

# Le polonium 210, un repère naturel important en radioprotection

J. PRADEL<sup>1</sup>, P. ZETTWOOG<sup>1</sup>, N. DELLERO<sup>1</sup>, D. BEUTIER<sup>1</sup>

(Manuscrit reçu le 10 mai 2001, accepté le 29 août 2001)

## RÉSUMÉ

Le polonium 210 naturel, de période relativement courte (138 jours) et issu de la famille de l'uranium, devrait retenir davantage l'attention en radioprotection car il entraîne des doses chroniques plus élevées que les traces de césium 137 et de plutonium (238, 239 et 240) présentes dans l'environnement. Dans la croûte terrestre, l'uranium est accompagné du radium, du radon et de ses descendants, à des concentrations de l'ordre de 40 000 Bq t<sup>-1</sup>. Par le jeu de l'exhalaison du radon 222 des sols sur une couche métrique et des retombées du plomb 210 (descendant du radon), la couche superficielle des sols s'enrichit par rapport à la teneur en radium, d'un facteur variant de 2,7 à 8,8 en plomb 210 et en polonium 210 selon des mesures faites dans l'environnement. L'exposition de l'homme au polonium 210 par ingestion est notable. Elle est permanente et 30 à 70 fois plus importante que l'exposition au césium 137 des retombées de Tchernobyl à Helsinki en 1986, qui décroît selon la période radioactive de 30 ans. La toxicité par ingestion du polonium 210 est 500 à 2 000 fois plus élevée que celle du plutonium pour un même nombre de becquerels déposés au sol. Des « points chauds » peuvent se former dans certains compartiments de l'environnement : le polonium 210 se concentre particulièrement dans la faune marine, comme le montrent plusieurs campagnes de mesures dans la zone nord-est de l'Atlantique.

## ABSTRACT

Polonium 210, an important natural reference for radiological protection.

Natural polonium 210 which has a relatively short decay period (138 days) and is uranium decay serie daughter should retain more radiological attention because it induces chronic doses higher than that of traces of caesium 137 and plutonium isotopes (238, 239, 240) in the environment. In the earth's crust, uranium is present together with radium, radon and its daughter products, at a concentration of about 40,000 Bq t<sup>-1</sup>. As a consequence of radon 222 exhalation from soils within a metric layer and of lead 210 (radon daughter) fallout, there is an enrichment of polonium 210 radioactivity in top layer soil relatively to radium concentration, within a factor varying from 2.7 to 8.8 according to environmental measurements. Human exposure to polonium 210 by ingestion is not negligible. The induced exposure by ingestion of natural polonium 210 is 30 to 70 times higher than that of caesium from Chernobyl fallout at Helsinki in 1986. Moreover, the latter decreases in relation with the 30 years' decay period while that from radon daughters remains. Comparison with plutonium shows a 500 to 2,000 times stronger health effect by ingestion for the same number of deposited becquerels on soil. "Hot spots" may occur in the environment: polonium 210 is particularly concentrated by marine fauna, as shown by several measurement programs over the area of north-east Atlantic.

<sup>1</sup> COGEMA, 2 rue Paul Dautier, BP 4, 78141 Vélizy Cedex, France.

Dans la chaîne de décroissance de l'uranium naturel se trouve le radon qui a depuis longtemps été étudié pour traiter le cas des expositions des mineurs d'uranium (Pradel, 1957 ; Paustenbach, 1989 ; Bernhard *et al.*, 1992 ; Tirmarche, 1994 ; Tort *et al.*, 1999 ; Monchaux, 1999) puis celles des travailleurs du sous-sol et enfin celles de l'ensemble de la population exposée à ce gaz présent dans les maisons (IPSN, 1997). Les expositions naturelles à ce gaz et à ses descendants à vie courte peuvent être importantes. La limite d'exposition du public prescrite par la Directive européenne 96/29/EURATOM (1996), soit  $1 \text{ mSv an}^{-1}$  (dose au corps entier engagée sur 50 ans), est atteinte pour une concentration d'environ  $66 \text{ Bq m}^{-3}$  de radon dans les habitations. Des valeurs de concentrations en radon 10 à 100 fois plus élevées sont observées dans plusieurs endroits en France (DPHD, 1990). Mais relativement peu de données sont disponibles sur la dispersion dans l'environnement et l'impact sur l'homme des descendants à vie longue du radon : principalement le plomb 210 (période de 22,3 ans) et son petit-fils le polonium 210 (période de demi-vie de 138 jours) dont la dose efficace engagée par unité ingérée ( $\text{Sv Bq}^{-1}$ ) est plus élevée que celle du césium 137 et que celles des isotopes du plutonium (238, 239 et 240) (Directive 96/29/Euratom, 1996).

Dans cet article, les auteurs se proposent d'examiner l'exposition chronique de l'Homme à ces radionucléides et principalement au polonium 210. Une première partie décrit la méthode d'estimation des concentrations en polonium 210 à la surface du sol, en supposant l'équilibre avec son père, le plomb 210. La deuxième partie présente des résultats de mesures dans l'environnement qui viennent étayer les hypothèses faites en section 1. La troisième partie indique des valeurs de concentration en polonium 210 habituellement rencontrées dans l'environnement et évalue l'impact dosimétrique de ce radionucléide. L'exposition par ingestion qui est la voie prédominante d'impact est comparée à celle du césium 137 et des isotopes du plutonium. L'existence de « points chauds » induisant des doses plus élevées est évoquée dans la quatrième partie.

