrestre (ou marine) locale et les régions troposphériques et stratosphériques. Les précipitations ultérieures, transportant les résidus, produisent des retombées aussi bien locales que mondiales. Les concentrations de certains radionucléides peuvent entraîner la formation de particules radioactives – morceaux infimes de matières contenant des éléments chimiques radioactifs.

Les retombées locales comprennent des aérosols radioactifs de grande taille, particules qui se déposent généralement dans un rayon de 100 kilomètres environ autour du site d'essai. La contamination radioactive locale au niveau des sites d'essais nucléaires est également attribuée aux essais de sûreté d'engin nucléaires qui ont souvent dispersé des matières fissiles. Ces matières sont libérées sous différentes formes: vapeur de plutonium, aérosols de plutonium de différentes tailles, particules d'oxyde de plutonium, particules revêtues de plutonium et morceaux relativement importants de structures contaminées par le plutonium détruites par l'explosion.

Les retombées mondiales englobent les retombées aussi bien troposphériques que stratosphériques. Les premières consistent en aérosols qui ne traversent pas la tropopause et se déposent pour un temps de séjour moyen pouvant atteindre 30 jours. Pendant ce temps, les résidus se dispersent dans la bande d'injection en latitude suivant des trajectoires régies par la direction des vents. Les retombées stratosphériques consistent en particules qui donnent ultérieurement lieu à d'importantes retombées mondiales se produisant pour l'essentiel dans l'hémisphère où l'essai nucléaire a été effectué. Elles représentent la majeure partie des résidus de produits de fission à longue période.

Les retombées nucléaires entraînent une exposition des individus à la radioactivité par irradiation interne (due à l'inhalation de matières radioactives présentes dans l'air ou à l'ingestion d'aliments contaminés) et externe (par les matières radioactives présentes dans l'air de surface ou déposées sur le sol). D'importantes études ont été menées dans ces domaines.

Dans le cas des essais nucléaires, l'évaluation de la nature de l'événement primaire comprend généralement l'analyse des matières radioactives déposées sur le sol. Ces

*Photos: Repère sur l'ancien site d'essais nucléaires de Maralinga, en Australie méridionale. Sur le site de Mururoa, en Polynésie française, une équipe de l'AIEA a prélevé des échantillons de sol en vue de l'analyse des particules radioactives. (Photo: Danesi/AIEA)*



études posent cependant un problème, car la composition des radionucléides peut considérablement changer entre le moment de la détonation nucléaire et le moment où les échantillons sont prélevés aux fins de l'analyse radiochimique. Un processus dit "de fractionnement" fait que les échantillons de résidus radioactifs ne sont pas représentatifs des produits de détonation.

Le fractionnement commence par la condensation de matières radioactives et inertes provenant de la boule de feu. Le mélange peut commencer, sous l'influence du vent, de la gravité et de la turbulence du nuage atomique, à se séparer alors que la condensation n'est pas terminée. La séparation du condensat se poursuit sous différentes formes, notamment par contact des résidus avec des matières inertes.

*M. Danesi est directeur des laboratoires de l'AIEA à Seibersdorf, non loin du Siège de l'Agence à Vienne (Autriche).*

Lorsque le nuage atomique se forme, les processus de refroidissement, de condensation, de coagulation, de mélange et de séparation interviennent simultanément, mais à des degrés différents dans différentes parties du nuage. De plus, les produits radioactifs initiaux changent de composition élémentaire du fait de la désintégration radioactive.

**Particules radioactives.** Il est nécessaire d'avoir une connaissance scientifique des phénomènes de fractionnement si l'on veut interpréter les retombées mondiales et la chimie nucléaire du processus de détonation. Cette connaissance est également utile pour évaluer les risques de contamination et d'ingestion.

Les variations de taille et de type des particules s'accompagnent de variations de leur composition chimique en fonction des schémas de fractionnement. La nature et les concentrations de radionucléides, ainsi que la taille et la forme des particules, déterminent leur tour de risque d'inhalation ou d'ingestion.

D'autres informations scientifiques importantes ont trait à la forme chimique sous laquelle les radionucléides sont présents dans les particules. Les radionucléides présents dans les particules radioactives sont en général relativement inertes comparés aux ions, aux atomes et aux espèces à faible masse moléculaire, qui sont plus mobiles et libres.

