HAL
open science

L'uranium et ses descendants dans la chaine alimentaire

Marion Jeambrun

To cite this version:

Marion Jeambrun. L'uranium et ses descendants dans la chaine alimentaire. Sciences de la Terre. Université de Strasbourg, 2012. Français. NNT : 2012STRAH012 . tel-00821054

HAL Id: tel-00821054

https://theses.hal.science/tel-00821054

Submitted on 7 May 2013

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

ECOLE ET OBSERVATOIRE DES SCIENCES DE LA TERRE

LABORATOIRE D'HYDROLOGIE ET DE GEOCHIMIE DE LA SURFACE

(UMR 7517)

THÈSE

Présentée en vue de l'obtention du grade de

DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ DE STRASBOURG

Sciences de la Terre, de l'Univers et de l'Environnement

Mention Géochimie

Par

Marion Jeambrun

L'uranium et ses descendants dans la chaîne alimentaire

Soutenue publiquement le 24 septembre 2012

F. Gauthier-Lafaye	Professeur, CNRS, Strasbourg	Directeur de thèse
L. Pourcelot	Docteur HDR, IRSN, Cadarache	Co-Directeur de thèse
R. Barillon	Professeur, CNRS, Strasbourg	Rapporteur interne
D. Larivière	Professeur, Université Laval, Québec	Rapporteur externe
P.M. Badot	Professeur, CNRS, Besançon	Rapporteur externe
B. Boulet	Docteur, IRSN, Orsay	Membre du comité de pilotage de la thèse
C. Mercat	Ingénieur de recherche, AREVA, Tricastin	Membre du comité de pilotage de la thèse

Remerciements

Je souhaiterais tout d'abord remercier Rémi Barillon, Dominic Larivière et Pierre-Marie Badot pour avoir accepté de donner leur avis critique sur cette thèse en faisant partie du jury.

Cette thèse n'aurait pu exister sans le soutien de l'Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire (IRSN) et d'AREVA.

Je remercie vivement les membres de mon comité de pilotage pour m'avoir suivi tout au long de ces trois années et pour m'avoir prodigué de nombreux conseils : François Gauthier-Lafaye, Catherine Mercat et Béatrice Boulet et tout particulièrement Laurent Pourcelot vers qui j'ai pu me tourner dans les moments de doute et qui a toujours su me remotiver en m'apportant de nouvelles pistes à explorer.

Je dois beaucoup pour la partie analytique aux ingénieurs et techniciens qui ont contribué à cette thèse par la réalisation des analyses : Xavier Cagnat, Annes De Vismes-Ott, Sébastien Aubry, Arnaud Pichavant et Jeanne Loyen. Je remercie également tous les membres des laboratoires qui m'ont accueilli afin que je prenne part aux mesures : Eric Pelt, Catherine Cossonnet, Nicolas Cariou, Thierry Perrone et tout particulièrement les chefs du Laboratoire de Mesures et de la Radioactivité dans l'Environnement (LMRE) et du Laboratoire d'Hydrologie et de Géochimie de Strasbourg (LHyGeS) : Rodolpho Gurriaran et François Chabaux.

Merci aux membres du Laboratoire d'Etudes Radioécologiques en milieu Continental et Marin (LERCM) de l'IRSN qui m'ont apporté conseils scientifiques et techniques : Philippe Renaud, Sylvie Roussel-Debet, Frédérique Eyrolle, Olivier Masson. Un grand merci à David Mourier qui m'a accompagné lors de mes missions de terrain et grâce à qui j'ai pu découvrir le plaisir de la conduite tout terrain et à tous les techniciens du LERCM sur qui j'ai pu compter pour mes travaux.

Un grand merci à tous les éleveurs et agriculteurs qui ont bien voulu me fournir les échantillons dont j'ai eu besoin, avec parfois quelques réticences. Je les remercie pour le temps qu'ils m'ont consacré et les informations qu'ils m'ont apportées sur leurs pratiques agricoles garantissant ainsi la traçabilité des échantillons, indispensable à l'exploitation des résultats.

Ces trois années passées au LERCM n'auraient pas été aussi agréables sans la bonne ambiance du laboratoire. Je remercie donc Christelle, Vincent, Philippe C., Alain, David C., Guillaume, Pascal, Lionel, Gilles et plus particulièrement Vanessa, seule personne du labo à être venu me supporter sur un terrain ! Franck grâce a qui mes dimanches ont été égayés et qui restera le meilleur JO de tous les temps, Julien pour ses nombreuses blagues, Daniel qui est venu à mon

secours à maintes reprises, Laetitia a qui j'ai pu longuement me confier et qui a su me remonter le moral plus d'une fois, Mathilde qui a été d'une aide inestimable durant la phase de rédaction de cette thèse. Je remercie enfin Sabrina membre indispensable de ce laboratoire, pour toutes ses aides administratives, ses footings partagés et son sourire inaltérable.

Un énorme merci à tous mes proches et notamment à ma mère et ma grand-mère à qui je n'ai pas toujours rendu la vie facile, et à Nicolas qui a abandonné sa vie Strasbourgeoise pour être à mes côtés dans ces derniers mois de thèse. Merci à tous mes amis, mon frère et mes sœurs pour leur présence, leurs visites et leur amitié.

Communications

Article :

Jeambrun, M., Pourcelot, L., Mercat, C., Boulet, B., Loyen, J., Cagnat, X., Gauthier-Lafaye, F., 2011. Study on transfers of U, Th and decay products from grain, water and soil to chicken meat and egg. Accepted in Journal of Environmental Monitoring.

Jeambrun, M., Pourcelot, L., Mercat, C., Boulet, B., Pelt, E., Cagnat, X., Chabaux, F., Gauthier-Lafaye, F., 2012. Contribution of U, Th and decay products in soil, water and atmospheric particles, to the activity concentration in lettuce and wheat samples. Submitted in Journal of Environmental Monitoring.

Communication orale :

Jeambrun, M., Pourcelot, L., Mercat, C., Boulet, B., Loyen, J., Pelt, E., Cagnat, X., Chabaux, F., Gauthier-Lafaye, F., 2011. Transfert des radionucléides naturels aux denrées alimentaires. Journée Des Thèses IRSN 2012, 2-5 octobre 2012, Le Croisic (44).

Jeambrun, M., Pourcelot, L., Mercat, C., Boulet, B., Loyen, J., Pelt, E., Cagnat, X., Chabaux, F., Gauthier-Lafaye, F., 2011. L'uranium et ses descendants dans la chaîne alimentaire. Journée Des Doctorants 2011 de l'Ecole Doctorale des Sciences de la Terre, de l'Univers et de l'Environnement de Strasbourg, 24 novembre 2011, Strasbourg (67).

Jeambrun, M., Pourcelot, L., Mercat, C., Gauthier-Lafaye, F., Boulet, B., 2011. Transfer of uranium isotopes, thorium and their decay products to edible plants. Goldschmidt Conference 2011, 15-19 august 2011, Prague (Czech Republic).

Jeambrun, M., Pourcelot, L., Gauthier-Lafaye, F., Mercat, C., Boulet, B., 2010. Uranium and its decay products in human foodchain. International Workshop on Ra-226 Environmental Behavior (Bioprota Forum), 4-5 May 2010, Chatenay-Malabry (92)

Communication poster :

Jeambrun, M., Pourcelot, L., Gauthier-Lafaye, F., Mercat, C., Boulet, B., Pelt, E., Cagnat, X., Chabaux, F., 2012. Transfer of uranium isotopes, thorium and their decay products from soil to lettuce and wheat in five different regions of the French territory. Eurosoil 2012, 2-6 July 2012, Bari (Italy).

Jeambrun, M., Depuydt, G., 2011. Variabilité des transferts dans l'environnement de radionucléides naturels et artificiels au sein du territoire français. Journée des doctorants et post-doctorants CEA, 21 septembre 2011, Cadarache (13).

Jeambrun, M., Gauthier-Lafaye, F., Mercat, C., Pourcelot, L., 2010. L'uranium et ses descendants dans la chaîne alimentaire. Journée Des Doctorants 2010 de l'Ecole Doctorale des Sciences de la Terre, de l'Univers et de l'Environnement de Strasbourg, 18 novembre 2010, Strasbourg (67).

Jeambrun, M., Gauthier-Lafaye, F., Mercat, C., Pourcelot, L., 2010. L'uranium et ses descendants dans la chaîne alimentaire. Journée des thèses IRSN, 21-24 septembre 2010, Arles (13).

Table des matières

Liste des figures 1

Liste des tableaux 3

Liste des annexes 6

Introduction 7

Chapitre 1 : Etat des connaissances 11

1. Caractéristiques des chaînes de décroissance des isotopes de l'uranium et du thorium 12

1.1. L'uranium 12

1.1.1. Généralités 12
1.1.2. Géochimie de l'uranium 13

1.2. Le thorium 15

1.2.1. Généralités 15
1.2.2. Géochimie du thorium 15

1.3. Les descendants radioactifs 17

1.3.1. Le radium 17
1.3.2. Le radon 18
1.3.3. Le polonium 18
1.3.4. Le plomb 19

1.4. Origine des fractionnements au sein des chaînes de désintégration 20

1.4.1. Fractionnement chimique 20
1.4.2. Effet de recul 20

2. Bilan des données disponibles sur l'activité des radionucléides naturels dans la chaîne alimentaire 22

2.1. Variabilité des activités dans les denrées issues de régions faiblement radioactives. 22

2.1.1. Variabilité des activités dans les céréales 23
2.1.2. Variabilité des activités dans les légumes feuilles 24
2.1.3. Variabilité des activités dans les légumes fruits 25
2.1.4. Variabilité des activités dans les légumes racines 26
2.1.5. Variabilité des activités dans les fruits 27
2.1.6. Variabilité des activités dans les produits laitiers 28
2.1.7. Variabilité des activités dans les viandes et les œufs 29
2.1.8. Synthèse 30

2.2. Variabilité des activités dans les denrées issues de régions naturellement riches en radionucléides 32

2.3. Variabilité des activités dans les denrées provenant de régions soumises à une influence anthropique 33

2.3.1. Impact de l'extraction de minerai contenant de fortes concentrations en radionucléides naturels hors cycle du combustible. 33
2.3.2. Impact des industries des engrais phosphatés, de la mine à leur utilisation dans l'agriculture 34
2.3.3. Impact des mines et de la combustion de charbon 35
2.3.4. Impact des industries du cycle du combustible 35
2.3.4.1. Variabilité des activités dans les céréales issues de régions influencées par des industries du cycle du combustible nucléaire 35
2.3.4.2. Variabilité des activités dans les légumes feuilles cultivés dans des régions influencées par une industrie du cycle du combustible nucléaire 36
2.3.4.3. Variabilité des activités dans les légumes fruits issus de régions influencées par des industries du cycle du combustible nucléaire 37
2.3.4.4. Variabilité des activités dans les légumes racines issus de régions influencées par des industries du cycle du combustible nucléaire 38
2.3.4.5. Variabilité des activités dans les fruits issus de zone sous l'influence d'industries du cycle du combustible nucléaire 39
2.3.4.6. Variabilité des activités dans les produits laitiers provenant de régions sous l'influence d'industries du cycle du combustible nucléaire 39
2.3.4.7. Variabilité des activités dans les viandes et œufs provenant de régions soumises à des industries du cycle du combustible nucléaire 40
2.3.4.8. Synthèse 41

3. Transferts des radionucléides aux denrées 42

3.1. Transfert des radionucléides aux produits végétaux 42

3.1.1. Les principales voies de transfert aux produits végétaux 43
3.1.1.1. L'interception de particules atmosphériques 43
3.1.1.2. La translocation des radionucléides 44
3.1.1.3. La remise en suspension de particules de sol 44
3.1.1.4. Les prélèvements racinaires 45
3.1.2. Les facteurs de transfert sol-plante 45
3.1.2.1. Paramètres influençant la variabilité des facteurs de transfert sol-plante 46
3.1.2.2. Données de l'AIEA (2010) 48

3.2. Transfert des radionucléides aux produits animaux 49

3.2.1. Mécanismes de transfert des radionucléides aux produits animaux 49
3.2.2. L'absorption gastro-intestinale des radionucléides 50
3.2.3. Les coefficients de transferts 52
3.2.3.1. Coefficient de transfert au lait 53
3.2.3.2. Coefficient de transfert à la viande 54
3.2.4. Les rapports de concentrations 55

Chapitre 2 : Matériels et Méthodes 58

1. Choix des sites étudiés 59

1.1. La vallée du Rhône 61

1.2. Le Massif central 63

1.3. Les Vosges 65

1.4. L'ouest du Massif central 66

2. Stratégie d'échantillonnage 69

2.1. Matrices prélevées 69

2.2. Localisation des prélèvements 70

2.3. Méthode d'échantillonnage 74

2.3.1. Echantillonnage des denrées 74
2.3.2. Echantillonnage des sols 75
2.3.3. Echantillonnage des nourritures animales 76
2.3.4. Prélèvements d'eau 76

3. Préparation des échantillons 77

3.1. Echantillons organiques 77
3.2. Echantillons de sols 80
4. Analyses des échantillons 81
4.1. Mesures des échantillons organiques et des échantillons de sol 82
4.1.1. Mesure par spectrométrie γ 82
4.1.2. Mesure par ICP-QMS 85
4.1.2.1. Préparation des échantillons 85
4.1.2.2. Description de la mesure 86
4.1.3. Mesure par MC-ICP-MS 86
4.1.3.1. Procédure de chimie des échantillons 86
4.1.3.2. Description de la mesure 86
4.2. Mesures des échantillons d'eau 87
4.2.1. Mesure par spectrométrie alpha 87
4.2.1.1. Séparation chimique de l'uranium 88
4.2.1.2. Description de la mesure 88
4.2.2. Mesure par TIMS 89
4.2.2.1. Préparation des échantillons 89
4.2.2.2. Séparation et purification de l'uranium et du radium 89
4.2.2.3. Dépôt des échantillons sur filaments 89
4.2.2.4. Description de la mesure 89

Chapitre 3 : Transferts des radionucléides naturels aux végétaux 92

1. Introduction 94
2. Materials and methods 95
2.1. Studied sites and sampling strategy 95
2.2. Sample preparation 96
2.3. Sample analysis 96
2.3.1. Concentration measurements in wheat, lettuce and soil samples 97
2.3.2. Concentration measurements in water samples 98
3. Results 99
3.1. Activity concentrations of uranium, thorium and some decay products in plants 99
3.2. Activity concentrations of uranium, thorium and some decay products in radionuclide sources 101
4. Discussion 102
4.1. Correlation between the concentrations of radionuclides in wheat and in the radionuclide sources 102
4.2. Correlation between the concentrations of radionuclides in lettuce and in the radionuclide sources. 103
4.2.1. Irrigation water 103
4.2.2. Soils 103
4.2.3. Atmospheric particles 104
4.3. Soil-to-plant transfer factors 104
5. Conclusion 105

Chapitre 4 : Transferts des radionucléides naturels à la viande de volaille et aux œufs 125

1. Introduction 126

2. Materials and methods 127

2.1. Study sites and sampling strategy 127

2.2. Sample preparation 128

2.2.1. Organic samples: chicken meat, egg contents and grains 128
2.2.2. Inorganic samples: soil and water 128

2.3. Sample analysis 128

2.3.1. Isotopic analysis of uranium and thorium 128
2.3.1.1. Organic samples 128
2.3.1.2. Inorganic samples 128
2.3.2. Measurement of decay products of uranium and thorium 129

3. Results and discussion 129

3.1. Activity concentrations of uranium, thorium and some decay products in chicken meat and egg contents 129

3.2. Source contribution by a qualitative approach 130

3.3. Concentration ratios and transfer coefficients 134

3.3.1. Concentration ratios and transfer coefficients for egg contents 134
3.3.2. Concentration ratios and transer coefficients for chicken meat 134
3.3.3. Comparison with the data from IAEA (2010)[5] 135

4. Conclusion 135

Chapitre 5 : Synthèse générale 137

1. Comparaison des techniques analytiques 138

1.1. Performances et limites observées pour chaque technique analytique 138

1.2. Synthèse des avantages et des inconvénients de chaque technique 139

1.3. Perspectives analytiques proposées pour répondre aux lacunes persistantes 140

2. Apports de la présente étude aux connaissances sur les transferts des radionucléides 143

2.1. Les transferts des radionucléides naturels aux plantes 143

2.1.1. Description des études existantes sur les transferts des radionucléides aux végétaux 143
2.1.2. Particularités de la présente étude par rapport aux conditions d'obtention des données 143
2.1.3. Examen des rapports d'activités des radionucléides et conséquences sur la connaissance des transferts aux végétaux 144

2.2. Les transferts des radionucléides aux produits animaux 146

2.2.1. Particularités de la présente étude par rapport aux conditions d'obtention des données 146
2.2.2. Examen des activités massiques des diverses matrices et hypothèses sur les voies de transfert 147

3. Impact dosimétrique et sanitaire lié à l'ingestion des radionucléides étudiés 149

3.1. Dose et facteur de dose 149
3.2. Calcul des doses efficaces unitaires par ingestion de denrées 150
3.3. Contribution à la dose et toxicité chimique de l'uranium 151
3.3.1. Evaluation de la dose unitaire par ingestion pour l'uranium 151
3.3.2. Toxicité chimique de l'uranium 152
3.3.3. Radiotoxicité vs toxicité chimique de l'uranium 153

Conclusion 155

Bibliographie 158

Annexes 175

Liste des figures

Figure 1.1 : Chaînes de décroissance radioactive des deux principaux isotopes de l'uranium. Le code couleur emploie des couleurs claires pour les courtes périodes et des couleurs sombres pour les longues périodes. **13**

Figure 1.2 : Chaîne de décroissance radioactive du thorium. Le code couleur emploie des couleurs claires pour les courtes périodes et des couleurs sombres pour les longues périodes. **15**

Figure 1.3 : Délai (j) de mise à l'équilibre entre les activités en ^{238}U dans la viande de volaille et les activités dans les aliments ingérés, calculé par le modèle ASTRAL (Calmon, 2006). **51**

Figure 2.1 : Distribution statistique des activités massiques de l'uranium dans les sols français analysés par l'IRSN. **60**

Figure 2.2 : Localisation des sites d'étude sur le territoire français. **60**

Figure 2.3 : Localisation du site d'étude situé dans la Vallée du Rhône (RV). **61**

Figure 2.4 : Rose des vents associée au complexe nucléaire de Tricastin. Valeurs moyennes sur l'année 2009. **63**

Figure 2.5 : Localisation de la zone d'étude située dans le Massif central (MC). **64**

Figure 2.6 : Localisation de la zone d'étude située dans les Vosges (VM). **65**

Figure 2.7 : Localisation de la zone d'étude située à l'ouest du Massif central (W-MC). **67**

Figure 2.8 : Localisation des échantillons prélevés dans la vallée du Rhône (RV). Les cercles correspondent aux échantillons de la zone potentiellement influencée par les rejets du complexe du Tricastin (RV-IZ), les triangles à ceux de la zone hors influence (RV-NIZ). **71**

Figure 2.9 : Localisation des échantillons prélevés dans le Massif central (MC). **72**

Figure 2.10 : Localisation des échantillons prélevés dans les Vosges (VM). **73**

Figure 2.11 : Localisation des échantillons prélevés dans l'ouest du Massif central (W-MC). Les étoiles rouges représentent les points où AREVA NC (anciennement COGEMA) a, par le passé, mesuré des activités en uranium importantes. **74**

Figure 2.12 : Schéma explicatif des traitements des échantillons organiques. **79**

Figure 2.13 : Courbes de température du cycle de calcination. **80**

Figure 3.1: Location of the various studied sites in France. **117**

Figure 3.2: $^{210}Pb_{tot}/^{210}Pb_{sup}$ activity concentration ratio versus $^{210}Pb_{sup}$ assumed in equilibrium with ^{226}Ra in wheat (black diamonds) and lettuce (white squares) samples. The dashed line represents the secular equilibrium line ($^{210}Pb_{tot}/^{210}Pb_{sup} = 1$). **118**

Figure 3.3: $^{238}U/^{232}Th$ activity concentration ratio in wheat versus $^{238}U/^{232}Th$ in the corresponding soils. The solid line represents the straight lines of slope one. **119**

Figure 3.4: $^{226}Ra/^{238}U$ activity concentration ratio in wheat versus $^{226}Ra/^{238}U$ in the corresponding soils. The dashed and solid lines represent the straight line of equilibrium ($^{226}Ra/^{238}U = 1$) and the line of slope one respectively. **120**

Figure 3.5: $^{230}Th/^{238}U$ activity concentration ratio versus ^{238}U activity concentration in lettuce ($Bq.kg^{-1}$ f.w) the values in brackets are the ^{238}U activity concentrations measured in the irrigation waters ($mBq.L^{-1}$) and the dashed line represents the line of equilibrium ($^{230}Th/^{238}U = 1$). **121**

Figure 3.6: $^{238}U/^{232}Th$ activity concentration ratio in lettuce versus $^{238}U/^{232}Th$ in the corresponding soils. The solid line represents the straight line of slope one. The values in brackets are the ^{238}U activity concentrations measured in the irrigation waters ($mBq.L^{-1}$). **122**

Figure 3.7: ^{226}Ra Activity concentration in lettuce ($Bq.kg^{-1}$ f.w) versus ^{226}Ra concentration in the corresponding soils ($Bq.kg^{-1}$ d.m). The solid line represents the regression line. **123**

Figure 3.8: Activity concentration ratio $^{226}Ra/^{230}Th$ in lettuce versus $^{226}Ra/^{230}Th$ in the corresponding soils assuming that ^{238}U and ^{230}Th are in secular equilibrium in soils. The dashed and solid lines represent the straight lines of equilibrium ($^{226}Ra/^{230}Th = 1$) and of slope one respectively. The values in brackets are the ^{226}Ra activity concentration measured in the irrigation waters ($mBq.L^{-1}$). **124**

Figure 4.1: Location of the various studied sites in France. **127**

Figure 4.2: Activity concentration of ^{238}U *versus* the ^{232}Th activity concentration in chicken meat ($mBq.kg^{-1}$ fresh weight). **130**

Figure 4.3: Activity concentrations of ^{238}U and ^{232}Th in chicken meat, soils, grains and water samples at the five sites in France. **132**

Figure 4.4: Activity concentrations of ^{238}U and ^{226}Ra in egg contents, soils, grains and water samples at the five sites in France. **132**

Figure 4.5: Activity concentrations of ^{238}U and ^{234}U in chicken meat depending on the daily ingested activity concentrations. **133**

Figure 4.6: Activity concentration of ^{232}Th in chicken meat depending on the daily ingested activity concentrations. **134**

Figure 5.1 : Principaux radionucléides contribuant à la dose efficace pour un adulte par ingestion unitaire (1 kg) de salade, à gauche et de blé, à droite (échantillons W-MC). **151**

Liste des tableaux

Tableau 1.1 : Périodes (années) et abondances relatives des principaux isotopes de l'uranium (% U total). **12**

Tableau 1.2 : Valeurs de Kd de l'uranium dans les sols en fonction des caractéristiques physico-chimiques des sols ($L.kg^{-1}$) (AIEA, 2010). **14**

Tableau 1.3 : Valeurs de Kd du thorium dans les sols en fonction des caractéristiques physico-chimiques des sols ($L.kg^{-1}$) (AIEA, 2010). **16**

Tableau 1.4 : Valeurs de Kd du radium dans les sols en fonction des caractéristiques physico-chimiques des sols ($L.kg^{-1}$) (AIEA, 2010). **18**

Tableau 1.5 : Valeurs de Kd du polonium dans les sols en fonction des caractéristiques physico-chimiques des sols ($L.kg^{-1}$) (AIEA, 2010). **19**

Tableau 1.6 : Valeurs de Kd du plomb dans les sols en fonction des caractéristiques physico-chimiques des sols ($L.kg^{-1}$) (AIEA, 2010). **20**

Tableau 1.7 : Activités des principaux radionucléides des chaînes de décroissance de l'uranium et du thorium dans les céréales ($mBq.kg^{-1}$ frais). **24**

Tableau 1.8 : Gamme de variabilité des activités des principaux radionucléides des chaînes de décroissance de l'uranium et du thorium dans les légumes feuilles ($mBq.kg^{-1}$ frais). **25**

Tableau 1.9 : Gamme de variabilité des activités des principaux radionucléides des chaînes de décroissance de l'uranium et du thorium dans les légumes fruits ($mBq.kg^{-1}$ frais). **26**

Tableau 1.10 : Gamme de variabilité des activités des principaux radionucléides des chaînes de décroissance de l'uranium et du thorium dans les légumes racines ($mBq.kg^{-1}$ frais). **27**

Tableau 1.11 : Gamme de variabilité des activités des principaux radionucléides des chaînes de décroissance de l'uranium et du thorium dans les fruits ($mBq.kg^{-1}$ frais). **28**

Tableau 1.12 : Gamme de variabilité des activités des principaux radionucléides des chaînes de décroissance de l'uranium et du thorium dans les produits laitiers ($mBq.kg^{-1}$ et $mBq.L^{-1}$ pour le lait). **29**

Tableau 1.13 : Gamme de variabilité des activités des principaux radionucléides des chaînes de décroissance de l'uranium et du thorium dans la viande et les œufs ($mBq.kg^{-1}$ frais). **30**

Tableau 1.14 : Gamme de variabilité des activités des principaux radionucléides des chaînes de décroissance de l'uranium et du thorium dans les céréales provenant de régions influencées par des industries du cycle du combustible nucléaire ($mBq.kg^{-1}$ frais). **36**

Tableau 1.15 : Gamme de variabilité des activités des principaux radionucléides des chaînes de décroissance de l'uranium et du thorium dans les légumes feuilles cultivés dans des régions influencées par une industrie du cycle du nucléaire ($mBq.kg^{-1}$ frais). **37**

Tableau 1.16 : Gamme de variabilité des activités des principaux radionucléides des chaînes de décroissance de l'uranium et du thorium dans les légumes fruits prélevés en zone influencée par des industries du cycle du combustible nucléaire ($mBq.kg^{-1}$ frais). **38**

Tableau 1.17 : Gamme de variabilité des activités des principaux radionucléides des chaînes de décroissance de l'uranium et du thorium dans les légumes racines prélevés en zone influencée par des industries du cycle du combustible nucléaire ($mBq.kg^{-1}$ frais). **38**

Tableau 1.18 : Gamme de variabilité des activités des principaux radionucléides des chaînes de décroissance de l'uranium et du thorium dans les fruits issus de zones influencées par des industries du cycle du combustible nucléaire (mBq.kg^{-1} frais). **39**

Tableau 1.19 : Gamme de variabilité des activités des principaux radionucléides des chaînes de décroissance de l'uranium et du thorium dans les produits laitiers provenant de régions sous l'influence d'industries du cycle du combustible nucléaire (mBq.kg^{-1} frais et mBq.L^{-1} pour le lait). **40**

Tableau 1.20 : Gamme de variabilité des activités des principaux radionucléides des chaînes de décroissance de l'uranium et du thorium dans les viandes et œufs provenant de régions influencées par des industries du cycle du combustible nucléaire (mBq.kg^{-1} frais). **40**

Tableau 1.21 : Facteur de transfert de l'uranium, du thorium, du radium, du plomb et du polonium pour certains groupes de produits végétaux (kg.kg^{-1} poids sec) (AIEA, 2010) **48**

Tableau 1.22 : Valeurs de coefficient de transfert (F_m) au lait de vache et au lait de chèvre (j.L^{-1}) (AIEA, 2010). **53**

Tableau 1.23 : Coefficients de transfert (Ff) de quelques radionucléides naturels à la viande de bœuf (j.kg-1) (AIEA, 2010). **54**

Tableau 1.24 : Rapports de concentrations du lait de différents animaux (kg.L^{-1}). **56**

Tableau 1.25 : Rapports de concentrations de la viande de différents animaux (kg sec.kg^{-1} frais). **56**

Tableau 2.1 : Consommation moyenne par personne de quelques produits alimentaires (kg/an), source FAOSTAT (2007). **69**

Tableau 2.2 : Rapport poids frais sur poids sec (Pf/Ps) et poids sec sur poids de cendres (Ps/Pc) des différents échantillons prélevés depuis 2000 par l'IRSN. **75**

Tableau 2.3 : Techniques utilisables pour l'analyse de chacun des radionucléides. Des commentaires sont mentionnés dans les cases lorsque l'analyse est conduite de façon indirecte à partir de la mesure d'un descendant. **81**

Tableau 2.4 : Raies d'émission utilisées pour la mesure par spectrométrie γ des activités des principaux radionucléides des chaînes de décroissance de l'uranium et du thorium (keV). **84**

Table 3.1: Activity concentrations of ^{238}U, ^{230}Th, ^{226}Ra, ^{210}Pb, ^{232}Th, ^{228}Ra and ^{228}Th (mBq.kg^{-1} fresh weight) and the activity concentration $^{234}U/^{238}U$ and the mass $^{235}U_m/^{238}U_m$ ratios determined in lettuce and wheat samples. **109**

Table 3.2: Activity concentrations of uranium isotopes, thorium and some decay products in lettuce samples from the literature (mBq.kg^{-1} f.w). **110**

Table 3.3: Activity concentrations of uranium, thorium and their decay products in wheat samples from the literature (mBq.kg^{-1} f.w). **111**

Table 3.4: Activity concentration of ^{238}U, ^{226}Ra, ^{210}Pb, ^{235}U, ^{232}Th and ^{228}Th in wheat and lettuce crop soils (Bq.kg^{-1} dry weight) and the activity concentration ratios $^{234}U/^{238}U$ and the masse ration $^{235}U_m/^{238}U_m$ (%). **112**

Table 3.5: Activity concentrations of uranium isotopes and ^{226}Ra (mBq.L^{-1}), activity concentration ratios $^{234}U/^{238}U$ and the masse ration $^{235}U_m/^{238}U_m$ (%) of irrigation water used for lettuce crop **113**

Table 3.6: Transfer factors (TF) of ^{238}U, ^{234}U, ^{226}Ra, ^{210}Pb, ^{235}U, ^{232}Th, ^{228}Ra and ^{228}Th from soil to wheat and lettuce on dry weight basis. **114**

Table 3.7: Transfer factors (TF) of lead, radium, thorium and uranium from soil to cereals and leafy vegetables from IEAA technical report series 472[13]. **115**

Table 4.1: Available data on meat hens, mean bodyweight (kg), daily feed intake ($g.d^{-1}$), age (d) at slaughter and breed. **127**

Table 4.2: Activity concentrations of ^{238}U, ^{226}Ra, ^{232}Th, ^{228}Ra and ^{224}Ra (in $mBq.kg^{-1}$ fresh weight), activity concentration ratio $^{234}U/^{238}U$ and mass ratio $^{235}U_m/^{238}U_m$ measured in chicken meat and egg contents from five sites in France. **129**

Table 4.3: Activity concentrations of ^{238}U, ^{234}U, ^{230}Th, ^{226}Ra, ^{232}Th, ^{228}Ra, ^{224}Ra in egg contents and chicken meat from the literature ($mBq.kg^{-1}$ fresh weight). **130**

Table 4.4: Activity concentrations of ^{238}U, ^{226}Ra, ^{232}Th, ^{228}Ra and ^{224}Ra in the grains for meat hens and laying hens ($Bq.kg^{-1}$ dry matter) and the activity concentration ratios $^{234}U/^{238}U$ and the mass ratios $^{235}U_m/^{238}U_m$. **130**

Table 4.5: Activity concentrations of ^{238}U, ^{226}Ra, ^{232}Th and ^{224}Ra in the soils of the chicken coop used for laying and meat hens ($Bq.kg^{-1}$dry matter) and the mass ratio $^{235}U_m/^{238}U_m$. **131**

Table 4.6: Activity concentration of ^{238}U in water consumed by laying and meat hens ($Bq.L^{-1}$) and the activity concentration ratio $^{234}U/^{238}U$. **131**

Table 4.7: Contribution of the main sources to the ingestion of thorium and uranium by meat hens (in $Bq.d^{-1}$) assuming a daily grain intake of 100 $g.d^{-1}$, a daily soil intake of 20 $g.d^{-1}$ and a daily water consumption of 0.25 $L.d^{-1}$. **132**

Table 4.8: Concentration ratios and transfer coefficients ($d.kg^{-1}$) of ^{232}Th, ^{228}Ra, ^{224}Ra, ^{238}U and ^{226}Ra for egg contents. **135**

Table 4.9: Concentration ratios and transfer coefficients ($d.kg^{-1}$) of ^{232}Th and ^{238}U for chicken meat. **135**

Tableau 5.1: Appréciation qualitative des différentes techniques analytiques utilisées pour la mesure des radionucléides des chaînes de décroissance de ^{238}U, ^{235}U et ^{232}Th dans les matrices alimentaires et végétales, les échantillons de sol et les échantillons d'eau **140**

Tableau 5.2 : Coefficients de dose efficace par ingestion, pour l'adulte, des principaux radionucléides des chaînes de décroissance de ^{232}Th, ^{235}U et ^{238}U ($\mu Sv.Bq^{-1}$) issus de la base de données CIPR 30 (1980). **150**

Tableau 5.3 : Doses efficaces par ingestion (isotope de l'uranium uniquement) calculées dans le cas d'un adulte consommant un kilogramme de denrées (en $nSv.kg^{-1}$ frais et $nSv.L^{-1}$ pour le lait). **151**

Tableau 5.4 : Concentrations massiques des échantillons en uranium ($\mu g.kg^{-1}$ frais et $\mu g.L^{-1}$ pour le lait). **153**

Tableau 5.5 : Quantité quotidienne (minimale et maximale) d'aliments à ingérer pour atteindre la dose efficace annuelle de 1 $mSv.an^{-1}$ (en $kg.j^{-1}$ et $L.j^{-1}$ pour le lait) et la dose journalière admissible de 42 $\mu g.j^{-1}$. **153**

Liste des annexes

Annexe A : Incertitudes, limites de détection et nombre de résultats significatifs obtenus pour chaque radionucléide et chaque technique analytique. **176**

Annexe B : Protocole détaillé des étapes de séparation et de purification de l'uranim (tableau B.1) et du thorium (tableau B.2) en vue des mesures par ICP-QMS réalisées au LMRE à Orsay. **179**

Annexe C : Protocole détaillé des étapes de séparation et de purification du thorium (tableaux C.1 à C.3) en vue des mesures par MC-ICP-MS réalisées au LHyGeS à Strasbourg. **180**

Annexe D : Protocole détaillé des étapes de séparation et de purification de l'uranium (tableaux D.1 et D.2) et du radium (tableaux D.3 à D.5) suivi du protocole de dépôt des échantillons sur filaments, en vue des mesures par TIMS réalisées au LHyGeS à Strasbourg. **182**

Annexe E : Présentation des résultats obtenus dans les différentes matrices alimentaires et leurs échantillons complémentaires (sol de culture, eaux d'irrigation, alimentation animale, sol, eaux d'abreuvage). **185**

Introduction

Contexte de la thèse

Quelle que soit la région considérée, les populations sont exposées à des radiations dues à la décroissance radioactive d'éléments instables. La plus grande contribution aux radiations provient de radioéléments naturels, dont les principaux sont le potassium ^{40}K et les radionucléides des chaînes de désintégration de l'uranium ^{238}U, ^{235}U et du thorium ^{232}Th (UNSCEAR, 1993). En certains endroits du globe, les conditions géologiques et hydrogéologiques ont conduit à l'enrichissement local des substrats géologiques en uranium, thorium et leurs descendants. Les concentrations en uranium peuvent parfois atteindre des seuils importants (de 600 à 1 000 g d'uranium par tonne) qui ont conduit à l'exploitation du minerai uranifère pour fabriquer du combustible nucléaire (Bonin et Blanc, 2001). Au cours du cycle du combustible nucléaire (extraction minière de l'uranium, traitement, conversion, enrichissement, utilisation comme combustible dans les centrales, retraitement…), des rejets de radioéléments peuvent augmenter les concentrations en uranium, thorium et leurs descendants dans l'environnement. D'autres industries sont également susceptibles de rejeter des radionucléides. Les centrales électriques au charbon rejettent de grandes quantités d'uranium lorsqu'elles ne sont pas équipées de filtres efficaces et ont longtemps été considérées comme la principale source anthropique de rejet de radionucléides dans l'environnement (Vanmarcke *et al.*, 2003). Les usines de fabrication d'engrais utilisent comme matière première des roches phosphatées, naturellement riches en uranium. L'extraction de ces phosphates, la fabrication d'engrais et l'agriculture conventionnelle représentent donc également une source potentielle de radioactivité dans l'environnement.

L'uranium, le thorium et leurs descendants présents dans les sols peuvent être incorporés par la végétation et être transmis aux animaux *via* la chaîne alimentaire. Ils sont ainsi présents dans tous les types de produits alimentaires consommés par l'homme, qu'il s'agisse de légumes, de céréales, de viandes ou de produits laitiers. Selon la région considérée et la présence d'industries susceptibles d'augmenter les concentrations en radionucléides, l'homme va être soumis à une radioactivité plus ou moins importante, conduisant potentiellement à des risques accrus pour la santé publique. Depuis les années 60, avec les retombées des essais atmosphériques d'armes nucléaires, les scientifiques se sont beaucoup intéressés aux devenirs des radionucléides artificiels (^{90}Sr, ^{137}Cs et $^{238-240}Pu$) dans l'environnement et aux conséquences radioécologiques de ces rejets pour l'environnement et l'homme (AIEA, 2010). Avec le développement du nucléaire civil et l'utilisation de l'uranium comme combustible, les recherches se sont généralisées aux radionucléides naturels issus des chaînes de décroissance de l'uranium et du thorium. Malgré l'augmentation du nombre d'études sur le sujet, les mesures des radionucléides naturels dans les

denrées sont relativement rares du fait des activités très faibles dans ces compartiments qui nécessitent des techniques analytiques complexes à mettre en œuvre. En effet, les quantités d'échantillons nécessaires à l'obtention d'un résultat significatif sont importantes et peuvent atteindre plusieurs kilogrammes d'échantillon frais. De plus, les radionucléides d'une même chaîne de décroissance ne sont pas forcément à l'équilibre du fait de leurs différentes propriétés biogéochimiques et de leurs demi-vies respectives (Cowart et Burnett, 1994). Chaque radionucléide requiert ainsi une technique analytique spécifique. Ces difficultés métrologiques limitent les connaissances sur les niveaux d'activités et la compréhension des mécanismes de transferts des radionucléides aux plantes et aux animaux.

Les végétaux cultivés sur des sols riches en radioéléments contiennent généralement une radioactivité importante sans que cette relation ne soit nécessairement linéaire (Blanco Rodríguez *et al.*, 2010). En effet, aux transferts racinaires s'ajoutent d'autres mécanismes de transfert tels que la remise en suspension de particules de sol, le dépôts de particules atmosphériques et les apports provenant des eaux d'irrigations qui sont parfois suivis de mécanismes de translocation (AIEA, 2010). Pour les transferts aux animaux, les différentes sources de radioéléments (les aliments, les eaux et les particules de sol) contiennent des quantités variables de radionucléides disponibles à l'absorption intestinale ce qui rend difficile la compréhension des mécanismes de transfert (Fesenko *et al.*, 2007).

Objectifs de la thèse

L'objectif de la thèse consiste, dans un premier temps, à améliorer les connaissances sur les niveaux de radioactivité dans différentes matrices alimentaires prélevées sur le territoire français. Suite à des prospections bibliographiques, il s'est avéré que jusqu'à ce jour, très peu d'études ont été menées sur le sujet en France.

A partir des mesures des radionucléides des chaînes de décroissance de l'uranium et du thorium dans les matrices alimentaires provenant de diverses régions de France, le travail de thèse a consisté à évaluer la variabilité des activités, essentiellement en fonction de la nature du substrat géologique et dans une moindre mesure en fonction de l'influence de l'industrie du nucléaire.

Enfin, la thèse a pour objectif de contribuer à améliorer les connaissances sur les transferts des radionucléides aux denrées. Dans cette optique, les sources potentielles de radionucléides pour les produits alimentaires ont été étudiées. Dans le cas des produits végétaux, ces sources sont : les sols, les particules atmosphériques, les eaux d'irrigation et les particules de sol remises en suspension. Dans le cas des produits laitiers, des viandes et des œufs, il s'agit de l'alimentation animale, des eaux d'abreuvage et des particules de sol ingérées. Les relations entre les sources et les matrices alimentaires ont alors été explorées par la confrontation des activités et des rapports d'activités de chaque matrice.

Structure de la thèse

Le manuscrit de la thèse est articulé en cinq chapitres.

Le chapitre 1 présente dans une première partie, les chaînes de décroissance de l'uranium et du thorium et les principales caractéristiques géochimiques des radionucléides qui les constituent. Dans une deuxième partie, les connaissances actuelles sur les transferts des radionucléides aux denrées et sur leurs niveaux d'activités dans différents types de produits alimentaires sont exposées. Les activités mesurées dans des produits issus de régions caractérisées par des sols de faibles activités sont ainsi confrontées aux activités mesurées dans des régions ayant des sols de fortes activités ou qui sont influencées par des activités anthropiques.

Le chapitre 2 décrit l'étude de terrain réalisée dans le cadre de cette thèse, et présente les sites qui ont fait l'objet de prélèvements et les critères qui ont conduit à leur sélection. Ensuite, la stratégie de prélèvement des divers échantillons ainsi que les traitements pré-analytiques sont exposés. Enfin, les techniques analytiques utilisées pour la détermination des activités sont détaillées.

Le chapitre 3 présente une publication soumise dans *Journal of Environmental Monitoring* qui a pour titre « Contribution of uranium, thorium and decay products in soil, water and atmospheric particles, to the activity concentration in lettuce and wheat samples ». Cette publication traite de la variabilité des activités de l'uranium, du thorium et de leurs descendants dans des échantillons de salade et de blé issus de cinq régions françaises. Cet article se penche ensuite sur l'étude des transferts des radionucléides à ces matrices en prenant en compte les sources possibles de radionucléides pour les plantes (sol, eau d'irrigation, particules atmosphériques, particules de sol). Des facteurs de transfert sol-plante sont également calculés afin d'enrichir les bases de données existantes.

Le chapitre 4 consiste également en une publication acceptée dans *Journal of Environmental Monitoring*. Cette publication dont le titre est « Study on transfers of uranium, thorium and decay products from grain, water and soil to chicken meat and egg contents », a pour objectif l'étude des activités de l'uranium, du thorium et de leurs descendants dans la viande de volaille et les œufs. Afin d'évaluer la contribution des sources potentielles de radionucléides pour les animaux, les aliments, les eaux d'abreuvage et les sols potentiellement ingérés sont étudiés. L'ensemble de ces résultats permet le calcul des rapports de concentrations et des coefficients de transferts pour ces matrices.

Enfin, le chapitre 5 constitue la synthèse générale de ce mémoire et reprend tout d'abord les techniques analytiques utilisées et discute de la pertinence de leur choix par rapport à leurs

incertitudes et leurs limites de détection. La deuxième partie de ce chapitre présente les différentes conclusions des études sur les transferts des radionucléides aux denrées et les perspectives découlant de ces études. Enfin, les risques chimiques et radiologiques liés à l'ingestion de denrées sont évalués par le calcul des quantités quotidiennes d'aliment à ingérer pour atteindre les limites fixées réglementairement.