## 1. Estimation des flux et des activités résultantes

### 1.1. Le père de la famille : l'uranium

la figure 1 rappelle la chaîne de décroissance radioactive de l'uranium 238 et de ses descendants. la croûte terrestre contient des traces d'uranium naturel ( $^{238}\text{U}$ ) en quantités certes variables mais toujours notables quel que soit le lieu. La concentration moyenne est de 3 grammes par tonne, soit environ quarante mille becquerels d'uranium 238 par tonne, elle n'est pratiquement jamais inférieure au dixième de cette valeur et il existe des zones uranifères de dimensions kilométriques où elle est cinq à dix fois plus importante (elle peut même atteindre 200 000 fois cette valeur moyenne dans les minerais très riches) (SFRP, 1988).

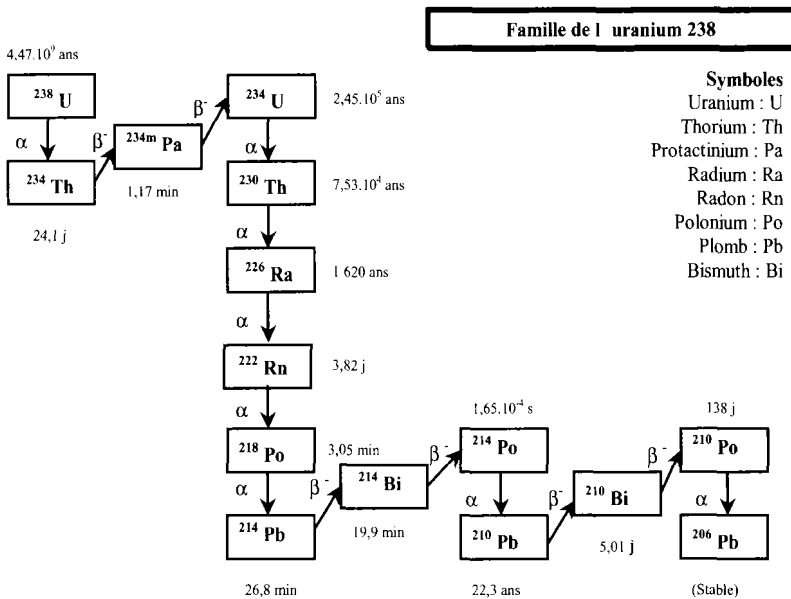


Figure 1 – Famille de l'uranium 238.  
 Uranium 238 radioactive daughters.

Cet uranium est accompagné du radium 226, du radon 222 et de ses descendants, notamment plomb et polonium 210, chacun à des concentrations sensiblement identiques ( $40\,000\text{ Bq t}^{-1}$ ) en équilibre séculaire.

### 1.2. Le radon

La désintégration d'un atome de radium 226 donne naissance à un atome de radon 222 de période 3,8 jours. Le radon présente la particularité de posséder la structure électronique d'un gaz rare. Il peut, lors de sa formation, avoir deux comportements : ou bien il reste inclus dans la matrice cristalline radifère ou bien il s'en échappe et rejoint l'espace des pores de la roche ou du sol (radon émané). Il peut ensuite être véhiculé par les fluides (air ou eau) jusqu'à l'atmosphère libre (radon exhalé) et ce, en quantité importante pour les atomes formés dans les couches proches de l'atmosphère. Cette exhalaison fait que les couches superficielles sont appauvries en radon sur une certaine profondeur.

Ce phénomène peut être modélisé en définissant une profondeur dite de relaxation qui caractérise le profil vertical de l'activité volumique dans l'espace des pores. Cette profondeur de relaxation se situe dans la gamme 20 cm à 1 mètre.

Quantitativement, tout se passe comme si tous les atomes de radon émanés de cette fraction du sol étaient exhalés. Le flux moyen d'exhalaison à la surface des continents est de l'ordre de 10 000 atomes de radon 222 par mètre carré et par seconde (la valeur de 8 800 atomes par mètre carré et par seconde est retenue, par exemple) (NCRP, 1984).

### ***1.3. Les descendants du radon***

#### ***1.3.1. Flux de plomb 210***

Les atomes de radon 222 exhalés dans l'atmosphère deviennent successivement des atomes d'isotopes radioactifs du plomb, du bismuth et du polonium. Ces atomes s'attachent très rapidement aux fines particules des aérosols et sont transportés par les courants atmosphériques sur toute la surface du globe. Ces aérosols porteurs d'atomes radioactifs tombent en mer ou sont déposés sur les sols et captés par la végétation, leur temps de résidence atmosphérique étant au plus de l'ordre de quelques semaines (Ladinskaya *et al.*, 1973).

Au bout de quelques mois, tous les aérosols porteurs sont retombés. Compte tenu des périodes radioactives respectives de ces différents isotopes, ce sont les atomes de plomb 210, dont la période radioactive est égale à 22,3 ans, qui y sont majoritaires en nombre.

Le plomb est faiblement mobile ; il n'est pratiquement pas entraîné en profondeur dans le sol par un phénomène de lessivage dû aux infiltrations d'eaux. Ses atomes restent en surface, s'il s'agit de sols non remaniés par l'érosion naturelle ou par des pratiques agricoles et c'est l'hypothèse que nous adoptons par la suite.

L'activité du plomb 210 du sol superficiel provenant des retombées devient stationnaire au bout de quelques dizaines d'années : les atomes de plomb 210 qui y disparaissent sont juste remplacés par ceux qui retombent.