Pour pouvoir évaluer les conséquences à court et à long termes des retombées atmosphériques et, en particulier, la fuite des radionucléides à partir des particules radioactives, il est indispensable de disposer d'informations physico-chimiques précises sur ce terme source. Habituellement, les informations sur les sources termes se cantonnent à l'inventaire estimatif, au niveau d'activité ou à l'activité volumique des radionucléides déposés. Les

informations sur leur forme physico-chimique sont rares.

Une fois déposées, les particules sont soumises aux intempéries et les radionucléides qu'elles contiennent se mobilisent dans le temps. La composition des particules, l'éventuelle modification de leur structure et les caractéristiques chimiques du site de dépôt influencent la vitesse d'altération par les intempéries. De surcroît, les radionucléides mobilisés peuvent également interagir avec le sol et les sédiments.

La plupart des modèles utilisés pour évaluer le transfert et les conséquences de la contamination par les radionucléides partent de l'hypothèse que les radionucléides sont présents sous forme ionique ou sous la forme d'espèces à faible masse moléculaire. Il s'ensuit souvent une surestimation des conséquences à court terme de la contamination radiologique.

En revanche, si les particules sont relativement inertes, comme c'est souvent le cas, le transfert des radionucléides est retardé jusqu'à ce que des intempéries surviennent. De ce fait, les conséquences à long terme de la contamination radiologique peuvent être sous-estimées.

Il est donc clair que si l'on ne tient pas compte du rôle des particules radioactives, les prévisions par modélisation peuvent pâtir de grandes incertitudes.

La présence de particules radioactives peut également invalider certaines hypothèses adoptées pour évaluer la contamination du sol et des sédiments. Cela vaut notamment pour l'hypothèse fréquemment utilisée selon laquelle on peut légitimement fixer comme échelle, pour l'activité surfacique ou volumique, des unités de différentes grandeurs (par exemple  $\text{Bq}/\text{cm}^2$ ,  $\text{Bq}/\text{m}^2$  ou  $\text{Bq}/\text{km}^2$  et vice versa).

Les exemples suivants illustrent certaines méthodes utilisées pour

étudier les particules radioactives sur les sites d'essais nucléaires.

## ÉTUDES RÉALISÉES EN AUSTRALIE MÉRIDIONALE

De 1953 à 1963, le Royaume-Uni a mis en œuvre un programme d'essais d'armes nucléaires à Maralinga et à Emu en Australie méridionale. Sur ces sites, aujourd'hui complètement réhabilités, on a procédé à neuf explosions nucléaires et à plusieurs centaines d'essais de moindre ampleur.

Tandis que les explosions importantes ont eu un rendement compris entre une et 27 kilotonnes, les essais de moindre ampleur n'ont consisté qu'à brûler et à disperser par explosion de l'uranium, du plutonium et des radionucléides à courte période. Les conséquences pour l'environnement de ces essais ont été étudiées de façon approfondie par l'Australian Radiation Laboratory (ARL) et ont fait l'objet de nombreuses publications.

La contamination la plus importante par le plutonium survenue à Maralinga a résulté d'une série de douze essais de sûreté au cours desquels 22 kg de plutonium (et une quantité analogue d'uranium-235) ont été libérés dans l'environnement. Les matières ont été dispersées au moyen d'explosifs conventionnels et aucune réaction nucléaire, sinon très faible, n'a eu lieu. Le plutonium a été projeté verticalement jusqu'à des altitudes atteignant parfois 800 mètres et a été dispersé sur de grandes distances par les vents qui prévalaient alors, ce qui a entraîné la contamination de territoires considérables. On a trouvé du plutonium à plusieurs kilomètres des points de détonation.

L'ARL a détecté du plutonium principalement sous trois formes: agglutiné à la surface de matériaux tels que des morceaux de métal, des

matières plastiques, des câbles et des briques de plomb faisant partie des montages expérimentaux; sous forme de minuscules fragments ou particules pas toujours visibles à l'œil nu mais facilement détectables par détecteur gamma; et sous forme de matières très finement dispersées consistant en particules de sol contaminé et en particules de plutonium recondensé approximativement de même taille que celles du sol proprement dit.

Des échantillons de ces matières ont été rassemblés et séparés en tamisant jusqu'à un diamètre de 45 microns pour déterminer leur concentration en masse et leur activité volumique. Les résultats ont montré que la masse la plus élevée s'observait généralement chez les particules mesurant 250 à 500 microns; l'essentiel de l'activité (environ 41%), cependant, était concentré dans les particules mesurant moins de 45 microns, qui ne représentaient que 5% de la masse totale.