Chapitre 1 : Etat des connaissances

Ce chapitre a pour but de présenter les différents radionucléides composant les chaînes de décroissance de l'uranium et du thorium ainsi que leurs principales caractéristiques physicochimiques. D'autre part, ce chapitre recense les connaissances actuelles sur les transferts des radionucléides aux denrées, qu'il s'agisse de produits végétaux, de produits laitiers, de viandes ou d'œufs. Enfin, ce chapitre présente la variabilité des activités mesurées dans différents types de produits dans des zones caractérisées par des sols de faible activité, dans des zones naturellement riches en uranium, thorium et leurs descendants et dans des zones influencées par une activité anthropique susceptible d'augmenter les niveaux de radioactivité dans les denrées.

1. Caractéristiques des chaînes de décroissance des isotopes de l'uranium et du thorium

1.1. L'uranium

1.1.1. Généralités

L'uranium est l'élément chimique le plus lourd naturellement présent sur Terre à l'état de trace. Selon les astrophysiciens sa synthèse a pu avoir lieu lors de l'explosion d'une supernova durant laquelle un flux de neutrons suffisamment intense a été généré, permettant la formation d'éléments de masse supérieure à celle du fer (Bonin et Blanc, 2001). La teneur moyenne en uranium sur Terre est estimée entre 0,01 ppm et 0,02 ppm, avec une forte concentration dans la croûte terrestre de 2 à 4 ppm (Galle, 1997). L'uranium est présent dans les différentes roches de l'écorce terrestre et dans les sols avec des concentrations plus importantes dans les phosphates, certains granites et certaines roches ignées (Bonin et Blanc, 2001).

L'uranium du fait de son noyau lourd et fragile a la capacité de se transformer spontanément vers un état plus stable avec émission de rayonnement ionisant (α, β, γ et X) (Choppin et Rydberg, 1980). Il possède quatorze isotopes radioactifs allant de ^{226}U à ^{240}U. Malgré la formation concomitante de tous ces isotopes, seuls ceux qui ont une période suffisamment longue subsistent actuellement sur Terre. Ces isotopes sont ^{238}U, ^{235}U et ^{234}U dont les périodes radioactives et les abondances relatives actuelles sur Terre sont présentées dans le tableau 1.1.

Isotopes	Période radioactive (années)	Abondance relative actuelle sur Terre (en % U total)
^{234}U	$2,46 \times 10^5$	0,0055
^{235}U	$7,04 \times 10^8$	0,7200
^{238}U	$4,46 \times 10^9$	99,2745

Tableau 1.1 : Périodes (années) et abondances relatives des principaux isotopes de l'uranium (% U total).

^{238}U et ^{235}U sont tous deux des isotopes primordiaux, chefs de file de grandes familles de radio-isotopes naturels alors que ^{234}U est un produit de la décroissance de ^{238}U. La figure 1.1 décrit les chaînes de décroissance de ces deux isotopes et présente les périodes radioactives des radioéléments des chaînes de désintégration ainsi que les caractéristiques principales des rayonnements émis. ^{238}U et ^{235}U se désintègrent principalement par émission d'une particule α, dont les énergies maximales sont respectivement de 4,196 et 4,395 MeV. Leurs filiations comprennent

respectivement, 14 et 11 éléments et se terminent avec ^{206}Pb pour la chaîne de décroissance de ^{238}U et avec ^{207}Pb pour celle de ^{235}U. Le rapport massique naturel ^{235}U/^{238}U est de 0,72 % (Gambini et Granier, 1992). Ces deux isotopes de l'uranium présentent également la propriété de se désintégrer par fission sous l'effet de bombardement de neutrons. Cependant, seul ^{235}U peut être le siège d'une réaction de fission spontanée en chaîne pour des quantités de matières supérieures à une valeur seuil, appelée masse critique (Madic et Genet, 2001). Sa fission libère une énergie voisine de 200 MeV par atome fissionné. Cette énergie est plus d'un million de fois supérieure à celle des combustibles fossiles pour une masse équivalente, d'où son utilisation en tant que matière première dans l'industrie nucléaire. Pour fabriquer le combustible des centrales nucléaires, des opérations d'enrichissement sont réalisées afin de modifier le rapport ^{235}U/^{238}U de l'uranium minier et d'obtenir une teneur de 3 à 5% en ^{235}U.

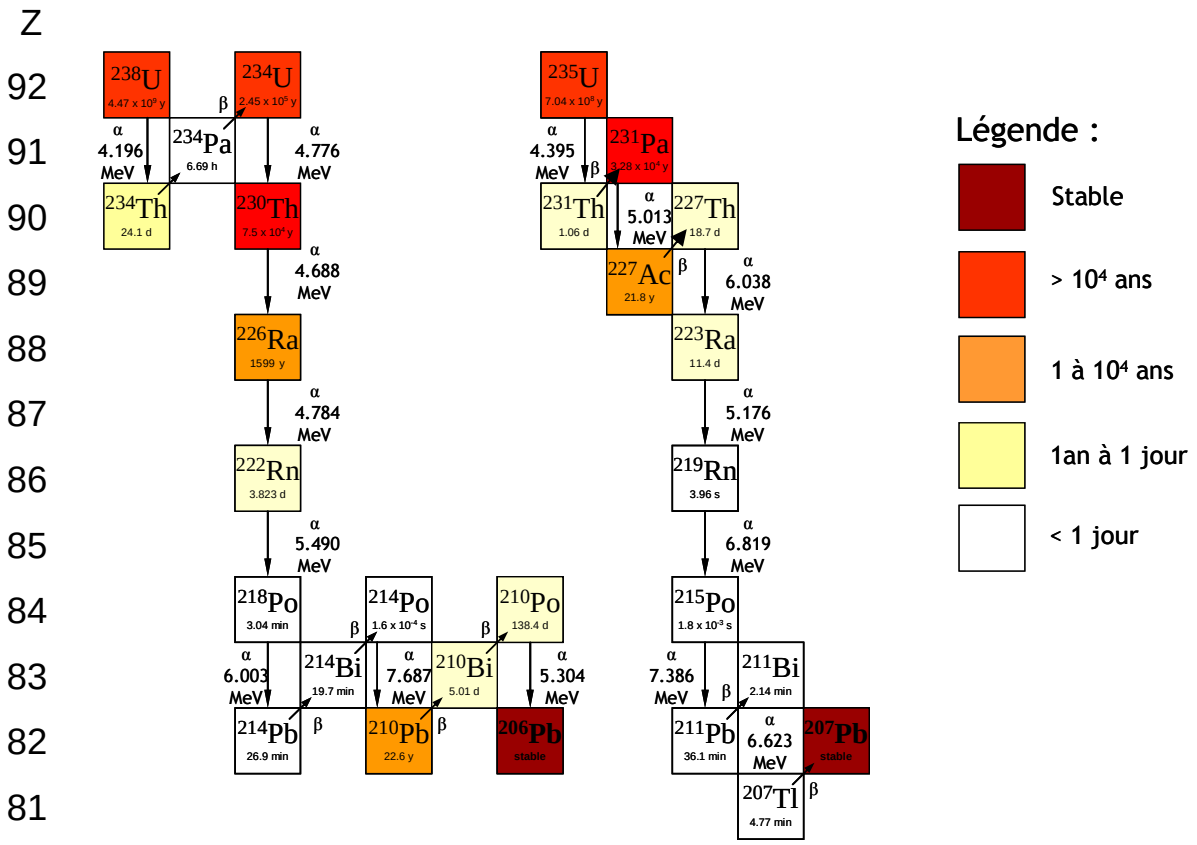


Figure 1.1 : Chaînes de décroissance radioactive des deux principaux isotopes de l'uranium. Le code couleur emploie des couleurs claires pour les courtes périodes et des couleurs sombres pour les longues périodes.

1.1.2. Géochimie de l'uranium

D'un point de vue chimique, l'uranium fait partie de la famille des actinides. Dans l'environnement, il n'existe pas à l'état de métal en tant que tel (chimiquement pur ou en alliage) du fait de sa forte électropositivité (Madic et Genet, 2001). L'uranium peut adopter quatre états de

valence associés aux formes ioniques suivantes : U^{3+} (+III), U^{4+} (+IV), UO_2^{+} (+V) et UO_2^{2+} (+VI) (Ribera *et al.*, 1996). Les formes majoritairement rencontrées dans l'environnement sont caractérisées par les états d'oxydation U(IV) et U(VI). En effet, en conditions réductrices, l'uranium se trouve à l'état d'oxydation +IV peu soluble et a alors tendance à précipiter en uraninite insoluble (UO_2) (Gascoyne, 1992). En milieu oxydant, il se trouve essentiellement à l'état de valence +VI, sous forme d'ion uranyle UO_2^{2+}, qui est sa forme la plus stable et la plus mobile. Sous cette forme, il se complexe facilement avec la matière organique des sols, les carbonates, les phosphates et les sulfates (Gascoyne, 1992). Ces composés, plus ou moins solubles, déterminent pour une grande part la mobilité de l'uranium dans les sols (Colle *et al.*, 2001). Le coefficient de partage ou de distribution (Kd) est un paramètre couramment utilisé pour caractériser la mobilité d'un élément. En effet, ce coefficient est défini comme le rapport, à l'équilibre, de l'activité massique de la phase solide à l'activité volumique de la phase liquide dans le système sol/solution du sol (exprimé en $L.kg^{-1}$). Le tableau 1.2 regroupe les valeurs de Kd de l'uranium pour différentes catégories de sols.

Type de sol	Valeur moyenne ($L.kg^{-1}$)	Gamme de valeurs ($L.kg^{-1}$)
Tous types	200	0,7 – 67 000 178*
Minéral	180	0,7 – 67 000 146*
Organique	1 200	330 – 7 600 9*
Sableux	110	0,7 – 67 000 50*
Limoneux	310	0,9 – 39 000 84*
Argileux	28	2,6 – 480 12*
pH<5	71	0,7 – 6 700 36*
5<pH<7	740	2,6 – 67 000 78*
pH>7	65	0,9 – 6 200 60*

Tableau 1.2 : Valeurs de Kd de l'uranium dans les sols en fonction des caractéristiques physico-chimiques des sols ($L.kg^{-1}$) (AIEA, 2010). * : Nombre de données disponibles.

Ces valeurs de Kd traduisent une mobilité moyenne de l'uranium dans les sols, fortement influencée par la matière organique et le pH, alors que la texture du sol ne semble pas jouer un rôle majeur dans la valeur de Kd de l'uranium.

1.2. Le thorium

1.2.1. Généralités

Le thorium, tout comme l'uranium, est un métal naturel appartenant à la famille des actinides réputé pour avoir la même toxicité chimique que l'uranium (Lung, 1997). Il est 3 à 4 fois plus abondant que l'uranium dans la croûte terrestre avec une teneur moyenne de 9 à 12 ppm. Dans les sols, les concentrations rencontrées sont comprises entre 2 et 12 ppm avec une valeur moyenne de 6 ppm (Kabata-Pendias et Pendias, 2000). A l'état naturel, le thorium présente treize radioisotopes de masses atomiques comprises entre 212 et 236 dont le principal est l'isotope ^{232}Th. Ce radioélément primordial de période radioactive de 1,4 x 10^{10} ans, donne naissance à de nombreux produits de filiation et se termine par l'isotope stable du plomb ^{208}Pb (figure 1.2). Les isotopes ^{234}Th, ^{231}Th, ^{230}Th, ^{228}Th et ^{227}Th sont présents dans les chaînes de décroissance radioactive de l'uranium et du thorium naturel mais possèdent des demi-vies relativement courtes en comparaison de celle de ^{232}Th.

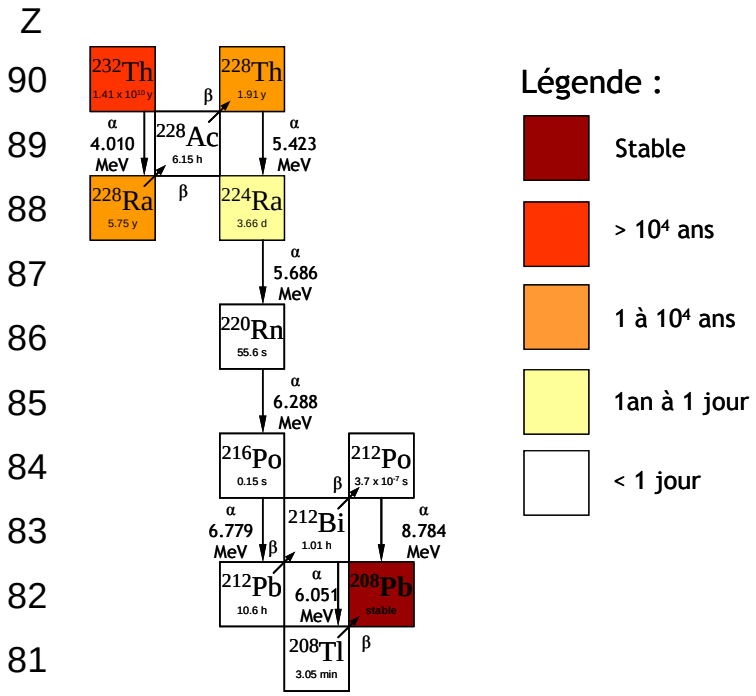


Figure 1.2 : Chaîne de décroissance radioactive du thorium. Le code couleur emploie des couleurs claires pour les courtes périodes et des couleurs sombres pour les longues périodes.

1.2.2. Géochimie du thorium

Le thorium est présent sous la forme d'un cation de caractère acide fort principalement à l'état d'oxydation (+IV) faiblement soluble (Gascoyne, 1992). Dans les eaux, le thorium est très peu

soluble (Cowart et Burnett, 1994) et son transfert se fait principalement sous une forme liée à des supports solides (matières en suspension, sédiments). L'isotope ^{228}Th est présent en quantité plus importante dans les eaux par rapport aux autres isotopes (Koide *et al.*, 1973 ; Ku, 1976 ; Gaffney *et al.*, 1992 ; Bonotto, 1998 ; Luo *et al.*, 2000 ; Tricca *et al.*, 2001), du fait d'un excès important de ^{228}Ra dissous. Dans les sols, la mobilité du thorium peut être favorisée par la formation de complexes avec d'autres ions de nature inorganique tels que les fluorures, les phosphates et les hydroxydes (Anderson *et al.*, 1982 ; Lin *et al.*, 1996), ou de nature organique tels que des acides humiques et fulviques (Olofsson et Allard, 1983). Cependant, l'adsorption à la matière organique, aux argiles et aux oxydes présents dans les sols, limite la mobilité et la biodisponibilité du thorium. De plus, il a été démontré (Syed, 1999) qu'à partir d'un pH de 3,2 les ions thorium sont largement hydrolysés et que les complexes hydroxylés formés participent fortement aux processus de sorptions. L'adsorption de thorium aux argiles, aux oxydes et à la matière organique augmente ainsi avec le pH et est quasi-totale à pH = 6,5 (Syed, 1999). D'un autre côté, la mobilité du thorium dans le sol peut être moins affectée par le pH du sol que par la matière organique (Hunsen et Huntington, 1969). De manière générale, la très faible solubilité du thorium limite fortement sa migration, à moins que le thorium ne se lie à des colloïdes et des complexants chimiques mobiles tels que des oxydes secondaires de fer et de manganèse (Wright, 1972). Le tableau 1.3 indique les valeurs de Kd du thorium pour différents types de sols.

Type de sol	Valeur moyenne ($L.kg^{-1}$)	Gamme de valeurs ($L.kg^{-1}$)
Tous types	1 900	18 - 250 000 46*
Minéral	2 600	35 - 250 000 25*
Organique	730	18 - 80 000 5*
Sableux	700	35 – 100 000 12*
Limoneux	18 000	5 000 – 250 000 6*
Argileux	4 500	800 – 24 000 7*
pH<5	1 300	18 - 100 000 11*
5<pH<8	3 300	130 - 250 000 26*
pH>8	310	35 - 32 000 6*

Tableau 1.3 : Valeurs de Kd du thorium dans les sols en fonction des caractéristiques physico-chimiques des sols ($L.kg^{-1}$) (AIEA, 2010). * : Nombre de données disponibles.

Le Kd du thorium montre des valeurs élevées qui confirment bien une faible mobilité dans les sols. Les différents isotopes du thorium n'ont pas le même comportement apparent selon leur

mode de genèse (radioélément primordial ou descendant), leurs périodes radioactives et les différences de solubilité chimique des minéraux qui les renferment (Leslie *et al.*, 1999). Ainsi, la mobilité des isotopes va dans le sens : ^{228}Th > ^{230}Th > ^{232}Th.

1.3. Les descendants radioactifs

Parmi tous les radionucléides qui composent les chaînes de décroissance radioactive naturelles, certains comme le protactinium, l'actinium, le bismuth et le thallium sont très faiblement documentés. Dans les paragraphes suivants, seuls le radium, le radon, le polonium et le plomb ont été traités.

1.3.1. Le radium

Le radium possède au total 25 isotopes radioactifs dont certains sont présents dans les chaînes de décroissance naturelles : ^{228}Ra, ^{226}Ra, ^{224}Ra et ^{223}Ra. Parmi ces isotopes, ^{226}Ra est majoritaire et appartient à la chaîne de désintégration de ^{238}U et provient de la décroissance radioactive de ^{230}Th. Les isotopes ^{228}Ra, ^{224}Ra et ^{223}Ra, appartiennent aux filiations du thorium ^{232}Th (^{228}Ra et ^{224}Ra) et de l'uranium ^{235}U (^{223}Ra), et possèdent des demi-vies très courtes de 5,75 ans, 3,6 jours et 11,7 jours respectivement contre 1 599 ans pour ^{226}Ra.

D'un point de vue chimique, le radium est un élément relativement soluble dans l'eau, de la famille des alcalino-terreux. En tant que tel, on le retrouve uniquement à l'état d'oxydation +II. Du fait de leur rayon ionique très similaire, le radium possède un comportement chimique proche de celui du baryum (Barci *et al.*, 2009) et dans une moindre mesure, proche de celui du calcium (Cowart et Burnett, 1994). Il peut former des complexes avec les chlorures ce qui le rend très mobile sous cette forme. A l'inverse, même des quantités modérées d'ions sulfates inhibent le transport en raison de la co-précipitation de sulfate de radium conjointement à celle du sulfate de baryum (Cherdynstev, 1971). En tant que descendant de l'uranium et du thorium, le radium se retrouve souvent dans les sites interstitiels des cristaux ou est incorporé dans les matériaux jeunes, tels que les carbonates (Ku, 1972).

L'activité ordinaire en ^{226}Ra dans les roches est de l'ordre de quelques dizaines de Becquerel par kilogramme et dépend étroitement des teneurs en uranium et thorium. Dans les sols, le radium est peu mobile car il a tendance à se fixer sur les minéraux argileux et la matière organique. Le tableau 1.4 regroupe les valeurs de Kd du radium dans différents types de sol. Les valeurs répertoriées montrent bien des valeurs élevées, traduisant une forte affinité du radium pour la phase solide du sol.

Type de sol	Valeur moyenne ($L.kg^{-1}$)	Gamme de valeurs ($L.kg^{-1}$)
Tous types	2 500	12 - 950 000 51*
Sableux	3 100	49 - 40 000 20*
Limoneux	1 100	12 – 120 000 19*
Argileux	38 000	700 – 950 000 6*
Organiques	1 300	200 – 2 400 2*

Tableau 1.4 : Valeurs de Kd du radium dans les sols en fonction des caractéristiques physico-chimiques des sols ($L.kg^{-1}$) (AIEA, 2010). * : Nombre de données disponibles.

1.3.2. Le radon

Le radon est un gaz noble radioactif, chimiquement inerte. L'isotope majeur ^{222}Rn provient de la chaîne de décroissance radioactive de l'uranium lors de la désintégration α de ^{226}Ra. Dans les chaînes de ^{232}Th et de ^{235}U, ^{220}Rn et ^{219}Rn sont respectivement issus des décroissances α de ^{224}Ra et de ^{223}Ra. Les demi-vies des isotopes ^{220}Rn et ^{219}Rn sont de l'ordre de quelques secondes (54,5 et 3,9 s respectivement) alors que celle de ^{222}Rn est de 3,825 jours. ^{222}Rn, formé à partir de ^{226}Ra contenu dans les minéraux, va ainsi occuper un espace interstitiel ou vacant. Lorsque sa formation a lieu à proximité de la limite du cristal il va diffuser à l'extérieur du réseau cristallin du fait de l'énergie de recul (Michel, 1987). Il diffuse alors au sein du réseau poreux et peut ensuite s'échapper vers l'atmosphère si la distance le séparant de la surface est suffisamment faible pour que sa désintégration n'ait pas lieu. La concentration moyenne en ^{222}Rn dans l'air extérieur est de l'ordre de 10 $Bq.m^{-3}$ (Gaffney et Marley, 2007). Elle est largement dépendante de la concentration en ^{226}Ra dans les sols, du taux d'exhalaison du sol et des facteurs de dispersion atmosphérique. De la même manière, le radon étant assez soluble dans l'eau, les concentrations rencontrées peuvent être assez élevées et atteindre de 19 à 22 $Bq.L^{-1}$ comparé au radium et à l'uranium qui sont respectivement présents à des concentrations de 0,01 à 0,03 $Bq.L^{-1}$ et de 0,01 à 0,07 $Bq.L^{-1}$ (Milvy et Cothern, 1989). L'exhalation gazeuse de ^{222}Rn va ainsi introduire un double déséquilibre au sein de la chaîne de décroissance de l'uranium, d'une part en appauvrissant les descendants directs à vie courte dans son milieu d'origine et d'autre part, en enrichissant la surface des sols et des sédiments en ces mêmes descendants.

1.3.3. Le polonium

Le polonium est un élément chimique appartenant à la famille des métalloïdes qui possèdent 29 isotopes radioactifs. Six d'entre eux sont présents dans les trois familles radioactives naturelles (^{218}Po, ^{216}Po, ^{215}Po, ^{214}Po, ^{212}Po, ^{210}Po). Le plus abondant naturellement est ^{210}Po émetteur

alpha qui appartient à la filiation de ^{238}U. Il se caractérise par une demi-vie de 138,4 jours et est produit par désintégration de ^{210}Pb ($t_{1/2}$ = 22,3 ans) *via* la désintégration α de ^{210}Bi ($t_{1/2}$ = 5,02 jours). ^{218}Po et ^{214}Po, également émetteurs alpha, appartiennent aussi à la famille radioactive naturelle de ^{238}U, mais leurs périodes radioactives sont beaucoup plus courtes. De même les isotopes ^{215}Po, ^{216}Po et ^{212}Po appartiennent pour le premier à la chaîne de décroissance de ^{235}U et pour les deux derniers à celle de ^{232}Th. Ces isotopes possèdent des demi-vies très courtes (de l'ordre de la seconde) et sont donc très peu abondants.

D'un point de vue chimique, le polonium se retrouve principalement à l'état d'oxydation +IV sous la forme d'ions polonates PoO_3^{2-}. Cet élément, tout comme le thorium, est très réactif avec les particules et est très rapidement adsorbé (Gascoyne, 1992). Cependant, dans certaines conditions réductrices et de faible pH, des formes plus mobiles peuvent exister (Harada *et al.*, 1989). Les valeurs de coefficient de distribution de cet élément sont présentées dans le tableau 1.5.

Type de sol	Valeur moyenne ($L.kg^{-1}$)	Gamme de valeurs ($L.kg^{-1}$)
Tous types	210	12 - 7 000 44*
Sableux	100	17 - 7 000 14*
Limoneux	230	12 – 1 800 27*
Argileux + organique	2300	720 – 6 600 3*

Tableau 1.5 : Valeurs de Kd du polonium dans les sols en fonction des caractéristiques physico-chimiques des sols ($L.kg^{-1}$) (AIEA, 2010). * : Nombre de données disponibles.

Cet élément est également extrêmement volatile à des températures supérieures à 350°C. Cette caractéristique va avoir pour effet de rompre l'équilibre avec son élément père ^{210}Pb lors des phénomènes de combustion (Le Guern *et al.*, 1982). Dans l'écorce terrestre, ^{210}Po se trouve à l'équilibre avec ^{210}Pb, à un niveau voisin de quelques dizaines de $Bq.kg^{-1}$ alors qu'en surface du sol son activité est plus élevée (environ 0-10 cm) qu'en profondeur, soulignant l'importance des retombées atmosphériques (Karunakara *et al.*, 2000).

1.3.4. Le plomb

Le plomb est un métal lourd possédant de nombreux isotopes naturels et artificiels. Les isotopes stables ^{206}Pb, ^{207}Pb et ^{208}Pb sont les éléments de fin de chaîne des trois séries de décroissance (^{238}U, ^{235}U et ^{232}Th respectivement), ^{208}Pb étant l'isotope le plus abondant sur Terre (52,4 %). Parmi les isotopes radioactifs, 4 font partie des chaînes de décroissance naturelles (^{214}Pb, ^{210}Pb, ^{211}Pb, ^{212}Pb), mais seul ^{210}Pb possède une demi-vie supérieure à quelques heures (22,6 ans). Ce radionucléide étant un descendant du radon gazeux, il se retrouve en quantité importante fixé

aux particules atmosphériques qui vont ensuite retomber à la surface de la terre par dépôt sec ou humide (Peirson, *et al.*, 1966). La concentration de ^{210}Pb dans les sols, décroit ainsi de la surface du sol vers les horizons plus profonds de manière constante jusqu'à une profondeur d'environ 1 m (Gaffney et Marley, 2007). Dans le système sol/plante, le comportement de ^{210}Pb est similaire à celui de sa forme stable (Persson, 1974 ; Sharma et Kalin, 1982). La forme prédominante du plomb dans les sols est ainsi Pb^{2+}. Les sols étant caractérisés par une charge négative, le plomb se retrouve fortement adsorbé à cette matrice. Dans les phases liquides, l'activité du plomb est très faible du fait de sa faible solubilité et de sa tendance à s'associer à la matière particulaire (Mas *et al.*, 2007). Le tableau 1.6 présente les valeurs de Kd du plomb pour différents types de sol. Ces valeurs relativement importantes confirment bien cette faible solubilité du plomb dans les sols.

Type de sol	Valeur moyenne ($L.kg^{-1}$)	Gamme de valeurs ($L.kg^{-1}$)
Tous types	2 000	25 - 130 000 23*
Sableux	220	25 - 1 300 9*
limoneux + Argileux	13 000	3 600 – 130 000 7*
Organiques	2 500	880 – 10 000 5*

Tableau 1.6 : Valeurs de Kd du plomb dans les sols en fonction des caractéristiques physico-chimiques des sols ($L.kg^{-1}$) (AIEA, 2010). * : Nombre de données disponibles.

1.4. Origine des fractionnements au sein des chaînes de désintégration

1.4.1. Fractionnement chimique

Les propriétés géochimiques et les périodes radioactives des radionucléides qui composent les chaînes de décroissance radioactive, énoncées dans les paragraphes précédents, représentent une cause majeure de déséquilibre radioactif dans l'environnement (Cowart et Burnett, 1994). Les différences géochimiques les plus notables entre les radionucléides existent entre l'uranium et le thorium, le thorium et le radium, le radium et le radon et le radon et le plomb.

1.4.2. Effet de recul

Outre les fractionnements dus aux caractéristiques chimiques des radionucléides, un fractionnement mécanique peut également affecter la mobilité des radionucléides. Ce fractionnement a été mis en évidence par Cherdyntsev *et al.* (1955) et est dû à la nature radiogénique des membres des chaînes de décroissance. Il se traduit par le recul d'un isotope fils hors de son site, du fait de la décroissance radioactive de l'isotope père. Au cours de ce processus,

l'émission de l'isotope fils et d'un noyau d'hélium s'accompagne d'une énergie cinétique suffisamment importante pour rompre les liaisons chimiques (Osmond et Cowart, 1976). La rupture des liaisons chimiques conduit soit à l'éjection de l'isotope fils directement dans la solution environnante ou à l'endommagement de la matrice cristalline, rendant l'élément plus facilement mobilisable (Rosholt *et al.*, 1963 ; Kigoshi, 1971 ; Fleisher, 1980). L'éjection directe de l'isotope fils en solution dépend de la longueur de son déplacement lors de la désintégration de l'isotope père et de l'angle avec lequel il est émis par rapport à la surface de la particule (Fleischer et Raabe, 1978). Des déséquilibres $^{234}U/^{238}U$ supérieurs à 1 dans les eaux et inférieurs à 1 dans les phases solides résiduelles (sédiments, matières en suspension et sols) ont été largement observés lors de travaux précurseurs (Cherdyntsev *et al.*, 1955 ; Koide et Goldberg, 1964 ; Ku, 1965 ; Rosholt *et al.*, 1966 ; Moreira-Nordemann, 1980 ; Thurber, 1962) et plus récents (Vigier *et al.*, 2001 ; Henderson, 2002). La différence de mobilité entre les isotopes du radium ^{226}Ra et ^{228}Ra respectivement issus des chaînes de décroissance de ^{238}U et de ^{232}Th peut également s'expliquer par l'effet de recul alpha (Arogunjo *et al.*, 2009). En effet, la formation de ^{226}Ra à partir de ^{238}U se fait à la suite de trois désintégrations alpha, l'effet de recul induit probablement des ruptures dans le réseau cristallin permettant à ^{226}Ra de se libérer. Dans la série de ^{232}Th, seulement une désintégration alpha a lieu avec une demi-vie très longue ($1,4 \times 10^{10}$ a) et conduit à la formation de ^{228}Ra. La plus faible probabilité d'induire des dommages au réseau cristallin expliquerait que ^{228}Ra soit moins mobile que ^{226}Ra (Arogunjo *et al.*, 2009).

2. Bilan des données disponibles sur l'activité des radionucléides naturels dans la chaîne alimentaire

L'utilisation de l'uranium comme combustible dans le nucléaire civil a contribué à l'augmentation du nombre d'études portant sur le comportement des radionucléides naturels issus des chaînes de décroissance de l'uranium et du thorium et aux conséquences radioécologiques de fortes activités pour l'environnement et pour l'Homme. Il est apparu dans ces études que l'activité mesurée dans les denrées est fortement dépendante de la région de provenance. En effet, les radionucléides tels que l'uranium, le thorium et leurs descendants sont naturellement présents dans tous les compartiments de la biosphère à des teneurs variables liées à la nature de la roche mère (Vinogradov, 1959). Cependant, certaines activités industrielles sont susceptibles d'enrichir en uranium et ses descendants certains compartiments de la biosphère comme les sols, les sédiments ou les eaux continentales. Le cycle du combustible du nucléaire, depuis l'exploitation de mines uranifères jusqu'au traitement des déchets, peut être la source de rejets chroniques ou accidentels de radionucléides naturels dans l'environnement. De même, l'utilisation militaire d'uranium appauvri (uranium naturel dont la proportion en ^{235}U a été réduit de 0,7 à 0,2 %) provoque des augmentations locales des activités d'uranium par le dépôt de fines particules d'UO_2 sur les sites bombardés. Enfin, les activités industrielles qui extraient et transforment des matériaux naturellement riches en radionucléides (industrie des engrais phosphatés, par exemple) sont également susceptibles de modifier les niveaux d'activité d'un lieu donné.

Dans les parties suivantes, la variabilité des activités sera évaluée dans trois situations différentes, tout d'abord dans des régions caractérisées par des sols de faibles activités en radionucléides des chaînes de l'uranium et du thorium, dans des régions dont les sols ont des concentrations élevées et dans des régions soumises à une influence anthropique susceptible d'augmenter ces concentrations.

2.1. Variabilité des activités dans les denrées issues de régions faiblement radioactives.

Une grande partie des travaux menés sur les activités des radionucléides naturels dans les denrées, a pour but de déterminer les doses effectives reçues par la population lors de l'ingestion. En outre, les données obtenues peuvent également servir de valeurs de référence pour une région donnée afin d'évaluer l'impact d'une contamination en cas de rejets de radionucléides d'origine anthropique (Pietrzak-Flis *et al.*, 2001). Les produits alimentaires choisis dans ces études sont représentatifs du régime alimentaire de la population concernée et sont généralement issus de commerces de proximité, de fermes locales ou sont directement prélevés dans les champs. Les recherches sont limitées autant que possible à des produits non affectés par les activités industrielles afin de s'assurer que les activités mesurées reflètent bien la variabilité de la radioactivité naturelle. La compilation des résultats issus de ces études permet d'avoir une bonne

estimation de la gamme de variabilité des activités des radionucléides naturels dans les denrées à l'échelle globale. Les recherches bibliographiques menées dans le cadre de cette thèse, se concentrent sur les produits pouvant être cultivés en France. Ainsi, les données sur le manioc, les mangues et autres produits tropicaux ne sont pas prises en compte. Les produits marins n'ont pas non plus été retenus étant donné que cette thèse porte exclusivement sur des productions terrestres. Afin de faciliter la lecture des données recueillies, les denrées sont regroupées par catégorie d'aliments (céréales, légumes feuilles, légumes racines, légumes fruits, fruits, produits laitiers et viandes et œufs). Les gammes d'activités des principaux radionucléides des chaînes de décroissance de l'uranium et du thorium pour chaque groupe d'aliments sont présentées dans les tableaux 1.7 à 1.13 (mBq.kg^{-1} frais). Parmi les isotopes de l'uranium, seules les activités de ^{238}U sont présentées dans les tableaux, étant donné que les rapports ^{234}U/^{238}U sont proches de 1 voire légèrement supérieurs (Pietrzak-Flis *et al.*, 2001).

2.1.1. Variabilité des activités dans les céréales

Les céréales regroupent majoritairement des espèces comme le riz et le blé largement cultivés sur l'ensemble du globe, mais également du seigle et de l'orge. Les données issues de la littérature sur les activités dans les céréales montrent une grande variabilité (tableau 1.7). Les activités les plus élevées sont mesurées pour ^{210}Pb (78 - 690 mBq.kg^{-1}) et ^{210}Po (9 - 630 mBq.kg^{-1}), suivies des isotopes du radium, ^{226}Ra (5 - 150 mBq.kg^{-1}) et ^{228}Ra (10 - 125 mBq.kg^{-1}). Les activités en ^{238}U montrent des valeurs plus faibles comprises entre 1,41 et 24 mBq.kg^{-1}. Les isotopes du thorium présentent également des activités faibles avec des valeurs comprises entre 0,73 et 3,07 mBq.kg^{-1} pour ^{230}Th, et entre 0,48 et 7,9 pour ^{232}Th. ^{228}Th présente cependant une gamme de variabilité plus large et plus élevée avec des activités comprises entre 2,26 et 104 mBq.kg^{-1}.

Pays	N	^{238}U	^{230}Th	^{226}Ra	^{210}Pb	^{210}Po	^{232}Th	^{228}Ra	^{228}Th	Références
Allemagne	19	1,4 - 18								Anke *et al.*, 2009
Corée	27		0,7 - 3,1	<33 - 112			0,5 - 3,0	<6 - 125	2,3 - 104	Choi *et al.*, 2008
Brésil	2	4,6 ± 0,6								Garcia *et al.*, 2006
Taiwan	2			40 - 80						Kuo *et al.*, 1997
Corée	5					140-150				Lee *et al.*, 2009
Angleterre	15				78 - 690	9-630				Mc Donald *et al.*, 1999
Pologne centrale	9	2,5-3,6	1,5 - 1,8	48 - 62	112 - 155	92-136	1,8 - 2,1		12 - 19	Pietrzak-Flis *et al.*, 1997a, 2001
Brésil	5	<0,01 - 24		5 - 27			0,7 - 8	10 - 84		Santos *et al.*, 2002
Japon	70			<3 - 150						Tagami et Uchida, 2009
Valeurs de référence	-	20	10	80	50	60	3	60	3	UNSCEAR, 2008

Tableau 1.7 : Activités des principaux radionucléides des chaînes de décroissance de l'uranium et du thorium dans les céréales (mBq.kg^{-1} frais).

2.1.2. Variabilité des activités dans les légumes feuilles

Les légumes feuilles regroupent principalement des espèces comme le chou, les épinards et les salades qui sont principalement cultivés en Asie et en Europe (FAOSTAT, 2010). La variabilité des activités dans les légumes feuilles est présentée dans le tableau 1.8. A la différence des céréales, les activités les plus élevées sont mesurées pour les isotopes du radium avec une gamme d'activité comprise entre 13 et 2 370 mBq.kg^{-1} pour ^{228}Ra et entre 9 et 805 mBq.kg^{-1} pour ^{226}Ra. La gamme de variabilité des activités en ^{210}Pb et ^{210}Po des légumes feuilles, bien qu'inférieures à celle des céréales, est toujours importante et s'étend de 15 à 220 mBq.kg^{-1} pour ^{210}Pb et de 4 à 360 mBq.kg^{-1} pour ^{210}Po. Dans la plupart des études, le but étant de calculer la dose effective reçue par l'Homme suite à la consommation d'aliments, les légumes sont lavés et les feuilles extérieures sont retirées avant la mesure des activités. Ce traitement amont pourrait expliquer les basses activités mesurées dans certains échantillons. Les activités en ^{238}U dans les légumes feuilles sont plus faibles, tout comme dans les céréales et sont comprises entre 1,07 et 44 mBq.kg^{-1}. Les isotopes du thorium possèdent des activités du même ordre de grandeur comprises entre 0,29 et 5,19 mBq.kg^{-1} pour

^{230}Th, 0,15 et 29 mBq.kg^{-1} pour ^{232}Th et 2,19 et 20 mBq.kg^{-1} pour ^{228}Th. En général, les légumes feuilles possèdent des activités plus élevées que les céréales et les fruits (Simon et Ibrahim, 1988).

Pays	N	^{238}U	^{230}Th	^{226}Ra	^{210}Pb	^{210}Po	^{232}Th	^{228}Ra	^{228}Th	Références
Allemagne	131	3 - 35								Anke *et al.*, 2009
Corée	25		0,3 - 5	15 - 156			0,15 - 5	13 - 174	9 - 20	Choi *et al.*, 2008
Brésil	10	11 ± 1								Garcia *et al.*, 2006
Taiwan	1			40 ± 2						Kuo *et al.*, 1997
Corée	8					19 - 360				Lee *et al.*, 2009
Angleterre	9				15 - 220	4 - 140				Mc Donald *et al.*, 1999
Pologne centre	62	1,1 - 14	0,91 - 1,25	11 - 34	43 - 51	40 - 82	0,7 - 7		2,19 - 11	Pietrzak-Flis *et al.*, 1997a, 2001
Brésil	19	<0,02 - 44		<10 - 805			<0,01 - 29	<22 – 2 370		Santos *et al.*, 2002
Japon	15			9 - 71						Tagami et Uchida, 2009
Valeurs de référence	-	20	20	50	80	100	15	40	15	UNSCEAR, 2008

Tableau 1.8 : Gamme de variabilité des activités des principaux radionucléides des chaînes de décroissance de l'uranium et du thorium dans les légumes feuilles (mBq.kg^{-1} frais).

2.1.3. Variabilité des activités dans les légumes fruits

Les légumes fruits sont constitués, en grande partie, de tomates, d'aubergines et de concombres. Les tomates sont largement consommées et cultivées à la surface du globe avec une production mondiale de 145 Mt pour l'année 2010 (FAOSTAT, 2010). Tout comme pour les légumes feuilles, les activités les plus élevées sont mesurées pour les isotopes du radium et varient entre 8,66 et 635 mBq.kg^{-1} pour ^{226}Ra et entre 15 et 451 mBq.kg^{-1} pour ^{228}Ra (tableau 1.9). Cependant, les activités maximales mesurées dans ces produits ne sont pas aussi élevées que celles mesurées dans les légumes feuilles. Les études sur les activités en ^{210}Pb et ^{210}Po dans les légumes fruits traduisent des activités relativement basses avec des valeurs de 12 à 39 mBq.kg^{-1} pour ^{210}Pb et comprises entre 1 et 56 mBq.kg^{-1} pour ^{210}Po. Les activités en ^{238}U obtenues dans les légumes fruits sont du même ordre de grandeur que celles obtenues dans les légumes feuilles et les céréales (^{238}U : 0,83-

37 mBq.kg^{-1}). Les isotopes du thorium montrent par contre des gammes d'activités plus faibles que celles des autres types d'aliments (^{232}Th : 0,02-1.5 ; ^{230}Th : 0,15-1,26 ; ^{228}Th :0,42-5,1 mBq.kg^{-1}).

Pays	N	^{238}U	^{230}Th	^{226}Ra	^{210}Pb	^{210}Po	^{232}Th	^{228}Ra	^{228}Th	Références
Allemagne	36	0,8 - 4,7								Anke *et al.*, 2009
Corée	29		0,15 - 0,37	14 – 21			0,06 - 0,29	<7 - 19	0,4 - 5,1	Choi *et al.*, 2008
Brésil	9	37 ± 2								Garcia *et al.*, 2006
Corée	2					40 ± 5				Lee *et al.*, 2009
Angleterre	1				12 ± 1	1,0 ± 0,3				Mc Donald *et al.*, 1999
Pologne centre	37	0,5 - 1,4	0,23 - 1,26	8,7 - 8,8	24 - 39	28 - 56	0,31 - 0,75		1,9 - 2,3	Pietrzak-Flis *et al.*, 1997a, 2001
Soudan	4			42 – 635						Sam et Eriksson, 1995
Brésil	6	0,3 - 5,3		28 – 569			0,02 - 1,5	<51 - 451		Santos *et al.*, 2002
Japon	12			<2,8 – 22						Tagami et Uchida, 2009
Valeurs de référence	-	3	0,5	30	30	40	0,5	20	0,5	UNSCEAR, 2008

Tableau 1.9 : Gamme de variabilité des activités des principaux radionucléides des chaînes de décroissance de l'uranium et du thorium dans les légumes fruits (mBq.kg^{-1} frais).

2.1.4. Variabilité des activités dans les légumes racines

Le groupe des légumes racines comprend majoritairement des pommes de terre qui sont très largement cultivées dans le monde avec une production de 324 Mt pour l'année 2010 (FAOSTAT, 2010). Les légumes racines comprennent également des carottes, des navets, des oignons et des poireaux qui sont surtout cultivés en Asie et en Europe. Les activités les plus élevées sont mesurées pour les isotopes du radium avec des activités comprises entre 5 et 928 mBq.kg^{-1} pour ^{228}Ra et entre 6,6 et 653 mBq.kg^{-1} pour ^{226}Ra (tableau 1.10). Les activités en ^{210}Po et ^{210}Pb sont comprises entre 5 et 22 mBq.kg^{-1} pour ^{210}Pb et entre 1 et 160 mBq.kg^{-1} pour ^{210}Po. Ces faibles valeurs proviendraient du fait que pour les légumes racinaires, les radionucléides sont principalement prélevés par voie racinaire sans aucune contribution des apports atmosphériques (Ekdal *et al.*, 2006). Les activités en ^{238}U sont plus faibles que celles mesurées dans les autres groupes d'aliments et sont comprises entre 1,26 et 10,2 mBq.kg^{-1}. Les isotopes du thorium montrent une gamme d'activité du même ordre de

grandeur que dans les groupes d'aliments précédents avec des activités comprises entre 0,41 et 5,74 mBq.kg^{-1} pour ^{230}Th, entre 0,38 et 52 mBq.kg^{-1} pour ^{232}Th et entre 2,58 et 23 mBq.kg^{-1} pour ^{228}Th.