À l'équilibre stationnaire, le flux de retombée au sol des atomes fils du radon 222 est égal au flux d'exhalaison de radon 222 pondéré par l'importance relative du dépôt sur le sol par rapport au dépôt sur toute la surface du globe (y compris les océans). Adoptons par défaut un taux de récupération par les sols de 50 % en moyenne sur l'ensemble des continents, le flux de retombées est alors de l'ordre de 5 000 atomes de plomb 210 par seconde et par m<sup>2</sup> en moyenne.

#### ***1.3.2. Rapport entre les activités volumiques de plomb 210 et de radium 226***

En supposant l'équilibre réalisé, l'activité volumique du radium 226 dans les sols en profondeur est égale à celle du radon 222. Si l'on suppose que la profondeur de

relaxation est d'environ 65 centimètres et que le taux d'émanation est de 25 %, le nombre total des atomes de radon 222 exhalés par seconde vaut 25 % du nombre d'atomes de radium 226 qui se désintègrent par seconde dans les 65 premiers centimètres du sol.

On peut considérer (notamment pour le calcul des transferts aux animaux qui seront effectués plus loin) que le plomb 210 de retombée est, en fait, réparti dans les 5 premiers centimètres d'un sol non remanié. Or, le plomb 210 dans cette couche est principalement issu de deux sources :

- les atomes issus des retombées des émanations de radon,
- les atomes présents dans le sol (non émanés) issus de la désintégration du radium 226.

L'activité volumique des atomes du plomb 210 issus des retombées et contenus dans ces cinq centimètres se calcule de la façon suivante par rapport à celle du radium 226 :

- le flux de radon 222 émané en atomes par seconde vaut 0,25 fois l'activité du radium 226, et ces atomes sont totalement exhalés,
- la moitié de ce radon 222 exhalé (facteur 0,5), transformé en plomb 210, est déposée sur le sol,
- l'activité totale qui s'est déposée est concentrée dans les 5 cm superficiels, soit une activité concentrée dans un rapport de volume 5/65 par rapport à celle du radon 222 émis.

Au total cela aboutit à une activité volumique du plomb 210 en surface issue des retombées de 1,625 fois celle du radium 226 ( $0,5 \times 0,25 \times 65/5$ ).

À cela, se rajoute l'activité du plomb 210 correspondant au radon 222 non émané du sol, soit 0,75 fois celle du radium 226.

L'activité volumique totale du plomb 210 superficiel vaut donc  $1,625 + 0,75$  soit environ 2,4 fois celle du radium 226. C'est en ce sens qu'il y a un enrichissement de la radioactivité de la surface des sols en plomb 210. La figure 2 indique le profil vertical de l'enrichissement du plomb 210 dans le sol par rapport au radium 226. Sur la base d'une teneur de 40 000 Bq d'uranium 238 par tonne dans le sol, la concentration en plomb 210 dans la couche superficielle du sol (5 premiers cm) serait d'environ 100 000 Bq t<sup>-1</sup>.

### ***1.3.3. Activité du polonium 210***

Le descendant radioactif du plomb 210 est le polonium 210, de période relativement courte (138 jours), qui est également peu mobilisable dans les sols.

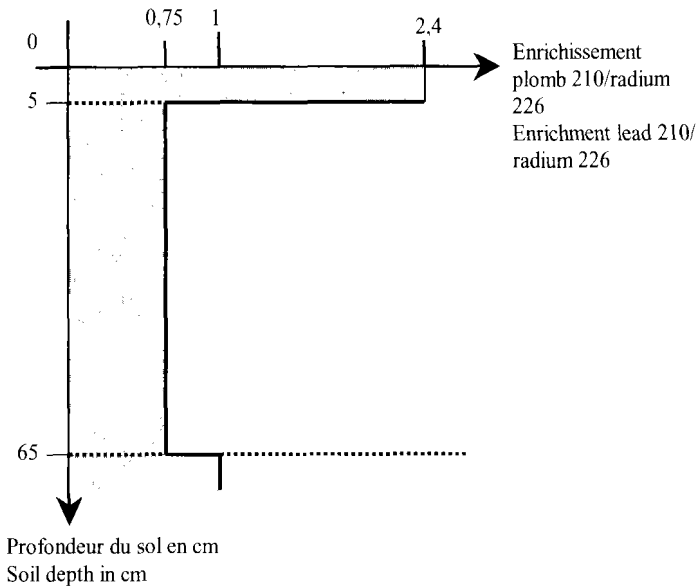


Figure 2 – Profil vertical de l'enrichissement du plomb 210 dans le sol par rapport au radium 226.  
Vertical profile of lead 210 enrichment in soil, related to radium 226.

On peut donc admettre pour la radioprotection que le polonium 210 est localement en équilibre radioactif avec le plomb 210. L'enrichissement de la radioactivité volumique de la surface des sols en plomb 210 se traduit alors par le même enrichissement en polonium 210. Les mesures dans les dépôts au sol (voir Sect. 2) mettent toutefois en évidence un rapport polonium 210/plomb 210 qui peut être inférieur à 1, ce qui s'explique ainsi : l'équilibre séculaire n'est pas atteint pendant le séjour des aérosols dans l'atmosphère, et le polonium peut être localement plus mobile que le plomb dans le sol.

## 2. Données expérimentales dans l'environnement

Les ordres de grandeur établis dans notre modèle peuvent être confrontés à deux études expérimentales.

### 2.1. Ukraine

En Ukraine (Ladinskaya *et al.*, 1973) des concentrations de plomb 210 et de polonium 210 ont été mesurées. Les résultats sont présentés dans le tableau I.