On a en outre fractionné les échantillons les plus fins en sept tailles aérodynamiques s'échelonnant de 45 microns à moins de 3 microns. De cette façon, on a également détecté des particules inhalables, définies comme ayant une taille inférieure à sept microns.

Des particules ont également été détectées dans un échantillon de sol de 800 grammes (ayant une activité de 25 Bq d'américium-241), décomposé par séparations binaires en particules discrètes. Toute l'activité de l'échantillon a été détectée dans les 54 particules radioactives séparées. On a estimé que l'activité de chaque particule était comprise entre 0,1 et 2,0 Bq d'américium-241; le diamètre moyen était d'environ 20 microns.

On a également détecté un grand nombre de particules radioactives de diamètre inférieur à un millimètre, qui ont été analysées par spectrométrie gamma à haute résolution (pour déterminer le

rapport plutonium-239/américium-241) et dont on a mesuré l'assimilation biologique. Cinq particules de diamètre inférieur à un millimètre ayant une activité comprise entre 30 Bq et 5 kBq ont également été analysées par spectroscopie à émission de rayons X induite par protons pour obtenir des informations sur leur composition élémentaire et leur homogénéité.

Dans ces particules, qui mesuraient plusieurs centaines de microns de diamètre, on a détecté du plutonium et de l'uranium répartis de façon homogène à la surface. Les principaux éléments détectés ont été l'aluminium (1,8%), le potassium (2,3%), le calcium (1%), le fer (23%), le plomb (1,9% à 35%), l'uranium (2,9% à 0,8%) et le plutonium (19%). Des études de dissolution dans du fluide pulmonaire simulé ont montré que les particules n'étaient pas particulièrement solubles.

## ÉTUDES MENÉES EN POLYNÉSIE FRANÇAISE

D'autres études des particules radioactives ont été menées en Polynésie française par une équipe d'experts dans le cadre de l'Étude internationale de la situation radiologique des atolls de Mururoa et de Fangataufa, achevée en 1998. De juillet 1966 à septembre 1974, quarante et un essais nucléaires atmosphériques ont été effectués sur ces atolls. En outre, cinq essais de sûreté ont été effectués en surface à la pointe nord de l'atoll de Mururoa, en un lieu généralement appelé région de Colette.

Les essais de sûreté avaient pour objet d'étudier le comportement du cœur d'engins nucléaires dans les conditions simulées d'une détonation défectueuse, le cœur étant détruit par détonation d'explosifs conventionnels. Chaque essai a entraîné la dispersion

d'environ 3,5 kg de plutonium-239 sous la forme de plutonium et d'oxyde de plutonium pulvérisés. Bien que d'importantes opérations de nettoyage aient été menées entre 1982 et 1987, des particules radioactives de plutonium ont subsisté à la surface de la région de Colette et dans le banc de sable adjacent du lagon.

Dans le cadre de l'Étude internationale, une équipe de scientifiques a évalué la contamination résiduelle de l'environnement terrestre de Mururoa et de Fangataufa, y compris la région de Colette. Une campagne d'échantillonnage organisée et coordonnée par les laboratoires de l'AIEA à Seibersdorf a été mise en œuvre pendant l'été de 1996. Cette campagne a donné lieu à d'importantes mesures radiochimiques effectuées sur quelque 300 échantillons (*voir article page 24*).

L'analyse de la contamination résiduelle de la région de Colette a mis en évidence la présence de particules radioactives contenant du plutonium. Vingt particules relativement grandes, de diamètre compris entre 200 microns et un millimètre, ont été séparées de débris de coraux et de roches coralliennes broyées. Ces particules ont été mesurées par spectrométrie gamma à haute résolution pour évaluer leur activité et le rapport plutonium-239/américium-241. L'activité du plutonium-239 s'est révélée être comprise entre 5 et 300 kBq, bien qu'une particule ayant une activité d'un MBq ait également été trouvée. L'activité de l'américium-241 dans les particules était comprise entre 0,2 et 5,6 kBq. Six de ces particules radioactives, dont le diamètre était compris entre 200 et 500 microns, ont également été étudiées par microscopie optique et fluorescence des microrayons X. Les observations ont révélé que certaines particules étaient compactes, lisses et vitreuses, tandis que d'autres

semblaient rugueuses et pouvaient même être des agglomérats de particules plus petites.