Pays	N	^{238}U	^{230}Th	^{226}Ra	^{210}Pb	^{210}Po	^{232}Th	^{228}Ra	^{228}Th	Références
Allemagne	67	1,3 - 7								Anke *et al.*, 2009
Corée	44		0,4 - 2,1	7 - 137			0,4 - 2,0	5 - 196	2,6 - 23	Choi *et al.*, 2008
Taiwan	1			20 ± 2						Kuo *et al.*, 1997
Corée	2					160 ± 7				Lee *et al.*, 2009
Angleterre	5				5 - 22	1,0 - 13				Mc Donald *et al.*, 1999
Pologne centre	53	1,3 - 10	0,71 - 5,71	10 - 59	29 - 46	28 - 75	0,7 - 5,2		5 - 14	Pietrzak-Flis *et al.*, 1997a, 2001
Brésil	10	<0,01 - 3		7 - 653			<0,1 - 3,0	9 - 928		Santos *et al.*, 2002
Japon	23			<3 - 200						Tagami et Uchida, 2009
Valeurs de référence	-	3	0,5	30	30	40	0,5	20	0,5	UNSCEAR, 2008

Tableau 1.10 : Gamme de variabilité des activités des principaux radionucléides des chaînes de décroissance de l'uranium et du thorium dans les légumes racines (mBq.kg^{-1} frais).

2.1.5. Variabilité des activités dans les fruits

Les espèces qui constituent le groupe des fruits sont majoritairement des pommes et des oranges, et en plus faibles proportions, des poires, des prunes et des raisins. D'après les données de FAOSTAT (2010), la production mondiale de pommes pour l'année 2010 est de 70 Mt et celle d'orange de 69 Mt. Ce sont les deux plus grosses productions de fruits dans le monde après les bananes. Cependant, la production de bananes est quasiment inexistante sur le territoire européen, ainsi les données concernant ce fruit ne sont pas été intégrées au tableau 1.11. Les activités les plus élevées sont mesurées pour ^{226}Ra avec une gamme de valeur allant de 7 à 1 900 mBq.kg^{-1} et ^{228}Ra avec une gamme comprise entre 7 et 311 mBq.kg^{-1}. Les activités en ^{210}Pb dans les fruits, sont comprises entre 100 et 150 mBq.kg^{-1}. ^{210}Po possède une gamme de valeurs légèrement plus basse avec des valeurs comprises entre 26 et 80 mBq.kg^{-1}. Les activités en ^{238}U sont relativement faibles (de 0,18 à 9 mBq.kg^{-1}), tout comme celles des isotopes du thorium (^{232}Th : 0,08 - 20 mBq.kg^{-1} ; ^{230}Th : 0,34 - 2.8 mBq.kg^{-1} ; ^{228}Th : 3,34 - 16 mBq.kg^{-1}).

Pays	N	^{238}U	^{230}Th	^{226}Ra	^{210}Pb	^{210}Po	^{232}Th	^{228}Ra	^{228}Th	Références
Allemagne	30	2,1 - 6								Anke *et al.*, 2010
Corée	27		0,3 - 2,8	7 - 10			0,2 - 2,5	7 - 10	7 - 16	Choi *et al.*, 2008
Brésil	8	9 ± 1								Garcia *et al.*, 2006
Corée	2					80 ± 40				Lee *et al.*, 2009
Angleterre	4				100 - 150	26 - 74				Mc Donald *et al.*, 1999
Pologne centre	9	1,3 - 2,0	0,7 - 2,0	12 - 15	30 ± 5	55 ± 7	0,5 - 1,7		3 - 7	Pietrzak-Flis *et al.*, 1997a, 2001
Brésil	5	0,2 - 4		10 - 102			0,1 - 5,2	10 - 311		Santos *et al.*, 2002
Valeurs de référence	-	3	0.5	30	30	40	0.5	20	0.5	UNSCEAR, 2008

Tableau 1.11 : Gamme de variabilité des activités des principaux radionucléides des chaînes de décroissance de l'uranium et du thorium dans les fruits (mBq.kg^{-1} frais).

2.1.6. Variabilité des activités dans les produits laitiers

Les produits laitiers se composent de différents types de fromages et de lait. Les gammes de valeurs des activités des principaux radionucléides dans les produits laitiers sont présentées dans le tableau 1.12. Les activités les plus élevées sont mesurées pour les isotopes du radium avec des activités comprises entre 1,3 et 118 mBq.kg^{-1} pour ^{226}Ra et entre 4 et 50 mBq.kg^{-1} pour ^{228}Ra. Les activités en ^{210}Pb et ^{210}Po sont assez faibles en comparaison des activités mesurées dans les autres produits alimentaires et sont en moyenne de 18 et 16 mBq.kg^{-1} respectivement. L'UNSCEAR (2008) propose une gamme d'activités en ^{210}Pb et ^{210}Po plus élevée qui varie entre 5 et 280 mBq.kg^{-1} pour ^{210}Pb et entre 2 et 220 mBq.kg^{-1} pour ^{210}Po. L'activité en ^{238}U est assez élevée et varie de 0,38 à 118 mBq.kg^{-1} alors que les isotopes du thorium montrent des activités très basses quel que soit l'isotope (^{230}Th : 0,42 - 0,76 ; ^{232}Th : 0,08 - 0,61 ; ^{228}Th : 1,39 - 2,73 mBq.kg^{-1}).

Pays	N	^{238}U	^{230}Th	^{226}Ra	^{210}Pb	^{210}Po	^{232}Th	^{228}Ra	^{228}Th	Références
Allemagne	30	2,82 - 37								Anke *et al.*, 2009
Corée	26		0,42 ± 0,02	21,8 ± 0,1			0,08 ± 0,01	41,1 ± 0,1	2,73 ± 0,04	Choi *et al.*, 2008
Allemagne	6	7,4 - 22								Froidevaux *et al.*, 2004
Finlande	4	1,5 - 3,3								Froidevaux *et al.*, 2004
France	6	5,5 - 16								Froidevaux *et al.*, 2004
Suisse	9	0,38 - 27								Froidevaux *et al.*, 2004
Brésil	4	1,23 ± 0,74								Garcia *et al.*, 2006
Taiwan	1			30 ± 4						Kuo *et al.*, 1997
Pologne centre	3	3,04 ± 0,78	0,8 ± 0,4	1,3 ± 0,4	18 ± 2	16 ± 3	0,61 ± 0,05		1,4 ± 0,4	Pietrzak-Flis *et al.*, 1997a, 2001
Brésil	5	2,2 - 118		2,2 - 118				4,0 - 50		Santos *et al.*, 2002
Valeur de référence	-	1	0,5	5	15	15	0,3	5	0,3	UNSCEAR, 2008

Tableau 1.12 : Gamme de variabilité des activités des principaux radionucléides des chaînes de décroissance de l'uranium et du thorium dans les produits laitiers (mBq.kg^{-1} frais et mBq.L^{-1} pour le lait).

2.1.7. Variabilité des activités dans les viandes et les œufs

Les gammes d'activités des principaux radionucléides des chaînes du thorium et de l'uranium montrent une très grande variabilité dans les viandes et les œufs (tableau 1.13). Les activités les plus élevées sont mesurées pour les isotopes du radium avec des valeurs comprises entre 7 et 3 100 mBq.kg^{-1} pour ^{226}Ra et entre 21 et 1 150 mBq.kg^{-1} pour ^{228}Ra. Les activités en ^{210}Po (99 - 240 mBq.kg^{-1}) et ^{210}Pb (98 - 105 mBq.kg^{-1}) sont assez faibles comparées à la gamme de valeurs présentées par l'UNSCEAR (2008) (^{210}Po : 37 - 67 000 mBq.kg^{-1} ; ^{210}Pb : 15 - 3 700 mBq.kg^{-1}). L'activité en ^{238}U est comprise entre 1,63 et 53 mBq.kg^{-1} et est légèrement supérieure à la gamme de variabilité proposée par l'UNSCEAR (2008) qui varie de 0,8 à 20 mBq.kg^{-1}. Les isotopes du thorium possèdent également de faibles activités (^{230}Th : 1,46 - 4,49 mBq.kg^{-1} ; ^{232}Th : 0,82 - 2,40 mBq.kg^{-1}) excepté ^{228}Th qui possède une gamme de valeurs plus élevées comprise entre 3,27 et 20 mBq.kg^{-1}.

Pays	N	^{238}U	^{230}Th	^{226}Ra	^{210}Pb	^{210}Po	^{232}Th	^{228}Ra	^{228}Th	Références
Allemagne	30	5 - 49								Anke *et al.*, 2009
Corée	36		2,7 - 4,5	26 - 36			0,8 - 1,5	21 - 39	3,3 - 8,6	choi *et al.*, 2008
Brésil	11	23 - 53								Garcia *et al.*, 2006
Taiwan	3			20 - 170						Kuo *et al.*, 1997
Corée	6					100 - 240				Lee *et al.*, 2009
Pologne centre	12	1,6 - 3,8	1,5 - 2,9	7 - 100	98 - 105	99 - 102	1,3 - 2,4		3,8 - 20	Pietrzak-Flis *et al.*, 1997a, 2001
Valeurs de référence	-	2	2	15	80	60	1	10	1	UNSCEAR, 2008

Tableau 1.13 : Gamme de variabilité des activités des principaux radionucléides des chaînes de décroissance de l'uranium et du thorium dans la viande et les œufs (mBq.kg^{-1} frais).

2.1.8. Synthèse

Toutes ces données issues de la littérature sur les activités des principaux radionucléides dans les denrées montrent une grande variabilité. Cependant, certaines tendances peuvent être mises en avant. En effet, quel que soit le groupe d'aliments pris en compte les isotopes du radium montrent des activités supérieures à celles des autres radionucléides, excepté pour les céréales dans lesquelles ^{210}Pb et ^{210}Po ont des activités plus importantes. Cette tendance traduit une plus grande mobilité des isotopes du radium par rapport aux isotopes de l'uranium et du thorium, étant donné que dans les sols aucun enrichissement comparable en radium n'est décelable. Parmi les isotopes du thorium, Pietrzak-Flis *et al.* (2001) mettent en avant une activité plus importante de ^{228}Th par rapport à ^{232}Th avec un rapport moyen $^{228}Th/^{232}Th$ de 5,04 ± 3,25 et une gamme comprise entre 1,88 et 13,2. Cette plus forte activité en ^{228}Th par rapport à ^{232}Th a également été mise en avant par Ibrahim et Whicker (1988), qui ont suggéré que cet enrichissement proviendrait de la croissance de ^{228}Th à partir de ^{228}Ra, ce dernier étant plus facilement prélevé que les isotopes du thorium, qui s'ajouterait au prélèvement direct de ^{228}Th par la plante.

^{210}Pb et ^{210}Po, descendants du radon gazeux, se retrouvent en quantités significatives dans les particules atmosphériques (Peirson *et al.*, 1966). Le dépôt de ces particules atmosphériques à la surface des cultures représente une source importante de ^{210}Pb et de ^{210}Po aux produits alimentaires (Parvenov, 1974; Ladinskaya *et al.*, 1973; Popova et Taskaev, 1980; McDowell-Boyer *et al.*, 1980; Hill, 1960; Pietrzak-Flis et Skowronska-Smolak, 1995). La préparation des échantillons alimentaires avant l'analyse prend ainsi une grande importance car les échantillons peuvent être préalablement lavés, pelés et peuvent avoir été débarrassés des feuilles extérieures les plus soumises au dépôt

(Lee *et al.*, 2009). Ces traitements diminueraient ainsi l'influence des dépôts de particules atmosphériques à la surface des produits cultivés et conduiraient à des activités en ^{210}Pb et ^{210}Po plus faibles. D'autre part, certains paramètres environnementaux tels que les caractéristiques physico-chimiques des sols de culture, les conditions climatiques de la région étudiée ainsi que les pratiques agricoles employées contribuent également à la variabilité des activités mais sont rarement décrits dans les études dont l'objectif principal est l'évaluation de la dose effective reçue par l'homme. Carvalho *et al.* (2009) mettent en avant dans leur étude, l'augmentation des activités avec la durée de culture des produits contrairement à Anke *et al.* (1994) qui relèvent pour leur part, une diminution des teneurs en uranium avec l'augmentation de cette durée. Anke *et al.* (2009) expliquent cette diminution par une dilution de la concentration en uranium du fait de la croissance végétale alors que Carvalho *et al.* (2009) expliquent cette augmentation par une plus longue durée d'exposition aux différentes voies de contamination. Shtangeeva (2010) met également en avant dans son étude une variation des activités mesurées dans les végétaux du fait du rythme circadien des plantes. L'ampleur de cette variation à court terme est relativement importante car les concentrations mesurées varient de 8 à 52 $mg.kg^{-1}$ pour l'uranium et le thorium dans les feuilles d'*Elytrigia repens* et sont corrélées avec la température du sol. Ces variations temporelles des concentrations indiquent que la dynamique à court terme de la concentration dans les plantes est assez significative, régulière et spécifique à une espèce de plante. Le moment précis du prélèvement des végétaux semble donc avoir une grande importance.

A partir des activités dans les denrées, certains auteurs ont calculé les doses efficaces reçues par l'homme du fait de l'ingestion d'aliments, en appliquant aux activités des coefficients de dose propres à chaque radionucléide et en tenant compte de la ration alimentaire propre à chaque produit alimentaire. La variabilité des activités se retrouvent ainsi amplifiée dans l'évaluation de la dose, du fait de la variabilité des régimes alimentaires d'un individu à l'autre et d'une région à l'autre. De plus, la préparation des aliments en vue de leur consommation est également susceptible de modifier le contenu en radionucléides des aliments soit en diminuant les activités (de 9 à 75 % pour ^{238}U et de 22 à 82 % pour ^{232}Th) soit en les augmentant, du fait de la présence de ^{238}U dans les eaux de cuisson (Jibiri *et al.*, 2007).

L'UNSCEAR (2008) propose la valeur de 110 $\mu Sv.an^{-1}$ comme valeur de référence de la dose efficace reçue par un adulte. Lee *et al.* (2009) ont calculé la dose annuelle efficace, pour la population coréenne, uniquement due à l'ingestion de ^{210}Po. La valeur déterminée est de 269,4 µSv du fait d'une forte consommation de produits marins riches en ^{210}Po. Pour un adulte polonais, la dose efficace reçue en tenant compte des principaux radionucléides des chaînes de décroissance naturelle (^{238}U, ^{234}U, ^{230}Th, ^{226}Ra, ^{210}Pb, ^{210}Po, ^{232}Th, ^{228}Th) n'est par contre que de 89,9 µSv (Pietrzak-Flis *et al.*, 2001). Les doses efficaces doivent donc être considérées avec beaucoup de précautions suivant la nature des radionucléides considérés et le régime alimentaire.

2.2. Variabilité des activités dans les denrées issues de régions naturellement riches en radionucléides

Certaines régions à la surface du globe se caractérisent par un bruit de fond radioactif important, du fait de leur géologie locale. Les régions de forte radioactivité naturelle les plus connues sont la région de Kerala en Inde, la région côtière d'Espirito Santos au Brésil, la région de Yangjiang en Chine et la région de Ramsar en Iran (Bennett, 1997). Les activités rencontrées dans les sols de ces régions dépassent largement les activités moyennes des sols de faible radioactivité données par l'UNSCEAR (2008) (33 Bq.kg^{-1} pour ^{238}U et 45 Bq.kg^{-1} pour ^{232}Th). Ces augmentations sont dues à certains processus géochimiques qui vont avoir pour effet d'augmenter les niveaux de la radioactivité terrestre (Bennett, 1997; UNSCEAR, 1993, 2000). Dans les régions de Kérala et Tamil Nadu dans le sud-ouest de l'Inde, la présence de sable contenant du thorium à une concentration de 8 à 10 %, est due à des dépôts de monazite formés suite à l'érosion des roches en place (Paul et Gupta, 1998). Dans la région de Tamil Nadu, Shanti *et al.* (2009) ont mesuré dans les sols des activités élevées en ^{228}Th, descendant de ^{232}Th (215,14 ± 13,9 Bq.kg^{-1}), en ^{238}U (66,76 ± 9,14 Bq.kg^{-1}) et en ^{226}Ra (44 ,07 ± 7,07 Bq.kg^{-1}). Les produits alimentaires cultivés dans cette région montrent des activités très importantes en ^{226}Ra avec une gamme comprise entre 64 ± 30 mBq.kg^{-1} dans des tomates et 5 420 ± 20 mBq.kg^{-1} dans du tapioca. Les activités en ^{228}Th sont supérieures avec une gamme de valeur comprise entre 140 ± 60 dans des concombres et 107 000 ± 24 100 mBq.kg^{-1} dans le tapioca.

Dans la région de Ramsar en Iran, la présence de sources chaudes particulièrement riches en ^{226}Ra va avoir pour effet d'augmenter les activités dans les sols et les produits alimentaires cultivés (Ghiassi-Nejad *et al.*, 2000). Les activités en ^{226}Ra mesurées dans les sols sont comprises entre 730 ± 30 et 45 100 ± 400 Bq.kg^{-1} sec de sol. Dans les produits alimentaires, les activités en ^{226}Ra mesurées par Ghiassi-Nejad *et al.* (2003) sont importantes, notamment dans les légumes feuilles et les légumes racines avec des valeurs comprises entre 2 450 et 8 460 mBq.kg^{-1} frais pour les légumes feuilles et entre 348 et 9 000 mBq.kg^{-1} frais pour les légumes racines. Les activités mesurées dans les légumes fruits sont plus faibles avec des valeurs comprises entre 200 et 400 mBq.kg^{-1} frais qui sont assez proches des activités mesurées dans les légumes fruits des régions caractérisées par une faible radioactivité naturelle.

Les roches phosphatées d'origine sédimentaire contiennent une certaine quantité d'uranium, qui dépend généralement de la concentration en phosphates de la roche (Saad, 1974). Au Brésil, dans la région phosphatée de Pernambuco, Amaral *et al.* (2005) ont mesuré des activités dans les sols de culture comprises entre 15 et 300 Bq.kg^{-1} sec de sol pour l'uranium et entre 14 et 240 Bq.kg^{-1} pour ^{226}Ra. Ces activités élevées, dans les sols, conduisent à des activités dans les céréales légèrement supérieures à celles mesurées dans des régions de faible radioactivité naturelle, avec des moyennes respectives de 54 ± 10 et 483 ± 62 mBq.kg^{-1} (Amaral *et al.*, 2005).

2.3. Variabilité des activités dans les denrées provenant de régions soumises à une influence anthropique

Certaines activités humaines vont être responsables d'une redistribution de l'uranium et de ses descendants pouvant créer des zones où les teneurs peuvent excéder de plusieurs ordres de grandeur les concentrations trouvées dans des régions de faible radioactivité naturelle (Paulin, 1997). Parmi ces activités, on peut citer les activités minières et industrielles du cycle du combustible nucléaire, l'extraction de minerai contenant de fortes concentrations en radionucléides naturels, la fabrication et l'utilisation agricole d'engrais phosphatés issus de roches phosphatées riches en ^{238}U, les mines de charbon et les centrales thermiques et enfin, l'utilisation militaire d'uranium appauvri.

2.3.1. Impact de l'extraction de minerai contenant de fortes concentrations en radionucléides naturels hors cycle du combustible.

Les principaux minerais contenant de forte concentration en radionucléides comprennent les minerais d'aluminium, de cuivre, de fer, de plomb et d'étain. La concentration en radionucléide dans les produits intermédiaires et dans les déchets dépendent des teneurs initiales du minerai et du type de procédé utilisé dans le traitement des minerais (UNSCEAR, 2008). Arogunjo *et al.* (2009) ont étudié l'impact radioécologique d'une mine d'étain sur l'environnement et sur les populations locales. L'impact d'une telle activité minière sur l'environnement provient de l'excavation de grandes quantités de sable et de l'accumulation de déchets (Banat *et al.*, 2005 ; Remon *et al.*, 2005 ; Akinlua *et al.*, 2006 ; Birkefeld *et al.*, 2006 ; Nyarko *et al.*, 2006) qui vont significativement modifier les concentrations en radionucléides dans les sols. Du fait des processus d'altération et de resuspension, ^{238}U et ^{232}Th contenus dans les terrils vont se retrouver dans les eaux de surfaces (Ragnarsdottir et Charlet, 2000). Les impacts radioécologiques sur l'homme peuvent être d'une grande importance lorsque des zones de productions agricoles se trouvent à proximité de ces zones de stockage des résidus miniers (Arogunjo *et al.*, 2009). Les activités mesurées dans les sols (^{238}U : 8,7 ± 0,5 kBq.kg^{-1} ; ^{226}Ra : 4,2 ± 0,6 kBq.kg^{-1} ; ^{210}Pb : 4,60 ± 0,11 kBq.kg^{-1} ; ^{232}Th : 16,8 ± 0,8 kBq.kg^{-1}) sont fortement élevées par rapport à la moyenne mondiale proposé par l'UNSCEAR (2000). De même, les activités mesurées dans les légumes étudiés présentent des valeurs très supérieures aux valeurs obtenues dans d'autres études avec des valeurs maximales de 1 873 ± 19 mBq.kg^{-1} pour ^{238}U et 1 279 ± 8 mBq.kg^{-1} pour ^{232}Th dans les épinards (Arogunjo *et al.*, 2009). Les auteurs citent pour comparaison les valeurs mesurées par Santos *et al.* (2002) dans des épinards provenant d'une zone de faible radioactivité naturelle, qui sont de 36 mBq.kg^{-1} pour ^{238}U et de 29 mBq.kg^{-1} pour ^{232}Th. Dans des échantillons de riz, les activités en ^{238}U sont deux fois plus importantes que la moyenne mondiale proposée par l'UNSCEAR (2000) (20 mBq.kg^{-1}) et les activités en ^{232}Th sont plus importantes d'un ordre de grandeur (3 mBq.kg^{-1}) (Arogunjo *et al.*, 2009).

2.3.2. Impact des industries des engrais phosphatés, de la mine à leur utilisation dans l'agriculture

La fabrication des engrais phosphatés, à partir de roches riches en phosphates d'origine sédimentaire (Ioannides *et al.*, 1997), également riches en uranium et ses produits de décroissance (Mustonen, 1985 ; Haridasan *et al.*, 2001 ; Azouazi *et al.* ,2001 ; Ogunleye *et al.*, 2002 ; Ahmed et El-Arabi, 2005, Ekdal *et al.*, 2006 ; Ioannides *et al.*, 1997), va avoir pour effet de modifier les activités mesurées. Les quantités d'uranium dans ces roches dépendent en général de la concentration en phosphates de la roche mère (Saad, 1974) et sont proches de 1 500 $Bq.kg^{-1}$. La plupart des engrais phosphatés sont produits grâce à la réaction des roches phosphatées à l'acide sulfurique, ce qui a pour effet d'enrichir l'engrais en uranium (plus de 150% comparé au minerai) alors que 80% du radium, 30% du thorium et 5% de l'uranium restent dans le phosphogypse qui constitue un déchet (UNSCEAR, 2008). Les engrais contiennent ainsi des quantités notables d'uranium de l'ordre de 1 à 4 $kBq.kg^{-1}$. Du fait des niveaux élevés de radionucléides dans les engrais phosphatés, il a été suggéré que leur utilisation induisait une augmentation des niveaux de radionucléides dans les denrées d'un ordre de grandeur ou plus (Lauria *et al.*, 2009). Or, certaines études révèlent l'absence de différences entre l'activité dans des plantes cultivées sur des sols fertilisés et l'activité des plantes cultivées sur des sols non-fertilisés (Mortvedt, 1994). Certains auteurs ont même observés des activités en uranium plus faibles, d'un facteur 1,5 à 2, dans des plantes fertilisées comparées aux activités des plantes non fertilisées (Pulhani *et al.*, 2005). Cette tendance a été constatée dans d'autres études (Butnick et Ishenko, 1989) où la diminution observée sur les parcelles fertilisées est d'un facteur 2,6. De même, Rufyikiri *et al.* (2006) observent une diminution des activités en uranium dans les plantes corrélée à une augmentation de la teneur en phosphate dans les sols. Un tel comportement de l'uranium serait attribué à son adsorption aux ions phosphates liés aux oxydes de fer du sol ou à sa précipitation sous forme d'uranyle phosphate. Au cours d'expériences hydroponiques, l'ajout de phosphore dans la solution a pour effet de réduire de plus de 50% la biodisponibilité de l'uranium pour le pois (Ebbs *et al.*, 1998). Bolca *et al.* (2007) ont également étudié les effets des engrais sur les prélèvements par les végétaux et ont déduit que l'ajout d'engrais aux sols pouvait avoir pour effet d'induire des changements chimiques et biologiques susceptibles d'affecter l'ensemble des transferts des radionucléides des sols aux plantes. Cependant, les activités mesurées dans les légumes cultivés montrent une grande variabilité qui suggère différents mécanismes de contamination propres à chaque légume et chaque radionucléide. Ekdal *et al.* (2006) ont montré que les activités en ^{210}Pb et ^{210}Po mesurées dans du pourpier et des orties prélevés dans les champs cultivés et fertilisés étaient deux fois plus importantes que celles mesurées dans les plantes prélevées en zone non cultivée. Ces différences significatives peuvent s'expliquer par le fait que les végétaux, lors de la fertilisation, sont soumis à des dépôts de radionucléides en surface dus à la pulvérisation des engrais qui s'ajoutent aux prélèvements racinaires de radionucléide à partir d'un sol enrichi en radionucléides du fait de l'apport d'engrais.

2.3.3. Impact des mines et de la combustion de charbon

L'activité moyenne de l'uranium et du thorium dans le minerai de charbon est d'environ 20 $Bq.kg^{-1}$ avec une gamme de variation comprise entre 5 et 300 $Bq.kg^{-1}$ (UNSCEAR, 2008). En Pologne, les mines souterraines de charbon sont responsables de l'augmentation significative de l'activité en radium des eaux de ruissellement sur le site d'extraction (environ 390 000 $Bq.m^{-3}$). Ces eaux sont tout d'abord rejetées dans des bassins de décantation afin de réduire les impacts en dehors du site et plus tard dans les rivières où elles peuvent atteindre la chaîne alimentaire (Chalupnik *et al.*, 2001 ; Wysocka *et al.*, 2002).

Durant la combustion du charbon, les composés organiques sont convertis en gaz alors que les composés inorganiques sont concentrés dans les cendres (Vanmarcke *et al.*, 2003). En général, l'activité des radionucléides dans les cendres augmentent d'un facteur 10 ce qui est susceptible de poser des problèmes radioécologiques selon le devenir de ces cendres. Lors du processus de combustion, 3 à 1 % de cendres fines sont susceptibles de s'échapper des cheminées des centrales thermiques (Papastefanou, 2010) et sont déposées aux abords proches de la centrale. En effet, des dépôts importants d'uranium et de thorium ont été identifiés aux abords de centrales thermiques utilisant de la lignite en Grèce en comparaison de sites non-contaminés (Papaefthymiou *et al.*, 2005). Cependant, l'utilisation de filtres électrostatiques et l'augmentation de la hauteur des cheminées vont avoir pour effet d'éliminer ces rejets. Les résidus de la combustion sont la plupart du temps utilisés comme substitut au ciment dans le béton pour la construction d'habitations (Venuat, 1975 ; Voyatzakis *et al.*, 1976 ; Sipitanos *et al.*, 1977). L'utilisation de ces cendres dans les matériaux de construction présente des avantages économiques mais peut significativement affecter les doses reçues par l'homme à l'intérieur des habitations. En effet cette utilisation augmente les irradiations externes et internes dues à l'inhalation ou à l'ingestion de radon et de ses produits de décroissance (^{210}Pb et ^{210}Po) (Papastefanou, 2010 ; Vandenhove, 2000).

2.3.4. Impact des industries du cycle du combustible

Le cycle du combustible nucléaire comprend l'extraction minière, le traitement du minerai d'uranium et sa conversion en matériel combustible, l'enrichissement en isotope ^{235}U, la production d'énergie dans les réacteurs nucléaire, le stockage du combustible irradié ou son retraitement et le stockage des déchets radioactifs.

Les impacts de ces industries sur les denrées sont présentés par groupe de produits alimentaires dans les paragraphes suivants.

2.3.4.1. Variabilité des activités dans les céréales issues de régions influencées par des industries du cycle du combustible nucléaire

Les activités observées dans les céréales issues de régions influencées par des industries du cycle du combustible nucléaire sont présentées dans le tableau 1.14. Dans leur étude, Anke *et al.*

(2009) relèvent une augmentation de l'activité en uranium, dans des grains de blé provenant d'un site proche d'une mine d'uranium, dix fois supérieure à celle mesurée dans des grains provenant d'un site non influencé. Cependant les activités obtenues ne sont pas supérieures à la moyenne mondiale de 20 mBq.kg^{-1}, proposée par l'UNSCEAR (2008). Dans une région proche d'une industrie du cycle du combustible, les activités en ^{238}U sont relativement importantes et peuvent atteindre 10 Bq.kg^{-1} (Pourcelot *et al.*, 2011b). Les valeurs maximales obtenues dans cette étude sont mesurées dans des céréales cultivées à proximité d'un centre de fluoration de l'uranium alors que les valeurs minimales (79 mBq.kg^{-1}) proviennent de blé cultivé hors influence des rejets. Ces différences notables illustrent bien l'impact de l'installation. Les descendants de l'uranium mesurés dans cette étude présentent également de fortes activités comprises entre 176 et 1 408 mBq.kg^{-1} pour ^{226}Ra et entre 1 936 et 7 216 mBq.kg^{-1} pour ^{210}Pb. Les activités mesurées en ^{228}Ra, descendant de ^{232}Th, présentent une large gamme de variation, de 176 à 1 672 mBq.kg^{-1} mais mise à part une exception les valeurs sont plutôt comprises entre 176 et 616 mBq.kg^{-1} ce qui traduit une faible influence des rejets de l'usine au niveau de la chaîne de ^{232}Th (Pourcelot *et al.*, 2011b). Louw *et al.* (2009) observent également des activités élevées en ^{210}Po (de 1 936 à 9 550 mBq.kg^{-1}) aux abords d'un site minier associé à une usine de traitement de l'uranium.

Pays	Influence	N	^{238}U	^{230}Th	^{226}Ra	^{210}Pb	^{210}Po	^{232}Th	^{228}Ra	^{228}Th	Référence
Allemagne	Mine U	14	13 ± 1								Anke *et al.*, 2009
Pologne	Mine U	12	4,72 - 11	1,36 - 17	34 - 87			2,03 - 21		13 - 51	Pietrzak-Flis *et al.*, 1997b
Afrique du Sud	Mine et traitement U	3					1 390 - 9 550				Louw *et al.*, 2009
France	Fluoration U	8	79 - 12 320		176 - 1 408	1 936 - 7 216			176 - 1 672		Pourcelot *et al.*, 2011b
Suède	Enrichissement U	6	72 - 238								Petterson et Holme, 1992

Tableau 1.14 : Gamme de variabilité des activités des principaux radionucléides des chaînes de décroissance de l'uranium et du thorium dans des céréales provenant de régions influencées par des industries du cycle du combustible nucléaire (mBq.kg^{-1} frais).

2.3.4.2. Variabilité des activités dans les légumes feuilles cultivés dans des régions influencées par une industrie du cycle du combustible nucléaire

Les activités mesurées dans les légumes feuilles (salades, chou, épinards) cultivés dans des régions influencées par des industries du cycle du combustible nucléaire ne sont pas systématiquement supérieures aux valeurs mesurées dans des régions non influencées (tableau 1.15). En effet, Pietrzak-Flis *et al.* (1997b) et Anke *et al.* (2009) mesurent des activités en uranium, thorium et leurs descendants comprises dans la même gamme de variabilité des régions de faible niveau radioactif. Anke *et al.* (2009) notent cependant que les activités en uranium mesurées dans les salades issues d'une zone proche d'une mine d'uranium sont trois fois plus importantes que les

activités des salades issues de la zone hors influence. Carvalho *et al.* (2009) présentent des activités en ^{238}U très élevées qui atteignent 18 450 mBq.kg^{-1}. De même, Louw *et al.* (2009) ont mesuré des activités en ^{238}U de 2 290 mBq.kg^{-1}. Les descendants de l'uranium semblent également influencés par l'impact des industries du cycle du combustible nucléaire avec des activités qui atteignent 4 541 mBq.kg^{-1} pour ^{226}Ra, 3 600 mBq.kg^{-1} pour ^{210}Pb et 1 960 mBq.kg^{-1} pour ^{210}Po. ^{232}Th présente des activités moins fortes que l'uranium, mais qui dépassent dans certaines études les activités mesurées en région non influencée. L'utilisation militaire d'uranium appauvri ne semble pas avoir d'impact sur les activités en uranium mesurées dans les légumes feuilles. En effet, les valeurs mesurées par Carvalho et Oliveira (2010) au Kosovo et en Bosnie, sont comprises dans la gamme de variabilité des activités mesurées en région non influencée.

Pays	Influence	N	^{238}U	^{230}Th	^{226}Ra	^{210}Pb	^{210}Po	^{232}Th	^{228}Ra	^{228}Th	Références
Allemagne	Mine U	6	66 ± 7								Anke *et al.*, 2009
Portugal	Mine U	7	12 – 18 450	11 - 4 275	47 – 4 541			6 - 645			Carvalho *et al.*, 2009
Pologne	Mine U	3	15 ± 2	6,28 ± 1,08	60 ± 6			4,19 ± 0,89		7,34 ± 1,18	Pietrzak-Flis *et al.*, 1997b
Afrique du Sud	Mine et traitement U	11	51 – 2 290			390 - 1 410	54 - 1 960	65 - 400	<130 - 305	25 - 153	Louw *et al.*, 2009
France	Fluoration U	5	31 - 160		40 – 270	300 - 3 600			40 - 200		Pourcelot *et al.*, 2011b
Kosovo	Utilisation militaire U appauvri	1	1,4 ± 0,3								Carvalho et Oliveira, 2010
Bosnie	Utilisation militaire U appauvri	1	7,3 ± 0,9								Carvalho et Oliveira, 2010

Tableau 1.15 : Gamme de variabilité des activités des principaux radionucléides des chaînes de décroissance de l'uranium et du thorium dans les légumes feuilles cultivés dans des régions influencées par une industrie du cycle du nucléaire (mBq.kg^{-1} frais).

2.3.4.3. Variabilité des activités dans les légumes fruits issus de régions influencées par des industries du cycle du combustible nucléaire

Les légumes fruits (tomates, aubergines, concombres) cultivés dans des régions influencées par des industries du cycle du combustible nucléaire ne présentent pas d'activités significativement élevées. En effet, toutes les activités présentées dans le tableau 1.16 sont comprises dans les gammes de variabilités des zones non influencées, définies dans la partie précédente. Les mécanismes de transfert des radionucléides aux fruits sont complexes et dépendent de nombreux facteurs empêchant la mise en évidence de l'influence des activités anthropiques.

Pays	Influence	N	^{238}U	^{230}Th	^{226}Ra	^{210}Po	^{232}Th	^{228}Th	Références
Allemagne	Mine U	17	3,5 - 5,5						Anke *et al.*, 2009
Inde	Mine U	9		50 - 290	38 - 150	520 – 3 240			Giri *et al.*, 2010
Pologne	Mine U	6	0,9 - 2,2	0,7 - 1,8	4 - 12		1,10 - 1,15	1,26 - 3,21	Pietrzak-Flis *et al.*, 1997b

Tableau 1.16 : Gamme de variabilité des activités des principaux radionucléides des chaînes de décroissance de l'uranium et du thorium dans les légumes fruits prélevés en zone influencée par des industries du cycle du combustible nucléaire (mBq.kg^{-1} frais).

2.3.4.4. Variabilité des activités dans les légumes racines issus de régions influencées par des industries du cycle du combustible nucléaire

Dans les légumes racines (pommes de terre, carottes, navets, oignons, poireaux), la plupart des activités obtenues dans les études portant sur les régions soumises à l'influence d'industries du cycle du combustible nucléaire ne sont pas significativement supérieures à celles mesurées dans les légumes racines des régions non influencées (tableau 1.17). Cependant, Louw *et al.* (2011) mesurent des activités comprises entre 29 et 714 mBq.kg^{-1} pour ^{238}U, entre 460 et 780 mBq.kg^{-1} pour ^{226}Ra, entre 147 et 610 mBq.kg^{-1} pour ^{210}Pb et entre 260 et 600 mBq.kg^{-1} pour ^{210}Po. Les activités mesurées pour les radionucléides de la chaîne de décroissance du thorium sont également importantes avec des activités comprises entre 17 et 3 000 mBq.kg^{-1} pour ^{232}Th, et entre 174 et 270 mBq.kg^{-1} pour ^{228}Ra.

Pays	Influence	N	^{238}U	^{230}Th	^{226}Ra	^{210}Pb	^{210}Po	^{232}Th	^{228}Ra	^{228}Th	Références
Allemagne	Mine U	29	5,8 - 7,1								Anke *et al.*, 2009
Pologne	Mine U	12	2,6 - 7,7	1,3 - 7,7	14 - 154			1,09 - 4,47		3,5 - 25	Pietrzak-Flis *et al.*, 1997b
Afrique du Sud	Mine et traitement U	9	29 - 714		460 - 780	147 - 610	260 – 600	17 – 3 000	174 - 270		Louw *et al.*, 2011
Afrique du Sud	Mine et traitement U	5					255 – 2 780				Louw *et al.*, 2009
Kosovo	Utilisation militaire U appauvri	2	2,4 - 7,8								Carvalho et Oliveira, 2010
Bosnie	Utilisation militaire U appauvri	2	3,4 - 7,3								Carvalho et Oliveira, 2010

Tableau 1.17 : Gamme de variabilité des activités des principaux radionucléides des chaînes de décroissance de l'uranium et du thorium dans les légumes racines prélevés en zone influencée par des industries du cycle du combustible nucléaire (mBq.kg^{-1} frais).

2.3.4.5. Variabilité des activités dans les fruits issus de zone sous l'influence d'industries du cycle du combustible nucléaire

Très peu de données sont disponibles sur les activités dans les fruits (pommes, oranges, poires, prunes, raisins) cultivés dans des régions influencées (tableau 1.18). Les activités en uranium sont similaires à celles des fruits de régions faiblement radioactives, excepté pour les résultats obtenus par Carvalho et Oliveira (2010) qui montrent une influence de l'utilisation militaire de l'uranium appauvri. Cette influence se traduit d'une part, par une activité en ^{238}U élevée (31,8 mBq.kg^{-1}) et d'autre part, par un rapport d'activités $^{235}U/^{238}U$ faible (0,028 au lieu de 0,045 (Fulco *et al.*, 2000)). Pour les isotopes ^{226}Ra et ^{228}Ra, des activités élevées ont été mesurées dans un échantillon de citron par Louw *et al.* (2011) alors que Pietrzak-Flis *et al.* (1997b) obtiennent une activité en ^{226}Ra dans la gamme de variabilité obtenue pour les fruits des régions non influencées. Les activités en ^{232}Th mesurées par Louw *et al.* (2011) sont également supérieures à celles mesurées par Pietrzak-Flis *et al.* (1997b).

Pays	Influence	N	^{238}U	^{230}Th	^{226}Ra	^{210}Po	^{232}Th	^{228}Ra	^{228}Th	Références
Allemagne	Mine U	9	2,47 ± 0,25							Anke *et al.*, 2009
Pologne	Mine U	9	1,48 - 10	0,91 - 7,49	14,7 - 19,6		0,68 - 553		3,78 - 11,8	Pietrzak-Flis *et al.*, 1997b
Afrique du Sud	Mine et traitement U	1			2 940 ± 630	140 ± 38	130 ± 50	3 830 ± 830		Louw *et al.*, 2011
Afrique du Sud	Mine et traitement U	1				136 ± 38				Louw *et al.*, 2009
Kosovo	Utilisation militaire U appauvri	1	31,8 ± 1,8							Carvalho et Oliveira, 2010
Bosnie	Utilisation militaire U appauvri	1	2,8 ± 0,2							Carvalho et Oliveira, 2010

Tableau 1.18 : Gamme de variabilité des activités des principaux radionucléides des chaînes de décroissance de l'uranium et du thorium dans les fruits issus de zones influencées par des industries du cycle du combustible nucléaire (mBq.kg^{-1} frais).

2.3.4.6. Variabilité des activités dans les produits laitiers provenant de régions sous l'influence d'industries du cycle du combustible nucléaire

Parmi les données récoltées sur les activités mesurées dans les produits laitiers (lait et fromages) provenant de zones influencées par des industries du cycle du combustible nucléaires, seules les données de Carvalho *et al.* (2009) montrent des activités élevées (tableau 1.19). Les autres études présentent des résultats compris dans la gamme de variabilité naturelle. Les activités mesurées dans le fromage et le lait, par Carvalho *et al.* (2009), sont d'un ordre de grandeur plus faibles que les activités mesurées dans l'herbe de pâturage ayant servi à l'alimentation des brebis.

Carvalho *et al.* (2009) concluent ainsi que le transfert des radionucléides au sein de la chaîne alimentaire, de l'herbe de pâturage aux brebis et à la production laitière et fromagère ne pose pas de risque d'un point de vue radioécologique.

Pays	Influence	N	^{238}U	^{230}Th	^{226}Ra	^{210}Po	^{232}Th	^{228}Th	Références
Portugal	Mine U	2	109 – 880	332 – 1 300	909 – 5 900		197 - 250		Carvalho *et al.*, 2009
Pologne	Mine U	3	2,56 ± 0,27	1,15 ± 0,22	9,95 ± 0,9		1,19 ± 0,23	2,64 ± 0,36	Pietrzak-Flis *et al.*, 1997b
Afrique du Sud	Mine et traitement U	1				162 ± 75			Louw *et al.*, 2009
Kosovo	Utilisation militaire U appauvri	1	5,1 ± 0,6						Carvalho et Oliveira, 2010

Tableau 1.19 : Gamme de variabilité des activités des principaux radionucléides des chaînes de décroissance de l'uranium et du thorium dans les produits laitiers provenant de régions sous l'influence d'industries du cycle du combustible nucléaire (mBq.kg^{-1} frais et mBq.L^{-1} pour le lait).

2.3.4.7. Variabilité des activités dans les viandes et œufs provenant de régions soumises à des industries du cycle du combustible nucléaire

Les activités mesurées dans la viande ou les œufs ne diffèrent pas significativement des activités obtenues dans des régions de faibles radioactivités naturelles, excepté dans les études de Louw *et al.* (2011, 2009), où les activités en ^{210}Po atteignent jusqu'à 1 630 mBq.kg^{-1} et l'activité en ^{228}Ra jusqu'à 820 mBq.kg^{-1}, illustrant l'influence de l'activité minière de l'uranium sur ces denrées (tableau 1.20).

Pays	Influence	N	^{238}U	^{230}Th	^{226}Ra	^{210}Po	^{232}Th	^{228}Ra	^{228}Th	Référence
Pologne	Mine U	12	1,62 - 5,63	0,73 - 3,04	8,5 – 188		0,52 - 3,61		2,39 - 22,5	Pietrzak-Flis *et al.*, 1997b
Afrique du Sud	Mine et traitement U	1				130 ± 47		820 ± 390		Louw *et al.*, 2011
Afrique du Sud	Mine et traitement U	7				115 – 1 630				Louw *et al.*, 2009
Kosovo	Utilisation militaire U appauvri	2	2,2 - 6,5							Carvalho et Oliveira, 2010
Bosnie	Utilisation militaire U appauvri	2	1,9 - 3,5							Carvalho et Oliveira, 2010

Tableau 1.20 : Gamme de variabilité des activités des principaux radionucléides des chaînes de décroissance de l'uranium et du thorium dans les viandes et œufs provenant de régions influencées par des industries du cycle du combustible nucléaire (mBq.kg^{-1} frais).