**TABLEAU I**  
**Mesures de polonium 210 et de plomb 210 en Ukraine.**  
**Measurements of polonium 210 and lead 210 in Ukraina.**

Activités	Matrices			
	Air à hauteur du sol (Bq m <sup>-3</sup> )	Viande (boeuf, mouton, porc) (Bq kg <sup>-1</sup> ) frais	Lait (Bq kg <sup>-1</sup> )	Poissons de rivière (Bq kg <sup>-1</sup> ) frais
<sup>210</sup> Po	-	0,1	0,01	0,4
<sup>210</sup> Pb	0,0006	-	-	-
<sup>210</sup> Po/ <sup>210</sup> Pb	-	0,7	0,4	2

**TABLEAU II**  
**Concentrations mesurées en ppb pour l'uranium et en Bq kg<sup>-1</sup> pour les autres éléments.**  
**L'activité équivalente à 1 ppb en uranium total est de 0,0252 Bq kg<sup>-1</sup>.**  
**Measured concentrations in ppb for uranium and in Bq kg<sup>-1</sup> for the other elements. Activity equivalent to 1 ppb in total uranium is 0.0252 Bq kg<sup>-1</sup>.**

	Uranium	<sup>226</sup> Ra	<sup>210</sup> Pb	<sup>210</sup> Po	<sup>210</sup> Pb/ <sup>226</sup> Ra	<sup>210</sup> Po/ <sup>210</sup> Pb
Débris de tourbière	2 900	60	200	230	3,33	1,15
Sol : tourbe couche n°1	3 500	38	270	150	7,1	0,55
Débris de surface	3 100	52	460	190	8,85	0,41
Sol : sable couche n°1	1 100	90	250	220	2,78	0,88
Sol : sable couche n°2	530	43	< 20	34	< 0,46	> 1,8
Sol : sable couche n°3	700	30	< 20	28	< 0,66	> 1,4

## 2.2. Canada

Au Canada dans le Saskatchewan autour de la mine d'uranium Key Lake (Thomas, 2000), des dosages concomitants d'uranium, radium 226, plomb 210 et polonium 210 ont été réalisés sur des échantillons de sols, de végétation et d'animaux. Les échantillons ont été pris en zone humide (« bog habitats ») et en zone sèche (« jackpine habitats »). Le tableau II extrait les résultats obtenus sur les couches superficielles, dans le site témoin (Site 1) non soumis aux aérosols provenant de la mine. L'épaisseur des couches de sols analysées est d'environ 10 cm. Pour les sols sableux, les prélèvements ont été effectués à des profondeurs différentes, la couche n°1 étant celle de surface.

On constate sur ces données :

- une activité en uranium de 28 à 88 Bq kg<sup>-1</sup>,
- l'enrichissement relatif en <sup>210</sup>Pb superficiel par rapport au <sup>226</sup>Ra, dans un facteur variant de 2,7 à 8,8,

- le rapport  $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$  variant de 0,41 à 1,15 en surface et montrant ainsi que l'équilibre d'activité entre ces deux radionucléides n'est pas toujours atteint.

Les valeurs sur les couches n°2 et 3 de sable permettent de vérifier qu'en dessous des 10 premiers centimètres, il n'y a plus d'enrichissement en plomb par rapport au radium dans le sol, mais plutôt un appauvrissement.

Le même auteur mesure des vitesses de déposition de  $^{210}\text{Pb}$  : de  $0,25 \text{ Bq m}^{-2} \text{ jour}^{-1}$  sous pluie et  $0,40 \text{ Bq m}^{-2} \text{ jour}^{-1}$  à sec. Les vitesses de déposition mesurées de  $^{210}\text{Po}$  sont 10 à 20 fois plus faibles. Supposant une taille d'aérosol de 0,003 micron, il en déduit des concentrations dans l'atmosphère de  $^{210}\text{Pb}$  superficiel de  $0,0012$  à  $0,0016 \text{ Bq m}^{-3}$ , deux fois plus élevées que les valeurs citées en Ukraine. Un flux de  $0,4 \text{ Bq m}^{-2} \text{ jour}^{-1}$  en  $^{210}\text{Pb}$  correspond à un flux de 4 600 atomes par seconde (à comparer au flux estimé de 5 000 atomes par  $\text{m}^2$  et par seconde).

En conclusion, les ordres de grandeur de notre modèle d'estimation sont confirmés par les mesures en Ukraine et au Canada.

### 3. Exposition de l'Homme au polonium naturel

#### 3.1. Polonium 210 dans le milieu marin

L'UNSCEAR (UNSCEAR, 1993) et l'AIEA (Aarkrog *et al.*, 1997) (programme MARDOS) ont rassemblé des données sur l'ensemble de la planète. Aarkrog *et al.* (1997) constatent que le polonium 210 est assez uniformément réparti dans les océans et les mers avec une concentration moyenne de  $1 \text{ Bq m}^{-3}$  d'eau (variabilité de  $0,5 \text{ Bq m}^{-3}$ ).

Cependant, des facteurs de concentration très différents d'une espèce à l'autre et d'un organe à l'autre au sein d'une même espèce entraînent des niveaux de radioactivité différents dans la faune et la flore. Les valeurs mondiales moyennes retenues par l'UNSCEAR sur produit frais sont :  $2,4 \text{ Bq kg}^{-1}$  pour les poissons,  $6 \text{ Bq kg}^{-1}$  pour les crustacés et  $15 \text{ Bq kg}^{-1}$  pour les mollusques. En tenant compte des régimes alimentaires observés dans les différentes régions du monde, Aarkrog *et al.* déduisent que l'ingestion de polonium 210 dans les produits marins entraîne une dose collective moyenne mondiale de l'ordre de 30 000 homme-sievert par an (année de référence : 1990). Ils observent que les doses collectives induites par les radionucléides d'origine anthropique dans les produits marins sont beaucoup plus faibles : 160 homme-sievert pour le césium 137 et 33 homme-sievert pour le plutonium (239 + 240), issus principalement des essais d'armes.