Outre le plutonium, les particules se sont révélées contenir d'autres éléments. Elles contenaient de l'uranium et du neptunium à des concentrations 10 à 100 fois inférieures à celles de plutonium; du calcium (indiquant qu'elles avaient une matrice de carbonate de calcium); du fer (établissant leur nature métallique); du chlore (provenant très probablement du sel marin); et des traces de manganèse, de nickel, de chrome, de cobalt et de titane (provenant probablement des conteneurs d'acier renfermant les matières fissiles utilisées pour les essais de sûreté).

Pour estimer la répartition du plutonium dans les débris de coraux, on a également tamisé un échantillon de 1053 grammes en fractions de sept tailles. On a mesuré l'activité du plutonium et de l'américium dans les différentes fractions par spectrométrie gamma à haute résolution. Les résultats ont indiqué que 99,9% de la masse et 95,8% de l'activité étaient présents dans des particules de diamètre supérieur à 250 microns.

Il faut néanmoins souligner que l'étude n'a pas exclu la présence de particules de diamètre inférieur à 10 microns (contenant la fraction inhalable) ayant une activité de plutonium-239 de plusieurs centaines de becquerels. Des études *in vitro* de dissolution dans du sérum simulé effectuées sur six particules ont montré que la quantité de plutonium solubilisé était dans tous les cas inférieure à 0,07% de celle initialement présente dans les particules. Ces caractéristiques de dissolution étaient comparables à celles des particules provenant du site d'essais nucléaires de Maralinga.

## FUTURS BESOINS

L'étude des particules radioactives est indispensable si l'on veut

évaluer correctement les risques liés aux rayonnements sur les sites contaminés par des essais nucléaires. À ce jour, cependant, les études ont posé plus de questions qu'elles n'ont apporté de réponses définitives. Elles prouvent que les informations sur les particules radioactives et sur le fractionnement des particules obtenues par l'analyse radiochimique, chimique et physique des débris demeurent trop rares et trop éparses compte tenu de la diversité des particules produites et du nombre de variables devant être étudiées. C'est pourquoi l'on ne comprend toujours pas pleinement les phénomènes complexes qui régissent la formation, la composition chimique et radiochimique ou les propriétés physiques et morphologiques des particules radioactives et leur comportement dans le milieu naturel.

De toute évidence, les phénomènes aboutissant à la formation des particules radioactives et leur comportement dans les écosystèmes sont complexes. C'est pourquoi toute généralisation doit être avancée avec prudence. Pour réaliser des progrès dans ce domaine, il faudra probablement recourir à des équipes multidisciplinaires réunissant des experts en chimie physique, des spécialistes des méthodes de micro-analyse non destructives, des radiochimistes et des experts en physique nucléaire et sanitaire.

Il faut également souligner que des particules radioactives de différentes tailles et compositions contenant des actinides et des produits de fission ou d'activation sont libérés dans l'environnement par des sources autres que les essais nucléaires. De telles particules ont été libérées, par exemple, par l'incendie du réacteur de Windscale en 1957, par l'accident d'un B-52 à Thule en 1968, par l'accident du

satellite Cosmos au Canada en 1978 et par l'accident de Tchernobyl en 1986. Des particules radioactives ont également été libérées dans l'environnement par les installations nucléaires produisant de matières fissiles destinées aux programmes d'essais d'armes nucléaires.

En règle générale, on sait que toute installation de traitement de matières nucléaires libère des quantités faibles, mais détectables, d'isotopes radioactifs et non radioactifs dans l'environnement immédiat. Ces rejets, qui n'ont souvent aucune incidence du point de vue du risque lié aux rayonnements, peuvent prendre la forme de flux d'effluents, d'aérosols ou de particules et peuvent être détectés à quelque distance, en amont ou en aval, du point de libération.

Les méthodes d'analyse utilisées pour étudier les particules radioactives provenant des essais nucléaires peuvent également servir à étudier d'autres sources de radioactivité liées à l'environnement. Elles permettent aux scientifiques de mesurer des quantités extrêmement faibles d'éléments chimiques et d'isotopes présents dans les matières radioactives libérées, et d'obtenir ainsi des informations sur leur processus de formation.

Espérons que dans les années à venir, d'autres études des particules radioactives seront menées sur des sites contaminés par des essais d'armes nucléaires et par différents types d'accident nucléaire, ainsi que sur des sites proches d'installations nucléaires. Ces travaux bénéficieront des progrès réalisés dans le domaine de l'analyse instrumentale. Ils permettront de mieux comprendre le rôle joué par les particules radioactives dans l'évaluation des risques liés aux rayonnements et fourniront des renseignements sur le type et la finalité des installations qui les produisent. □