2.3.4.8. Synthèse

Parmi tous les produits alimentaires présentés dans les tableaux précédents, les céréales et les légumes feuilles, semblent être les plus marqués par l'influence des industries du cycle du combustible nucléaire. Les légumes fruits, les légumes racines, les fruits, les produits animaux et les produits laitiers sont souvent moins impactés. Ces différences s'expliquent d'une part, par la complexité des mécanismes de transfert des radionucléides dans les différents organes des plantes et des animaux et d'autre part, par leur physiologie et leur durée de culture qui vont induire des apports de particules atmosphériques plus importants sur ces matrices. De plus, les légumes feuilles sont également soumis à l'adhésion de particules de sol après remise en suspension. Ces paramètres font de ces deux groupes de denrées (les céréales et les légumes feuilles), des matrices particulièrement intéressantes pour l'étude des transferts des radionucléides dans l'environnement.

3. Transferts des radionucléides aux denrées

La connaissance des voies de transferts des radionucléides aux denrées et des paramètres qui influencent leur ampleur est indispensable à l'évaluation de l'impact des rejets de radionucléides dans l'environnement. Depuis le début des années quatre-vingt, l'Agence International de l'Energie Atomique (AIEA) œuvre au développement de modèles mathématiques se rapprochant des conditions réelles de transferts des radionucléides. Ces modèles peuvent être utilisés comme outil pour évaluer l'efficacité des mesures appliquées suite à des rejets accidentels de radionucléides pour réduire les impacts sur l'environnement et l'homme et pour prédire l'impact futur des rejets provenant de l'entreposage des déchets radioactifs en profondeur. Les paramètres généralement utilisés dans ces modèles sont les facteurs de transfert (TF) qui caractérisent les transferts des radionucléides des sols aux plantes et les coefficients de transfert (F_m pour le lait et F_f pour la viande et les œufs) et rapports de concentrations (CR) qui caractérisent les transferts des radionucléides des aliments pour animaux aux produits animaux (lait, viande, œufs).

Dans ce chapitre, les différentes sources de radionucléides et les voies de transferts aux produits végétaux seront, dans un premier temps, décrites. Pour compléter ce paragraphe, les données actuellement disponibles sur les facteurs de transfert sol-plante seront présentées. Dans une deuxième partie, les transferts aux animaux seront décrits et seront accompagnés des données disponibles sur les coefficients de transfert et les rapports de concentrations des aliments aux divers produits animaux.

3.1. Transfert des radionucléides aux produits végétaux

Les radionucléides naturels peuvent être transmis aux produits végétaux par de nombreuses voies de transfert. Pour la plupart, la voie de transfert prédominante est le prélèvement des radionucléides contenus dans le sol par voie racinaire suivi de leur redistribution interne aux diverses parties de la plantes. Dans certains cas cependant, le transfert des radionucléides peut se faire à la surface de la végétation, par dépôt sec ou humide de radionucléides provenant de l'atmosphère ou par l'irrigation des cultures avec une eau ayant des activités élevées. Il est également possible qu'un transfert secondaire ait lieu du fait de la resuspension de radionucléides, initialement déposés à la surface du sol qui, sous l'action du vent ou de la pluie, vont être remobilisés (AIEA, 1994). Les radionucléides, une fois déposés à la surface des cultures, peuvent être absorbés par les plantes et transloqués dans ses différentes parties internes (AIEA, 1994).

3.1.1. Les principales voies de transfert aux produits végétaux

3.1.1.1. L'interception de particules atmosphériques

Le transfert des radionucléides aux plantes par interception de particules atmosphériques peut avoir lieu par voie sèche et se faire par simple dépôt gravitaire des particules atmosphériques ou par voie humide, lors de pluies qui vont lessiver les particules atmosphériques et les entraîner à la surface des cultures et du sol. Dans le cas d'un dépôt sec, l'amplitude des transferts va dépendre de la surface foliaire, de la rugosité des feuilles, de la biomasse de la plante et de sa densité mais également de la taille et de la nature des particules atmosphériques (Martin, 1964 ; Witherspoon et Taylor, 1970). Dans le cas de dépôts humides, d'autres paramètres entrent en jeu tels que la capacité de stockage d'eau de la canopée, le stade végétatif de la plante, la forme chimique des radionucléides et leur solubilité et enfin le volume de précipitations et l'intensité de la pluie (AIEA, 2010). Une fois les radionucléides déposés en surface des végétaux ils vont être absorbés par la surface foliaire. Les études réalisées sur l'absorption foliaire des radionucléides indiquent que le temps est un paramètre clé. En effet, plus un radionucléide est retenu sur la surface foliaire plus il est susceptible d'être absorbé. Les processus de lessivage vont avoir pour effet de réduire l'absorption du fait de la perte d'une partie des radionucléides disponibles. La température, l'humidité et l'irrigation foliaire sont également des paramètres susceptibles d'influencer l'absorption. Le transfert des radionucléides aux fruits peut avoir lieu selon différentes voies. En effet, les radionucléides peuvent soit être directement déposés à la surface des fruits et être absorbés par la peau puis transportés à l'intérieur, soit ils pénètrent la plante par un autre organe (les feuilles et les racines) et sont transférés au fruit par translocation (Carini, 2010). L'importance relative de chaque voie de transfert dépend du radionucléide, du type de plante, du stade de développement de la plante et de la saison à laquelle a lieu le dépôt. Dans les systèmes agricoles, le transfert des radionucléides aux fruits est également affecté par les pratiques horticoles qui vont avoir pour effet de modifier la physiologie de la plante et la translocation des nutriments. La surface d'interception du fruit est généralement plus faible que celle des feuilles, mais la tendance peut s'inverser au cours des saisons, lorsque la canopée se réduit. Le dépôt direct à la surface du fruit va ainsi dépendre de la protection exercée par les feuilles. Une contamination directe peut également devenir le processus dominant lorsque la translocation interne des radionucléides aux fruits est limitée. L'absorption des radionucléides par la peau a lieu sous des conditions d'humidité favorables alors que dans des conditions sèches, la peau joue le rôle d'une barrière aux radionucléides. Dans le cas où les fruits sont consommés avec leur peau, les radionucléides déposés en surface des fruits peuvent représenter un risque pour l'homme même si le transfert à la pulpe n'a pas lieu.

3.1.1.2. La translocation des radionucléides

Les radionucléides, une fois absorbés par la plante, peuvent être transloqués aux autres organes. La translocation se définit comme étant la redistribution d'une substance chimique aux parties de la plantes qui n'ont pas été directement touchées par le dépôt et dépend de plusieurs paramètres physiques, chimiques et biologiques (Hoffman *et al.*, 1995 ; Kinnersley et Scott, 2001 ; Chamel *et al.*, 1991). Les facteurs physiques comprennent les caractéristiques et la nature du dépôt des radionucléides (dépôt humide, dépôt sec, tailles des particules atmosphériques) et de la plante (disposition du feuillage, taille des feuilles, structure cuticulaire). Les facteurs chimiques incluent la spéciation du radionucléide et la composition chimique de la cuticule qui recouvre les feuilles (Franke, 1967 ; Aarkrog et Lippert, 1971 ; Aarkrog, 1972). Enfin, les facteurs biologiques sont principalement associés au cycle végétatif et au moment du dépôt (Kirchner, 1994 ; Aarkrog, 1975 ; Carini, 1999 ; Carini *et al.*, 2006 ; Middleton, 1958 ; Middleton, 1959 ; Middleton et Squire, 1963 ; Madoz-Escande *et al.*, 2004 ; Shaw *et al.*, 1992). Kirchmann *et al.* (1980) démontrent que l'activité en ^{226}Ra est de 5 à 16 fois plus importante dans les tiges du blé d'hiver que dans ses grains. Ils démontrent également que le feuillage de la betterave sucrière présente une activité plus importante que les tissus racinaires. Tracy *et al.* (1983) ont démontré dans leur étude que les fruits présentent en général des activités plus faibles que les racines et les feuilles.

3.1.1.3. La remise en suspension de particules de sol

Le phénomène de remise en suspension résulte de l'action des vents qui vont exercer sur les particules une force supérieure à l'adhérence à leur substrat. L'impact de gouttes d'eau (eau de pluie ou d'irrigation) sur le sol peut également provoquer le détachement des particules et leur projection à la surface des cultures (AIEA, 1994). Ce phénomène suivi de l'adhésion de particules à la surface des végétaux peut représenter une source majoritaire de radionucléides pour les plantes lorsque les concentrations dans les particules de sol remises en suspension sont supérieures aux concentrations directement prélevées par les racines. Sheppard (1995) indique dans son étude que les particules de sol ayant la plus forte probabilité d'adhérer à la surface des plantes font partie de la fraction argileuse. En effet de part leur taille similaire à la taille des rugosités à la surface des feuilles, ces particules sont efficacement retenues à la surface des plantes même après lavage (Sheppard *et al.*, 2010). La quantité de particules de sol adhérées à la surface de légumes feuilles lavés atteint en moyenne 20 $g.kg^{-1}$ (Sheppard et Evenden, 1995) alors que pour une végétation de pâturage les quantités atteignent de 25 à 50 $g.kg^{-1}$ (Beresford *et al.*, 2002). Amaral *et al.* (1994) rapportent que la quantité de particules de sol sur des salades peut atteindre de 130 à 340 $g.kg^{-1}$. Ces quantités importantes démontrent clairement que l'adhésion de particules de sol peut dominer les apports par voie racinaire notamment pour des éléments insolubles comme le thorium. De plus, de part les fortes capacités d'adsorption de l'argile, la plupart des radionucléides se retrouvent présents dans la fraction argileuse à des concentrations jusqu'à 20 fois supérieures à celle du sol total (Sheppard *et al.*, 2010).

3.1.1.4. Les prélèvements racinaires

Tout comme les transferts précédemment décrits, le transfert des radionucléides par voie racinaire du sol vers les plantes dépend de plusieurs facteurs, qui vont induire une grande variabilité dans les données proposées par la littérature. Ces transferts dépendent en effet des paramètres chimiques, biologiques, physiques et hydrologiques des sols, des propriétés physicochimiques du radionucléide et de la physiologie de la plante. Chacun de ces paramètres possède sa propre variabilité et peut être influencés par des facteurs externes tels que le climat et les pratiques agricoles (utilisation d'engrais, irrigation, labour, chaulage) (Ehlken et Krichner, 2002). Les conditions expérimentales (lavage, retrait des parties abîmées) dans lesquelles sont obtenues les résultats sont également susceptibles d'influencer le transfert racinaire des radionucléides (Sanzharova *et al.*, 2009).

3.1.2. Les facteurs de transfert sol-plante

L'évaluation des transferts des radionucléides du sol aux plantes se fait souvent par le biais du calcul du facteur de transfert (TF) définit comme étant le rapport entre l'activité du radionucléide dans la plante ($Bq.kg^{-1}$ sec de plante) et son activité dans le sol ($Bq.kg^{-1}$ sec) (AIEA, 1994). L'application principale d'un tel facteur de transfert consiste à prédire les conséquences de rejets chroniques ou accidentels de radionucléides dans l'environnement grâce à des modèles de calcul simulant le transfert à la chaîne alimentaire (Ehklen et Kirchner, 2002). L'énorme quantité de données accumulée au cours des dernières décennies met en avant de grandes variations des facteurs de transfert sol-plante qui peuvent dépasser trois ordre de grandeur (Coughtrey et Thorne, 1983 ; Frissel, 1992). Cette grande variabilité traduit l'inexistence d'une relation linéaire entre la concentration des radionucléides dans le sol et dans les plantes. La base des évaluations radioécologiques réside cependant, dans l'hypothèse d'un transfert des radionucléides sol-plante répondant à une relation linéaire pour des conditions écologiques et agricoles données (Beresford et Wright, 2005). Plusieurs publications ont rapporté qu'une telle relation linéaire entre l'activité totale des radionucléides dans la solution hydroponique et l'activité totale dans les racines des plantes existait bel et bien (Shtangeeva et Ayrault, 2004 ; Blanco Rodríguez *et al.*, 2006). Cependant, les expériences hydroponiques donnent uniquement des estimations approximatives des processus qui ont lieu dans la solution de sol sous des conditions normales et ne reflètent pas les conditions réelles rencontrées sur le terrain. Sheppard (1980), en prenant les valeurs de TF de l'uranium obtenues par d'autres auteurs, a démontré que l'hypothèse de linéarité pouvait être considérée comme valide pour une gamme de concentrations dans le substrat suffisamment large, d'environ 5 ordres de grandeur. Blanco Rodriguez *et al.* (2002) ont confirmé ces résultats pour ^{238}U, ^{230}Th et ^{226}Ra pour lesquels le transfert est linéaire lorsqu'une gamme de concentrations d'environ deux ordres de grandeur est prise en compte. Pour une gamme de concentrations réduite, l'absence de linéarité serait due à la prédominance des effets d'autres variables, telles que les

caractéristiques physico-chimiques du sol, sur le prélèvement de la plante qui s'estomperaient lors de la prise en compte d'une gamme de concentrations plus large.

3.1.2.1. Paramètres influençant la variabilité des facteurs de transfert sol-plante

Une des causes de variabilité des facteurs de transferts est la compétitivité entre les ions présents dans le milieu. En effet, le facteur de transfert sol-plante est souvent calculé pour des radionucléides à l'état de traces dont le comportement dans le système sol-plante dépend largement de la concentration des macronutriments présents (Ehklen et Kirchner, 2002). Le calcium et le potassium sont des macronutriments essentiels aux plantes qui sont maintenus en équilibre homéostatique par la plante. Yunoki *et al.* (1989) ont rapporté dans leur étude que le degré d'accumulation des radionucléides naturels était affecté par les mécanismes homéostatiques qui régulent les prélèvements des éléments par la plante. La biodisponibilité de l'élément va également avoir une grande importance. En effet, une majeure partie des radionucléides présents dans la zone racinaire sont fixés aux constituants du sol. Une définition plus juste du facteur de transfert serait de prendre en compte la quantité biodisponible et non la quantité totale de radionucléides dans le sol (Markose *et al.*, 1993), ceci aurait alors pour effet de diminuer considérablement la variabilité des facteurs de transfert. La plupart des études ignorent également les effets de la rhizosphère sur la disponibilité des éléments, or les racines excrètent une variété de substances incluant des acides organiques, des sucres, des acides aminés, des ions H^+ et HCO_3^- (Russel, 1973 ; Marschner et al, 1996) qui créent ainsi des microenvironnements où la disponibilité des éléments peut différer significativement de celle rencontrée dans le reste du sol (Merckx *et al.*, 1983 ; Lorenz *et al.*, 1994 ; Courchesne et Gobran, 1997). Les exsudats organiques des racines vont avoir pour effet d'augmenter la solubilité des métaux en formant des complexes organométalliques solubles (Merckx *et al.*, 1983 ; Mench *et al.*, 1988 ; Treeby *et al.*, 1989; Naidu et Harter, 1998). En rejetant des ions H^+ et HCO_3^-, les racines influencent activement le pH dans leur environnement immédiat, augmentant ainsi la disponibilité des éléments et notamment du potassium et du phosphore (Jungk et Claasen, 1986). Le potassium non-échangeable fixé dans les espaces inter foliaires des minéraux argileux, sous l'effet du changement du pH va être mobilisé ce qui va avoir pour conséquence de modifier la structure des minéraux d'argile (Hinsinger et Jaillard, 1993; Courchesne et Gobran, 1997). La rhizosphère concentre également un grand nombre de micro-organismes par rapport au reste du sol (Russel, 1973). Ces micro-organismes ont la capacité de rompre les complexes (Barber et Lee, 1974), de dégrader les minéraux (Barber, 1968 ; Richards, 1987; Zezina *et al.*, 1992) et de décomposer la matière organique (Tegen *et al.*, 1991). Les effets combinés des racines et des micro-organismes de la rhizosphère vont ainsi créer des conditions de biodisponibilité des radionucléides complètement différentes des conditions trouvées dans le reste du sol.

La structure des sols, peut également influencer le transfert sol-plante. En effet, ce paramètre influence la distribution des racines (Bundt *et al.*, 2000), la distribution de l'eau et de la solution de sol au sein de la porosité du sol (Albrecht *et al.*, 2002), ainsi que le taux d'échange

d'ions entre la solution et la phase solide du sol et, de ce fait, la disponibilité des radionucléides aux plantes. De manière générale, les facteurs de transfert sont plus importants pour des textures de sol grossières et plus faibles pour des textures fines et des sols organiques (Sanzharova *et al.*, 2009). Les effets de la texture des sols sur le mouvement de certains radionucléides dans le sol apparaissent comme étant similaires à ceux des cations divalents Ca et Mg (Mortvedt, 1994). Les cations divalents sont en effet absorbés par les argiles, ainsi le taux de sorption augmenterait avec la teneur en argile dans le sol. Blanco Rodríguez *et al.* (2008) dans leur étude sur l'influence de la texture du sol sur la disponibilité des radionucléides naturels, ont démontré que pour l'uranium, la fraction grossière du sol libère le plus grand pourcentage de fraction disponible alors que pour le radium, il s'agit de la fraction la plus fine. Aucune déduction n'a pu être faite pour ^{230}Th étant donné que son comportement était différent d'un sol à l'autre. Mortvedt (1994) confirme dans son étude que le facteur de transfert de l'uranium diminue des sols sableux, aux sols limoneux, aux sols argileux.

Plusieurs études ont démontré que le pH était un des paramètres les plus importants permettant d'expliquer, pour l'uranium, les variations observées dans les facteurs de transfert sol-plante (Echevarria *et al.*, 2001). Ebbs *et al.* (1998) par le biais d'expériences hydroponiques, ont démontré que la forme la plus biodisponible pour les plantes est UO_2^{2+} qui est majoritairement présente en solution à pH 5,5 ou inférieur. Vandenhove et Van Hees (2007) dans une étude similaire, ont conclu que bien que le pH ait un rôle important, des facteurs tels que la présence de fer amorphe, les teneurs en matière organique et en argile et la capacité d'échange cationique (CEC) peuvent influencer la concentration de l'uranium dans la solution de sol pour un pH donné. D'autre part, la présence de certains éléments stables dans le substrat peut induire la formation de sels solubles susceptibles de faciliter l'absorption des radionucléides par la plante ou au contraire, conduire à la formation de composés insolubles qui immobiliseraient le radionucléide dans le substrat (Ehklen et Kirchner, 2002). Rufyikiri *et al.* (2006) mettent en avant l'influence du phosphore sur les activités en uranium dans les plantes. En présence de phosphore, l'uranium est adsorbé sur les ions phosphates liés aux oxydes de fer du sol ou bien est précipité par réaction avec les phosphates en formant des précipités d'uranyles phosphates. Sheppard (1980) démontre également dans son étude que la formation de complexes calcium-uranyle-phosphate très insolubles a pour effet d'immobiliser l'uranium dans les racines de la plantes et d'empêcher son assimilation dans les parties aériennes. L'ajout de phosphore dans des expériences hydroponiques va avoir pour effet de réduire de plus de 50% la biodisponibilité de l'uranium pour le pois (Ebbs *et al.*, 1998). Lauria *et al.* (2009) ont trouvé dans leur étude des corrélations entre l'activité en uranium dans différents légumes et la concentration en Ca^{2+} et Mg^{2+} échangeable dans les sols. L'augmentation de la disponibilité de l'uranium pour la plante serait due à la formation de complexes de carbonate d'uranyle dans la solution, formés à partir d'un pH de 4,2 et prédominants à pH 6-7 (Langmuir, 1978). Pour le thorium, Hansen et Huntington (1969) suggèrent que sa mobilité dans les sols soit moins affectée par le pH que par la complexation à la matière organique du sol. En effet, la matière organique des sols semble complexer fortement le thorium tétravalent. Le radium possède une forte

affinité pour les sites d'échanges des sols, cependant, la matière organique absorbe dix fois plus le radium que les argiles (Simon et Ibrahim, 1987). Vandenhove et Van Hees (2007), en travaillant sur des sols spikés, ont trouvé que la concentration en radium dans la solution de sol était liée à la matière organique et à la CEC du sol, mais ils n'ont déterminé aucune relation avec la teneur en argile du sol. L'augmentation du calcium échangeable (Simon et Ibrahim, 1987), du pH (Pettersson *et al.*, 1988) et la forte concentration des sols en sulfate (Simon et Ibrahim, 1987) sont également connus pour diminuer le facteur de transfert du radium du sol aux plantes. Lauria *et al.* (2009) ont observé que l'ajout d'amendement calcaire au sol augmente les concentrations en Ca et Mg des sols et augmente l'effet de compétition cationique sur les surfaces d'adsorption des racines. Du fait de son large rayon ionique le radium possède une affinité pour les sites d'échanges des racines, plus grande que les autres alcalino-terreux. Cependant, sa concentration dans la solution de sol étant généralement plus faible que les autres métaux alcalins, les prélèvements de radium peuvent être complètement nuls. Ainsi, une augmentation de calcium dans le sol a pour effet de diminuer les prélèvements de radium (Simon et Ibrahim, 1990).

3.1.2.2. Données de l'AIEA (2010)

Les TF moyens, ainsi que les gammes de variabilité, présentés dans le TRS N°472 de l'AIEA (2010) pour différents groupes de végétaux sont résumés dans le tableau 1.21.

	Céréales	Légumes feuilles	Légumes fruits	Légumes racines	Fruits
U	$6,2 \times 10^{-3}$ ($1,6 \times 10^{-4}$ - 0,82) *59**	$2,0 \times 10^{-2}$ ($7,8 \times 10^{-5}$ - 8,80) *108**	$1,5 \times 10^{-2}$ ($5,2 \times 10^{-4}$ - 0,20) *38**	$6,5 \times 10^{-3}$ ($1,8 \times 10^{-4}$ - 0,26) *74**	$1,2 \times 10^{-2}$ ($1,3 \times 10^{-3}$ - 0,37) *11**
Th	$2,1 \times 10^{-3}$ ($1,6 \times 10^{-4}$ - 0,022) *36**	$1,2 \times 10^{-3}$ ($9,4 \times 10^{-5}$ - 0,21) *24**	$7,8 \times 10^{-4}$ ($6,2 \times 10^{-5}$ - 0,016) *17**	$2,8 \times 10^{-4}$ ($8,2 \times 10^{-6}$ - 0,095) *57**	$6,3 \times 10^{-3}$ ($2,5 \times 10^{-3}$ - 0,01) *2**
Ra	$1,7 \times 10^{-2}$ ($8,0 \times 10^{-5}$ - 0,67) *24**	$9,1 \times 10^{-2}$ ($1,8 \times 10^{-3}$ - 130) *77**	$1,7 \times 10^{-2}$ ($2,4 \times 10^{-4}$ - 6,3) *44**	$2,8 \times 10^{-2}$ ($2,4 \times 10^{-4}$ - 56) *105**	$1,2 \times 10^{-2}$ ($1,4 \times 10^{-3}$ - 0,17) *12**
Pb	$1,1 \times 10^{-2}$ ($1,9 \times 10^{-3}$ - 0,048) *9**	$8,0 \times 10^{-2}$ ($3,2 \times 10^{-3}$ - 25) *31**	$1,5 \times 10^{-2}$ ($1,5 \times 10^{-3}$ - 3,9) *5**	$4,7 \times 10^{-3}$ ($1,5 \times 10^{-4}$ - 3,3) *57**	$7,7 \times 10^{-3}$ ($1,5 \times 10^{-3}$ - 0,017) *5**
Po	$2,4 \times 10^{-4}$ ($2,2 \times 10^{-4}$ - $2,6 \times 10^{-4}$) *2**	$7,4 \times 10^{-3}$ - *12**	$1,9 \times 10^{-4}$ ($1,6 \times 10^{-5}$ - $3,7 \times 10^{-4}$) *2**	$4,0 \times 10^{-3}$ ($1,4 \times 10^{-4}$ - 0,049) *19**	-

Tableau 1.21 : Facteur de transfert de l'uranium, du thorium, du radium, du plomb et du polonium pour certains groupes de produits végétaux ($kg.kg^{-1}$ poids sec) (AIEA, 2010).
Les valeurs présentées entre parenthèses correspondent aux valeurs minimales et maximales déterminées. * : Nombre de données disponibles pour le calcul des valeurs moyennes des facteurs de transfert.

Quel que soit le radionucléide et le groupe d'aliments considéré, les gammes de variabilité des facteurs de transferts sont importantes et varient de 2 à 6 ordres de grandeur. Les facteurs de

transfert de l'uranium, du radium et du plomb présentent des valeurs moyennes plus élevées que celles du thorium et du polonium. Les facteurs de transfert de l'uranium semblent plus importants pour les légumes feuilles, cependant la valeur la plus basse ($7,8 \times 10^{-5}$) est mesurée pour ce groupe de denrées. Les légumes fruits et les fruits possèdent des TF pour l'uranium du même ordre de grandeur que les légumes feuilles, alors que les céréales et les légumes racines ont des TF d'un ordre de grandeur inférieurs. Les gammes de variabilité des TF de l'uranium pour les différents groupes de végétaux sont toutefois très similaires. Le thorium présente de faibles valeurs de TF qui confirment sa faible biodisponibilité dans les sols. La gamme de variabilité des TF pour les légumes feuilles est très large et couvre 6 ordres de grandeur. Pour le radium, la gamme de variation des TF au sein d'un groupe de denrées, couvre environ 5 ordres de grandeur. Les valeurs les plus fortes sont mesurées dans les légumes feuilles (130) suivis des légumes racines (56) alors que les valeurs maximales mesurées dans les céréales, les légumes fruits et les fruits sont plus basses. Toutefois, les valeurs moyennes ne présentent pas de différences significatives. Les valeurs moyennes des TF du plomb présentent également peu de différences d'un groupe de plantes à l'autre, mais les écarts entre les valeurs minimales et maximales peuvent atteindre jusqu'à 4 ordres de grandeur. Les données sur les TF du polonium sont rares et sont même inexistantes pour les fruits. La tendance globale traduit cependant un faible transfert du polonium aux plantes par voie racinaire. Dans une étude récente sur les transferts de ^{238}U, ^{226}Ra et ^{232}Th du sol aux cultures, Shanti *et al.* (2012) ont mesuré des valeurs de TF plus importantes dans les légumes feuilles que dans les autres légumes et les fruits, ces derniers étant caractérisés par de faibles valeurs de TF. Lauria *et al.* (2009) ont obtenu des valeurs élevées de TF de l'uranium pour les salades (10^{-2}), suivies des carottes (10^{-3}) et des haricots (10^{-4}).

3.2. Transfert des radionucléides aux produits animaux

3.2.1. Mécanismes de transfert des radionucléides aux produits animaux

Les radionucléides peuvent être transférés aux produits animaux par trois voies : par voie cutanée, par inhalation et par ingestion. Parmi ces voies de transfert, la plus importante pour les animaux est l'ingestion de nourriture, de sol et d'eau. L'importance de la contribution de la nourriture, du sol et de l'eau ingérés dépend de l'espèce animale et du système d'élevage. En effet, les volailles et les porcs sont souvent nourris avec des aliments composés de grains et de légumineuses alors que les bovins et les ovins ont généralement accès à un pâturage. De plus, la quantité d'aliments ingérée par les animaux va dépendre de leur masse corporelle et des processus physiologiques liés à la croissance, la lactation et la reproduction. La consommation journalière d'aliments secs par un ruminant adulte est d'environ 2% de sa masse corporelle, pour un animal ne produisant pas de lait, alors que pour les animaux produisant du lait elle est d'environ 3,3% de la masse corporelle (Subcommittee on Feed Intake, 1987). Cette quantité dépend également de la stratégie d'élevage (batterie ou plein air), des pratiques agricoles et de la composition de la nourriture et de ses caractéristiques telles que la quantité de matière sèche digeste (AIEA, 2010).

La proportion relative d'herbe, de grains et d'autres constituants est importante pour déterminer l'ingestion de radionucléides par les animaux. En effet, l'herbe a tendance à avoir une activité plus élevée en radionucléides étant donnée son exposition aux dépôts atmosphériques et à l'adhésion de particules de sol. L'adhésion de particules de sol à la surface des végétaux est un phénomène, déjà mis en avant dans le paragraphe précédent, qui peut représenter une source importante de radionucléides lors de l'ingestion des végétaux. L'ingestion de particules de sol par les bovins, les ovins et les porcs a été évaluée dans plusieurs régions sous différentes conditions (Fries *et al.*, 1982a, b ; Healy, 1968 ; Healy *et al.*, 1967, 1970 ; Healy et Drew, 1970 ; Healy et Ludwig, 1965 ; Mayland *et al.*, 1975 ; McGrath *et al.*, 1982 ; Thornton et Abrahams, 1981). Toutes ces études se basent sur un indicateur comme l'oxyde de titane, mesuré dans les fèces. Etant donné que cet élément n'est pas contenu dans les plantes, la concentration mesurée dans les fèces ne peut provenir que des particules de sol qui ont été ingérées. En général, l'ingestion de sol est inversement reliée à la disponibilité du fourrage lorsque le pâturage est la seule source de nourriture. Les apports de sol estimés dans ces études sont assez faibles lorsque l'herbe est abondante et correspondent pour les bovins et les ovins à 1 à 2% de la matière sèche ingérée. Lorsque le pâturage est rare, l'ingestion de sol peut atteindre jusqu'à 18% de la quantité totale ingérée. Ainsi, le pourcentage moyen de sol ingéré est d'environ 6% pour les vaches laitière et 4,5% pour les moutons lorsque la seule source de nourriture est le pâturage (Healy, 1968 ; Healy et Ludwig, 1965). L'ingestion de sol par les porcs peut atteindre jusqu'à 8% de leur apport journalier en matière sèche du fait de leurs habitudes à fouiller le sol (Fries *et al.*, 1982b). Les volailles élevées en plein air ingèrent également de forte proportion de sol allant de 2 à 30 g de sol ingérés quotidiennement (Jondreville *et al.*, 2010). L'élevage des animaux en batterie va avoir pour effet de supprimer complètement la contribution du sol à la quantité de radionucléides ingérés par l'animal (Fries, 1995). La biodisponibilité des radionucléides contenus dans les particules de sol est souvent assez faible et la voie prédominante d'apport de radionucléides aux animaux reste la consommation de nourriture.

3.2.2. L'absorption gastro-intestinale des radionucléides

L'activité des radionucléides dans la viande et les produits animaux dérivés dépend principalement du taux d'ingestion de radionucléides liés à la quantité journalière d'aliments ingérés, de l'absorption gastro-intestinale et du taux de renouvellement des tissus. Le degré d'absorption gastro-intestinale est généralement le paramètre le plus important pour déterminer le degré de contamination, par les radionucléides, des tissus animaux et des produits dérivés (lait et œufs). Pour la plupart des radionucléides, l'absorption est contrôlée par l'apport alimentaire et les besoins de l'animal (l'absorption tend à décroitre avec l'augmentation de l'apport alimentaire lorsque les besoins alimentaires sont comblés). Pour certains radionucléides qui ont des analogues, l'absorption peut être homéostatiquement contrôlée. Ainsi pour le radium, les besoins en calcium, son élément analogue, vont déterminer le degré de transfert des radionucléides de la nourriture à l'organisme. Plusieurs études se sont portées sur l'évaluation de l'absorption intestinale des

radionucléides (Fesenko *et al.*, 2007). La méthodologie généralement utilisée consiste à administrer les radionucléides à deux groupes d'animaux identiques, pour le premier par voie orale et pour le second par voie intraveineuse. 24h après l'administration, les animaux des deux groupes sont abattus et l'activité des radionucléides dans les animaux sont mesurées. L'absorption correspond alors au rapport de l'activité mesurée dans le groupe ayant reçu les radionucléides par voie intraveineuse et l'activité mesurée dans les individus du groupe ayant reçu les radionucléides par voie orale. Il existe cependant des sources d'incertitude associées à la méthodologie utilisée pour l'évaluation de l'absorption (Fesenko *et al.*, 2007). Tout d'abord, les études menées sont relativement courtes, alors que l'évaluation de l'absorption nécessite que les conditions d'équilibre soient atteintes. Pour l'uranium, le modèle ASTRAL (Calmon, 2006) indique que l'équilibre entre l'activité ingérée et l'activité dans la volaille, est atteint 25 jours après le début de la consommation d'aliments contaminés en uranium (figure 1.3).

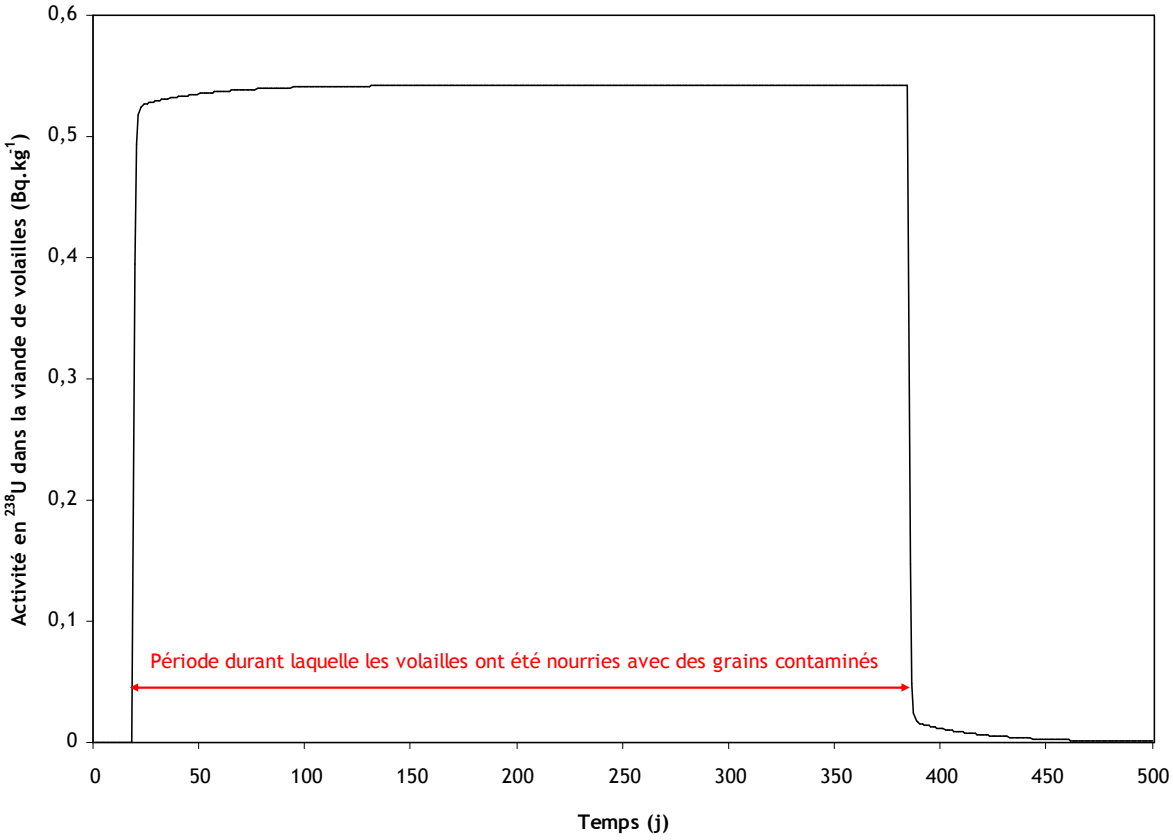


Figure 1.3 : Délai (j) de mise à l'équilibre entre les activités en ^{238}U dans la viande de volaille et les activités dans les aliments ingérés, calculé par le modèle ASTRAL (Calmon, 2006).

Une autre source d'incertitude réside dans la différence de comportement des radionucléides introduit par voie orale ou par intraveineuse (Beresford *et al.*, 2000 ; Mayes *et al.*, 1996). De plus, les radionucléides administrés par voie orale peuvent avoir été ajoutés sous forme

de chlorure à l'eau des animaux ou aux aliments, ce qui n'est pas représentatif des conditions normales d'ingestion des radionucléides. Smirnova (1973) a évalué l'absorption de ^{210}Pb par des bovins adultes et a obtenu une valeur de 0,010 ± 0,002. Prister (1967) s'est penché sur l'évaluation de l'absorption de ^{238}U par des bovins et des poulets adultes, administré sous forme d'$UO_2(NO_3)_2.H_2O$ et a respectivement obtenu une valeur de 0,012 ± 0,002 et de 0,015 ± 0,002. De même, Martyushov *et al.* (1984) ont obtenu pour les bovins adultes une absorption de 0,010 ± 0,001 et pour des porcs âgés de 15 jours une absorption de 0,012 ± 0,004. Ces valeurs traduisent une absorption gastro-intestinale de ^{210}Pb et de ^{238}U similaire (~1%), quelle que soit l'espèce animale considérée. Comparée à d'autres radionucléides, cette absorption est relativement faible. En effet, pour ^{137}Cs l'absorption gastro-intestinale moyenne est de 0,50 ± 0,06 pour le bœuf (Ilyin et Moskalev, 1957). L'âge des animaux va avoir pour effet de réduire l'absorption des radionucléides du fait de la diminution de la perméabilité de la paroi intestinale des animaux adultes. Les jeunes animaux ayant des besoins plus importants en nutriments et éléments essentiels, la perméabilité de leur paroi intestinale est plus élevée et les radionucléides sont plus à même de pénétrer le système sanguin (Sirotkin, 1987). L'effet de l'âge sur l'absorption de l'uranium a été estimé par Martyushov *et al.* (1984) qui rapportent une valeur de 0,09 ± 0,03 pour des veaux de un mois au lieu de 0,01 ± 0,001 pour des vaches adultes. De même, pour les poulets, ils rapportent une valeur de 0,10 ± 0,02 pour des poussins de un jour contre la valeur de Prister (1967) de 0,015 ± 0,002 pour des poulets de 270 jours, soit environ un ordre de grandeur de différence. Une fois absorbés, les radionucléides entrent dans le système sanguin et sont distribués dans les divers tissus du corps. Cette redistribution va dépendre des caractéristiques physicochimiques du radionucléide et du rôle biologique de l'élément stable analogue comme le calcium dans le cas du radium.

3.2.3. Les coefficients de transferts

La notion de coefficient de transfert a été pour la première fois proposée par Ward *et al.* (1965) pour décrire le transfert du césium de la nourriture au lait des vaches laitières. Ils ont ainsi défini le coefficient de transfert comme étant le rapport entre l'activité mesurée dans le lait et l'activité ingérée quotidiennement (exprimé en $j.kg^{-1}$). A la suite de ces travaux, l'emploi de ce coefficient s'est généralisé afin de quantifier les transferts de divers radionucléides au lait (F_m) et à la viande (F_f) dans des conditions d'équilibre. Afin d'estimer le coefficient de transfert, la quantité de nourriture quotidiennement consommée doit être évaluée ce qui peut représenter une difficulté dans le cas des études de terrain contrairement aux études expérimentales où ces paramètres sont contrôlés. Afin que le coefficient de transfert soit représentatif, l'activité des radionucléides dans les tissus ou le lait doit être à l'équilibre avec l'activité des radionucléides quotidiennement ingérée. Les conditions d'équilibre sont difficiles à obtenir pour des radionucléides de faibles demi-vies radioactives ou pour ceux ayant de longues périodes radioactives et biologiques dans les tissus (c'est le cas du plutonium par exemple), ainsi les activités dans les tissus au moment de l'abattage des animaux ne sont pas à l'équilibre avec les activités ingérées. La forme physicochimique va également affecter le transfert aux tissus, principalement en changeant l'importance de

l'absorption gastro-intestinale (Howard *et al.*, 2009). La proportion de radionucléides associés aux particules de sol est également un facteur important pouvant influencer le transfert aux animaux. L'ingestion de sol adhéré à la végétation peut représenter la principale source d'ingestion de radionucléides, en particulier pour les radionucléides qui ont des faibles facteurs de transfert sol-plante et qui se retrouvent donc en faible concentration dans les végétaux par rapport aux particules de sol (Wilkins *et al.*, 1997). Les coefficients de transfert des radionucléides sont généralement plus important pour les animaux ayant une faible masse corporelle (Nalezinski *et al.*, 1996). Ainsi, le coefficient de transfert de l'agneau est en général plus important que celui de la brebis. La masse corporelle au moment de l'abattage est ainsi un paramètre très important pour l'estimation des coefficients de transfert.

3.2.3.1. Coefficient de transfert au lait

Les valeurs de coefficient de transfert au lait de vache obtenues dans la littérature pour les radionucléides naturels sont peu nombreuses et sont rassemblées dans le tableau 1.22. Quelques données sur le lait de chèvre sont également présentées, mais aucune donnée sur le lait de brebis n'est actuellement disponible.

	Lait de vache			Lait de chèvre		
Elément	N	F_m ($j.L^{-1}$)	Gamme ($j.L^{-1}$)	N	F_m ($j.L^{-1}$)	Gamme ($j.L^{-1}$)
U	3	$1,8 \times 10^{-3}$	$5,0 \times 10^{-4}$ - $6,1 \times 10^{-3}$	1	$1,4 \times 10^{-3}$	-
Ra	11	$3,8 \times 10^{-4}$	$9,0 \times 10^{-5}$ - $1,4 \times 10^{-3}$	-	-	-
Pb	15	$1,9 \times 10^{-4}$	$7,3 \times 10^{-6}$ - $1,2 \times 10^{-3}$	1	$6,0 \times 10^{-3}$	-
Po	4	$2,1 \times 10^{-4}$	$8,9 \times 10^{-5}$ - $3,0 \times 10^{-4}$	2	$2,3 \times 10^{-3}$	$1,8 \times 10^{-3}$ - $2,7 \times 10^{-3}$

Tableau 1.22 : Valeurs de coefficient de transfert (F_m) au lait de vache et au lait de chèvre ($j.L^{-1}$) (AIEA, 2010).

Les coefficients de transfert moyens pour le lait de vache sont très proches quel que soit le radionucléide considéré, excepté pour ^{238}U qui présente une valeur moyenne plus importante. Cependant, certaines études (Ng *et al.*, 1977 ; Prister, 1967 ; Thorne, 2003) donnent une valeur plus faible de $2,0 \times 10^{-4}$ $j.L^{-1}$ avec une gamme comprise entre $6,0 \times 10^{-5}$ et $6,0 \times 10^{-4}$ $j.L^{-1}$ qui se rapproche plus des valeurs données pour les autres radionucléides naturels. Dans une étude récente (Štroc et Smodiš, 2012), le coefficient de transfert de ^{230}Th a été calculé et a donné la valeur de $3,1 \times 10^{-3} \pm 0,3 \times 10^{-3}$ $j.L^{-1}$. Les coefficients de transfert des autres radionucléides calculés dans cette étude sont de $3,2 \times 10^{-3} \pm 0,6 \times 10^{-3}$ pour ^{238}U, $2,9 \times 10^{-3} \pm 0,5 \times 10^{-3}$ pour ^{234}U, $8,6 \times 10^{-4} \pm 0,9 \times 10^{-4}$ pour ^{226}Ra, $2,6 \times 10^{-4} \pm 0,7 \times 10^{-4}$ pour ^{210}Pb et $2,3 \times 10^{-4} \pm 0,2 \times 10^{-4}$ $j.L^{-1}$ pour ^{210}Po, ce qui correspond aux gammes de variabilité présentées par l'AIEA (2010). Les auteurs concluent ainsi que les coefficients de transfert des isotopes de l'uranium et du thorium sont plus importants que ceux du radium, du plomb et du polonium ce qui semble surprenant, vu la faible mobilité du thorium.

Les valeurs de coefficient de transfert au lait de chèvre présentent des valeurs plus élevées mais qui se basent sur très peu de données, ce qui ne permet pas d'évaluer sa variabilité. La valeur moyenne donnée par Thorne (2003) pour le coefficient de transfert de ^{238}U au lait de chèvre et de brebis et de 1,0 x 10^{-1} j.L^{-1} avec une gamme comprise entre 1,0 x 10^{-2} et 1,5 x 10^{-1} j.L^{-1}.