La dose collective de 30 000 homme-sievert par an est équivalente à une exposition individuelle moyenne de 6 microsievert par an. Cette exposition



moyenne recouvre des situations régionales assez variables, selon les habitudes alimentaires : espèces consommées et quantités. Par exemple, l'UNSCEAR, évalue à 160 microsievert par an la dose individuelle pour un européen consommant chaque année 100 kg de poisson et 10 kg de fruits de mer provenant de l'Atlantique du nord-est. De même, Nielsen (1998) a calculé les doses collectives induites sur 100 ans (1950 à 2050) dans les populations vivant autour de la mer Baltique : 20 000 homme-sievert dus au polonium 210 contre 1 400 dus aux retombées de Tchernobyl, 700 dus aux retombées des essais d'armes et 200 dus aux rejets des usines de retraitement des combustibles usés des réacteurs.

### 3.2. Polonium 210 dans le milieu terrestre

Nous pouvons étendre au milieu terrestre cette comparaison entre les contributions relatives du polonium 210 d'origine naturel, du césium 137 et du plutonium (239 + 240) d'origine anthropique.

L'UNSCEAR dans un rapport en 1997 et l'AIEA proposent des procédures normalisées d'évaluations des doses engagées dues à une radioactivité environnementale. Ces procédures sont reprises par les réglementations nationales européennes.

Dans le cas où l'exposition serait due à la présence de césium ou de polonium dans les sols superficiels, il est admis que la voie critique passe par la consommation de viande et de lait. L'inhalation qui résulterait de la remise en suspension du dépôt au sol est en effet généralement beaucoup plus faible. Toutefois, dans le cas du polonium 210 qui provient aussi des descendants du radon atmosphérique avant déposition, cette exposition n'est pas négligeable. Des évaluations comparatives d'inhalation chronique de plutonium 239 et de polonium 210 sont présentées en Annexe, à titre d'exemple.

Les tableaux III et IV rassemblent les données nécessaires au calcul des doses par ingestion (respectivement consommations alimentaires et coefficients de doses engagées pour l'ingestion).

**TABLEAU III**

**Données concernant la viande et le lait de vache plus ses dérivés consommés par les enfants de 1 à 2 ans et les adultes.**

**Data concerning meat and cowmilk plus milk products ingested by infants (1 to 2 years) and adults.**

Consommation annuelle	Enfants de 1 à 2 ans	Adultes
Viande de bœuf (kg an <sup>-1</sup> )	10	80
Lait et dérivés (kg an <sup>-1</sup> )	200	120

TABLEAU IV

Coefficients de doses engagées par ingestion parus au J.O. des C.E. du 29 juin 1996.  
Committed dose coefficients for ingestion published in J.O. of E.C. on June 29, 1996.

Coefficient de dose engagée par ingestion (Sv Bq <sup>-1</sup> )	Enfants de 1 à 2 ans	Adultes
<sup>137</sup> Cs	$1,2 \times 10^{-8}$	$1,3 \times 10^{-8}$
<sup>210</sup> Po	$8,8 \times 10^{-6}$	$1,2 \times 10^{-6}$
<sup>239</sup> Pu*	$4,2 \times 10^{-7}$	$2,5 \times 10^{-7}$

\* À titre de comparaison.

### 3.2.1. Évaluation des doses de polonium 210 par ingestion

On peut, comme l'a fait l'UNSCEAR, calculer les doses efficaces engagées résultant de la présence de polonium 210 dans les couches superficielles du sol et effectuer la comparaison avec le césium 137 des retombées de Tchernobyl à Helsinki en 1986, 2 jours après l'accident.

Les données utilisées sont les suivantes :

- concentration en uranium 238 de 3,33 g t<sup>-1</sup> dans la couche superficielle,
- concentration en polonium 210 dans la couche superficielle de 5 cm valant 2,4 fois celle de l'uranium ou du radium, sans variation dans le temps,
- activité surfacique en Cs 137 à Helsinki de 5 000 Bq m<sup>-2</sup>.

Les principaux résultats d'impact sont donnés dans les tableaux V (en Bq kg<sup>-1</sup>) et VI (en µSv an<sup>-1</sup>) dans le cas des sols non remaniés et servant de pâturage.

TABLEAU V

Activités calculées dans les aliments.  
Calculated radioactivity in foodstuff.

Activités des aliments	<sup>210</sup> Po	<sup>137</sup> Cs (Helsinki)
Viande de bœuf (Bq kg <sup>-1</sup> )	0,76	0,4
Lait et dérivés (Bq kg <sup>-1</sup> )	0,05	1,2

Le polonium issu des retombées du radon contribue donc de façon primordiale à l'exposition du public. Cette exposition, qui reste constante, est environ 30 à 70 fois plus importante que celle du césium 137 en 1986 à Helsinki, zone d'Europe la plus exposée après l'Ukraine, la Biélorussie et la Russie. Les expositions au césium 137 ont ensuite décliné partout selon la période radioactive de 30 ans du césium 137 alors que les expositions dues aux retombées du radon restent constantes.

**TABLEAU VI**  
**Doses individuelles calculées.**  
**Calculated individual doses.**

Exposition en $\mu\text{Sv an}^{-1}$	$^{210}\text{Po}$	$^{137}\text{Cs}$ (Hémisphère)
Enfants 1-2 ans	155	2,9
Adultes	80	2,3

### 3.2.2. Comparaison avec des retombées hypothétiques de plutonium

Les facteurs de dose par ingestion du polonium 210 sont 5 à 20 fois plus élevés que ceux du plutonium souvent évoqués. De plus, compte tenu des différences dans les coefficients de transfert du plutonium et du polonium dans la chaîne alimentaire à divers niveaux (communication groupe radiologie nord-Cotentin), les concentrations de polonium dans la viande et le lait de vache seront environ 100 fois plus élevées que celles du plutonium dans une même quantité déposée au sol. Il en résulte une nocivité 500 à 2 000 fois plus élevée pour le polonium que pour le plutonium.

La retombée moyenne de  $5\,000\text{ Bq m}^{-2}$  de polonium a donc une nocivité équivalente à celle d'une source de plutonium dont l'activité surfacique serait comprise entre 2,5 et 10 millions de  $\text{Bq m}^{-2}$  suivant l'âge des personnes exposées. À titre de comparaison, les concentrations surfaciques les plus élevées de plutonium relevées en France ne dépassent pas  $300\text{ Bq m}^{-2}$  ( $^{239}\text{Pu} + ^{240}\text{Pu}$ ), dans l'environnement de l'usine de Marcoule.

Le même raisonnement peut être conduit avec l'activité volumique de ces radionucléides dans la couche superficielle du sol (5 premiers cm). Considérant la valeur de  $100\,000\text{ Bq}$  de polonium 210 par tonne de sol, à toxicité équivalente pour l'homme, la concentration en plutonium dans la couche superficielle du sol devrait être de 50 à 200 millions de Bq par tonne.

## 4. Existence possible de « points chauds »

Comme c'est le cas pour les retombées de Tchernobyl, il est probable que des entraînements surfaciques par lixiviation, puissent aboutir à la création de points chauds où se concentrent le plomb 210 et/ou le polonium 210. Des données récentes semblent indiquer que certains sédiments dans les zones de dépôt (mares, lacs, estuaires...) peuvent présenter des concentrations élevées en polonium. Il convient de plus de s'assurer que l'on mesure bien tout le polonium et non pas son

TABLEAU VII

Concentrations en polonium 210 dans les produits marins du nord-Cotentin en Bq kg<sup>-1</sup> frais.  
Concentrations of polonium 210 in marine seafood of the north Cotentin region in Bq kg<sup>-1</sup> fresh.

Produits marins	Crustacés	Mollusques	Poissons
nord-Cotentin	46 – 65,5 – 112	20,8 – 38,6 – 61,7	2,4
	Crevettes	Moules	Poissons plats

père, le plomb 210, car le fils peut se concentrer partiellement loin du père. Ces mécanismes pourraient impliquer notamment la présence du polonium en concentrations relativement élevées dans certains produits de la mer, les viandes de rennes ou de sangliers.

Le tableau VII indique les résultats obtenus pour les concentrations en polonium 210 dans les produits de la mer (Bq kg<sup>-1</sup> frais) pour le nord-Cotentin (Beutier *et al.*, 2000).

Plus largement, des campagnes d'échantillonnage et de mesures régionales ont fait apparaître des concentrations de polonium 210 localement élevées dans toute la zone de l'Atlantique nord-est (mer d'Irlande, Manche, mer du Nord). Pour les mollusques, on peut citer des valeurs de 10 à 50 Bq kg<sup>-1</sup> dans les bigorneaux de la mer d'Irlande (Swift *et al.*, 1995). Pour les crustacés en mer du Nord, Swift *et al.* (1994) font état de concentrations de 18 à 38 Bq kg<sup>-1</sup> sur l'ensemble de la partie comestible de crabes ; dans les crevettes, ils mesurent des concentrations de 1 à 4 Bq kg<sup>-1</sup> dans les muscles et de 200 à 1 400 Bq kg<sup>-1</sup> dans l'hépatopancréas. Ainsi, l'élément naturel polonium 210 est nettement dominant dans les radioéléments concentrés par les espèces marines à partir des retombées atmosphériques. Sa contribution importante à l'exposition de l'homme tient à la fois à son comportement chimique – il est fortement concentré dans la chaîne alimentaire marine – et à son facteur de dose par ingestion élevé.

On a également trouvé dans la viande de rennes consommant des lichens des concentrations élevées en <sup>210</sup>Pb et <sup>210</sup>Po pouvant entraîner des ingestions de 140 à 1 400 Bq par an.

Il convient aussi de ne pas oublier que les zones soumises aux retombées de l'ensemble des volcans du globe reçoivent de l'ordre de  $2 \times 10^{15}$  Bq an<sup>-1</sup> de polonium 210.

## 5. Conclusions

Il paraît judicieux d'attirer l'attention sur la présence sur notre planète d'un radionucléide naturel, le polonium 210, dont la toxicité par ingestion à activité

égale dépasse largement celles de nombreux radionucléides artificiels, de un à deux ordres de grandeur pour le  $^{137}\text{Cs}$  et d'un facteur de 5 à 20 pour le plutonium suivant l'âge de l'individu exposé.

Les quantités de polonium 210 présentes dans la croûte terrestre sont importantes, en moyenne  $40\,000\text{ Bq t}^{-1}$ . Les retombées provenant de l'émanation de radon conduisent à une concentration dans la couche superficielle du sol (5 à 10 premiers cm) variant de 2,7 à 8,8 selon des mesures effectuées dans l'environnement. En supposant une concentration d'un facteur 2,4, la radioactivité surfacique du polonium 210 serait de  $100\,000\text{ Bq}$  par tonne de sol superficiel non remanié et correspondrait à une toxicité équivalente pour l'Homme de 50 à 200 millions de Bq de plutonium (239 + 240) par tonne, soit 20 à 40 mg de plutonium par tonne.