Le calcul de ces coefficients de transfert ne tient compte que de la quantité de radionucléides ingérée *via* la nourriture, la contribution du sol et des eaux d'abreuvage n'étant pas prise en compte. Froidevaux *et al.* (2004) ont cependant mis en avant par l'étude des rapports isotopiques $^{234}U/^{238}U$ dans le lait et le fromage, que l'uranium contenu dans le lait et le fromage proviendrait de l'eau d'abreuvage plutôt que du fourrage consommé. En effet, les rapports isotopiques du lait et du fromage sont systématiquement supérieure à 1 tout comme le rapport des échantillons d'eau d'abreuvage, alors que le rapport du fourrage est proche de 1. L'activité de l'uranium ingérée par la consommation d'eau (0,6 Bq.d^{-1}) étant bien plus faible que l'activité ingérée par la consommation de fourrage (10 Bq.d^{-1}), la prise en compte de l'activité d'uranium ingérée par la consommation d'eau ne modifierait pas significativement la valeur du coefficient de transfert (Froideveaux *et al.*, 2004). Cependant, dans le cas de rejet accidentel d'uranium l'utilisation d'un tel coefficient conduirait à une mauvaise estimation de l'activité d'uranium dans le lait étant donné que la source principale d'uranium (l'eau) n'est pas prise en compte.

3.2.3.2. Coefficient de transfert à la viande

Les études sur les transferts des radionucléides des chaînes de décroissance de l'uranium et du thorium à la viande sont assez rares. Les valeurs des coefficients de transfert (F_f) proposées par l'AIEA (2010) pour la viande de bœuf sont présentées dans le tableau 1.23.

		Viande de bœuf	
Elément	N	F_f (j.kg^{-1})	Gamme (j.kg^{-1})
Pb	5	$7,0 \times 10^{-4}$	$2,0 \times 10^{-4}$ - $1,6 \times 10^{-3}$
Ra	1	$1,7 \times 10^{-3}$	-
Th	6	$2,3 \times 10^{-4}$	$4,0 \times 10^{-5}$ - $9,6 \times 10^{-4}$
U	3	$3,9 \times 10^{-4}$	$2,5 \times 10^{-4}$ - $6,3 \times 10^{-4}$

Tableau 1.23 : Coefficients de transfert (F_f) de quelques radionucléides naturels à la viande de bœuf (j.kg^{-1}) (AIEA, 2010).

Les valeurs présentées montrent des gammes de variabilité similaires pour l'ensemble des radionucléides. Ces valeurs sont relativement faibles comparées à d'autre radionucléides tel que le césium pour lequel la valeur moyenne est de 2,2 x 10^{-2} j.kg^{-1} (AIEA, 2010). L'AIEA (2010) présente également quelques données sur le coefficient de transfert du plomb à la viande de mouton ($7,1 \times 10^{-3}$ j.kg^{-1}) et sur le coefficient de transfert de l'uranium à la viande de porc et à la viande de volaille avec respectivement des valeurs de $4,4 \times 10^{-2}$ et $7,5 \times 10^{-1}$ j.kg^{-1} qui apparaissent

relativement élevées en comparaison des valeurs obtenues pour la viande de bœuf. Certains auteurs ont cependant souligné une possible relation du coefficient de transfert et de la masse corporelle des animaux (McDonald, 1996 ; Sheppard, 2001) qui pourrait provenir d'un artefact dû à la méthode de calcul du coefficient de transfert. En effet, le coefficient de transfert est calculé à partir de la masse quotidienne de matière sèche ingérée qui augmente avec la masse corporelle de l'animal et son âge, alors que la concentration de la plupart des radionucléides dans les muscles ne change pas de manière comparable (Beresford *et al.*, 2007).

Les données sur les œufs sont rares, avec une seule valeur (3,1 $j.kg^{-1}$) pour le coefficient de transfert du polonium et seulement deux pour l'uranium qui conduisent à une valeur moyenne du coefficient de transfert de 1,1 $j.kg^{-1}$ avec une gamme comprise entre 0,92 (Prister, 1967) et 1,2 $j.kg^{-1}$ (Izak-Biran *et al.*, 1989). Le coefficient de transfert étant supérieur à 1, l'activité dans l'œuf est supérieure à l'activité journalière ingérée par la poule. D'après ces données, on s'attend à ce que les œufs soient une denrée cible en cas de contamination de l'alimentation des volailles par des radionucléides naturels.

3.2.4. Les rapports de concentrations

Afin de s'affranchir des incertitudes liées à la quantité journalière de radionucléides ingérés, une méthode alternative pour quantifier les transferts aux animaux et aux produits dérivés consiste à calculer le rapport de concentrations (CR) qui est défini comme étant l'activité des radionucléides dans la viande, les œufs ou les produits laitiers (exprimée en poids frais) divisée par l'activité dans la nourriture (exprimée en poids sec) (Howard *et al.*, 2009). Par rapport au coefficient de transfert, ce paramètre présente l'avantage, pour un même radioélément, d'être plus homogène d'une espèce animale à l'autre (AIEA, 2010). Pour les études de terrain, il présente également l'avantage de ne pas nécessiter la connaissance des quantités journalières de nourriture ingérée. Cependant, dans certains cas où les animaux sont nourris avec plusieurs types d'aliments, la proportion relative de chaque composé alimentaire doit être connue afin de calculer les valeurs de CR.

Les CR du lait sont présentés dans le tableau 1.24 et révèlent un manque de données sur les CR des radionucléides des chaînes de décroissance de l'uranium et du thorium. Les valeurs obtenues pour le plomb sont relativement homogènes d'une espèce animale à l'autre (de $2,4 \times 10^{-3}$ à $3,0 \times 10^{-2}$ $kg.L^{-1}$). Pour le lait de vache, les valeurs obtenues pour le plomb, le polonium et l'uranium sont relativement proches.

Eléments	CR lait de vache ($kg.L^{-1}$)	CR lait de chèvre ($kg.L^{-1}$)	CR lait de brebis ($kg.L^{-1}$)	CR Moyen ($kg.L^{-1}$)
Pb	$2,4 \times 10^{-3}$ ($9,9 \times 10^{-4}$ – $4,3 \times 10^{-3}$) 7*	$9,0 \times 10^{-3}$ 1*	$3,0 \times 10^{-2}$ (0,23 - 1,1) 2*	$1,4 \times 10^{-2}$
Po	$2,4 \times 10^{-3}$ 1*	-	-	$2,4 \times 10^{-3}$
U	$5,0 \times 10^{-3}$ 1*	-	-	$5,0 \times 10^{-3}$

Tableau 1.24 : Rapports de concentrations du lait de différents animaux ($kg.L^{-1}$).
Les valeurs entre parenthèses correspondent aux valeurs minimales et maximales des rapports de concentrations obtenues. * : Nombre de données disponibles.

Les CR de la viande de différents animaux sont présentés dans le tableau 1.25. La plupart des données disponibles concernent la viande de bœuf et montrent une certaine variabilité d'un élément à l'autre. En effet, le polonium présente le CR moyen le plus élevé avec une valeur de 0,14 kg $sec.kg^{-1}$ frais alors que le thorium présente le plus faible ($6,2 \times 10^{-3}$ kg $sec.kg^{-1}$ frais).

La faible quantité de données ne permet cependant pas de mettre en évidence l'homogénéité des valeurs d'une espèce à l'autre.

Eléments	CR bœuf (kg $sec.kg^{-1}$ frais)	CR Mouton (kg $sec.kg^{-1}$ frais)	CR Porc (kg $sec.kg^{-1}$ frais)	CR Moyen (kg $sec.kg^{-1}$ frais)
Pb	$7,7 \times 10^{-2}$ ($1,0 \times 10^{-3}$ – 0,62) 11*	$1,2 \times 10^{-2}$ ($9,2 \times 10^{-3}$ – 0,016) 3*	0,66 (0,23 - 1,1) 2*	0,25
Po	0,14 (0,037 - 0,41) 7*	-	-	0,14
Ra	0,18 ($1,3 \times 10^{-3}$ - 1,3) 11*	-	-	0,18
Th	$6,2 \times 10^{-3}$ ($1,7 \times 10^{-3}$ – 0,012) 3*	-	-	$6,2 \times 10^{-3}$
U	0,33 ($3,0 \times 10^{-3}$ - 1,7) 8*	-	-	0,33

Tableau 1.25 : Rapports de concentrations de la viande de différents animaux (kg $sec.kg^{-1}$ frais).
Les valeurs entre parenthèses correspondent aux valeurs minimales et maximales des rapports de concentrations obtenues. * : Nombre de données disponibles.

Au sein des chaînes de désintégration naturelles (uranium, thorium), plusieurs radionucléides se succèdent et entraînent des déséquilibres dans les produits alimentaires du fait de leurs différentes demi-vies et de leurs différentes caractéristiques physicochimiques. Les activités observées dans les produits alimentaires sont de ce fait entachées d'une variabilité dépendante du radionucléide considéré, de la multiplicité des voies de transfert et des paramètres qui influencent l'ampleur des transferts (caractéristiques physicochimiques des sols de culture, conditions climatiques de la région et pratiques agricoles employées). Beaucoup de travaux se sont portés sur les calculs de dose reçue par une population donnée *via* l'ingestion de denrées. Ces travaux permettent la constitution d'une gamme de variabilité des activités étoffée pour différents types de denrées. Cependant, ces travaux ne permettent pas de mettre en avant les raisons d'une telle variabilité. D'autres recherches se sont portées sur l'étude des transferts sol-plante par le biais de travaux *in situ* ou *in vitro*. Une meilleure compréhension des processus de transfert sol-plante a ainsi été acquise, mais jusqu'à présent, très peu d'études se sont penchées sur l'influence des autres sources de radionucléides pour les plantes et les animaux. En effet, les eaux d'irrigation, les particules atmosphériques et la remise en suspension des particules de sol sont rarement prises en compte dans ces études. De même pour les produits alimentaires d'origine animale, les eaux d'abreuvage et les particules de sol sont rarement considérées, bien qu'il ait été suggérer que ces sources pouvaient significativement contribuer à l'activité mesurée dans les denrées.

La démarche adoptée dans notre étude, tient compte des sources potentielles de radionucléides pour chaque type de denrées, dans le but de mieux interpréter la variabilité des activités dans les échantillons prélevés.

Chapitre 2 : Matériels et Méthodes

Ce chapitre présente les matériels et méthodes nécessaires à l'étude de la variabilité naturelle des activités dans les denrées. Le choix des sites d'étude et des matrices prélevées y est décrit ainsi que les procédures de prélèvement et les méthodes de préparation aux analyses des échantillons. Les différentes techniques analytiques utilisées pour la caractérisation des activités de l'uranium, du thorium et de leurs principaux descendants sont ensuite détaillées.

1. Choix des sites étudiés

L'étude des niveaux d'activités des principaux radionucléides naturels dans les denrées nécessite une approche *in-situ* afin de garantir une bonne représentativité de ce qui est consommé par l'homme. Pour une région donnée, la composition minéralogique de la roche mère représente le facteur principal influençant la quantité et la nature des radionucléides naturels trouvés dans un sol. D'autres facteurs tels que l'intensité, le type et la durée des processus d'altération contrôlent également la composition en radionucléides naturels des sols (Osburn, 1965). Du fait de sa diversité géologique et climatique, il existe en France une forte variabilité spatiale de la radioactivité d'origine naturelle dans les sols qui va avoir pour effet d'induire une variabilité des activités dans les denrées.

L'Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire (IRSN), dans le cadre de sa mission de surveillance radioécologique de l'environnement, a acquis de nombreuses données sur les activités des radionucléides naturels (^{40}K, chaînes uranium-thorium) sur l'ensemble du territoire français. La distribution statistique réalisée à partir des activités de l'uranium obtenues dans les sols français montre que la majorité des sols prélevés présentent des activités proches de la moyenne française (figure 2.1). Certains sols provenant de régions granitiques comme la Corse, le Mercantour et les Vosges, présentent cependant des activités supérieures à 70 $Bq.kg^{-1}$ alors que dans des régions sédimentaires comme la vallée du Rhône et la vallée du Rhin, les activités mesurées sont inférieures à 20 $Bq.kg^{-1}$.

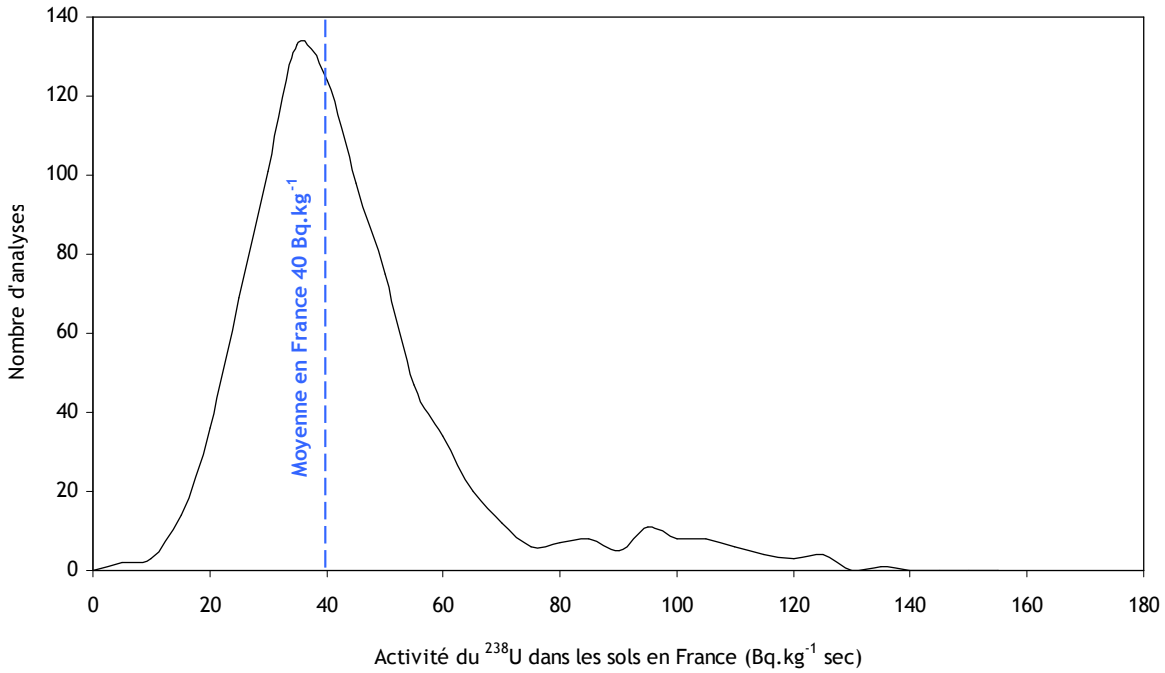


Figure 2.1 : Distribution statistique des activités massiques de l'uranium dans les sols français analysés par l'IRSN.

Afin de caractériser l'ensemble de la gamme de variabilité des radionucléides naturels, un panel de sites caractérisés par différentes activités en uranium dans les sols a été choisi (figure 2.2). Une première zone d'étude caractérisée par de faibles concentrations en uranium (< 20 $Bq.kg^{-1}$), est localisée dans la vallée du Rhône (RV). Une seconde est située dans le Massif central (MC) et se définit par des activités dans les sols proches de la moyenne (~ 40 $Bq.kg^{-1}$). Enfin, les deux dernières zones caractérisées par de fortes concentrations (70 $Bq.kg^{-1}$) sont situées dans les Vosges (VM) ainsi que dans les premiers contreforts de l'ouest du Massif central (W-MC).

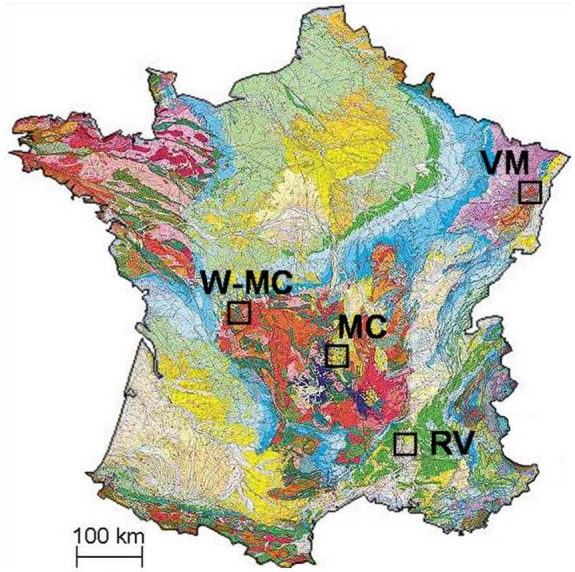


Figure 2.2 : Localisation des sites d'étude sur le territoire français.

1.1. La vallée du Rhône

La localisation exacte de notre site d'étude dans la vallée du Rhône se situe sur la rive droite du couloir rhodanien, entre le défilé de Donzère, au Nord et la ville de Mondragon, au Sud (figure 2.3).

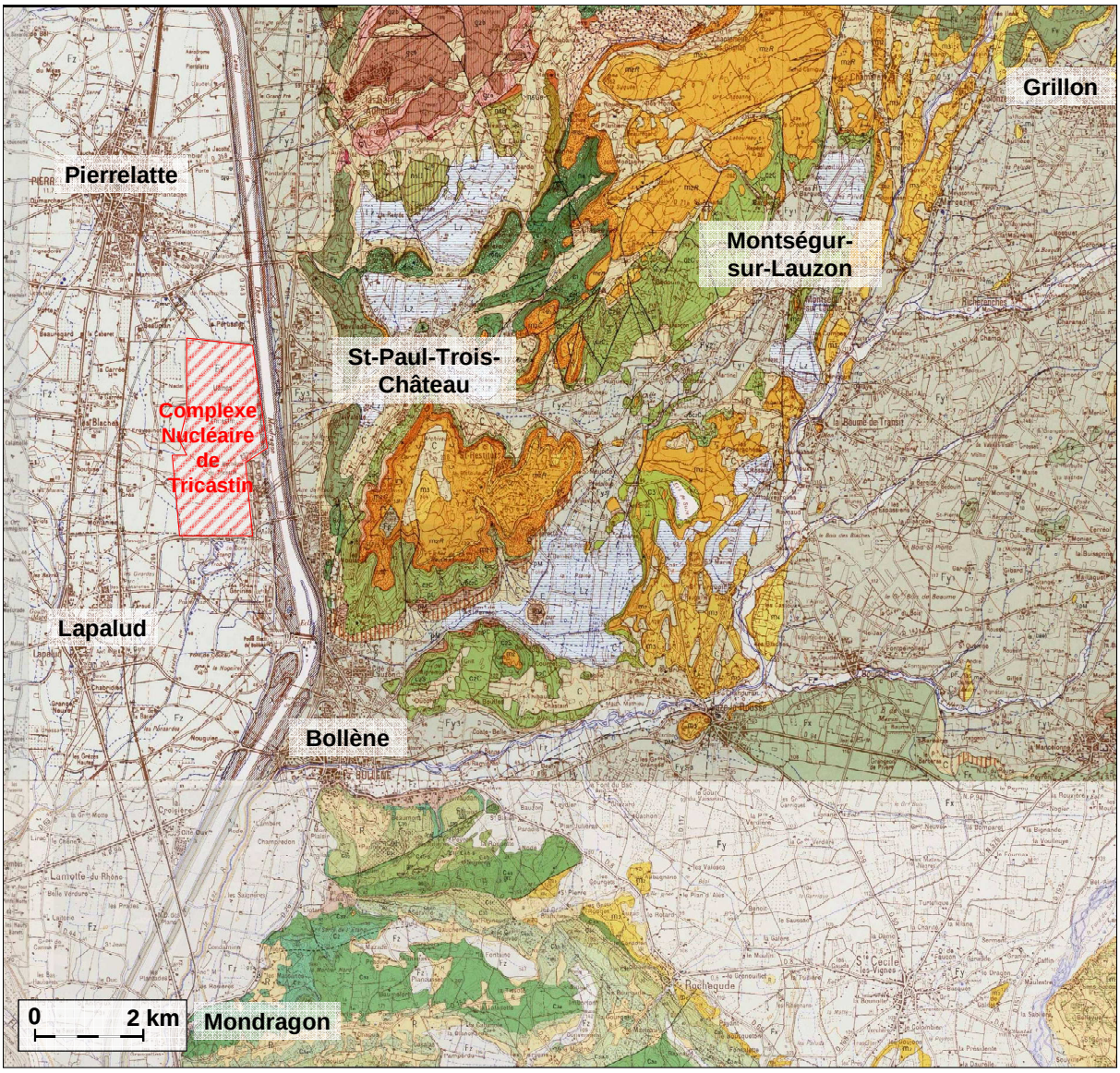


Figure 2.3 : Localisation du site d'étude situé dans la Vallée du Rhône (RV).

Cette zone correspond donc à la plaine du Tricastin. Sur le plan climatique, cette région appartient nettement à la Provence, avec une végétation de type garrigue sur les plateaux et reliefs calcaires. Les terrains plus humides ou irrigués sont réservés aux céréales, aux oléagineux, aux cultures maraichères et aux arbres fruitiers. Sur le plan géologique, la zone d'étude se caractérise par une vaste cuvette, dont le centre est composé de terrains tertiaires généralement masqués par

d'immenses cônes alluviaux würmiens, à pente très faible. Le réseau hydrographique est commandé par l'omniprésence du Rhône dont la vallée occupe toute la bordure ouest. Cependant, dans notre zone d'étude, le Rhône laisse place au canal de dérivation de Donzère-Mondragon qui aboutit à l'usine hydroélectrique de Bollène. Ce canal sert également de refroidisseur pour la centrale nucléaire de Tricastin. Plusieurs cours d'eau viennent se jeter dans le Rhône dans cette zone, notamment le Lez et ses petits affluents. Ces cours d'eau drainent une large vallée comblée d'épandages würmiens. Cette vaste plaine sépare deux ensembles géologiques : à l'ouest les reliefs de Grignan à Suze-la-Rousse, où dominent les molasses burdigaliennes transgressives sur le Crétacé supérieur, et à l'est, les reliefs de Valréas à Visan où affleurent les marnes sableuses du Tortonien coiffées de conglomérats messiniens (Debelmas *et al.*, 2004). Des alluvions récentes à actuelles sont largement développées dans la vallée du Rhône et dans les vallées adjacentes. Ce sont principalement des limons sablo-argileux à lentilles graveleuses plus ou moins grossières. Des colluvions sont également présentes sur cette zone et proviennent d'un mélange des divers constituants du substrat, remaniés par lessivage superficiel ou solifluxion. Là encore, tous les intermédiaires existent, entre les colluvions dont la composition est l'exact reflet du substrat et ceux, plus polygéniques, où se mélangent des apports d'origines variées. On note également la présence de sables glauconieux en certains endroits qui sont généralement des sables plus ou moins marneux, très souvent colorés en jaune à ocre-rouge par suite de l'altération continentale fini-crétacée. La zone est également constituée de formations résiduelles ou faiblement remaniées, indifférenciées. Ces formations sont peu développées, et se sont formées aux dépens du substrat sous-jacent ou proche (Champenois *et al.*, 1971). La plaine alluviale du Rhône montre des sols alluviaux argilo-sableux à galets surtout calcaires, centimétriques à décimétriques. Ce sont des sols profonds, faciles à travailler et contenant une nappe plus ou moins profonde. Cette plaine est abondamment cultivée (maïs et vergers principalement). Dans les vallées affluentes, les sols sont plus hétérogènes et reflètent la géologie des versants. On peut généralement y distinguer des sols caillouteux des lits mineurs et ceux des bordures inondables, plus limoneux, souvent hydromorphes, parfois de type gleys quand la configuration des lits alluviaux ralentit la circulation des nappes. Les terrasses et les grands cônes alluviaux würmiens possèdent des sols qui ont subi d'importants phénomènes d'évolution. Les nombreuses surfaces occupées jadis par des lacs aux environs de Saint-Paul-Trois-Châteaux et entre Bollène et Montségur, représentent un cas particulier avec la présence de lits tourbeux qui sont abondamment cultivées. Dans les reliefs calcaires, on trouve seulement des lithosols, parfois revêtus d'une mince couche de terre jaunâtre, voire des rendzines généralement impropres à la culture.

Du fait de la présence sur ce site du complexe nucléaire du Tricastin, deux zones distinctes ont été définies. Une première zone, au sud du complexe, se situe sous les vents dominants des industries nucléaires (figure 2.4) et est potentiellement influencée par des rejets atmosphériques ou liquides. Une deuxième zone a été choisie en dehors des vents dominants, au nord-est du site afin de pouvoir évaluer l'influence des rejets des industries du site. Le complexe nucléaire du Tricastin regroupe des installations du début et de la fin du cycle du combustible nucléaire

d'AREVA, des installations de recherche du C.E.A. (Commissariat à l'Energie Atomique et aux Energie Alternatives) ainsi qu'un C.N.P.E. d'EDF. Ce complexe représente la plus importante concentration d'industries nucléaires de France. La diversité des activités liées au cycle du combustible nucléaire engendre la présence sur le site d'uranium à l'état naturel, d'uranium appauvri ($^{235}U/^{238}U$ < 0,72%), d'uranium de retraitement (présence de ^{236}U) et d'uranium enrichi ($^{235}U/^{238}U$ > 0,72%).

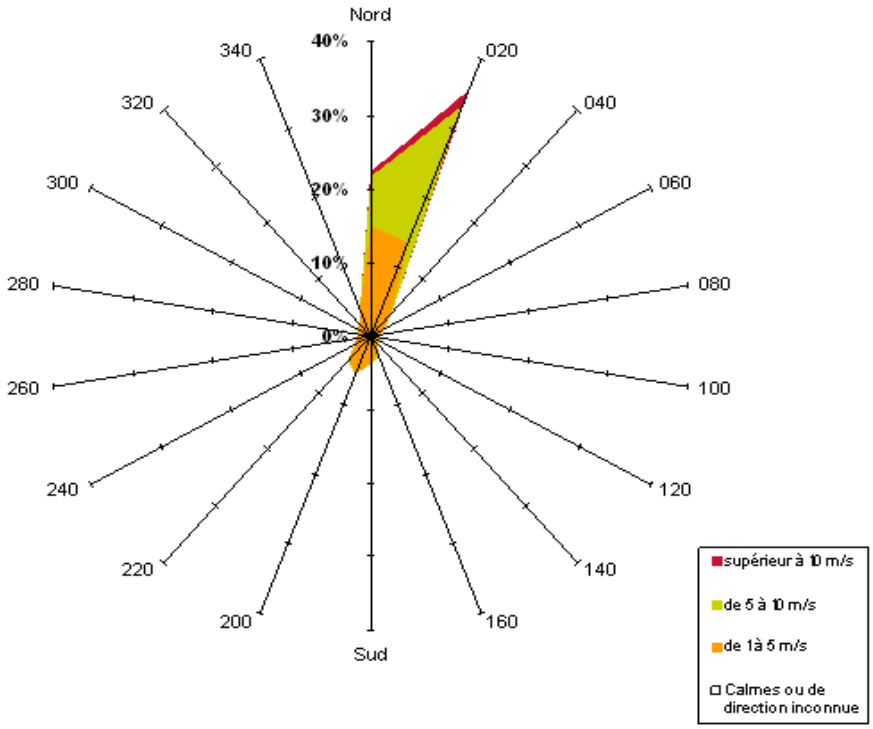


Figure 2.4 : Rose des vents associée au complexe nucléaire du Tricastin. Valeurs moyennes sur l'année 2009.

1.2. Le Massif central

La zone d'étude s'étend du Nord au Sud, de Clermont Ferrand à Saint Nectaire, et s'étend à l'Est jusqu'à St Dier d'Auvergne (figure 2.5).

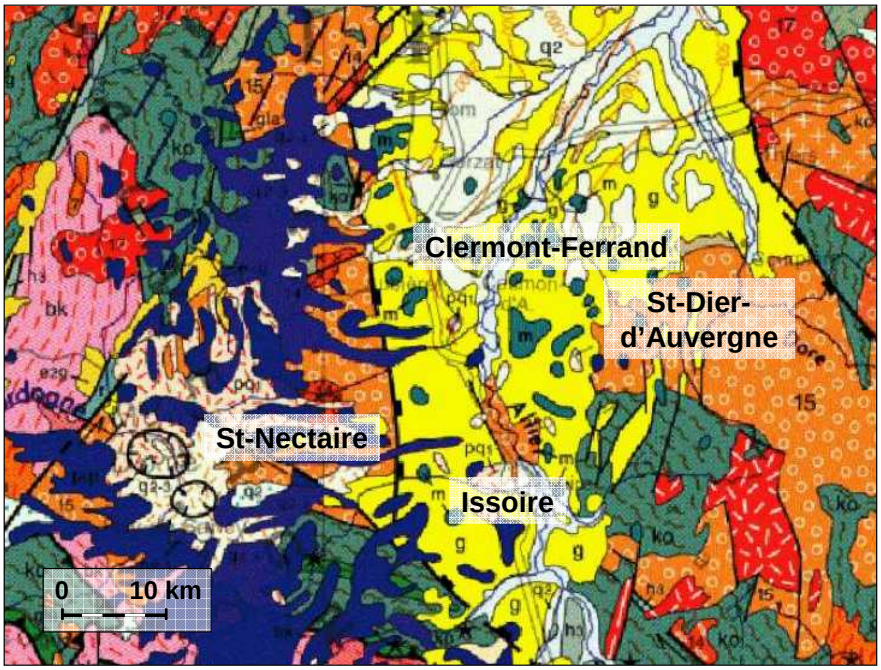


Figure 2.5 : Localisation de la zone d'étude située dans le Massif central (MC).

La zone proche de Clermont Ferrand se caractérise par deux régions naturelles bien distinctes : la bordure orientale de l'Auvergne, au relief accusé (chaîne des Puys) et la Limagne d'Allier, vaste plaine d'effondrement au relief relativement contrasté. Le plateau auvergnat, granitique et métamorphique, d'altitude moyenne 800 m, est couvert de prairies et de forêts. Il est limité vers l'Est par un abrupt orienté nord-sud qui est la conséquence de l'affaissement ayant créé le Bassin de Limagne. Sur le plateau et parallèlement à la falaise, de nombreux édifices volcaniques (chaîne des Puys) constituent un alignement montagneux dont les Puys culminent généralement vers 1 200 m. Le Puy-de-Dôme domine l'ensemble avec 1 464 m d'altitude. Le fossé de la Limagne est un bassin à dépôts continentaux essentiellement lacustres, carbonatés à l'oligocène, volcaniques et fluviatiles au Mi-Pliocène et Quaternaire. Il présente une morphologie complexe dans laquelle il est possible de distinguer grossièrement des hauts plateaux de 500 à 700 m d'altitude à couverture basaltique, des collines sableuses ou calcaires parfois accidentées de Puys volcaniques, des vallées orientée est-ouest tapissées de coulées basaltiques, de larges dépressions marécageuses fertiles (« Terres Noires ») et enfin, la Vallée de l'Allier. Cette vaste dépression est essentiellement vouée à l'agriculture. Les complexes de Limagne sont alimentés pour l'essentiel par des colluvions marneuses auxquelles s'ajoutent, en quantité variable, des alluvions voire des apports éoliens. Le complexe de la Grande Limagne correspond approximativement aux anciens marais. Sa réputation est fondée sur la fertilité de sols souvent regroupés sous le nom de « terres noires » (Aubert *et al.*, 1973).

1.3. Les Vosges

La zone d'étude des Vosges s'étend sur 25 km du Nord au Sud, de Urbeis à Orbey et s'étend à l'Ouest sur 15 km jusqu'à Ban-de-Sapt (figure 2.6).

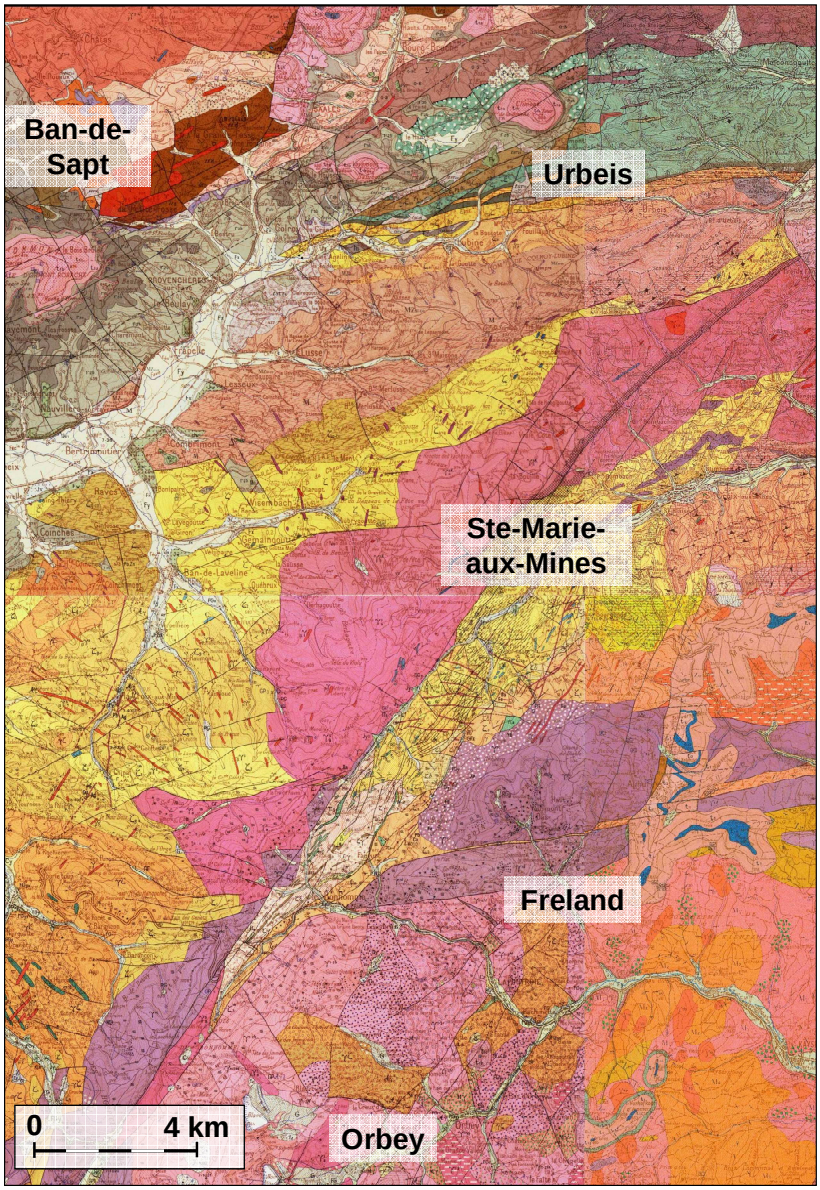


Figure 2.6 : Localisation de la zone d'étude située dans les Vosges (VM).

Cette portion de territoire correspond à la partie centrale du massif vosgien où prédominent très largement des terrains granitiques et cristallophylliens. Les granites sont extrêmement variés et au terme d'une histoire géologique complexe, ils apparaissent dans bien des secteurs disposés selon une mosaïque difficile à débrouiller. Ces divers granites se différencient par leur origine, leur rapport avec la tectogénèse ou encore par leur âge pré- ou protohercynien et hercynien. On distingue également la présence de gneiss qui affleurent en deux ensembles géographiques séparés

par la lame de granite des Crêtes. Ces gneiss sont issus d'un métamorphisme de haute pression durant le Cambrien (orogénèse cadomienne). Des recherches préliminaires sur la radioactivité des formations granitiques cristallophylliennes de la zone d'étude ont été publiées de façon synthétique par Rothé (1961) et Mathevon et Rothé (1968). D'après ces recherches, le granite des Crêtes aurait une radioactivité relativement élevée. Les autres granites, granito-gneiss et les migmatites auraient une radioactivité moyenne, tandis que les gneiss seraient relativement peu radioactifs. Dans les hautes Vosges, les formations géologiques, en tant que roches-mères, ont un rôle important dans la diversification des sols et de la végétation. Cependant, la mosaïque des sols ne se superpose pas de façon étroite au canevas des formations géologiques. Le relief, en favorisant un climat frais et humide et en accusant les pentes et les expositions, contribue également à diversifier les sols et la végétation selon l'altitude, l'orientation des versants et la raideur des pentes. Entre les sols bruns acides et les sols podzoliques existe toute une gamme de sols liés à des processus de podzolisation commençante ou modérée dont les principaux types sont les sols bruns ocreux et les sols ocre podzoliques. Les sols bruns acides occupent des surfaces considérables. Dans ces sols, le processus de brunification se traduit par une augmentation relative des minéraux argileux et la solubilisation ménagée d'ions alcalino-terreux, d'aluminium, de fer et de silicium, avec un léger départ de ces éléments hors du profil (Ménillet *et al.*, 1978).

1.4. L'ouest du Massif central

La région de l'ouest du Massif central étudiée est plus précisément localisée au niveau des monts de Blond et s'étend au Nord jusqu'à la commune de Peyrat de Bellac (figure 2.7).

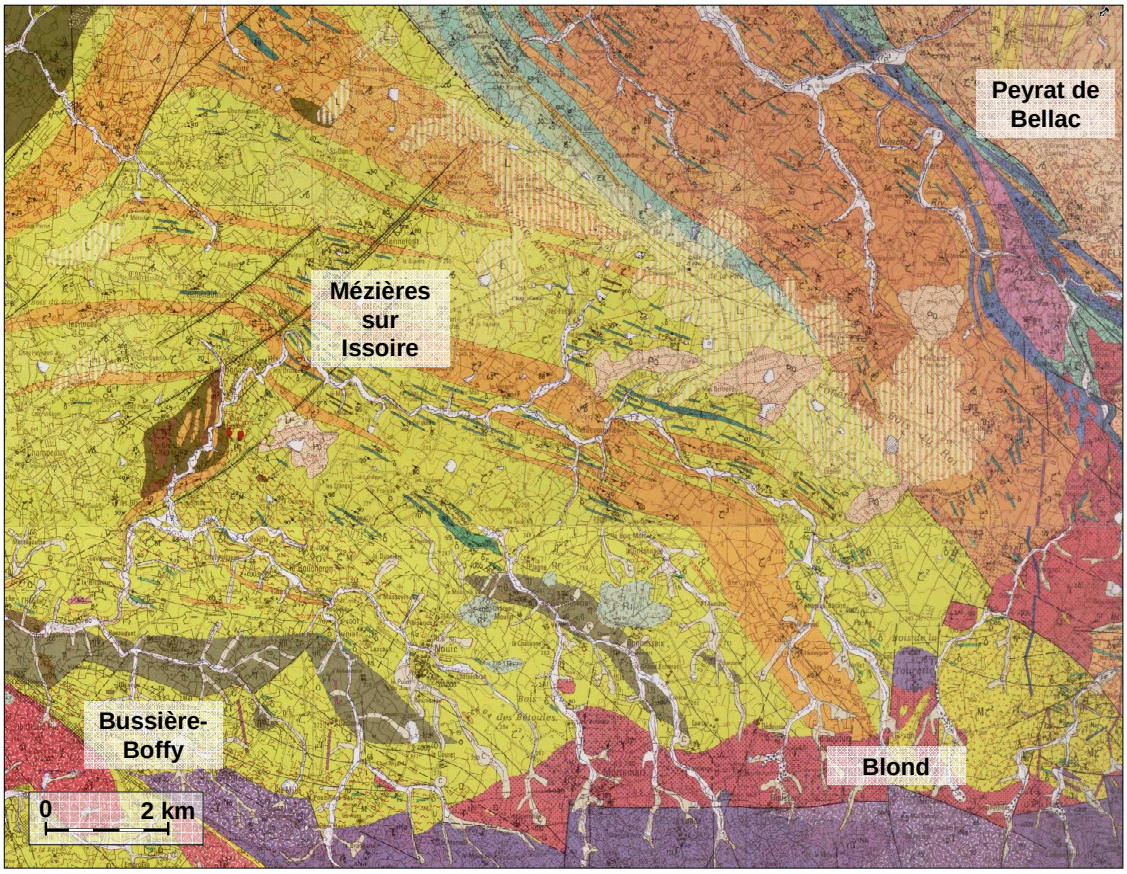


Figure 2.7 : Localisation de la zone d'étude située à l'ouest du Massif central (W-MC).

Abstraction faite des formations superficielles colluviales et alluviales qui incluent des lambeaux d'alluvions anciennes, la zone étudiée est entièrement couverte par des roches cristallines faisant partie du socle antépermien du Massif central. Ce stade est constitué pour l'essentiel, de terrains métamorphiques recoupés par des corps intrusifs de roches plutoniques, granitiques en majeure partie, d'abondance et d'extension variables suivant les régions (Chèvremont *et al.*, 1992). Les roches plutoniques intermédiaires à basiques sont dominantes dans la région étudiée avec toutefois une présence importante, au sud de la zone, de roches éruptives intrusives. Les formations métamorphiques, sont constituées principalement de paragneiss plagioclastiques grisâtres, ainsi que d'orthogneiss leucocrates. L'âge des dépôts des formations sédimentaires originelles n'est pas connu avec certitude, mais c'est au cours du Dévonien que ces dépôts ont subi une évolution tectono-métamorphique dans un climat « barrovien » (température moyenne à forte, pression moyenne). Les roches éruptives intrusives, postérieures au métamorphisme, sont variées. Des critères minéralogiques ont cependant permis de mettre en évidence 3 principaux types d'associations magmatiques de granitoïdes, les associations alumineuses, les associations subalcalines à caractère magnésio-potassique et les associations calco-alcalines. Dans cette région d'étude, AREVA NC, anciennement COGEMA, a par le passé prospecté l'uranium en se limitant au département de la Haute-Vienne, c'est-à-dire en couvrant l'intégralité du massif granitique des monts de Blond. Les points où ont été enregistrées les plus fortes

radioactivités sont assez rares à l'intérieur du massif leucogranitique des monts de Blond et sont situés pour la plupart à son voisinage septentrional. Dans le cadre de cette prospection, Barbier (1968) a mis en évidence une teneur moyenne en uranium de 8 ppm soit environ 100 $Bq.kg^{-1}$, dans le massif des monts de Blond.

2. Stratégie d'échantillonnage

2.1. Matrices prélevées

Afin de caractériser la variabilité des activités dans les denrées, des échantillons de chaque groupe d'aliments (légumes, céréales, produits laitiers, viandes) ont été sélectionnés. Les statistiques issues de la base de données FAOSTAT (2007) ont été consultées afin de connaître les quantités de denrées produites sur le territoire français et les quantités consommées annuellement par personne (tableau 2.1).

Consommation moyenne par personne de quelques produits alimentaires (kg/an)	
Blé	99,93
Légumes frais	71,13
Lait (en litres)	40,82
Fromage	24,48
Volailles	21,10
Œufs	14,70

Tableau 2.1 : Consommation moyenne par personne de quelques produits alimentaires (kg/an), source FAOSTAT (2007).

Le choix s'est plus précisément porté sur des produits alimentaires consommés et produits sur l'ensemble du territoire Français : le blé, les salades, le lait, le fromage, la viande de volaille et les œufs. Le blé entre dans la composition de nombreux produits alimentaires consommés en France. Cette céréale possède également la plus forte production en France avec 38,2 Mt produites par an pour l'année 2010. Les légumes frais sont également très fortement consommés par les français avec 71,13 kg/an par personne. Parmi ces légumes, les tomates représentent la plus grosse production avec 587 kt pour l'année 2010 suivi des pois frais (406 kt) et des salades (398 kt). La culture des salades s'étend sur plusieurs mois et est très répandue quelle que soit la région considérée. De plus, dans le chapitre précédent, il a été mis en avant que les légumes feuilles, tels que les salades, semblaient être plus représentatifs des activités rencontrées dans les sols et plus fortement soumis à l'influence de rejets d'activités industrielles. Les légumes feuilles sont également connus pour être soumis aux dépôts atmosphériques et à l'adhésion de particules de sol, ce qui présente un grand intérêt pour notre étude sur les différentes voies de transfert des radionucléides. La consommation moyenne de lait et de fromage en France représente respectivement 40,82 L/an et 24,48 kg/an et par personne. De nombreuses études se sont portées sur les transferts de radionucléides au sein de la chaîne trophique sol-herbe-lait-fromage,

notamment pour ^{90}Sr, analogue du calcium, et pour ^{137}Cs (Besson *et al.*, 2009). L'étude des radionucléides naturels et des isotopes du radium en particulier revêt le même intérêt. La consommation de viande en France est dominée par la viande de bœuf avec 26,88 kg/an et par personne contre 21,10 kg/an pour la viande de volaille. Cependant, l'élevage des volailles nécessite des moyens beaucoup moins importants et est ainsi plus répandu à l'échelle du territoire avec des structures de plus petites dimensions. De même, l'élevage de poules pondeuses peut se faire à très petite échelle, chez des particuliers. Dans ces conditions, la production n'est pas contrôlée ce qui peut représenter un risque sanitaire important en cas de contamination locale, d'où l'importance de connaître les transferts des radionucléides à ce type de denrées. Des échantillons de romarin ont également été prélevés dans la vallée du Rhône en zone influencée et en zone hors influence des vents dominants. Le choix de ces plantes réside dans leur durée d'exposition aux dépôts de particules atmosphériques. Ces plantes étant typiquement méditerranéennes, il a été impossible d'effectuer des prélèvements dans les autres régions d'étude.

Chaque échantillon d'aliment prélevé est associé à plusieurs échantillons considérés comme étant des sources potentielles de radionucléides. Les produits animaux (œufs, volailles, lait et fromages) sont associés à des échantillons de fourrage, d'herbes ou de mélange de graines constituant l'alimentation de base des animaux. A ces échantillons s'ajoutent des échantillons de sol qui sont potentiellement ingérés par les bestiaux ainsi que des échantillons d'eau qui sont mis à disposition par les agriculteurs pour l'abreuvage. Pour les échantillons végétaux, les sols de cultures sont prélevés ainsi que, le cas échéant, les eaux d'irrigation. Dans notre étude, seules les salades ont été irriguées durant leur culture.

2.2. Localisation des prélèvements

La diversité des produits étudiés a conduit à des prélèvements dans différentes exploitations agricoles plus ou moins proches les unes des autres. La prise de contact avec les producteurs, permet de garantir la traçabilité des échantillons (localisation des parcelles de culture et de pâturage) ainsi que les modes de culture (utilisation d'engrais et de pesticides, fréquence d'irrigation, culture en plein air) et d'élevage des produits (utilisation de compléments alimentaires, type d'aliments, surface disponible, provenance des aliments). Pour notre étude, nous avons, autant que possible, sélectionné des fermes répondant aux critères de l'agriculture biologique. La culture des salades se fait en pleine terre et en plein air et les amendements utilisés ne contiennent pas de substances chimiques de synthèses. Les chèvres, vaches laitières, poules pondeuses et poulets de chair sont élevés en plein air et ont accès à une vaste surface de prairie. Les aliments reçus par les animaux proviennent de coopérative locale (représentative de la zone étudiée) ou sont directement produits par l'éleveur.

Les échantillons prélevés en zone influencée (RV-IZ) sont pour la plupart situés dans le couloir des vents dominants, excepté les échantillons de volaille et d'œuf qui sont situés à l'ouest du site (figure 2.8). Les échantillons de blé et de romarin sont distants de 700 m à peine de la

clôture sud du complexe nucléaire, alors que les échantillons de salade sont éloignés de 6 km environ et les échantillons de fromage et de lait de plus de 10 km. Cet éloignement conséquent est susceptible de diluer les rejets potentiels provenant du complexe. La localisation des échantillons, en dehors des vents dominants du complexe de Tricastin (RV-NIZ), garantit l'absence de l'influence de rejets atmosphériques. La plupart des exploitations dans lesquelles ont été prélevés les échantillons, sont situées sur des substrats sédimentaires composés d'alluvions modernes ou de colluvions. Les échantillons de romarin de la zone RV-NIZ sont cependant situés sur un substrat sableux datant du crétacé inférieur.

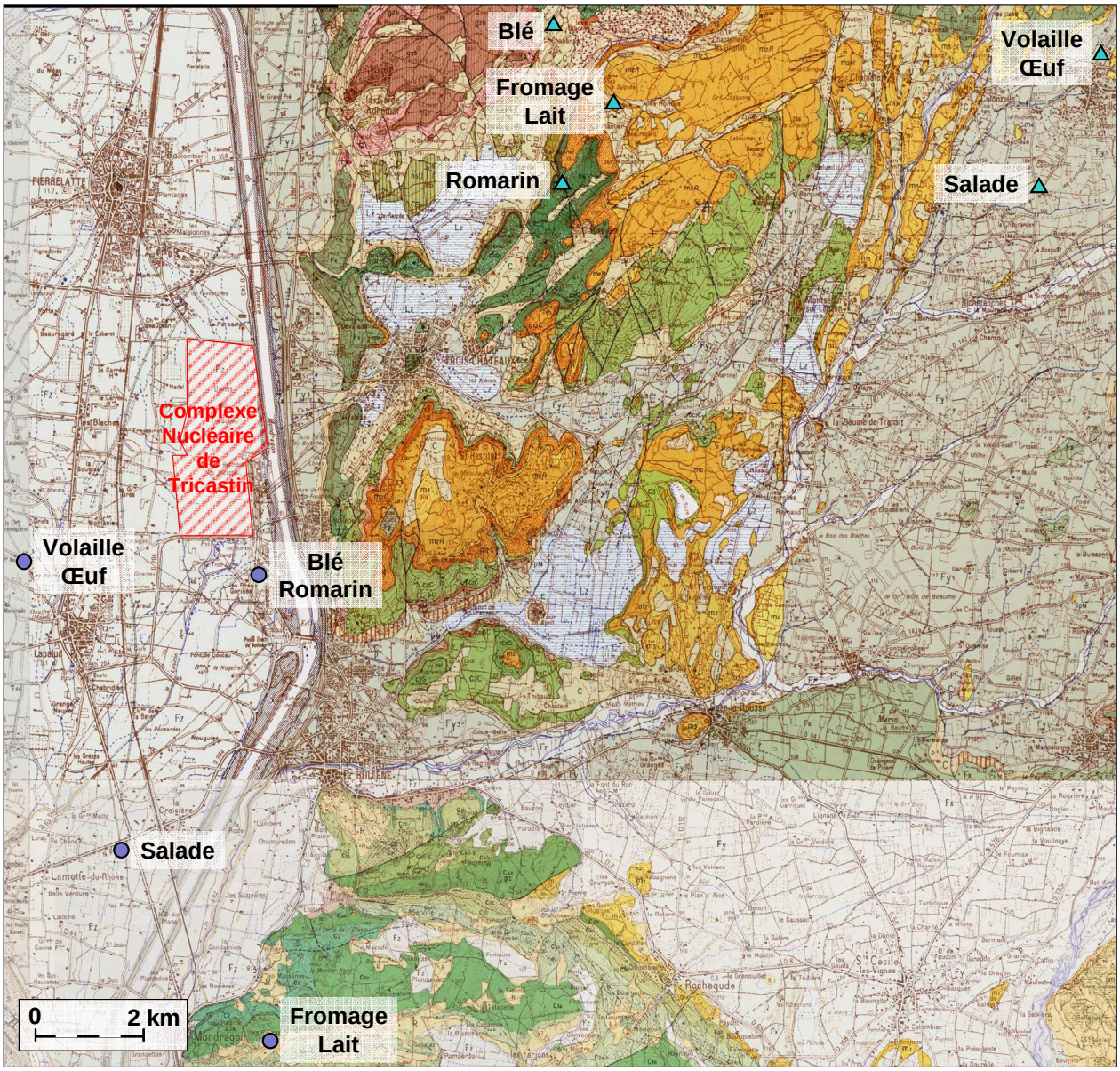


Figure 2.8 : Localisation des échantillons prélevés dans la vallée du Rhône (RV). Les cercles correspondent aux échantillons de la zone potentiellement influencée par les rejets du complexe du Tricastin (RV-IZ), les triangles à ceux de la zone hors influence (RV-NIZ).

Les échantillons prélevés dans le Massif central sont assez distants les uns des autres (figure 2.9), ce qui engendre une variabilité des substrats géologiques des points d'échantillonnage. L'échantillon de salade se situe dans la plaine de Limagne caractérisée en ce point par la présence de sols fertiles dits « terres noires ». Les échantillons de fromage et de lait se situent en région plus montagneuse sur un substrat volcanique, alors que les échantillons de volaille ont été prélevés sur un substrat granitique et les échantillons de blé et d'œuf sur un substrat métamorphiques. Ces grandes distances entre les différents points de prélèvement sont dues à l'absence d'exploitation répondant à nos critères de traçabilité des échantillons.

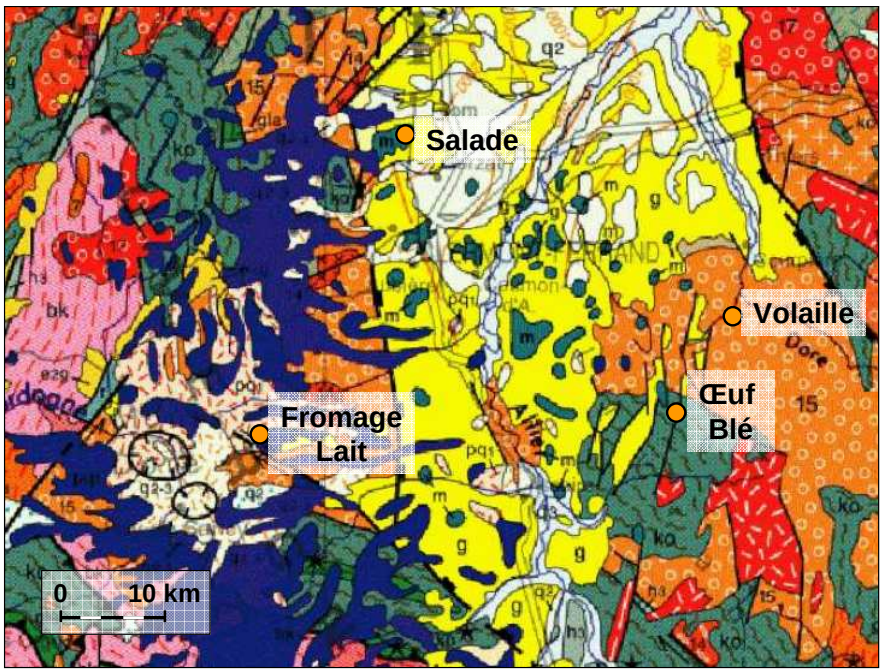


Figure 2.9 : Localisation des échantillons prélevés dans le Massif central (MC).

La majorité des échantillons prélevés dans les Vosges (figure 2.10) provient de substrats granitiques (granite porphyroïde et granite à grains grossiers) caractérisés par de fortes activités en uranium. Seuls les échantillons d'œuf sont prélevés sur un substrat métamorphique constitué de gneiss à grenats, connus pour leur teneur plus faible en uranium (Rothé, 1961 ; Mathevon et Rothé, 1968). Sur ce site d'étude, deux échantillons de lait ont été prélevés. Le premier échantillon est constitué de lait de chèvre tout comme les échantillons prélevés dans la vallée du Rhône (RV-IZ et RV-NIZ) et le second, de lait de vache, tout comme les échantillons de lait prélevés sur les sites MC et W-MC.

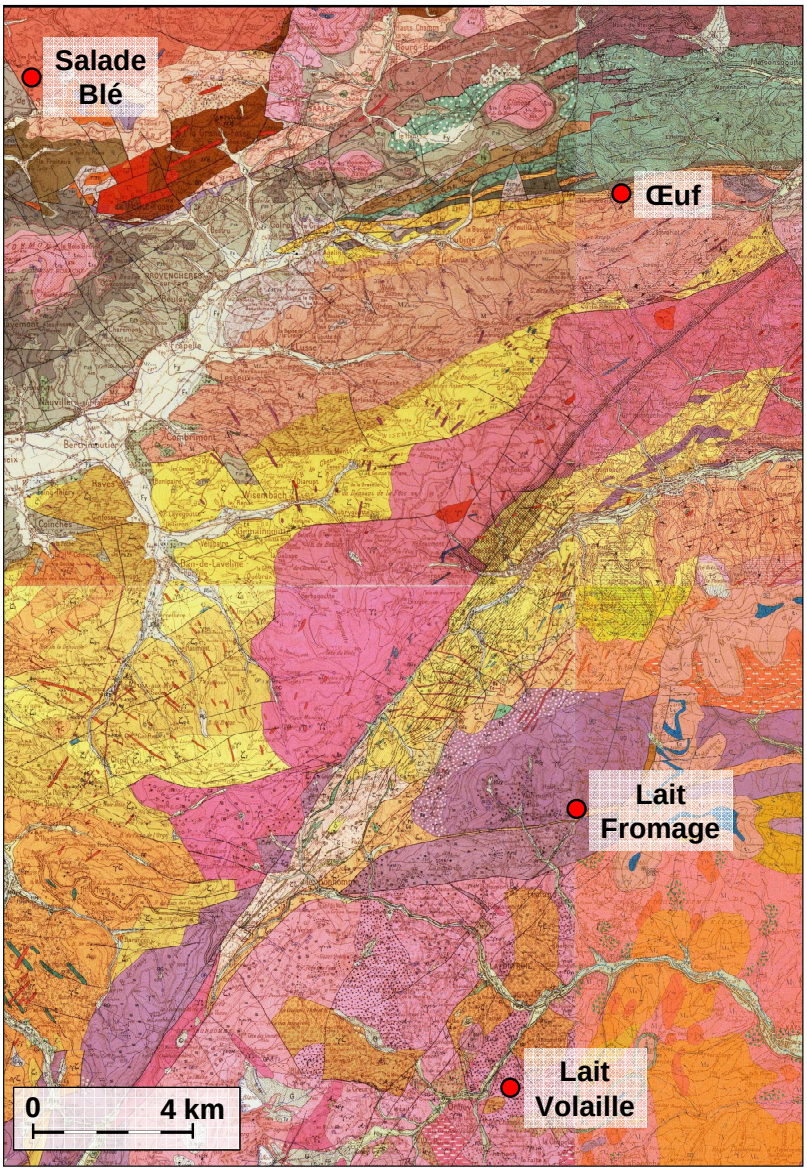


Figure 2.10 : Localisation des échantillons prélevés dans les Vosges (VM).

Les échantillons prélevés sur cette zone d'étude sont localisés sur des substrats géologiques différents malgré leur proximité. Le point de prélèvement des échantillons d'œuf est assez distant des autres et est situé sur un substrat constitué d'orthogneiss leucocrates anatectiques, caractérisé par de plus faibles activités en radionucléides naturels. Les échantillons de volaille, bien que proches du point de prélèvement de lait et de blé, ont été prélevés sur un substrat constitué de migmatites résultant d'une anatexie intense. Les échantillons de salade, de blé et de lait ont été prélevés à proximité de points où ont été enregistrées les plus fortes radioactivités de 200 à 4 000 chocs/seconde. On s'attend donc à mesurer dans ces échantillons des activités en uranium très élevées.

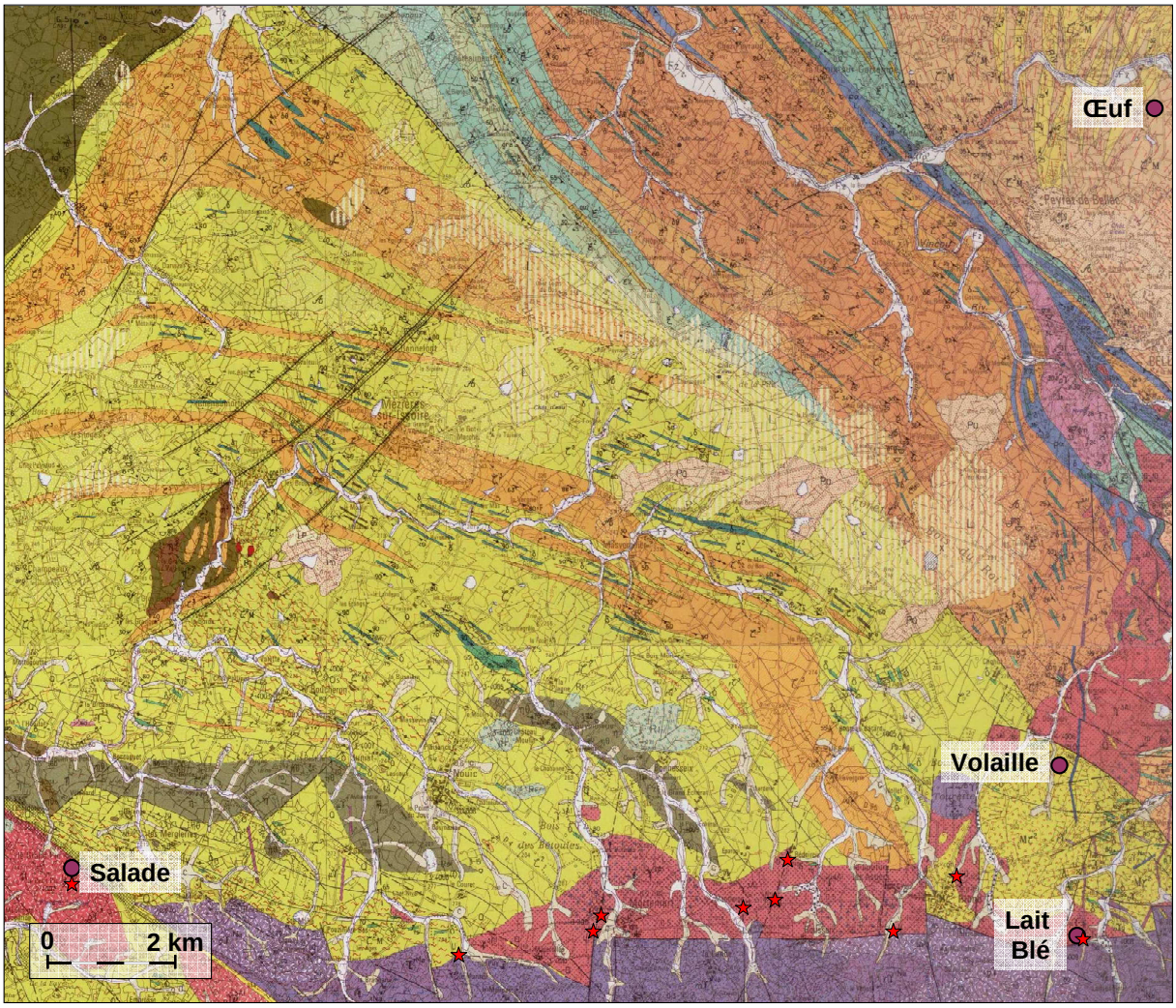


Figure 2.11 : Localisation des échantillons prélevés dans l'ouest du Massif central (W-MC). Les étoiles rouges représentent les points où AREVA NC (anciennement COGEMA) a, par le passé, mesuré des activités en uranium importantes.

2.3. Méthode d'échantillonnage

2.3.1. Echantillonnage des denrées

Les dates des campagnes de prélèvement ont été contraintes par la saisonnalité des matrices végétales à prélever, notamment celle du blé qui arrive à maturité en juillet. Les prélèvements ont ainsi été réalisés durant les mois de juin et juillet 2010. Les quantités d'échantillons à prélever ont été définies à l'aide des données recueillies par l'IRSN sur les rapports de poids frais sur poids sec et de poids sec sur poids de cendres (tableau 2.2).

	Pf/Ps					Ps/Pc				
	Moyenne	Ecartype	Max	Min	N	Moyenne	Ecartype	Max	Min	N
Œufs	3,8	0,5	4,3	2,3	17	23,8	13,1	58,3	4,0	10
Poulet	2,4	0,6	4,2	2,8	8	22,6	12,7	34,8	5,9	6
Salade	19,1	6,7	39,7	1,0	713	5,2	1,9	58,3	1,5	456
Lait de chèvre*	8,3	1,3	10,6	1,5	83	14,4	7,9	72,1	8,8	60
Lait de vache*	8,2	1,6	27,8	1,1	398	15,7	2,9	50,5	7,4	618
Fromage de chèvre	2,2	0,5	3,2	1,2	49	17,7	5,1	34,6	11,6	43
St Nectaire	1,8	0,2	2,4	1,4	50	17,1	3,3	31,4	12,6	49
Tomme de vache	1,5	0,2	1,7	1,2	7	15,1	2,8	17,7	10,5	6
Blé	1,4	0,6	4,3	1,0	33	31,5	17,2	6,1	67,2	33
Romarin	-	-	1,9	1,8	2	-	-	19,8	16,6	2

Tableau 2.2 : Rapport poids frais sur poids sec (Pf/Ps) et poids sec sur poids de cendres (Ps/Pc) des différents échantillons prélevés depuis 2000 par l'IRSN.
* : Pour les liquides, le rapport volume sur poids sec est utilisé.

Afin d'atteindre les quantités nécessaires aux différentes analyses, les échantillons d'œuf sont composés de sept douzaines d'œufs et les échantillons de volaille de 4 à 5 individus afin d'atteindre une masse fraîche de 10 kg. Les volailles, éviscérées et plumées, ont été achetées dans des fermes locales. Les masses fraiches de salade échantillonnée sont d'environ 3 kg et celles de blé sont comprises entre 2 et 3 kg. Les échantillons de lait représentent un volume de 8 L et ont été prélevés dans des sachets en polypropylène à usage unique. La masse de fromage échantillonnée dépend du type de fromage (frais ou sec) et varie de 1 à 1,5 kg.

2.3.2. Echantillonnage des sols

Les sols sont prélevés à l'aide d'une tarière racinaire de 8 cm de diamètre. Ils sont constitués de huit carottes, ce qui offre l'avantage de se prémunir de la variabilité des activités à l'échelle parcellaire (Pourcelot *et al.*, 2003). Deux carottes de prélèvement sont choisies de façon « raisonnée » en fonction de leur représentativité de l'unité définissant le site. A partir de chaque point de prélèvement dits « raisonnés », deux autres points sont déterminés dans des directions

aléatoires. Les profondeurs de prélèvement de sol varient selon le type de sol échantillonné. Pour les sols cultivés, la profondeur est de 20 cm alors qu'elle n'est que de 5 cm pour les sols non remaniés.

2.3.3. Echantillonnage des nourritures animales

Les prélèvements d'herbes sont effectués à l'aide d'outils tranchant type cisailles et sont conditionnés dans des barquettes aérées. Les prélèvements sont effectués aléatoirement sur la parcelle de pâturage des animaux afin que toutes les espèces végétales présentent soient prélevées. Les échantillons composés de 4 à 5 kg d'herbes fraiches sont ainsi représentatifs de ce que consomme l'animal.
Les prélèvements de fourrage sec et de grains, ont été réalisés avec la contribution des agriculteurs, directement dans les rouleaux de paille et les silos à grains des fermes. Les quantités prélevées atteignent pour le fourrage et les grains 1 kg environ, mais sont très proches de l'état sec.

2.3.4. Prélèvements d'eau

Les échantillons d'eau ont été prélevés dans des bouteilles de 2 L en polyéthylène téréphtalate (PETE). Les récipients sont soigneusement lavés au préalable et sont ensuite conditionnés avec l'échantillon à prélever. Pour les eaux du robinet, un délai suffisant pour permettre l'écoulement de l'eau immobilisée dans les tuyaux est attendu avant le prélèvement de l'échantillon. Aucune filtration, ni acidification n'a été effectuée sur le terrain et dans l'attente du traitement, les échantillons sont entreposés en chambre froide.

3. Préparation des échantillons

La plupart des préparations des échantillons ont été réalisées au Laboratoire d'Etudes Radioécologiques en milieu Continental et Marin (LERCM) de l'IRSN à Cadarache. Les échantillons d'eau ont cependant été directement envoyés aux laboratoires de mesures (figure 2.12), où ils ont été traités sur place. Les traitements de préparation de ces échantillons pour les analyses seront alors décrits dans la partie analyses des échantillons.

3.1. Echantillons organiques

Afin d'obtenir des échantillons de produits alimentaires représentatifs de ce qui est réellement consommés par l'homme certains traitements préliminaires ont été réalisés. En effet, les salades sont effeuillées et lavées sous l'eau du robinet. Pour les échantillons de blé, les tiges sont coupées et retirées afin de conserver uniquement les épis de blé. La séparation grains/enveloppes est très fastidieuse sans le matériel adéquat. Pour cette raison, un seul échantillon de blé a été divisé en grain et enveloppe, tout en conservant une aliquote d'épi entier afin d'obtenir un bilan complet (épis, grains et enveloppes). Les œufs sont cassés un à un afin de séparer les coquilles de leur contenu. Le mélange d'albumen et de jaunes d'œuf est battu afin d'obtenir un mélange bien homogène. Les volailles sont dans un premier temps laissées telles qu'elles et subiront après séchage une étape de séparation des muscles et des os. Les fromages sont découpés en petites portions et les croûtes non comestibles sont retirées. Une fois ces prétraitements effectués, les échantillons sont pesés afin d'obtenir la masse fraîche d'échantillon. Les échantillons sont alors transférés dans des barquettes en aluminium et sont placés à l'étuve à 80°C, jusqu'à dessiccation complète (figure 2.12). La durée de séchage varie d'un échantillon à l'autre en fonction de la nature de la matrice. Une fois la masse sèche stabilisée, celle-ci est notée afin de pouvoir calculer les rapports de poids frais sur poids sec. Les échantillons de volaille sont divisés à ce stade, d'une part en échantillon de muscles et d'autre part en échantillon d'os. Cette étape s'effectue à sec, car la chair se détache plus facilement des os. Les nouvelles masses obtenues sont soigneusement notées. Tous les résidus secs d'échantillons sont ensuite mis au four pour calcination. La montée en température s'effectue par paliers successifs afin d'éviter l'inflammation des échantillons jusqu'à atteindre une température de 480°C (Figure 2.13). Cette combustion par paliers, avec des augmentations de température inférieures à 100°C/h, permet de s'affranchir des pertes de radionucléides au cours de la combustion (Rhis *et al.*, 2011). A la sortie du four, les cendres sont pesées puis broyées à l'aide d'un broyeur à couteaux, jusqu'à l'obtention d'une poudre homogène. Les échantillons sous forme de cendres permettent de concentrer le maximum de matière dans un minimum de volume. Les échantillons sont ensuite conditionnés dans différentes géométries selon le type d'analyse visée. Pour les mesures par spectrométrie γ, ils sont conditionnés dans des boîtes cylindriques plastiques de 60 mL ou 17 mL (à défaut de quantité suffisante pour remplir la 60 mL), caractérisées par de faible taux d'absorption aux rayonnements

gamma, et sont envoyés au Laboratoire de Mesure de la Radioactivité dans l'Environnement (LMRE) de l'IRSN à Orsay. 10 g d'échantillons sont conditionnés en sachets plastiques scellés pour la mesure des isotopes de l'uranium et du thorium au LMRE par ICP-MS (Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry). 10 g d'échantillons de salade et de blé sont également conditionnés en sachets plastiques scellés pour la mesure des isotopes du thorium au Laboratoire d'Hydrologie et de Géochimie de Strasbourg (LHyGeS) de l'université de Strasbourg par MC-ICP-MS (Multi Collection Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry) (figure 2.12).

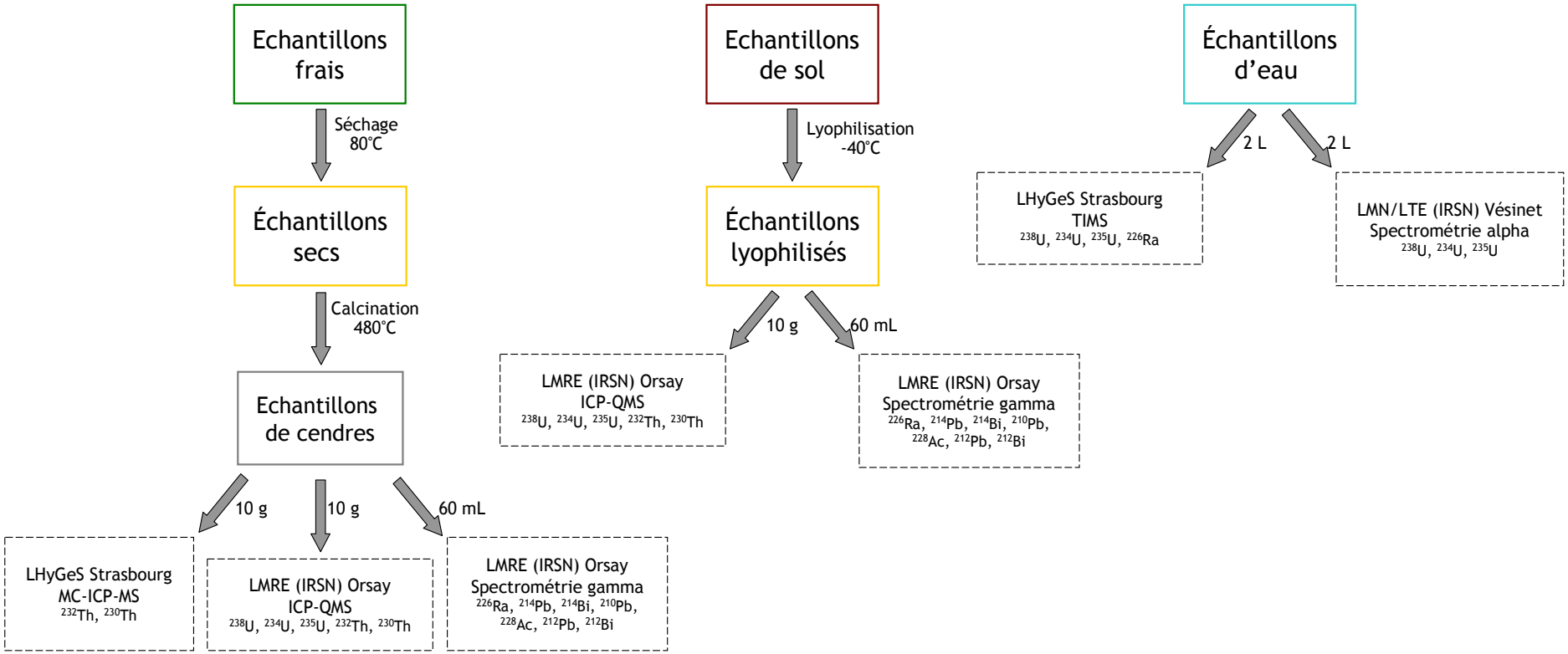


Figure 2.12 : Schéma explicatif des traitements des échantillons organiques.

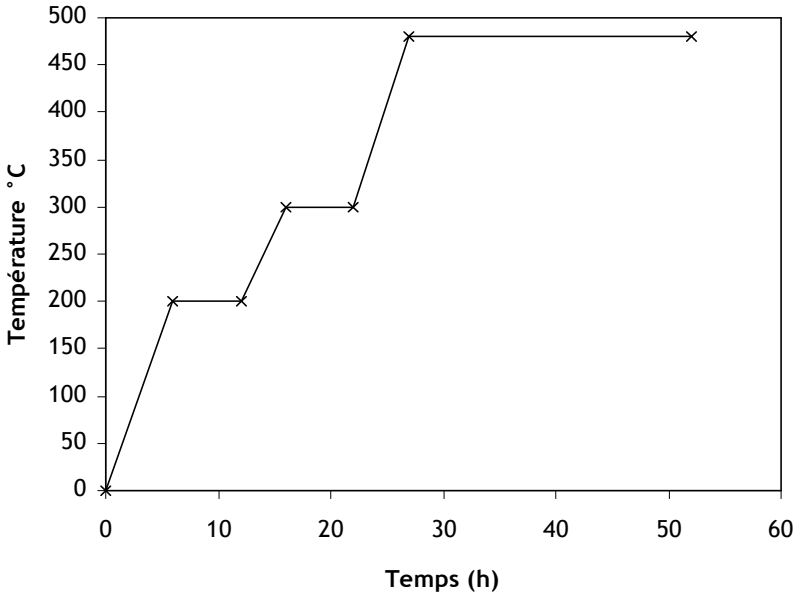


Figure 2.13 : Courbes de température du cycle de calcination.

3.2. Echantillons de sols

Après émottage et quartage, les échantillons de sol sont tamisés à 2 mm. Lors de cette étape, la fraction d'éléments grossiers et de racines est séparée de la terre fine. Les échantillons sont ensuite lyophilisés à -40°C et sont broyés dans un broyeur à couteaux. Ils sont ensuite conditionnés dans une boîte cylindrique plastique de 60 mL pour une mesure par spectrométrie γ au LMRE. Pour la mesure des isotopes de l'uranium et du thorium par ICP-QMS, 10 g de sol sont conditionnés dans des sacs plastiques scellés et sont transmis au LMRE (figure 2.12).

4. Analyses des échantillons

En fonction des activités des isotopes de l'uranium (^{238}U, ^{234}U, ^{235}U), du thorium (^{232}Th, ^{230}Th), et de leurs descendants (^{226}Ra, ^{214}Pb, ^{214}Bi, ^{210}Pb, ^{228}Ra, ^{228}Th, ^{231}Pa, ^{227}Ac) dans les échantillons de produits alimentaires, différentes techniques analytiques sont envisageables. Les techniques qui peuvent être employées pour l'analyse de chacun des radionucléides sont présentées dans le tableau 2.3.

Radionucléide	Spectrométrie γ	Spectrométrie α	Scintillation liquide	Spectrométrie de masse	Fluorimétrie	Emanométrie
^{238}U	*Via* ^{234}Th	X	X	X	X	
^{234}U		X	X	X		
^{230}Th	X	X		X		
^{226}Ra	*Via* ^{214}Pb et ^{214}Bi		X	X		*Via* ^{222}Rn
^{214}Pb	X		X			
^{214}Bi	X		X			
^{210}Pb	X	*Via* ^{210}Po	X			
^{210}Po		X				
^{232}Th		X		X		
^{228}Ra	*Via* ^{228}Ac		X			
^{228}Th	X	X				
^{212}Pb	X					
^{235}U	X	X		X		
^{231}Pa	X	X				
^{227}Ac	*Via* ^{223}Ra et ^{227}Th					
^{227}Th	X	X				

Tableau 2.3 : Techniques utilisables pour l'analyse de chacun des radionucléides. Des commentaires sont mentionnés dans les cases lorsque l'analyse est conduite de façon indirecte à partir de la mesure d'un descendant.

La spectrométrie γ est la technique la plus employée à l'heure actuelle pour la mesure de nombreux radionucléides et elle s'avère très efficace pour les échantillons actifs. La quantification des radionucléides non émetteurs γ (^{238}U, ^{228}Ra, ^{228}Th, ^{227}Ac) ou émetteurs γ de faible intensité d'émission peut être réalisées par l'intermédiaire de leurs descendants à vie courte émetteurs γ, dès lors que l'équilibre radioactif père/fils est atteint, soit environ au bout de dix fois la demi-vie de l'élément fils. Cette alternative peut également s'appliquer aux radionucléides qui émettent un rayonnement γ dans une zone d'interférence avec l'émission de photons d'autres radionucléides.

La spectrométrie α est basée sur la détection des interactions entre les noyaux d'hélium (particules α) et un gaz ou un semi conducteur. Elle présente l'avantage d'atteindre des limites de détection généralement plus basses que celles obtenues en spectrométrie γ. Son principal inconvénient réside dans le fait qu'elle requière au préalable une préparation chimique de l'échantillon qui peut s'avérer assez longue.

Le principe commun à la scintillation liquide et à l'émanométrie est l'excitation d'une substance scintillante par les particules et la quantification de la lumière émise en retour. Ces techniques peuvent être appliquées sans prétraitrement sur les eaux mais requièrent, *a minima*, une dissolution totale des échantillons solides.

La fluorimétrie est une technique radiamétrique qui ne s'applique qu'à la recherche de l'uranium et qui présente des performances relativement restreintes. Elle est généralement utilisée dans le cadre d'analyses non quantitatives pour tester de manière rapide la présence d'uranium en forte concentration.

La spectrométrie de masse permet des dosages pondéraux des radionucléides et la mesure de l'ensemble des isotopes (majeurs et mineurs). Compte tenu de leurs périodes radioactives, les isotopes les plus fréquemment analysés sont ^{238}U et ^{232}Th. Les instrumentations les plus communément utilisées sont l'ICP-MS (Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry), le TIMS (Thermal Ionization Mass Spectrometry) et l'AMS (Accelerator Mass Spectrometry). Parmi les ICP-MS, on peut citer par ordre croissant de précision des rapports isotopiques : les quadrupoles (ICP-QMS) qui sont les plus communs pour l'analyse de routine, les secteurs magnétiques (ICP-SFMS) et les multicollecteurs (MC-ICP-MS) (Pourcelot *et al.*, 2011a).

Parmi toutes les techniques analytiques énoncées ci-dessus, seules les mesures par spectrométrie γ, ICP-QMS, MC-ICP-MS, spectrométrie α et TIMS ont été réalisées et sont décrites en détail dans les paragraphes suivants.

4.1. Mesures des échantillons organiques et des échantillons de sol

4.1.1. Mesure par spectrométrie γ

L'ensemble des mesures par spectrométrie γ a été réalisé au laboratoire de Mesure de la Radioactivité dans l'Environnement (LMRE) de l'IRSN à Orsay, selon les normes NF M60-790-6 et NF ISO 18589-3 et sous accréditation COFRAQ. Ce Laboratoire dispose d'installations de mesures

spécifiques lui permettant de détecter et de quantifier les radionucléides naturels émetteurs γ dans des échantillons de très faibles niveaux de radioactivité (radioactivité massique inférieure à 1 $Bq.g^{-1}$). Le LMRE est équipé de salles de mesure situées au sous-sol du laboratoire sous une dalle de béton de 3 m d'épaisseur. La salle de comptage est entourée d'un blindage constitué d'un mur de briques de plomb de faible activité, de 10 cm d'épaisseur, lui même recouvert de plaques de cuivre électrolytique de 0,5 cm d'épaisseur. Ce dispositif permet de s'affranchir au mieux du rayonnement ambiant. De plus, afin d'éviter l'influence d'un échantillon mesuré sur un détecteur voisin, chaque détecteur est isolé dans une enceinte en plexiglas sous balayage d'azote gazeux. Cette enceinte est installée dans une couronne de plomb de faible activité, de 5 cm d'épaisseur, doublée intérieurement d'un anneau de cuivre électrolytique de 0,7 cm d'épaisseur (Bouisset et Calmet, 1997).

Les échantillons contenus dans les géométries cylindriques sont emballés sous vide afin d'empêcher les émanations de ^{222}Rn à l'extérieur de la géométrie. Les mesures sont effectuées au moins 24 jours après le conditionnement des échantillons. Cette durée correspond à la période nécessaire à la mise à l'équilibre des descendants des isotopes du radon gazeux. En effet, après ce délai correspondant à 6 fois la demi-vie de ^{222}Rn, l'activité de ^{222}Rn est proche de 99% de l'activité de ^{226}Ra. Les raies d'émission utilisées pour la quantification des activités de chaque radionucléide sont données dans le tableau 2.4. La mesure est réalisée par un comptage d'une durée de 80 000 secondes sur un détecteur de cristaux de Germanium de pureté élevée de type N (détecteurs BEGe de Canberra ou détecteurs Profile-FX de Ortec) avec une fenêtre de béryllium de 0,5 mm d'épaisseur. Ces détecteurs de 50% d'efficacité relative à 1,33 MeV ont une résolution de 0,7 keV à 5,9 keV et de 1,8 keV à 1,33 MeV. L'électronique associée est constituée d'un amplificateur Ortec 572 et d'un codeur Silena de type 7411S. Les chaînes de mesure sont étalonnées en efficacité et en résolution, pour chaque géométrie de comptage, à l'aide de sources solides multi-élémentaires. L'acquisition et l'analyse des spectres sont réalisées à l'aide du logiciel GeniePC© commercialisé par la société Canberra. L'incertitude associée aux résultats est donnée avec un facteur d'élargissement de 2 (k = 2) et tient compte de l'incertitude sur le comptage et sur l'étalonnage en efficacité. Cette incertitude dépend principalement de l'incertitude sur l'aire nette du pic. Les limites de détection sont calculées à 2σ suivant la formule décrite par Pinera et Pringent (1990) dans lesquelles une correction d'auto-absorption est incluse.

Radionucléides mesurées	Raie d'émission utilisée
^{238}U par la raie d'émission de ^{234}Th (24,1 j)	63,3 keV
^{234}U	53,2 keV
^{230}Th	67,7 keV
^{226}Ra	186,2 keV
^{214}Pb	295,2 et 351,9 keV
^{214}Bi	609,3 et 1020,3 keV
^{210}Pb	46,5 keV
^{232}Th et ^{228}Ra par les raies d'émission de ^{228}Ac (6,15 h)	911,6 et 969,0 keV
^{228}Th par les raies d'émission de ^{212}Pb (10,6 h)	238,6 keV
^{228}Th par les raies d'émission de ^{212}Bi (1,01 h)	727,1 keV
^{235}U	185,7 keV
^{227}Th	236,0 keV

Tableau 2.4 : Raies d'émission utilisées pour la mesure par spectrométrie γ des activités des principaux radionucléides des chaînes de décroissance de l'uranium et de thorium (keV).

L'activité en ^{234}U est mesurée en utilisant sa propre raie d'émission de 53,2 keV, mais la raie d'émission du ^{214}Pb est très proche et est en général d'intensité 10 fois supérieure. La précision de cette mesure est de ce fait très médiocre (Choukri *et al.*, 2007). L'estimation de l'activité en ^{235}U se fait à partir de son pic d'émission gamma à 185,7 keV, après correction du chevauchement avec la raie d'émission de ^{226}Ra à 186,2 keV. De même, la mesure de ^{226}Ra (186,2 keV) doit être corrigée de ce chevauchement ce qui entraîne de fortes imprécisions. La mesure de ses descendants de courte période à l'équilibre, ^{214}Pb (de demi-vie 26,9 min) et ^{214}Bi (de demi-vie 19,7 min), permet une meilleure estimation de l'activité en ^{226}Ra. En effet, les délais analytiques respectés avant la mesure γ sont suffisamment importants pour permettre la mise à l'équilibre de ^{226}Ra avec ses descendants.

L'activité en ^{232}Th peut être déduite des raies d'émission de son descendant ^{228}Ac de demi-vie 6,15 h. Cependant l'hypothèse d'équilibre séculaire entre ces deux radionucléides n'est pas valable dans les produits alimentaires. En effet, la présence entre ces deux radionucléides de

^{228}Ra, caractérisé par une demi-vie de 5,75 ans et par une forte mobilité liée à sa similarité avec le calcium, va rompre l'équilibre.

L'isotope du thorium, ^{228}Th est obtenu *via* les raies d'émission de ses descendants à l'équilibre, ^{212}Pb de demi-vie 10,6 h et ^{212}Bi de demi-vie 1,01 h. L'équilibre séculaire entre ces radionucléides est atteint au cours du délai analytique de 24 jours, du fait de la faible demi-vie de ^{220}Rn (55,6 secondes) qui est conservé à l'intérieur de la géométrie et décroit rapidement.