Les doses annuelles permanentes dues à l'ingestion d'aliments contenant du polonium 210 sont de l'ordre de  $200\ \mu\text{Sv}$  pour les enfants (1-2 ans) et de l'ordre d'une centaine de  $\mu\text{Sv}$  pour les adultes. Quoique inférieures à la limite du public de  $1\text{ mSv an}^{-1}$ , ces valeurs ne sont pas négligeables. Elles représentent environ  $1/10^{\text{e}}$  à  $1/20^{\text{e}}$  de la dose annuelle due à la radioactivité naturelle moyenne dans le monde ( $2,4\text{ mSv an}^{-1}$ ). L'impact du polonium 210 est bien supérieur (facteurs 30 à 70) à celui de césium 137 déposé à Helsinki en 1986, zone d'Europe la plus touchée après les pays russes par les retombées de l'accident de Tchernobyl.

Les données présentées ci-dessus permettent de relativiser les risques associés à des rejets radioactifs d'origine anthropique en les comparant aux niveaux d'exposition à la radioactivité naturelle. Ces repères naturels permettent d'éviter une perception catastrophique des risques liés aux activités humaines.

## 6. Annexe : Estimation comparative des doses par l'inhalation

Le tableau VIII retranscrit les coefficients de dose de la directive européenne 96/29 relatifs à l'inhalation pour les enfants (1-2 ans) et les adultes. Le plutonium a une toxicité par inhalation plus importante que celle du polonium 210 (facteur 2,5 à 200). Néanmoins, le thorium 232, radionucléide abondant dans l'environnement a une toxicité par inhalation similaire à celle du plutonium. La toxicité du césium est bien plus faible. Le tableau VIII précise par les lettres F, M et S le type de clairance du radioélément, faible, moyenne ou forte (élimination par le système bronchial).

La voie d'atteinte à l'homme par inhalation se fait par remise en suspension du dépôt sur le sol et le tableau IX présente des résultats de calculs de doses annuelles pour les enfants et pour les adultes (débits respiratoires de  $7\,300\text{ m}^3\text{ an}^{-1}$  pour les

TABLEAU VIII

Coefficients de doses engagées par inhalation parus au J.O. des C.E. du 29 juin 1996 (Sv Bq<sup>-1</sup>).  
Committed dose coefficients for inhalation published in J.O. of E.C. on June 29, 1996 (Sv Bq<sup>-1</sup>).

Coefficients de dose engagées par inhalation	Enfants 1-2 ans	Adultes
<sup>137</sup> Cs	F $5,4 \times 10^{-9}$	F $4,6 \times 10^{-9}$
	M $2,9 \times 10^{-8}$	M $9,7 \times 10^{-9}$
	S $1,0 \times 10^{-7}$	S $3,9 \times 10^{-8}$
<sup>210</sup> Po	F $4,8 \times 10^{-6}$	F $6,1 \times 10^{-7}$
	M $1,1 \times 10^{-5}$	M $3,3 \times 10^{-6}$
	S $1,4 \times 10^{-5}$	S $4,3 \times 10^{-6}$
<sup>239</sup> Pu	F $2,0 \times 10^{-4}$	F $1,2 \times 10^{-4}$
	M $7,7 \times 10^{-5}$	M $5,0 \times 10^{-5}$
	S $3,3 \times 10^{-5}$	S $1,6 \times 10^{-5}$
<sup>232</sup> Th	F $2,2 \times 10^{-4}$	F $1,1 \times 10^{-4}$
	M $8,1 \times 10^{-5}$	M $4,5 \times 10^{-5}$
	S $5,0 \times 10^{-5}$	S $2,5 \times 10^{-5}$

TABLEAU IX

Doses annuelles reçues par inhalation ( $\mu\text{Sv an}^{-1}$ ).  
Annual doses by inhalation ( $\mu\text{Sv year}^{-1}$ ).

Doses engagées par inhalation	Enfants 1-2 ans	Adultes
<sup>210</sup> Po, clairance moyenne activité de l'air 0,0006 à 0,0016 Bq m <sup>-3</sup> (mesures Ukraine et Canada)	12,5 à 33,4	14,4 à 38,5
<sup>239</sup> Pu, clairance moyenne activité déposée au sol de 300 Bq m <sup>-2</sup> (1)	0,4	1,1
<sup>232</sup> Th, clairance moyenne activité déposée au sol de 6 000 Bq m <sup>-2</sup> , résultant de la teneur moyenne de la croûte terrestre (40 Bq kg <sup>-1</sup> ; densité : 1,5, épaisseur 10 cm) (1)	9,2	19,7

(1) facteur de remise en suspension du dépôt de  $10^{-8} \text{ m}^{-1}$  (Besnus et Peres, 1994).

adultes et de  $1\,900 \text{ m}^3 \text{ an}^{-1}$  pour les enfants – publication 66 de la CIPR). Pour le plutonium, le niveau maximal observé en France dans les environs de Marcoule a été retenu ici à titre indicatif.

La dose par inhalation de polonium 210 ne peut être négligée. Les valeurs mesurées dans l'air traduisent à la fois la remise en suspension du dépôt et l'impact du flux de retombées en suspension dans l'air. En effet, lorsqu'on utilise la mesure d'environ  $220 \text{ Bq kg}^{-1}$  de sol sec (mesures au Canada), en supposant une densité de sol de 1,5 et une remise en suspension de l'activité des 10 premiers centimètres avec un facteur de remise en suspension de  $10^{-8}$ , on calcule une activité déposée au sol de  $3\,300 \text{ Bq m}^{-2}$  et une activité de l'air d'environ  $0,0003 \text{ Bq m}^{-3}$  qui est 2 à 5 fois plus faible que celle mesurée directement dans l'air. Donc en ce qui concerne la radioactivité naturelle les doses résultant de l'inhalation de thorium

232 naturel sont en moyenne du même ordre de grandeur que celles correspondantes dues au polonium 210.