Les limites de détection et les incertitudes associées à ces mesures sont présentées dans l'annexe A de ce manuscrit.

4.1.2. Mesure par ICP-QMS

Afin d'obtenir des mesures plus sensibles et précises des isotopes de l'uranium et du thorium, des mesures par ICP-QMS (X Series 2 de ThermoFisher Scientific) ont été réalisées par le laboratoire de Mesure de la Radioactivité dans l'Environnement (LMRE) de l'IRSN à Orsay après mise en solution et purification des échantillons. Les échantillons organiques caractérisés par de faibles activités sont mesurés par cette méthode, de même que les échantillons de sol de culture associés aux échantillons de salade et de blé.

4.1.2.1. Préparation des échantillons

La calcination des échantillons organiques réalisée au LERCM est généralement incomplète pour permettre une bonne dissolution des échantillons. La première étape réalisée au LMRE consiste donc en une nouvelle calcination des cendres, jusqu'à l'obtention de cendres bien blanches dans lesquelles la plupart de la matière organique aura été éliminée. Les températures maximales auxquelles sont calcinés les échantillons atteignent jusqu'à 700°C. Environ 0,5 g d'échantillon sont ensuite spikés avec des solutions certifiées de ^{233}U (UBP10020 de AEA Technology, composée de 99,67% de ^{233}U) et de ^{229}Th (Eckert and Ziegler isotope products, composée de 75,62% de ^{229}Th). La dissolution des échantillons est réalisée dans un DigiPrep Jr System (SCP science®) par minéralisation acide en système ouvert à chaud (température 80°C) sous une hotte aspirante et s'étale sur 3 jours. La première étape s'effectue grâce à l'action d'HNO_3 65% combiné à H_2O_2 et HF. La deuxième étape consiste en une attaque en HF, mais n'est nécessaire que pour certaines matrices difficilement attaquables (certains échantillons de céréales, les échantillons de sol). La dernière étape se fait avec HNO_3 65% et HCl 30% auxquels sont ajoutées quelques gouttes d'H_2O_2. En fin d'étape, les échantillons sont évaporés et sont repris avec HNO_3 3M. Deux aliquotes sont alors séparées, l'une étant destinée à la séparation et à la purification de l'uranium sur colonne UTEVA (Triskem®), l'autre à celle du thorium sur colonne AG1X4 (Bio-Rad®).

Les protocoles détaillés des étapes de séparation et de purification de l'uranium et du thorium sont présentés en annexe B. Tous les acides utilisés dans ces étapes de purification sont supra-purs (Merck®). Dans chaque série de mesure, un échantillon de blanc est réalisé et mesuré. De même, un matériel de référence est régulièrement analysé.

4.1.2.2. Description de la mesure

L'uranium et le thorium sont mesurés à l'aide d'un ICP-QMS (Inductively Coupled Plasma Quadrupole Mass Spectrometer). Le système de détection est composé d'un amplificateur d'électrons. Le système d'introduction de l'échantillon est composé d'une chambre cyclonique et d'un nébuliseur concentrique (Meinhard® ou Arimist®, 400 $\mu L.min^{-1}$). L'acquisition des données se fait par balayage électrostatique en mode peak-jumping. Le biais de masse est précisément mesuré tous les deux échantillons et une correction linéaire est appliquée aux résultats. L'activité de chaque isotope est respectivement calculée à partir des réponses des traceurs internes ^{233}U et ^{229}Th, ajoutés en début de protocole, grâce à des calculs de dilutions isotopiques.

4.1.3. Mesure par MC-ICP-MS

Dans le but d'obtenir des activités précises et de bas niveau d'activité en ^{230}Th, les échantillons de salade et de blé ont été mesurés par spectrométrie de masse à multi collecteur, MC-ICP-MS (Multiple Collector Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometer) Thermo-Finnigan Neptune au Laboratoire d'Hydrologie et de Géochimie de Strasbourg (LHyGeS).

4.1.3.1. Procédure de chimie des échantillons

Selon les activités en ^{238}U obtenues par ICP-QMS, de 0,1 à 1 g d'échantillon sous forme de cendres sont introduits dans des béchers en Téflon® (Savillex®) et sont précisément tracés avec une quantité calibrée de ^{229}Th artificiel pur. L'analyse reproductible d'échantillons nécessite la mise en solution complète de tous les minéraux présents et de la matière organique sans discrimination. La procédure d'attaque des échantillons combine plusieurs étapes successives et utilise l'action complémentaire de cinq acides (acides fluorhydrique, nitrique, perchlorique, chlorhydrique et borique). Une fois l'attaque limpide, les échantillons sont considérés comme étant homogènes chimiquement et isotopiquement. Ils sont alors évaporés à sec à 120°C puis repris deux fois dans 5 mL HNO_3 7,5N et sont centrifugés afin de retirer le précipité formé avant la séparation et la purification du thorium. Le protocole de séparation et de purification du thorium se fait par chromatographie liquide-solide sur résine échangeuse d'ion AG1X8 de 200-400 mesh et a été adapté à partir de protocoles inspirés des travaux de Chabaux *et al.* (1995). Il consiste en 4 étapes qui sont précisément décrites dans l'annexe C de ce manuscrit.

4.1.3.2. Description de la mesure

La technique d'ionisation par plasma permet d'obtenir de bons rendements d'ionisation du thorium grâce à la température élevée du plasma (environ 7 000°C pour une puissance de 1 200 W). Les conséquences directes de cette température élevée sont l'augmentation des interférences isobariques, une moins bonne sensibilité en abondance et un fractionnement de masse plus élevé.

L'utilisation de la technique du standard-bracketing permet de corriger ces erreurs. Cette technique consiste à encadrer la mesure des échantillons par la mesure d'un standard, en corrigeant le rapport de l'échantillon par interpolation linéaire. Le standard utilisé consiste en un mélange ^{229}Th-^{230}Th-^{232}Th élaboré au LHyGeS à partir du standard IRMM-035 Th dont le rapport ^{232}Th/^{230}Th a une valeur certifiée de 87 100 ± 592 et à partir d'une solution de spike de ^{229}Th. Le rapport ^{229}Th/^{230}Th de ce standard « maison » est précisément calibré par TIMS Triton (Thermo Ionization Mass Spectrometer), au LHyGeS, en mode peak-jumping sur le compteur d'ion (SEM). Le rapport isotopique ^{232}Th/^{230}Th et ^{232}Th/^{229}Th des échantillons ainsi que les concentrations en thorium sont mesurés avec 1 mL de solution de 30 à 185 ppb de thorium purifié dans HNO_3 0,5N. La mesure est réalisée en mode multicollection statique en collectant les isotopes ^{230}Th et ^{229}Th sur le compteur d'ion SEM, alors que l'isotope ^{232}Th est mesuré sur une cage de Faraday. La correction des fluctuations du rendement du compteur d'ion est prise en compte dans la correction générale linéaire du biais analytique par la technique du standard-bracketing. Afin d'obtenir des mesures précises de la concentration et de la composition isotopique du thorium, 20 cycles de mesures sont réalisés sur des faisceaux d'ions compris entre 600 et 1 400 cps et 8 000 et 30 000 cps pour ^{230}Th et ^{229}Th. Les précisions internes (2SE) des mesures sont respectivement comprises entre 0,4 et 0,8% et entre 0,1 et 0,5% pour les rapports ^{232}Th/^{230}Th et ^{232}Th/^{229}Th.

Les activités en ^{232}Th et en ^{230}Th dans les échantillons à l'état de cendres, sont calculées à partir du rapport isotopique naturel ^{232}Th/^{230}Th et du rapport isotopique ^{232}Th/^{229}Th mesuré. Au cours de la série de mesure, la précision du rapport isotopique du thorium est contrôlée par 4 analyses de la solution certifiée IRMM036. La moyenne des mesures du rapport ^{232}Th/^{230}Th de cette solution est de 325 067 ± 2 303 en accord avec les valeurs précédemment publiées au LHyGeS (Ma *et al.*, 2012) et dans d'autres laboratoires (Sims *et al.*, 2008) ainsi qu'avec la valeur certifiée de la solution IRMM de 321 200 ± 8 000. Dans cette série de mesures sur les échantillons de blé et de salade, la précision est estimée à moins de 2% pour ^{230}Th et à moins de 1% pour ^{232}Th sur la base du duplicata réalisé sur l'échantillon de blé RV-IZ. Ces incertitudes étant incontestablement plus faibles que celles obtenues par les mesures ICP-QMS, les résultats des activités en ^{232}Th et ^{230}Th obtenus par MC-ICP-MS sont préférentiellement exploités dans la suite du manuscrit.

4.2. Mesures des échantillons d'eau

4.2.1. Mesure par spectrométrie alpha

La mesure des isotopes de l'uranium dans les échantillons d'eau est effectuée en routine par spectrométrie alpha, au Laboratoire de Mesures Nucléaires (LMN) de l'IRSN au Vésinet, en association pour le traitement des échantillons avec le Laboratoire de Traitement des Echantillons (LTE) de l'IRSN.

4.2.1.1. Séparation chimique de l'uranium

Les échantillons d'eau sont acidifiés à leur arrivée au LTE, à l'acide nitrique HNO_3 concentré, afin d'obtenir un pH inférieur à 2. Des prises d'essai d'environ 500 mL d'échantillon sont prélevées pour l'analyse, auxquelles est ajoutée une quantité précise de traceur ^{232}U (solution certifiée A07251 fourni par le National Physics Laboratory of London, UK). L'étape de dissolution de l'échantillon est basée sur l'ajout d'HNO_3 suivi d'une évaporation à sec. Le résidu obtenu est ensuite dissous dans un mélange d'HNO_3 et H_2O_2. La première étape de purification consiste à co-précipiter l'uranium avec $Ca_3(PO_4)_2$ par ajout d'ammoniaque à pH 7-8. Le précipité obtenu est ensuite dissous dans un mélange d'HNO_3 2,5M et $Al(NO_3)_3$ 0,5M. La séparation des isotopes du thorium contenus dans l'échantillon et la purification de l'uranium se fait à travers une résine d'extraction chromatographique spécifique UTEVA (Triskem®) pré conditionnée et lavée en HNO_3 2,5M. Le thorium est éliminé avec HCl 5M alors que l'uranium est élué avec HCl à 0,01M. L'ajout de CeF_3 à l'échantillon conduit à la co-précipitation de l'uranium. Cette réaction se base sur la capacité des isotopes de l'uranium, sous forme tétravalente, à former des précipités avec des terres rares sous forme de fluorures. L'échantillon est alors filtré à 0,1 µm à l'aide d'un filtre Millipore en polypropylène (d = 47 mm) afin de former une fine couche de précipité à la surface du filtre. Les filtres sont ensuite rincés à l'eau, séchés et placés sur un disque en acier inoxydable. Sous cette forme, les échantillons sont prêts pour la mesure par spectrométrie α. Tous les réactifs utilisés au cours de la dissolution et de la purification de l'uranium sont de qualité analytique (Merck®). Dans chaque série analytique, un échantillon de blanc est préparé afin d'évaluer avec précision le bruit de fond. Cet échantillon de blanc est réalisé avec les mêmes réactifs, en remplaçant la prise d'essai de l'échantillon par une prise d'essai d'eau déminéralisée ayant servi à la préparation des réactifs. La séparation chimique est validée par l'analyse d'un matériel de référence certifié, l'échantillon d'eau AIEA-381.

4.2.1.2. Description de la mesure

La mesure isotopique de l'uranium est réalisée sur un appareil à détection de type semi-conducteur (Alpha analyst, Canberra, USA). Le temps de comptage est d'environ 300 000 secondes. L'activité des isotopes est établie à partir de la réponse du standard interne ^{232}U, ajouté au début de la préparation de l'échantillon. Les incertitudes provenant du comptage statistiques des isotopes et du traceur, de l'activité de la solution standard certifiée, du volume de traceur ajouté, du volume d'échantillon et de la détermination du bruit de font sont combinées afin d'obtenir l'incertitude standard. L'incertitude ainsi déterminée est ensuite étendue avec un facteur k = 2.

L'ensemble de cette mesure est réalisé selon la norme NF M60-805-5. Des contrôles de la qualité sont régulièrement réalisés par le biais de la mesure d'échantillons de référence, d'analyses d'échantillon de blanc et par la participation à des exercices d'inter-comparaison tels que l'AIEA 2008-03.

4.2.2. Mesure par TIMS

Afin d'obtenir des résultats plus précis sur les activités des isotopes de l'uranium dans les eaux d'irrigation des salades, des analyses ont été réalisées au LHyGeS par dilution isotopique sur TIMS (Thermo Ionization Mass Spectrometer, Triton de Thermofinnigan à multicollection variable). Cette technique analytique permet également d'obtenir les activités en ^{226}Ra des échantillons après séparation et purification du radium.

4.2.2.1. Préparation des échantillons

Les échantillons d'eau sont filtrés à l'aide d'un filtre en acétate de cellulose de 0,45 µm dans un appareil en téflon préalablement lavé en HCl concentré et à l'eau mQ. L'appareil est conditionné avec environ 400 mL d'échantillon afin de réduire la perte de radionucléides par adsorption aux parois de l'appareil. Les échantillons filtrés sont ensuite acidifiés à un pH voisin de 1 avec HNO_3. De 15 à 700 mL d'échantillon filtré sont spikés avec une quantité calibrée de traceurs purs, ^{233}U et ^{228}Ra, pour la mesure des compositions isotopiques et des concentrations de l'uranium et du radium. Les échantillons sont complètement évaporés à 130°C et sont dissous avec HNO_3 et HCl concentré afin de supprimer la matière organique. La présence de cristaux dans les échantillons engendre une nouvelle étape de dissolution à l'eau régale pure, durant laquelle les échantillons sont chauffés à 120°C pendant 2h. Ils sont ensuite évaporés à sec et sont successivement repris dans 2 fois 200 µL HNO_3 7,5N. Afin d'éliminer les précipités formés, les échantillons sont centrifugés.

4.2.2.2. Séparation et purification de l'uranium et du radium

La séparation et la purification de l'uranium se font sur colonnes chromatographiques échangeuses d'ion AG1x8 (Bio-Rad®) selon les étapes décrites dans l'annexe D. Pour le radium, la procédure se fait selon trois étapes sur colonnes chromatographiques échangeuses d'ions, TEMEX Touzart Matignon 50Wx8 de 200-400 mesh pour les deux premières et Sr-Spec EICHROM® de 50 à 100 µm pour la dernière étape. Le protocole détaillé est également donné en annexe D.

4.2.2.3. Dépôt des échantillons sur filaments

Pour la mesure par TIMS l'uranium et le radium sont déposés sur des filaments de rhénium, préalablement dégazés à 5 A sous un vide de 2×10^{-7} torr plusieurs jours avant le dépôt. Les protocoles suivis pour cette étape sont présentés en annexe D du manuscrit.

4.2.2.4. Description de la mesure

Le spectromètre de masse à thermo ionisation (TIMS) est composé d'une source enfermée dans une enceinte maintenue sous vide. Cette source est elle-même composée d'une partie fixe,

qui comprend la chambre d'ionisation et les plaques d'extraction et de focalisation, et une partie mobile qui constitue le dispositif d'émission. L'ionisation de l'uranium et du radium se produit lors de la montée en température du filament qui précède l'analyse. Les ions produits sont alors accélérés, puis déviés par un champ magnétique produit par un électro-aimant. Après leur passage à travers une fente image fixe, les courants d'ions sont reçus par le système de détection constitué de plusieurs cages de Faraday.

Les concentrations des isotopes de l'uranium et de ^{226}Ra ainsi que les rapports d'activités sont mesurés avec environ 20 ng d'uranium et entre 0,2 et 11 fg de radium. Pour la mesure précise des concentrations en uranium et radium, la technique de dilution isotopique est utilisée. Cette technique consiste à ajouter à l'échantillon, au début de la procédure, une quantité bien déterminée d'un traceur ou spike (^{233}U et ^{228}Ra dans notre cas) dont la composition connue est différente de celle de l'élément que l'on cherche à quantifier. Connaissant précisément la concentration et composition isotopique du spike, la mesure du rapport isotopique du mélange spike échantillon permet de déterminer les concentrations dans l'échantillon. Les concentrations en ^{238}U, ^{234}U, ^{235}U et les rapports $^{234}U/^{238}U$ sont ainsi calculés à partir des rapports isotopiques $^{235}U/^{233}U$ et $^{235}U/^{234}U$ et en se basant sur la valeur naturelle du rapport $^{238}U/^{235}U$ de 137,88, avec les constantes de décroissance suivantes : $\lambda_{238} = 1,551 \times 10^{-10}$ an^{-1} et $\lambda_{234} = 2,826 \times 10^{-6}$ an^{-1} (Akovali, 1994 ; Cheng *et al.*, 2000). Les isotopes ^{233}U, ^{234}U et ^{235}U sont comptés successivement en mono-collection dynamique sur compteur d'ions pendant 200 cycles. Le rapport isotopique $^{238}U/^{235}U$ des eaux est mesuré sur le compteur d'ion (SEM) durant le chauffage du filament. La valeur obtenue correspond à la composition isotopique naturelle à 0,3% d'erreur. Les concentrations en ^{226}Ra sont calculées à partir de la mesure $^{226}Ra/^{228}Ra$ du mélange spike-échantillon, en considérant que la quantité de ^{228}Ra de l'échantillon est négligeable devant la quantité apportée par le spike. La quantité de spike ajoutée est calculée de manière à mesurer environ 20 fg de ^{228}Ra pour un rapport $^{226}Ra/^{228}Ra$ entre 0,5 et 5. La constante de décroissance utilisé pour les calculs ($\lambda_{226} = 4.335 \times 10^{-4}$ an^{-1}) est issue des travaux de Holden (1990). La mesure du rapport $^{226}Ra/^{228}Ra$ est réalisée en mono-collection dynamique sur compteur d'ion (SEM). Le filament est chauffé lentement à 1,8 A pendant 30 minutes, puis lentement jusqu'à 1 270 – 1 300°C de manière à éliminer les interférences dues aux masses organiques. A cette température, l'ionisation du radium est optimale et offre un bon compromis entre le niveau de signal et sa stabilité. 200 cycles de mesures sont réalisés sur des faisceaux d'ion compris entre 50 et 200 cps suivant la richesse de l'échantillon.

La précision et la justesse des activités de l'uranium mesurées ont été déterminées par le biais de la mesure de la solution standard HU1 (Cheng *et al.*, 2000). Les incertitudes analytiques sont estimées à moins de 2% pour la détermination de la composition isotopique (^{238}U, ^{234}U, ^{235}U et ^{226}Ra) et à environ 0,5% pour le rapport d'activités $^{234}U/^{238}U$. L'échantillon d'eau provenant du site MC est associé à une incertitude plus importante d'environ 15% du fait de la faible quantité de radium mesurée.

L'étude *in-situ* du transfert des radionucléides naturels aux denrées se base sur la caractérisation géologique des sites de prélèvements et sur des critères de traçabilité des exploitations agricoles. Le choix des matrices prélevées a été effectué en fonction du régime alimentaire français et comprend différents types d'aliments (céréales, légumes, viandes, produits laitiers).

Afin de caractériser l'ensemble des radionucléides des chaînes de décroissance de l'uranium et du thorium, plusieurs techniques analytiques ont été employées. La performance et les limites de chaque technique analytique sont présentées dans le chapitre 5 de ce manuscrit. Le nombre d'échantillon ayant donné des résultats significatifs, les limites de détection et les incertitudes sur les mesures sont renseignés en annexe A pour chaque radionucléide et chaque type d'échantillon.

Tous les résultats ayant été obtenus sont présentées en annexe E du manuscrit.

Chapitre 3 : Transferts des radionucléides naturels aux végétaux

Ce chapitre présente l'étude sur les transferts des radionucléides naturels aux végétaux qui a été soumise dans *Journal of Environmental Monitoring* sous le titre « Contribution of uranium, thorium and decay products in soil, water and atmospheric particles, to the activity concentration in lettuce and wheat samples. ». Cet article traite de la variabilité des activités de l'uranium, du thorium et de leurs descendants dans des échantillons de salades et de blé issus de cinq régions de France. Cet article s'attache ensuite à l'étude des transferts des radionucléides à ces matrices en tenant compte des sources potentielles de radionucléides (sol, eau d'irrigation, particules atmosphériques, particules de sol).

Contribution of uranium, thorium and decay products in soil, water and atmospheric particles, to the activity concentration in lettuce and wheat samples.

M. Jeambrun[a,b], L. Pourcelot[a], C. Mercat[c], B. Boulet[d], E. Pelt[b], F. Chabaux[b], X. Cagnat[d], F. Gauthier-Lafaye[b].

[a] Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire, Bat 153 BP3 13115 St Paul lez Durance cedex, France ;
marion.jeambrun@irsn.fr; laurent.pourcelot@irsn.fr
[b] Université de Strasbourg, LHyGeS, 1 rue Blessig 67000 Strasbourg, France ;
fgl@unistra.fr; epelt@unistra.fr; fchabaux@unistra.fr
[c] AREVA NC, BP44 26701 Pierrelatte Cedex, France ;
catherine.mercat@areva.com
[d] Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire, Bat 501 Bois des Rames 91400 Orsay, France ;
beatrice.boulet@irsn.fr; xavier.cagnat@irsn.fr

Abstract

The activity concentrations of radionuclides within the uranium and thorium series were determined in wheat and lettuce at five sites in France, and in their potential respective sources: crop soils of wheat and crop soils and irrigation waters of lettuce. These data were used to calculate concentration ratios and to enrich the database supported by technical report series N°472 of the IAEA (2010). For wheat and lettuce, the activity concentrations were in the same range for all radionuclides studied, except for ^{210}Pb, which had higher activity concentrations in wheat, ranging between 1.3 and 11 Bq.kg^{-1} (fresh weight) as compared to 0.4 and 0.7 Bq.kg^{-1} (fresh weight) for lettuce. For wheat, the range of activity concentrations (mBq.kg^{-1}; fresh weight) decreased as ^{210}Pb > ^{226}Ra (56-1511) ≈ ^{228}Ra (86-769) > ^{228}Th (19-176) ≈ ^{238}U (11-169) ≈ ^{234}U (12-150) ≈ ^{230}Th (9.08-197.18) ≈ ^{232}Th (8.61-121.45) > ^{235}U (0.53-7.9). For lettuce, it decreased as ^{228}Ra (< 320-1221) > ^{210}Pb (409-746) > ^{226}Ra (30-599) ≈ ^{228}Th (<29-347) > ^{238}U (8-120) ≈ ^{234}U (8-121) ≈ ^{230}Th (5.21-134.63) ≈ ^{232}Th (5.25-156.99) > ^{235}U (0.35-5.63). The species differences may reflect different plant physiologies. The study of activity ratios of wheat and lettuce in relation with those of the various radionuclide sources allowed an explanation of disequilibrium within the decay series. Moreover, the soil-to-plant transfer factors were calculated for lettuce and wheat. The values were lower in wheat than in lettuce except for ^{210}Pb which had similar values in the two species (0.11 - 0.13 respectively). For both species, ^{210}Pb followed by ^{228}Ra (0.015 - 0.10) and ^{226}Ra (0.010 - 0.051) displayed the highest transfer factor, whereas ^{238}U had intermediate values (0.0015 – 0.030) and ^{232}Th exhibited the lowest (0.0014 - 0.013).

Keywords: Uranium, thorium, Natural Radionuclides, Activity concentration, Lettuce, Wheat, Water, Soil, Transfer factors.

1. Introduction

The wide variability of geological rocks at the surface of the Earth generates a wide range of variability of natural radionuclides in soils[1]. Granitic areas may present high concentrations of these elements; whereas, sedimentary areas are often characterized by low concentrations of radionuclides. The radionuclides in the soils are incorporated into plants by metabolic processes, transferred to animals and human *via* the food chain, and can thus represent a source of internal radiation for human. Regional differences thus exist in the amount of exposure that people receive from the ingestion pathway.

Cereals and vegetables are fundamental foods in many countries all over the world. Among cereals, wheat is the second most cultivated crop on earth, after rice, with a harvested area of 216 MHa and a production of 650 Mt during 2010[2]. Lettuce is one of the most consumed vegetables, after tomatoes and onions, with a production of 24 Mt and a harvested area of 1 MHa during 2010. The interest of a radioecological study of wheat and lettuce focuses on their different characteristics,

namely their various growth periods influencing their exposure duration and their different physiologies and morphologies. Several studies in the literature provide information on the radioactivity of these foodstuffs from low radioactive background areas from different countries[3-12]. The reported values of the ^{238}U activity concentrations in lettuce and in wheat ranged from 4.1 to 45 and from 1.6 to 40 $mBq.kg^{-1}$ fresh weight respectively. Unfortunately, in most of these studies the radionuclide sources were not analysed, preventing the assessment of source contribution to the activity concentrations measured in plant samples. However, in other works the soil was considered and thus transfer factors (TF: ratio between the activity concentration in the plant and the activity concentration in soil) were calculated. The technical report series N°472 of IAEA[13] compiled 59 sources for cereals and 108 sources for leafy vegetables, allowing the creation of an expanded database. For a wider use, plant species were grouped leading to a wide range of TFs. For example, the uranium TF for cereals ranged from $1.6x10^{-4}$ to $8.2x10^{-1}$ and from $7.8x10^{-5}$ to 8.8 for leafy vegetables, confirming that the uptake of radionuclides in terrestrial plants is largely dependant on the plant type[14].

The first objective of this work was to improve our knowledge on the range of activity concentration values in lettuce and wheat samples in France, and to determine the contribution of the radionuclide sources (irrigation water, soils, and atmospheric particles). In this way, the activity concentrations of uranium, thorium and their decay products were determined in lettuce and wheat from five different regions in France. The selected regions were distinguished by their various geological characteristics (granitic, volcanic and sedimentary areas). Moreover, one of these sites is located in the area influenced by releases of the nuclear fuel fabrication facility of Tricastin (Rhône Valley). It was selected to estimate the potential influence of the discharges relative to natural variability. The activity concentrations of the crop soils of wheat and lettuce and the irrigation waters used for lettuce were determined and their relative contributions to the total activity concentration of plants were discussed. Finally, the concentration measured in soils permitted the assessment of soil-to-plant transfer factors and their comparison with the literature data.

2. Materials and methods

2.1. Studied sites and sampling strategy

To cover the variability of uranium activity concentrations in French soils, five sites were selected according to their geological background. The first site, consisting of a granite bedrock, was located in the Vosges Mountains (VM); the second site (W-MC), characterized by a substrate of leucogranites was located in the western part of the Massif Central. The third site (MC), in the central part of the Massif Central is characterized by a volcanic substrate. The last two sites were in the Rhône Valley which is an alluvial region (Figure 1). The difference between these last two sites is based on the potential influence of the nuclear fuel fabrication facility at Tricastin, where conversion and enrichment of uranium is made. The site RV-IZ is located under the dominant winds of the nuclear

facility and the other site RV-NIZ is out of the atmospheric influence. During the summer of 2010, lettuce and wheat were sampled on each site as well as crop soils and irrigation waters for the lettuce. The sampling was done in different farms and therefore we cannot ensure that the sowing period of plants was exactly the same, nevertheless all samples were collected at plant maturity. The farms selected for the sampling practiced organic agriculture, thus crops were free from chemical treatments. Soil samples were composed of eight soil cores of 20 cm depth randomly collected in the fields. Water samples of two litters were collected in bottles which were preconditioned with the sampled water. They consisted of tap water for the sites VM and W-MC, well water for the sites RV-IZ and RV-NIZ, and surface water from a basin for site MC.

2.2. Sample preparation

All sample preparation occured in the Laboratoire d'Etudes Radioécologiques en milieu Continental et Marin (LERCM) of the Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucleaire (IRSN). Lettuce leaves were separated from the non-edible part, washed with tap water to prevent external contamination from soil and atmospheric deposition, and weighing. The stems of the wheat samples were removed, only the ears were kept. Samples were dried at 80°C, weighed and ashed at 480°C. Calcination was carefully controlled with stepwise increase of temperature up to 480°C during around 24 hours followed by around 24 hours at 480°C. Calcination occurred with sufficient oxygenation to prevent any losses of uranium, thorium and radium from uncompleted combustion products lost with fumes[15]. The ash samples were weighed again and homogenized before analysis. Soil samples were sieved at 2 mm and lyophilized. Then they were crushed into a fine powder and homogenized. Water samples were treated in the Laboratoire d'Hydrologie et de Geochimie de Strabsourg (LHyGeS) of Strasbourg University. They were filtrated with 0.45 µm cellulose acetate filters in a Teflon® apparatus previously cleaned in HCl and mQ water and conditioned with 400 mL of sample water to reduce losses of nuclides from surface adsorption. Filtrated samples were acidified with HNO_3 at pH ~ 1.

2.3. Sample analysis

In order to determine radionuclide concentrations, various analyses were performed. The activity concentrations in lettuce, wheat and soil samples were measured by inductively coupled plasma quadrupole mass spectrometer (ICP-QMS) in order to obtain the activity concentrations of uranium and thorium isotopes, and by gamma spectrometry to get the activity concentrations of the decay products (^{228}Ra, ^{228}Th, ^{226}Ra, ^{210}Pb). Unfortunately ICP-QMS was not adapted to detect the activity concentration of ^{230}Th in lettuce and wheat samples, all results being close to the limit of quantification (327 mBq.kg^{-1} f.w), so this radionuclide was obtained with Multi Collector Inductively Coupled plasma Mass Spectrometry (MC-ICP-MS) by isotopic dilution. All these analyses were performed at the Laboratoire de Mesures de la Radioactivité dans l'environnement (LMRE) of IRSN except the MC-ICP-MS measurements which were performed at the LHyGeS. The water samples

were measured by Thermal Ionization Mass Spectrometry (TIMS) using isotopic dilution technique to get uranium isotopes and radium concentrations, at the LHyGeS.

2.3.1. Concentration measurements in wheat, lettuce and soil samples

Isotopic analyses of uranium and thorium in lettuce, wheat and soil samples were performed by ICP-QMS (X Series 2 from Thermo Fisher Scientific) after sample digestion and purification. Details concerning the analytical procedure were described elsewhere[16]. For soil samples and some of the wheat samples, the digestion differed from that applied to lettuce samples. A step of digestion with 40% HF was added. ICP-QMS gave significant results for ^{238}U, ^{234}U, ^{235}U and ^{232}Th in lettuce and wheat samples. The uncertainties of these measurements ranged from 10 to 25 %. In soil samples, the results obtained for ^{232}Th and ^{230}Th presented high uncertainty (from 15 to 45 % and from 35 to 50 %, respectively). Moreover part of the thorium in soil was located inside the mineral complex (heavy minerals such as thorites, monazites and zircons) and it is very difficult to ensure the total dissolution of all the mineral phases. Thus, in order to get the real activity concentration of ^{232}Th in soil, it was estimated by its decay product ^{228}Ac, assumed to be in secular equilibrium and measured by gamma spectrometry. Due to the high uncertainties of ^{230}Th results in soils, the activity concentrations obtained by ICP-QMS were not presented and exploited here.

In order to obtain the activity of ^{230}Th in lettuce and wheat, samples were analysed by MC-ICP-MS. From 0.1 to 1 g of the ash samples were spiked with a calibrated quantity of pure artificial ^{229}Th and were then digested in Teflon® beakers following 4 steps of acidic digestion (HF-HNO_3, $HClO_4$, king water, HCl-H_3BO_3) to achieve a complete dissolution and sample-spike equilibration. Samples were centrifuged to remove precipitates before thorium extraction and purification using standard anion exchange AG1x8 of 200-400 mesh. The whole procedure was developed at the LHyGeS and was described by Granet *et al.*[17] and Pelt *et al.*[18]. $^{232}Th/^{230}Th$ and $^{232}Th/^{229}Th$ isotopic ratios were analysed with 1 mL of 30 to 185 ppb of purified thorium in 0.5N HNO_3, on a MC-ICP-MS Thermo-Finnigan Neptune. ^{230}Th and ^{229}Th were measured on the central SEM detector whereas ^{232}Th was measured on Faraday cups using 2 sequences by static collection mode. The internal precisions (2SE) of sample measurements were between 0.4-0.8% and 0.1-0.5% for $^{232}Th/^{230}Th$ and $^{232}Th/^{229}Th$ ratios, respectively. Typical ion beams were 600-1400 cps and 8000-30000 cps for ^{230}Th and ^{229}Th, respectively. The standard-sample bracketing method was used to correct for a global measurement bias factor encompassing mass fractionation and the yield of the ion counter with an in-house ^{229}Th-^{230}Th-^{232}Th standard. The in-house standard was made from a mixture of the IRMM-035 Th standard with a certified value of $^{232}Th/^{230}Th$ = 87100 ± 592, and a ^{229}Th spike solution. The $^{229}Th/^{230}Th$ ratio of the in-house standard was precisely calibrated on the TIMS Triton using a peak jumping mode on the SEM. ^{232}Th and ^{230}Th activity concentrations in ash samples were calculated from measured $^{232}Th/^{230}Th$ natural isotopic ratios and $^{232}Th/^{229}Th$ isotopic ratios. During the measurement session, the precision and accuracy of thorium natural isotopic ratio measurements were checked by 4 analyses of the certified IRMM036 solution. The mean of measurements gave $^{232}Th/^{230}Th$ = 325067 ±

2303 consistent with previously published values from the same laboratory[19], with other laboratories[20] and with the IRMM certified value of 321200 ± 8000. The precision and accuracy of ^{232}Th content determination by isotope dilution by MC-ICP-MS was previously checked with the BEN rock standard[19] and precision was estimated here for ^{230}Th and ^{232}Th activity concentrations in wheat and lettuce ash samples to be better than 2% for ^{230}Th and 1% for ^{232}Th, on the basis of one ash sample replicate (RV-IZ). This precision being lowest than the one obtained by ICP-QMS for wheat and lettuce, the results of ^{232}Th activity concentration obtained by MC-ICP-MS were used instead of ICP-QMS results.

The decay products of uranium and thorium were measured by gamma spectrometry following the procedure described in Jeambrun *et al.*[16]. This measurement was used to determine activity concentrations of ^{226}Ra, ^{214}Pb, ^{214}Bi, ^{210}Pb (daughters of ^{238}U), ^{228}Ac, ^{212}Pb and ^{208}Tl (daughters of ^{232}Th). The ^{226}Ra concentration determined by gamma spectrometry was associated with a large uncertainty, but measurements of ^{214}Bi and ^{214}Pb, in equilibrium with ^{226}Ra, allowed a better estimation of the distribution of ^{226}Ra. ^{228}Ac and ^{212}Pb were also in equilibrium with their parents, ^{228}Ra and ^{228}Th. In this study, the activity concentrations of ^{228}Ra, ^{228}Th and ^{226}Ra in all the samples were deduced from the activities of their decay products, ^{228}Ac, ^{212}Pb and ^{214}Pb respectively.

2.3.2. Concentration measurements in water samples.

In water samples, the activity being low, isotopic analysis of uranium and radium were performed by isotopic dilution using TIMS (Triton of THERMOFINNIGAN multicollection variable). From 15 to 700 mL of the filtrated water samples were spiked with a calibrated quantity of pure ^{233}U and ^{228}Ra tracers for the measurements of uranium and radium isotopic compositions and concentrations. The samples were completely evaporated at 130°C and were dissolved with concentrated HNO_3 and HCl acids to remove organics. Precipitates were centrifuged before the introduction in ion exchange chromatography column for separation and purification of uranium and radium. The entire procedure was developed at the LHyGeS. Separation and purification of uranium were described by Granet *et al.*[17] and Pelt *et al.*[18] and the ones of radium was adapted from Chabaux *et al.*[21] and presented in Pelt *et al.*[22]. Concentrations of uranium isotopes and ^{226}Ra and the uranium activity ratios were analysed using around 20 ng of uranium and between 0.2 and 11 fg of radium. ^{238}U, ^{234}U and ^{235}U concentrations and ^{234}U/^{238}U activity concentration ratio were calculated using the measured ^{235}U/^{233}U and ^{235}U/^{234}U isotopic ratios and assuming a natural and constant ^{238}U/^{235}U ratio of 137.88, with the following decay constants: $\lambda_{238} = 1.551 \times 10^{-10}$ yr^{-1} and $\lambda_{234} = 2.826 \times 10^{-6}$ yr^{-1} [23,24]. The ^{238}U/^{235}U isotopic ratio of waters was measured on SEM during warm-up of filament and was of natural isotopic composition within 0.3% error. The ^{226}Ra content was calculated by classical isotopic dilution equation using the measured ^{226}Ra/^{228}Ra ratio of the sample-spike mixture, the spike and assuming a negligible ^{228}Ra from waters with respect to the spike. The decay constant used was: $\lambda_{226} = 4.335 \times 10^{-4}$ yr^{-1} from Holden[25]. The precision and accuracy of the uranium activity ratios were determined from analyses of the HU1 standard solution[24]. Analytical uncertainties based

on repeated standard solution and samples were estimated to be better than 2% for isotopic content determination (^{238}U, ^{234}U, ^{235}U and ^{226}Ra) and around 0.5% for $^{234}U/^{238}U$ activity ratios. Water sample from MC was associated with highest uncertainty around 15% due to the low quantity of radium analysed (0.2 fg).

3. Results

The activity concentrations are given relatively to fresh weights (f.w) for lettuce and wheat, and to dry mass (d.m) for soils. The activity concentrations for water are expressed in $Bq.L^{-1}$.

3.1. Activity concentrations of uranium, thorium and some decay products in plants

Activity concentrations of ^{238}U, ^{230}Th, ^{226}Ra, ^{210}Pb, ^{232}Th, ^{228}Ra and ^{228}Th in lettuce and wheat samples collected in the five regions of France are given in table 1 with the values of $^{234}U/^{238}U$ activity ratios and $^{235}U_m/^{238}U_m$ mass ratios. For all radionuclides the activity concentrations showed high variability of around one order of magnitude among sites. Indeed the activity concentration of ^{238}U ranged from 11 to 169 $mBq.kg^{-1}$ in wheat and from 8 to 120 $mBq.kg^{-1}$ in lettuce. There was no noteworthy difference between the activity concentrations in lettuce and wheat samples. In all samples, uranium was in radioactive equilibrium ($^{234}U/^{238}U=1$) except in two lettuce samples (RV-NIZ and MC) which had a ratio higher than unity. The $^{235}U_m/^{238}U_m$ mass ratio gave the natural value (0.72 %) for all samples considering the uncertainties. Nevertheless, the artificial isotope of uranium, ^{236}U, was detected in one sample of wheat collected near the nuclear fuel fabrication site of Tricastin (RV-IZ) (0.05 ± 0.03 $mBq.kg^{-1}$) and the $^{236}U_m/^{238}U_m$ mass ratio gave a value of $2.28 \times 10^{-5} \pm 0.83 \times 10^{-5}$. The abundance of this radionuclide is not significant in natural environment $^{236}U_m/^{238}U_m \approx 10^{-14}$, in contrast to when it is formed as a result of neutron capture during irradiation in nuclear reactors where its abundance is significantly higher ($^{236}U_m/^{238}U_m$ from 10^{-4} to 10^{-2})[26-28]. ^{230}Th, a decay product of ^{238}U, was close to equilibrium with its parent in wheat samples, within uncertainties. In lettuce ^{230}Th appeared to be in secular equilibrium with ^{238}U in two samples, whereas others indicated a depletion of ^{230}Th. The activity concentration of ^{226}Ra exceeded that of ^{238}U in all wheat samples with values of $^{226}Ra/^{238}U$ ratio ranging from 4 to 22. However, lower ratios were noticeable in lettuce samples where the values of $^{226}Ra/^{238}U$ ratio were close to 4 in three samples and close to 1 in the two others. Of all the radionuclides studied, ^{210}Pb had the highest activity concentrations (from 1261 to 11205 $mBq.kg^{-1}$ in wheat and from 409 to 746 $mBq.kg^{-1}$ in lettuce). It was clearly enriched compared to its parent ^{226}Ra in wheat samples (from 6 to 43 fold), whereas this enrichment was less pronounced in lettuce (from 1.2 to 7.4 fold). This radionuclide, a decay product of gaseous ^{222}Rn, is found in excess in atmospheric particles that settle on plant surface and is enriched in the plant compared to the other decay products due to a translocation mechanism[29]. The measured ^{210}Pb activity concentration in plants ($^{210}Pb_{tot}$) is thus the combination of ^{210}Pb supported ($^{210}Pb_{sup}$) i.e. coming from the decay of ^{226}Ra and so in secular equilibrium, and

^{210}Pb supplied by atmospheric particle deposition. The diagram in figure 2 presents the $^{210}Pb_{tot}/^{210}Pb_{sup}$ activity ratio versus the $^{210}Pb_{sup}$ activity concentration in wheat and lettuce samples. It can be seen that even for wheat samples with high $^{210}Pb_{sup}$, the contribution of atmospheric particles to $^{210}Pb_{tot}$ was important, whereas for lettuce this trend was not clear.
The ^{232}Th activity concentration was close to that of ^{238}U in both matrices, with values ranging from 8.61 to 121.45 mBq.kg^{-1} for wheat and from 5.25 to 156.99 mBq.kg^{-1} for lettuce. The activity concentration of ^{228}Ra was higher than that of ^{232}Th in all cases with values of $^{228}Ra/^{232}Th$ ratio ranging from 5 to 28 in wheat and from 4 to 8 in lettuce. Similarly, the activity concentration of ^{228}Th was also higher than that of ^{232}Th, with a $^{228}Th/^{232}Th$ ratio ranging from 1.4 to 5.8 in wheat and from 1.5 to 2.2 in lettuce with an exception in one lettuce sample where the ratio was 0.8 ± 0.3. This enrichment of ^{228}Th compared to ^{232}Th has already been demonstrated by Pietrzak-Flis *et al.*[30] and was explained by the ingrowth of this radionuclide following the decay of ^{228}Ra which is added to the direct intake of ^{228}Th. Nevertheless, ^{228}Ra had always higher activity concentrations compared to ^{228}Th due to the lower mobility of thorium. Thus, the range of activity concentrations for wheat decreased as $^{210}Pb > ^{226}Ra \approx ^{228}Ra > ^{228}Th \approx ^{238}U \approx ^{234}U \approx ^{230}Th \approx ^{232}Th > ^{235}U$, whereas for lettuce, it decreased as $^{228}Ra > ^{210}Pb > ^{226}Ra \approx ^{228}Th > ^{238}U \approx ^{234}U \approx ^{230}Th \approx ^{232}Th > ^{235}U$ which was slightly different.

For all the radionuclides within the ^{238}U decay series, the highest activity concentrations were observed in wheat collected at the western part of the Massif Central (W-MC), whereas for ^{232}Th decay series, they were found in lettuce from the Vosges Mountain (VM). The lowest activity concentrations were observed in lettuce and wheat samples from the Rhone Valley (RV-IZ and RV-NIZ). The activity concentrations measured in lettuces from these areas were in the range of the values reported in the literature for low background areas (table 2)[4-7,9]. The results presented by Anke *et al.*[3], Pietrzak-Flis *et al.*[8] and Garcia *et al.*[6] were in good agreement only with the values measured in the lettuce sample from RV-NIZ. The lettuce sample MC presented unusually high activity concentrations of uranium isotopes which were above the literature range, whereas the activity concentrations of the other radionuclides were in the range of the published data. For wheat samples from low background areas the values were higher than the ones presented by Anke *et al.*[3] but they were in the range of other data from literature (table 3)[5,10-12]. The highest activity concentrations measured in this study were higher than the values reported in international literature in high background areas[30,11]. However, they were lower than the range of activity concentration measured by Pourcelot *et al.*[31] in wheat and lettuce from an area near a uranium conversion plant. Carvalho *et al.*[32] also found higher activity concentrations in lettuce from an area near a former uranium mine.