On peut constater en revanche que pour le niveau maximal observé en France la dose due à l'inhalation de plutonium 239 est tout à fait négligeable.

## RÉFÉRENCES

- Aarkrog A. *et al.* (1997) A comparison of doses from  $^{137}\text{Cs}$  and  $^{210}\text{Po}$  in marine food: a major international study, *J. Environ. Radioactivity* **34** (1), 69-90.
- AIEA (1982) Publications Safety Series N°57, p. 115.
- Bernhar S., Pradel J., Tirmarche M., Zettwoog P. (1992) Bilan et enseignement de la radioprotection dans les mines d'uranium depuis 45 ans (1948-1997), RGN Nov-Déc.
- Besnus F., Peres J.M. (1994) Contamination of surfaces by resuspended material, ECPI Project, Contrat COSU-CT 93.0039, Rapport SERGD 95/28.
- Beutier D., Delloero N., Pradel J. (2000) Comparing the dose contributions from man-made and from natural radioactivity, IRPA 2000.
- Directive 96/29/Euratom du Conseil (1996) du 13 mai fixant les normes de base relatives à la protection sanitaire de la population et des travailleurs contre les dangers résultant des rayonnements ionisants, Journal Officiel des C.E.
- DPHD (CEA Fontenay-aux-Roses) Bilan de 1977 à 1990, Campagnes de mesures de l'irradiation naturelle gamma et radon en France – IPSN.
- Holeman R.B. (1984) *Application of Radiolead to Metabolic Studies in The biogeochemistry of lead in the environment*, Elsevier.
- ICRP Publication 66 (1994) Human Respiratory Tract Model for Radiological Protection, *Ann. ICRP* **24** (1-3).
- IPSN 2/86, révision 3 (1986) L'accident de Tchernobyl, page 69.
- IPSN/97-04 (1997) Le radon dans les bâtiments.
- Ladinskaya L.A., Parfenov Y.D., Popov D.K., Fedorova A.V. (1973)  $^{210}\text{Pb}$  and  $^{210}\text{Po}$  content in air, water, foodstuffs, and the human body, *Arch. Environ. Health* **27**, 254-258.
- Monchaux G. (1999) Risk Assessment of Exposure to Radon Decay Products, Final report, Rapport CEA-R-5882(E).
- NCRP (1984) Exposure from the uranium series with emphasis on radon and its daughters, Bethesda M.D., NCRP report N°77.
- Nielsen S.P. (1998) The radiological exposure of man from radioactivity in the Baltic sea, IAEA-SM-354/45, IAEA.
- Paulin J. (1998) *Radionucléides naturels – Toxiques nucléaires*, Masson, p. 12.
- Paustenbach D.J. (1989) The Risk Assessment of Environmental and Human Health Hazards: A Textbook of Case Studies, ISBN 0-471-84998-7, Chapter 18: Environmental Lung Cancer Risk From Radon Daughter Exposure.
- Persson B.R. (1975) Radiolead ( $^{210}\text{Pb}$ ), Polonium ( $^{210}\text{Po}$ ) and stable Lead in the Lichen, Reindeer and Man in The Natural Radiation Environment II, conf-720805, pp. 347-367.
- Pradel J. (1957) La radioactivité dans les mines d'uranium, conférence faite aux ingénieurs et agents de maîtrise des divisions minières, Avril 1955, conférence CEA n°13.

- Renaud Ph. *et al.* (2000) IPSN, Programme CAROL, Rapport DPRE/SERNAT/2000-02.
- SFRP (1988) Plaquette : Becquerel et radioactivité naturelle.
- Swift D.J., Smith D.L., Allington D.J., Ives M.J. (1994) The  $^{210}\text{Po}$  content of North sea edible crab, cancer pagurus L., and common shrimp, crangon crangon L. and the potential radiological impact, *J. Environ. Radioactivity* **23**, 213-230.
- Swift D.J., Smith D.L., Allington D.J., Winpenny K. (1995) A laboratory and field study of  $^{210}\text{Po}$  depuration by edible winkles (*Littorina littorea* L.) from the cumbrian coast (North-Eastern Irish Sea), *J. Environ. Radioactivity* **26**, 119-133.
- Thomas P.A. (2000) Radionuclides in the terrestrial ecosystem near a Canadian uranium mill – Part I: distribution and doses, *Health Phys.* **78** (6), 614-624.
- Tirmarche M. (1994) Exposition au radon et au risque de cancer, *Radioprotection* **29** (3), 101-114.
- Tort V., Schneider T., Daroussin J.L. (1999) Evaluation de l'impact radiologique du radon associé au stockage des résidus de traitement de minerais d'uranium, *Radioprotection* **34** (4), 491-503.
- UNSCEAR (1993) Sources and Effects of Ionizing Radiation, Report of the General Assembly with Scientific Annexes.
- UNSCEAR (1997) Vienne du 16-20 juin, Dose Assessment Methodologies – Rapport, 46<sup>e</sup> session.
- Verlag Gustav Fisher, Stuttgart, Iéna, New-York (1992) Recommandations de la commission de Protection Radiologique de la république d'Allemagne fédérale, Vol. 23.