3.2. Activity concentrations of uranium, thorium and some decay products in radionuclide sources

The activity concentrations in the crop soils of wheat and lettuce are presented in table 4. As expected, the lowest activity concentrations were measured in the soil from the Rhône Valley where the activity concentrations in lettuce and wheat were the lowest. Moreover, the highest concentrations were measured in soils from site W-MC for the ^{238}U decay series, and in soils from site VM for the ^{232}Th decay series. These soils correspond to the lettuce and the wheat samples with the highest concentrations. The ^{238}U activity concentration in soils ranged from 11 to 112 $Bq.kg^{-1}$. $^{234}U/^{238}U$ concentration ratios obtained by ICP-QMS were close to one in all samples. No isotopic anomaly was found in the soil, since $^{235}U_m/^{238}U_m$ mass ratio gave the natural value (0.72 %). Nevertheless, ^{236}U was detected in the soil sample coming from the wheat field of site RV-IZ (0.034 ± 0.013 $Bq.kg^{-1}$) where ^{236}U was also detected in the wheat sample. ^{226}Ra was in slight excess compared to ^{238}U. This enrichment in soils has been observed before[33,34]. The ^{210}Pb, a decay product of the gaseous radionuclide ^{222}Ra, was present in the soil and often in excess compared to ^{238}U with $^{210}Pb/^{238}U$ concentration ratios ranging between 0.9 ± 0.1 and 2.5 ± 0.4. This enrichment is well known and is explained by the different sources of ^{210}Pb in soil: the "supported" ^{210}Pb generated from the decay of ^{238}U in soil and the "unsupported" derived from the atmosphere through wet and dry deposition[35]. The activity concentration of ^{232}Th in soils ranged between 11 and 160 $Bq.kg^{-1}$. Most of the soils presented slightly higher concentrations of ^{232}Th compared to ^{238}U, except the soil of the W-MC area which had an excess of ^{238}U compared to ^{232}Th.

The activity concentrations of uranium isotopes and ^{226}Ra in water used for lettuce irrigation are presented in table 5. Among the samples, those coming from wells and basin (RV-IZ, RV-NIZ and MC) had activity concentrations of ^{238}U higher than 30 $mBq.L^{-1}$ whereas samples from tap water (VM and W-MC) had ^{238}U concentrations of 0.156 and 0.501 $mBq.L^{-1}$. These lower values could be due to various treatments performed to make drinking water, and more particularly the colloid flocculation which aimed to reduce the colloid amount in water. High ^{238}U activity concentrations in water samples RV-IZ, RV-NIZ and MC, could be linked to the higher amount of colloids in water from wells and basin. In all samples, $^{234}U/^{238}U$ concentration ratios were higher than one. Enrichment of ^{234}U compared to ^{238}U in water is a well known phenomenon. This reflects the process of α-recoil during the ^{238}U decay which leads to high $^{234}U/^{238}U$ ratio in waters[36]. No isotopic anomaly was detected in the water samples since $^{235}U_m/^{238}U_m$ gave the natural value (0.72 %) for all samples. ^{226}Ra activity concentrations measured in water samples ranged between 0.409 and 4.893 $mBq.L^{-1}$. The highest ^{226}Ra activity concentrations were also found in the water samples presenting the highest ^{238}U activity concentrations (RV-IZ, RV-NIZ and MC). However, the differences between tap waters (VM and W-MC) and well and basin waters (RV-IZ, RV-NIZ and MC) were less distinct reflecting a lower influence of the colloids on ^{226}Ra activity concentration in water. Samples with high ^{238}U activity concentrations were characterised by a depletion of ^{226}Ra compared to ^{238}U with $^{226}Ra/^{238}U$ ratios

ranging from 0.018 to 0.106. The others samples (VM and W-MC) had higher concentrations of ^{226}Ra compared to ^{238}U with $^{226}Ra/^{238}U$ ratio of 1.225 and 2.627 respectively.

4. Discussion

4.1. Correlation between the concentrations of radionuclides in wheat and in the radionuclide sources

Figure 3 illustrates the $^{238}U/^{232}Th$ ratio of activity concentrations in wheat samples versus the one measured in the corresponding soils. Most of the wheat samples displayed ratio higher than the ratio of their corresponding soil. This could reflect the preferential uptake of uranium by wheat compared to thorium. The wheat and soil samples from W-MC showed some peculiarities; indeed $^{238}U/^{232}Th$ ratio measured in the soil was relatively high compared to the other soils and the ratio in wheat sample was significantly lower than the one of soil. This could be due to a significant proportion of ^{238}U contained in refractory minerals such as heavy minerals which remain unavailable for wheat uptake. The fact that some samples, such as VM wheat for example, lie closer to the straight line of slope one (implying close $^{238}U/^{232}Th$ ratios in both studied compartments) would mean that adhesion of soil particles may influence activity concentration in wheat.
The $^{226}Ra/^{238}U$ ratio of activity concentration in wheat samples versus the same ratio in soil is presented in the figure 4. High ratios were found in all the wheat samples (from 3.5 to 22), nevertheless we can also see that the samples VM and MC also lie closer to the straight line of slope one and present the lowest ratio (4.4 and 3.5 respectively). This could confirm the influence of soil particle adhesion on these wheat samples. For the other wheat samples, RV-NIZ, RV-IZ and W-MC the high ratios could be due to a preferential uptake of ^{226}Ra by root uptake.

In the previous section, it was demonstrated that wheat samples were subjected to atmospheric particle deposition and thus were enriched in ^{210}Pb compared to its parent ^{226}Ra. The high values of $^{210}Pb_{tot}/^{210}Pb_{sup}$ (figure 2) were probably due to the long period of wheat growth (several months) and to the presence of long awns (several centimetres) on the wheat ears which can trap the atmospheric particles. The contribution of atmospheric particle deposition was also highlighted by the comparison of the $^{236}U_m/^{238}U_m$ mass ratio measured in wheat from RV-IZ and its corresponding soil ($1.05x10^{-5} \pm 0.26x10^{-5}$ and $2.28x10^{-5} \pm 0.83x10^{-5}$, respectively). Assuming that ^{236}U in wheat sample only originates from soil, the value of the $^{236}U_m/^{238}U_m$ mass ratio would display the same value in soil and wheat. Indeed, Froidevaux *et al.*[37] demonstrated that no isotopic fractionation of uranium occurs during the transfer of uranium from soil to plant. Thus, two sources of ^{236}U for wheat must be considered, firstly the atmospheric release from the facilities of Tricastin and its deposition onto wheat during the growth period, secondly root uptake of ^{236}U from the soil. The contribution of both sources cannot be determined, since the isotopic ratio of the release is not precisely known.

4.2. Correlation between the concentrations of radionuclides in lettuce and in the radionuclide sources.

4.2.1. Irrigation water

A diagram of the $^{230}Th/^{238}U$ activity ratios versus ^{238}U activity concentration in lettuce samples is presented in figure 5. There was no clear trend between the ^{238}U activity concentration measured in lettuce and the $^{230}Th/^{238}U$ activity ratio. Samples RV-IZ, RV-NIZ, and MC were all depleted in ^{230}Th compared to ^{238}U; whereas, samples VM and W-MC presented ^{230}Th and ^{238}U activity concentration close to equilibrium ($^{230}Th/^{238}U \approx 1$). It is well known that thorium isotopes are far less soluble than uranium and thus have low concentrations in water. Indeed, Kd values of thorium range from 1.2 x 10^3 to 5.2 x 10^4 compared to a range of 2.0 x 10^1 to 1.0 x 10^3 for uranium[13]. The higher ^{238}U activity concentrations compared to ^{230}Th in lettuces from RV-IZ, RV-NIZ and MC were probably due to an intake of ^{238}U supplied by irrigation water, which ranged between 30.2 and 46.1 mBq.L^{-1} (figure 5). Comparable trends were found by Carvalho *et al.*[32] in lettuce samples irrigated with water containing enhanced uranium concentrations. Indeed, the ^{238}U activity concentration measured was also higher than the one of ^{230}Th and even higher than the one of ^{226}Ra.

Similarly, the $^{234}U/^{238}U$ activity ratios exhibited an enrichment of ^{234}U compared to ^{238}U in two lettuce samples (RV-NIZ and MC). In the corresponding water samples, the activity concentrations of uranium isotopes displayed high concentration of ^{238}U (30.2 mBq.L^{-1} for RV-NIZ and 40.7 mBq.L^{-1} for MC) and $^{234}U/^{238}U$ ratios higher than one (1.21 ± 0.03 and 1.18 ± 0.03 respectively). Thus, ^{234}U enrichment in lettuce compared to ^{238}U could be attributed to the contribution of a significant amount of uranium enriched in ^{234}U from the irrigation water. In this way we also expected an excess of ^{234}U in the lettuce from RV-IZ since in its corresponding water sample $^{234}U/^{238}U$ was above equilibrium (1.13 ± 0.02) and ^{238}U activity concentration was 46.1 mBq.L^{-1}. However the uncertainty of the ratio in this lettuce (1.06 ± 0.09) probably hid the ^{234}U excess.

4.2.2. Soils

Figure 6 shows the relations between $^{238}U/^{232}Th$ concentration ratios in lettuce versus $^{238}U/^{232}Th$ concentration ratio in their respective soils. Two different groups can be highlighted; the first one is composed of lettuces from RV-IZ and MC strongly influenced by the contribution of water and located in the area above the straight line of slope one, and the second group by samples from RV-NIZ, VM and MC which are located close to this line (close $^{238}U/^{232}Th$ ratio in both studied compartments). The intake of ^{238}U by irrigation water is also visible on this figure and explains the high values of $^{238}U/^{232}Th$ concentration ratio in the samples RV-IZ and MC. In contrast, the $^{238}U/^{232}Th$ ratio of the lettuces from RV-NIZ, VM and W-MC was similar to the ratio of their corresponding soil. During the transfer from soil to plant, ^{232}Th is less available to plant uptake than ^{238}U [38]. Thus, it was

expected in lettuce higher activity concentration of ^{238}U compared to ^{232}Th. Lettuce, being a broadleaf vegetable growing near the soil surface, is exposed to contamination by soil particles as a result of rainsplash or resuspension due to wind action[39], in addition to root uptake. Despite the washing of lettuces performed before the measurements, it can be assumed that $^{238}U/^{232}Th$ ratio measured in lettuce reflects the ratio of the remaining soil particles settled on leaf surface, as was suggested in other studies[40]. Thus, ^{238}U activity concentration in lettuce would be the combination of ^{238}U transfer by root uptake, irrigation water and by the remaining soil particles on the leaf surfaces.

The activity concentration of ^{226}Ra in lettuce is related to the ^{226}Ra activity concentration in soil in figure 7. A good correlation appears between the activity concentrations in both compartments (R^2=0.81), emphasizing the assumption of a main contribution of soil to ^{226}Ra activity concentration in lettuce. The comparison of activity ratios in lettuce and soil would distinguish the main transfer pathway between soil particle deposition and root uptake. Taking into account that ^{230}Th and ^{238}U were in secular equilibrium in soils, the $^{226}Ra/^{230}Th$ was calculated for soil samples and was compared to $^{226}Ra/^{230}Th$ ratio in lettuce (Figure 8). The lettuces from RV-NIZ, VM and W-MC exhibited high ratios which support a preferential root uptake, whereas lettuces from RV-IZ and MC lied close to the line of slope one (close $^{226}Ra/^{230}Th$ ratio in both compartments). Thus, in these samples, the ^{226}Ra activity concentration seemed to be more influenced by soil particle adhesion on leaf surfaces. The contribution of irrigation water to ^{226}Ra concentration in lettuce was probably minority, since the activity concentrations measured in water were low (from 0.409 to 4.893 $mBq.L^{-1}$).

4.2.3. Atmospheric particles

Atmospheric particle deposition was highlighted in the previous section by the calculation of $^{210}Pb_{tot}/^{210}Pb_{sup}$ activity ratio (figure 2). Unfortunately, only three samples had significant values of ^{210}Pb activity concentration, whereas the two other results were below the detection limit. Whatever the activity concentration of $^{210}Pb_{sup}$, the $^{210}Pb_{tot}/^{210}Pb_{sup}$ ratio was low compared to wheat samples. The growth period of lettuce being short compared to that of wheat (around 6 weeks versus several months), the amount of atmospheric particles accumulated on leaf surface was relatively low. Moreover, the lettuce samples were washed before measurement whereas it was not the case for wheat samples.

4.3. Soil-to-plant transfer factors

Transfer factors (TF) were calculated according to the dry weight of plant and soil samples[41] and are given in table 6. Whatever the radionuclide, the variability of the TFs was lower by one order of magnitude. The TFs of lettuce samples were significantly higher than the ones for wheat (around one order of magnitude), except for ^{210}Pb which showed close values for lettuce and wheat samples

(0.11 and 0.13 respectively). In wheat samples the TFs decreased as ^{210}Pb (0.11) > ^{228}Ra (0.015) ≈ ^{226}Ra (0.010) > ^{228}Th (0.0030) > ^{235}U (0.0017) ≈ ^{238}U (0.0015) ≈ ^{234}U (0.0013) ≈ ^{232}Th (0.0014) whereas in lettuce samples they decreased as ^{210}Pb (0.13) > ^{228}Ra (0.10) > ^{226}Ra (0.051) > ^{235}U (0.038) ≈ ^{234}U (0.033) ≈ ^{238}U (0.030) > ^{228}Th (0.023) > ^{232}Th (0.013).
The highest TFs found for ^{210}Pb were not really representative of the transfer soil-to-plant, since we showed that most of the ^{210}Pb in wheat and lettuce originated from atmospheric particle deposition. On the other hand, the highest ^{238}U TF in lettuce (0.046 and 0.047 for RV-IZ and MC) was due to irrigation with water enriched in uranium, and thus leads probably to an overestimation of the soil-to-plant transfer factors.

The range of values from the TRS N°472 of IAEA[13] (table 7) are very large, and the values calculated here are in agreement, except for ^{210}Pb TFs for wheat, which was significantly higher in our study. This could be explained by the fact that we have considered the wheat ears while the TRS N°472 of IAEA[13] distinguished the wheat grains from other parts. Pietrzak-Flis and Skowronska-Smolak[29] highlighted the role of the chaff as an effective barrier for the entry of the atmospheric radionuclides into the grains. They found wheat grain TF for ^{210}Pb to be 0.011 i.e. ten-fold lower than the one found in our study. In their study they also analysed lettuce samples and found TF ranging between 0.041 and 0.097; i.e. in the same range as our values. Neves *et al.*[42] also studied uranium TFs in lettuce and found values close to ours (from 0.011 to 0.023).

5. Conclusion

This study has provided new data on the activity concentrations of uranium, thorium and their decay products in wheat and lettuce. Through the study of the activity ratios it has been possible to highlight the contribution of the main sources of natural radionuclides. Indeed, irrigation water, atmospheric particles and soil particle adhesion contribute significantly to the activity concentrations measured in lettuce and the wheat. Thus the present data, representative of field conditions, underline that the transfer to edible plants depends on various environmental parameters and on agricultural practices (irrigation). Our approach is somewhat limited by the fact that various other factors not studied here, such as climatic conditions, soil characteristics (pH, CEC, organic matter content, soil texture, etc.) and agricultural practices (i.e. the use of fertilizer) could also affect the activity concentrations in crops.

Acknowledgements

Authors acknowledge T. Hinton for his English language corrections. Thank you to the technicians of the LERCM and the LMRE, and especially to D. Mourier, N. Cariou and A. Pichavant for their work and their help.

References:

1 C. Colle, in *L'uranium de l'environnement à l'Homme*, ed. EDP Sciences, Collection IPSN, Paris, 2001, ch.6, pp.187-211.

2 Food and Agriculture Organisation of the United Nations, 2010, FAOSTAT-Nutrition Database, http://faostat.fao.org/default.aspx, Accessed April 2012.

3 M. Anke, O. Seeber, R. Müller, U. Schäfer, J. Zerull, *Chem. Erde*, 2009, **69**, 75.

4 M. Asefi, A.A. Fathivand, A. Amidi, A. Najafi, *Iran. J. Radiat. Res.*, 2005, **3**, 149.

5 M.S. Choi, X.J. Lin, S.A. Lee, W. Kim, H.D. Kang, S.H. Doh, D.S. Kim and D.M. Lee, *J. Environ. Radioact.*, 2008, **99**, 1319.

6 F. Garcia, A. Barioni, J.D.T. Arruda-Neto, A. Deppman, F. Milian, J. Mesa, O. Rodriguez, *Environ. Int.*, 2006, **32**, 697.

7 D.C. Lauria, F.C.A. Ribeiro, C.C. Conti, F.A. Loureiro, *J. Environ. Radioact.*, 2009, **100**, 176.

8 Z. Pietrzak-Flis, L. Rosiak, M.M. Suplinska, E. Chrzanowski, S. Dembinska, *Sci. Total Environ.*, 2001, **273**, 163.

9 E.E. Santos, D.C. Lauria, E.C.S. Amaral, E.R. Rochedo, *J. Environ. Radioact.*, 2002, **62**, 75.

10 P. Lindahl, A. Maquet, M. Hult, J. Gasparro, G. Marissens, R. Gonzalez de Orduña, *J. Environ. Radioact.*, 2011, **102**, 163.

11 S. Pulhani, S. Dafauti, A.G. Hegde, R.M. Sharma, U.C. Mishra, *J. Environ. Radioact.*, 2005, **79**, 331.

12 K. Tagami, S. Uchida, *Chemosphere*, 2009, **77**, 105.

13 IAEA, *Handbook of Parameter Values for the Prediction of Radionuclide Transfer in Terrestrial and Freshwater Environments*, 2010, Technical Reports Series No. 472, International Atomic Energy Agency, p. 194.

14 S. Ehlken, G. Kirchner, *J. Environ. Radioact.*, 2002, **58**, 97.

15 S. Rhis, J. Prunier, B. Thien, D. Lemarchand, M.C. Pierret, F. Chabaux, *Geochim. Cosmochim. Acta,* 2011, **75**, 7707.

16 M. Jeambrun, L. Pourcelot, C. Mercat, B. Boulet, J. Loyen, X. Cagnat, F. Gauthier-Lafaye, *J. Environ. Monit.,* 2012, DOI: 10.1039/c2em10994h.

17 M. Granet, F. Chabaux, P. Stille, C. France-Lanord, E. Pelt, *Earth Planet. Sci. Lett.,* 2007, **261**, 389.

18 E. Pelt, F. Chabaux, C. Innocent, A.K. Navarre-Sitchler, P.B. Sak, S.L. Brantley, *Earth Planet. Sci. Lett.,* 2008, **276**, 98.

19 L. Ma, F. Chabaux, E. Pelt, M. Granet, P.B. Sak, J. Gaillardet, M. Lebedeva, S.L. Brantley, *Geochim. Cosmochim. Acta,* 2012, **80**, 92.

20 K.W.W. Sims, J.B. Gill, A. Dosseto, D.L. Hoffmann, C.C. Lundstrom, R.W. Williams, L. Ball, D. Tollstrup, S. Turner, J. Prytulak, J.G. Glessner, J.J. Standish, T. Elliott, *Geostandards Geoanal. Res.,* 2008, **32**, 65.

21 F. Chabaux, D.B. Othman, J.L. Birck, *Chem. Geol.,* 1994, **114**, 191.

22 E. Pelt, F. Chabaux, C. Innocent, B. Ghaleb, P. Stille, F. Guntzer, M. Girard, *Chem. Geol.*, submitted.

23 Y.A. Akovali, *Nucl. Data Sheets,* 1994, **71**, 18.

24 H. Cheng, R.L. Edwards, J. Hoff, C.D. Gallup, D.A. Richards, Y. Asmerom, *Chem. Geol.,* 2000, **169**, 17.

25 N.E. Holden, *Pure Appl. Chem.*, 1990, **62**, 941.

26 M.A.C. Hotchkis, D. Child, D. Fink, G.E. Jacobsen, P.J. Lee, N. Mino, A.M. Smith, C. Tuniz, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. B,* 2000, **172**, 659.

27 S. Richter, A. Alonso, W. de Bolle, R. Wellum, P.D.P. Taylor, *Int. J. Mass Spectrom.,* 1999, **193**, 9.

28 S.F. Wolf, D.L. Bowers, J.C. Cunnane, *J. Radioanal. Nucl. Chem.,* 2005, **263**, 581.

29 Z. Pietrzak-Flis, M. Skowronska-Smolak, *Sci. Total Environ.,* 1995, **162**, 139.

30 Z. Pietrzak-Flis, M.M. Suplinska, L. Rosiak, *J. Radioanal. Nucl. Chem.,* 1997, **222**, 189.

31 L. Pourcelot, B. Boulet, C. Le Corre, A. de Vismes Ott, X. Cagnat, J. Loyen, C. Fayolle, W. Van Hecke, B. Martinez, J. Petit, R. Kaltenmeier, R. Gieré, *J. Environ. Monit.,* 2011, **13**, 1327.

32 F.P. Carvalho, J.M. Oliveira, M. Malta, *J. Radioanal. Nucl. Chem.,* 2009, **281**, 479.

33 D.J. Greeman, A.W. Rose, *Geophys. Res. Lett.,* 1990, **17**, 833.

34 H.R. Von Gunten, H. Surbeck, E. Rössler, *Environ. Sci. Technol.,* 1996, **30**, 1268.

35 K. Vaaramaa, L. Aro, D. Solatie, J. Lehto, *Sci. Total Environ.,* 2010, **408**, 6168.

36 G. Henderson, *Earth Planet. Sci. Lett.,* 2002, **199**, 97.

37 P. Froidevaux, J.J. Geering, L. Pillonel, J.O. Bosset, J.F. Valley, *J. Environ. Radioact.,* 2004, **72**, 287.

38 P. Linsalata, R.S. Morse, H. Ford, M. Eisenbud, E.P. Franca, M.B. De Castro, N. Lobao, I. Sachett, M. Carlos, *Health Phys.,* 1989, **56**, 33.

39 F. Strebl, S. Ehlke, M.H. Gersabek, G. Kirchner, *Radioact. Environ.,* 2007, **10**, 19.

40 A. Zararsiz, R. Kirmaz, P. Arikan, *J. Radioanal. Nucl. Chem.,* 1997, **222**, 257.

41 IAEA, *Quantification of Radionuclide Transfers in Terrestrial and Freshwater Environments for Radiological Assessments*, 2009, IAEA-TECDOC-1616, International Atomic Energy Agency, p.616.

42 O. Neves, M.M. Abreu, E.M. Vicente, *Water, Air, Soil Pollut.,* 2008, **195**, 73.

43 H.B.L. Pettersson, E. Holm, *Waste Manage.,* 1992, **12**, 85.

Tables:

Sites	F/D*	^{238}U	^{230}Th	^{226}Ra	^{210}Pb	^{232}Th	^{228}Ra	^{228}Th	$^{234}U/^{238}U$	$^{235}U_m/^{238}U_m$ (%)
						Wheat				
RV-IZ	1.2	12 ± 1	9.08 ± 0.18	267 ± 33	1731 ± 234	8.61 ± 0.09	243 ± 56	50 ± 12	0.96 ± 0.22	0.73 ± 0.02
RV-NIZ	1.6	11 ± 1	9.67 ± 0.19	143 ± 19	1261 ± 164	9.84 ± 0.10	238 ± 47	19 ± 11	0.94 ± 0.22	0.71 ± 0.03
VM	1.8	13 ± 1	12.75 ± 0.26	56 ± 12	2386 ± 263	16.23 ± 0.16	86 ± 39	< 70	0.98 ± 0.24	0.71 ± 0.03
MC	1.3	48 ± 5	56.22 ± 1.12	167 ± 25	3427 ± 368	44.87 ± 0.45	< 368	68 ± 14	1.02 ± 0.11	0.73 ± 0.04
W-MC	1.4	169 ± 20	197.18 ± 3.94	1511 ± 163	11205 ± 1173	121.45 ± 1.21	769 ± 176	176 ± 39	1.07 ± 0.14	0.73 ± 0.03
						Lettuce				
RV-IZ	22	50 ± 5	36.39 ± 0.73	55 ± 10	< 148	8.66 ± 0.09	< 176	< 29	1.06 ± 0.09	0.72 ± 0.04
RV-NIZ	18	8 ± 1	5.21 ± 0.10	30 ± 13	< 745	5.25 ± 0.05	< 119	< 60	1.10 ± 0.08	0.71 ± 0.03
VM	18	85 ± 9	87.92 ± 1.76	341 ± 36	540 ± 99	156.99 ± 1.57	1221 ± 156	347 ± 36	1.04 ± 0.08	0.72 ± 0.03
MC	17	105 ± 22	39.86 ± 0.80	55 ± 14	409 ± 110	29.57 ± 0.30	< 320	24 ± 10	1.16 ± 0.08	0.72 ± 0.03
W-MC	17	120 ± 15	134.63 ± 2.69	599 ± 61	746 ± 98	94.10 ± 0.94	391 ± 61	143 ± 17	1.01 ± 0.10	0.73 ± 0.03

Table 3.1: Activity concentrations of ^{238}U, ^{230}Th, ^{226}Ra, ^{210}Pb, ^{232}Th, ^{228}Ra and ^{228}Th (mBq.kg^{-1} fresh weight) and the activity concentration $^{234}U/^{238}U$ and the mass $^{235}U_m/^{238}U_m$ ratios determined in lettuce and wheat samples.

* F/D: Ratio between fresh mass (F) and dry mass (D).

Countries	Context	N	^{238}U	^{234}U	^{230}Th	^{226}Ra	^{210}Pb	^{235}U	^{232}Th	^{228}Ra	^{228}Th	References
France	Low background	3	8-105*	8-120*	5.2-39.9*	30-55*	<148-409*	0.35-4.85*	5.2-29.6*	<320	<29-24	This study
Germany	Low background	128	16-35*	17-36*	-	-	-	0.76-1.6	-	-	-	Anke *et al.*, 2009 [3]
Iran	Low background	3	-	-	-	47 25-63*	-	-	-	44 30-72*	-	Asefi *et al.*, 2005 [4]
Korea	Low background	1	-	-	5.2 ± 0.2	156 ± 10	-	-	5.1 ± 0.2	174 ± 9	13.4 ± 0.3	Choi *et al.*, 2008 [5]
Brazil	Low background	10	11 ± 1	11 ± 1	-	-	-	0.52 ± 0.05	-	-	-	Garcia *et al.*, 2006 [6]
Brazil	Low background	4	25 13-45*	-	-	24 15-36*	-	-	-	117 42-354*	-	Lauria *et al.*, 2009 [7]
Poland	Low background	14	11 ± 1	12 ± 3	6.8 ± 0.2	34 ± 2	-	-	5.9 ± 0.1	-	9 ± 2	Pietrzak-Flis *et al.*, 2001 [8]
Brazil	Low background	4	4.1 0.3-13*	-	-	70 33-208*	-	-	13 3-29*	89 41-197*	-	Santos *et al.*, 2002 [9]
France	High background	2	85-120*	88-121*	87.9-135*	341-599*	540-746*	3.92-5.63*	94-157*	391-1221*	143-347*	This study
Poland	High background	3	15 ± 2	17 ± 2	6 ± 1	60 ± 6	-	-	4.2 ± 0.9	-	7 ± 1	Pietrzak-Flis *et al.*, 1997 [30]
Germany	U mining area	6	66 ± 7	67 ± 7	-	-	-	3.1 ± 0.3	-	-	-	Anke *et al.*, 2009 [3]
Portugal	U mining area	7	12-18450*	12-1620*	11-4275*	46-4541*	-	0.4-900*	6-645*	-	-	Carvalho *et al.*, 2009 [32]
Brazil	Fertilizer uses	4	33 14-65*	-	-	73 18-131*	-	-	-	111 82-139*	-	Lauria *et al.*, 2009 [7]
France	U fuel plant	5	31-160*	30-160*	< 7000	<100-270*	300-3600*	1.3-7.1*		40-200*		Pourcelot *et al.*, 2011 [31]

Table 3.2: Activity concentrations of uranium isotopes, thorium and some decay products in lettuce samples from the literature (mBq.kg^{-1} f.w). The data from the literature expressed in dry weight were converted to fresh weight using the fresh weight/dry weight conversion factors given by the TECDOC 1616 of IAEA[41] if this factor is not given in the paper.

* Minimal and maximal values.

Countries	Context	N	^{238}U	^{234}U	^{230}Th	^{226}Ra	^{210}Pb	^{235}U	^{232}Th	^{228}Ra	^{228}Th	References
France	Low background	4	11-48*	12-48*	9.1-56*	56-267*	1261-3427*	0.53-2.22*	8.6-44.9*	86-243*	19-68*	This study
Germany	Low background	16	1.6 ± 0.2	1.6 ± 0.2	-	-	-	0.07 ± 0.01	-	-	-	Anke *et al.*, 2009 [3]
Korea	Low background	12	-	-	3.1 ± 0.2	112 ± 5	-	-	3.0 ± 0.2	125 ± 6	104 ± 2	choi *et al.*, 2008 [5]
Belgium	Low background	18	-	-	-	48-184*	-	-	-	53-202*	18-89*	Lindahl *et al.*, 2011 [10]
India	Low background	8	37 ± 10 30-40*	-	-	< 200	-	-	160 ± 20 100-200*	-	-	Pulhani *et al.*, 2005 [11]
Japon	Low background	7	-	-	-	44-150*	-	-	-	-	-	Tagami et Uchida, 2009 [12]
France	High background	1	169 ± 20	150 ± 33	197 ± 4	1511±163	11205±1173	7.9 ± 1.0	121 ± 1	769 ± 176	176 ± 39	This study
Poland	High background	3	11 ± 1	12 ± 2	16.0 ± 0.1	87 ± 15	-	-	21 ± 7	-	51 ± 5	Pietrzak-Flis *et al.*, 1997 [30]
India	High background	6	50 ± 8 30-60*	-	-	700 ± 100 400-800*	-	-	1100 ± 20 800-1200*	-	-	Pulhani *et al.*, 2005 [11]
Germany	U Mining area	14	14.8 ± 1.5	15.2 ± 1.5	-	-	-	0.69 ± 0.06	-	-	-	Anke *et al.*, 2009 [3]
Sweden	U enrichment plant	3	73-175*	184-500*				5-32*				Petterson and Holme, 1992 [43]
France	U conversion plant	7	298-8772*	193-9649*	< 3509-16667*	175-1404*	1930-7193*	9-439*	-	35-1667*		Pourcelot *et al.*, 2011 [31]
India	Fertilizer uses	7	20 ± 2 16-30*	-	-	700 ± 90 500-800*	-	-	700 ± 10 600-800*	-	-	Pulhani *et al.*, 2005 [11]

Table 3.3: Activity concentrations of uranium thorium and their decay products in wheat samples from the literature (mBq.kg^{-1} f.w). The data from the literature expressed in dry weight were converted to fresh weight using the fresh weight/dry weight conversion factors given by the TECDOC 1616 of IAEA[41] if this factor is not given in the paper.

* Minimum and maximum values.

Sites	^{238}U	^{226}Ra	^{210}Pb	^{235}U	^{232}Th	^{228}Th	$^{234}U/^{238}U$	$^{235}U_m/^{238}U_m$ (%)
Soil corresponding to wheat samples								
RV-IZ	17 ± 2	27 ± 3	27 ± 3	0,77 ± 0,09	24 ± 3	23 ± 2	0.95 ± 0.08	0.72 ± 0.02
RV-NIZ	11 ± 1	19 ± 2	28 ± 3	0,53 ± 0,06	23 ± 3	24 ± 2	0.90 ± 0.10	0.72 ± 0.02
VM	27 ± 3	42 ± 4	45 ± 5	1,2 ± 0,1	44 ± 6	44 ± 5	0.91 ± 0.08	0.72 ± 0.03
MC	38 ± 5*	41 ± 4	47 ± 6	1,4 ± 0,6*	58 ± 8	58 ± 6	n.m	n.m
W-MC	92 ± 10*	106 ± 11	81 ± 9	3,4 ± 1*	40 ± 6	39 ± 4	n.m	n.m
Soil corresponding to lettuce samples								
RV-IZ	23 ± 3*	26 ± 3	29 ± 4	0,9 ± 0,6*	21 ± 3	23 ± 2	n.m	n.m
RV-NIZ	13 ± 2*	14 ± 1	22 ± 3	< 0,7*	11 ± 1	11 ± 1	n.m	n.m
VM	58 ± 6	71 ± 7	69 ± 8	2,7 ± 0,3	160 ± 19	160 ± 16	0.99 ± 0.08	0.72 ± 0.02
MC	37 ± 4	70 ± 7	52 ± 6	1,7 ± 0,2	50 ± 6	51 ± 5	1.06 ± 0.11	0.72 ± 0.02
W-MC	112 ± 13	143 ± 14	112 ± 11	5,2 ± 0,6	94 ± 12	98 ± 10	0.98 ± 0.09	0.72 ± 0.03

Table 3.4: Activity concentration of ^{238}U, ^{226}Ra, ^{210}Pb, ^{235}U, ^{232}Th and ^{228}Th in wheat and lettuce crop soils ($Bq.kg^{-1}$ dry weight) and the activity concentration ratios $^{234}U/^{238}U$ and the masse ratio $^{235}U_m/^{238}U_m$ (%).

n.m: Samples not measured by ICP-QMS.

*: ^{238}U concentration deduced from the activity concentration of its daughter ^{234}Th measured by gamma spectrometry.

Site	^{238}U	^{234}U	^{226}Ra	^{235}U	$^{234}U/^{238}U$	$^{235}U_m/^{238}U_m$ (%)
RV-IZ	46.191 ± 0.924	51.829 ± 1.037	4.893 ± 0.098	2.1224 ± 0.0424	1.123 ± 0.005	0.716 ± 0.002
RV-NIZ	30.290 ± 0.606	36.453 ± 0.729	1.915 ± 0.038	1.3917 ± 0.0278	1.201 ± 0.005	0.716 ± 0.002
VM	0.495 ± 0.010	1.299 ± 0.026	0.606 ± 0.012	0.0227 ± 0.0005	2.626 ± 0.005	0.718 ± 0.002
MC	40.769 ± 0.815	47.863 ± 0.957	0.728 ± 0.109	1.8732 ± 0.0375	1.175 ± 0.005	0.716 ± 0.002
W-MC	0.156 ± 0.003	0.180 ± 0.004	0.409 ± 0.008	0.0071 ± 0.0001	1.158 ± 0.005	0.714 ± 0.002

Table 3.5: Activity concentrations of uranium isotopes and ^{226}Ra ($mBq.L^{-1}$), activity concentration ratio $^{234}U/^{238}U$ and mass ratio $^{235}U_m/^{238}U_m$ (%) of irrigation water used for lettuce crop.

Sites	^{238}U	^{234}U	^{226}Ra	^{210}Pb	^{235}U	^{232}Th	^{228}Ra	^{228}Th
				TFs of wheat				
RV-IZ	0.0009	0.0009	0.012	0.08	0.0009	0.0004	0.012	0.0026
RV-NIZ	0.0016	0.0019	0.012	0.08	0.0016	0.0007	0.016	0.0013
VM	0.0009	0.0010	0.003	0.10	0.0009	0.0007	0.004	-
MC	0.0016	-	0.005	0.09	0.0020	0.0010	-	0.0016
W-MC	0.0026	-	0.020	0.19	0.0033	0.0042	0.027	0.0065
Mean	0.0015	0.0013	0.010	0.11	0.0017	0.0014	0.015	0.0030
SD	0.0007	0.0006	0.007	0.05	0.0010	0.0016	0.010	0.0024
				TFs of lettuce				
RV-IZ	0.047	-	0.042	-	0.056	0.009	-	-
RV-NIZ	0.011	-	0.039	-	-	0.009	-	-
VM	0.025	0.028	0.086	0.14	0.026	0.018	0.14	0.039
MC	0.046	0.053	0.015	0.13	0.051	0.010	-	0.007
W-MC	0.018	0.019	0.071	0.11	0.018	0.017	0.07	0.024
Mean	0.030	0.033	0.051	0.13	0.038	0.013	0.10	0.023
SD	0.017	0.018	0.028	0.01	0.018	0.004	0.05	0.016

Table 3.6: Transfer factors (TF) of ^{238}U, ^{234}U, ^{226}Ra, ^{210}Pb, ^{235}U, ^{232}Th, ^{228}Ra and ^{228}Th from soil to wheat and lettuce on dry weight basis.

Element	Plant group	N	Mean value	GSD	Minimum	Maximum
Pb	Cereals	9	$1.0x10^{-2}$	3.6	$1.9x10^{-3}$	$4.8x10^{-2}$
	Leafy vegetables	31	$8.0x10^{-2}$	13	$3.2x10^{-3}$	$2.5x10^{1}$
Ra	Cereals	24	$1.7x10^{-2}$	12	$8.0x10^{-5}$	$6.7x10^{-1}$
	Leafy vegetables	77	$9.1x10^{-2}$	6.7	$1.8x10^{-3}$	130
Th	Cereals	36	$2.1x10^{-3}$	3.4	$1.6x10^{-4}$	$2.2x10^{-2}$
	Leafy vegetables	24	$1.2x10^{-3}$	6	$9.4x10^{-5}$	$2.1x10^{-1}$
U	Cereals	59	$6.2x10^{-3}$	7.7	$1.6x10^{-4}$	$8.2x10^{-1}$
	Leafy vegetables	108	$2.0x10^{-2}$	7.3	$7.8x10^{-5}$	8.8

Table 3.7: Transfer factors (TF) of lead, radium, thorium and uranium from soil to cereals and leafy vegetables from IAEA technical report series 472[13].

Figures caption:

Figure 1: Location of the various studied sites in France.

Figure 2: $^{210}Pb_{tot}/^{210}Pb_{sup}$ activity concentration ratio versus $^{210}Pb_{sup}$ assumed in equilibrium with ^{226}Ra in wheat (black diamonds) and lettuce (white squares) samples. The dashed line represents the secular equilibrium line ($^{210}Pb_{tot}/^{210}Pb_{sup}$ = 1).

Figure 3: $^{238}U/^{232}Th$ activity concentration ratio in wheat versus $^{238}U/^{232}Th$ in the corresponding soils. The solid line represents the straight lines of slope one.

Figure 4: $^{226}Ra/^{238}U$ activity concentration ratio in wheat versus $^{226}Ra/^{238}U$ in the corresponding soils. The dashed and solid lines represent the straight lines of equilibrium ($^{226}Ra/^{238}U$ = 1) and the line of slope one respectively.

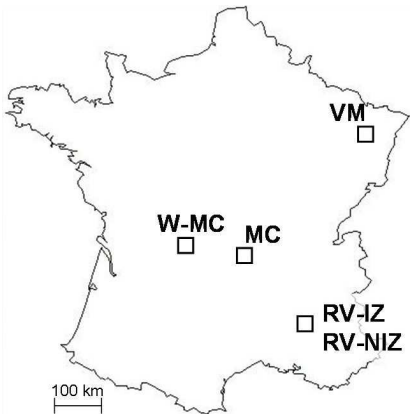
Figure 5: $^{230}Th/^{238}U$ activity concentration ratio versus ^{238}U activity concentration in lettuce ($Bq.kg^{-1}$ f.w) the values in brackets are the ^{238}U activity concentrations measured in the irrigation waters ($mBq.L^{-1}$) and the dashed line represents the line of equilibrium ($^{230}Th/^{238}U$ = 1).

Figure 6: $^{238}U/^{232}Th$ activity concentration ratio in lettuce versus $^{238}U/^{232}Th$ in the corresponding soils. The solid line represents the straight line of slope one. The values in brackets are the ^{238}U activity concentrations measured in the irrigation waters ($mBq.L^{-1}$).

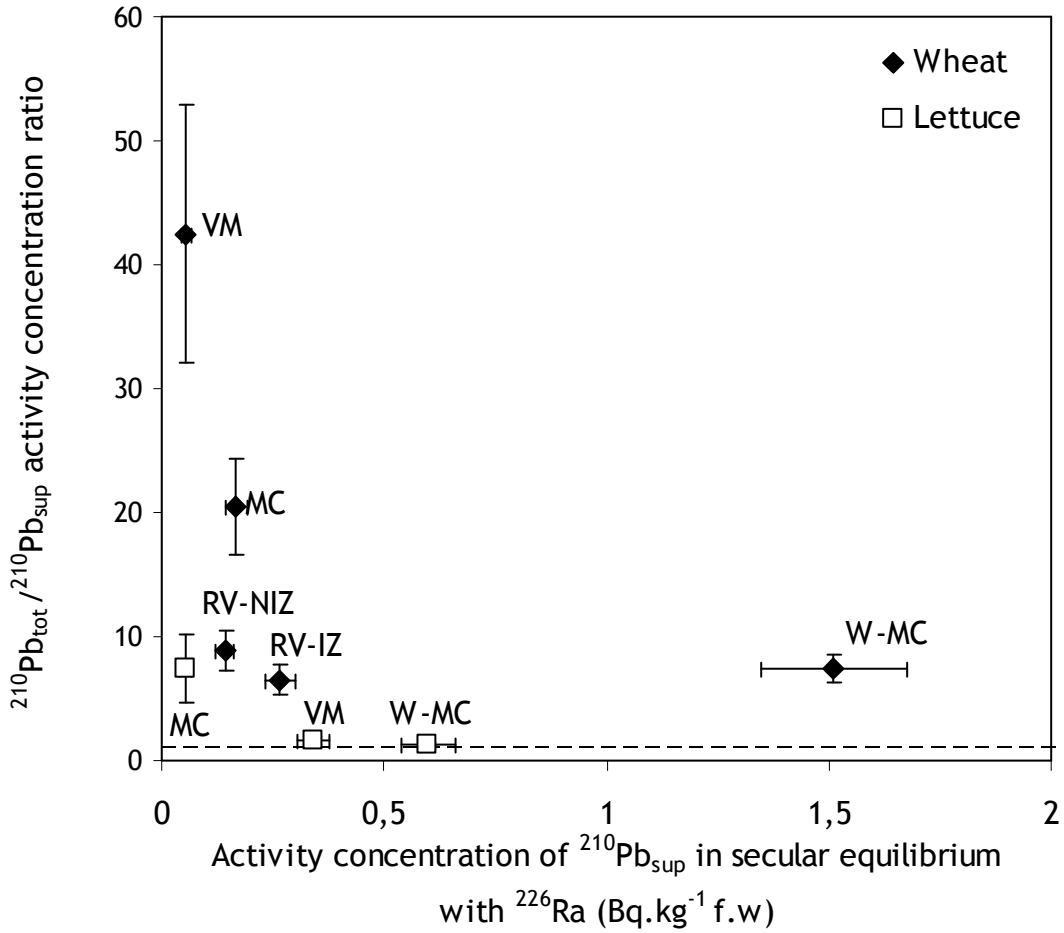
Figure 7: ^{226}Ra Activity concentration in lettuce ($Bq.kg^{-1}$ f.w) versus ^{226}Ra concentration in the corresponding soils ($Bq.kg^{-1}$ d.m). The solid line represents the regression line.

Figure 8: Activity concentration ratio $^{226}Ra/^{230}Th$ in lettuce versus $^{226}Ra/^{230}Th$ in the corresponding soils assuming that ^{238}U and ^{230}Th are in secular equilibrium in soils. The dashed and solid lines represent the straight lines of equilibrium ($^{226}Ra/^{230}Th$ = 1) and of slope one respectively. The values in brackets are the ^{226}Ra activity concentration measured in the irrigation waters ($mBq.L^{-1}$).

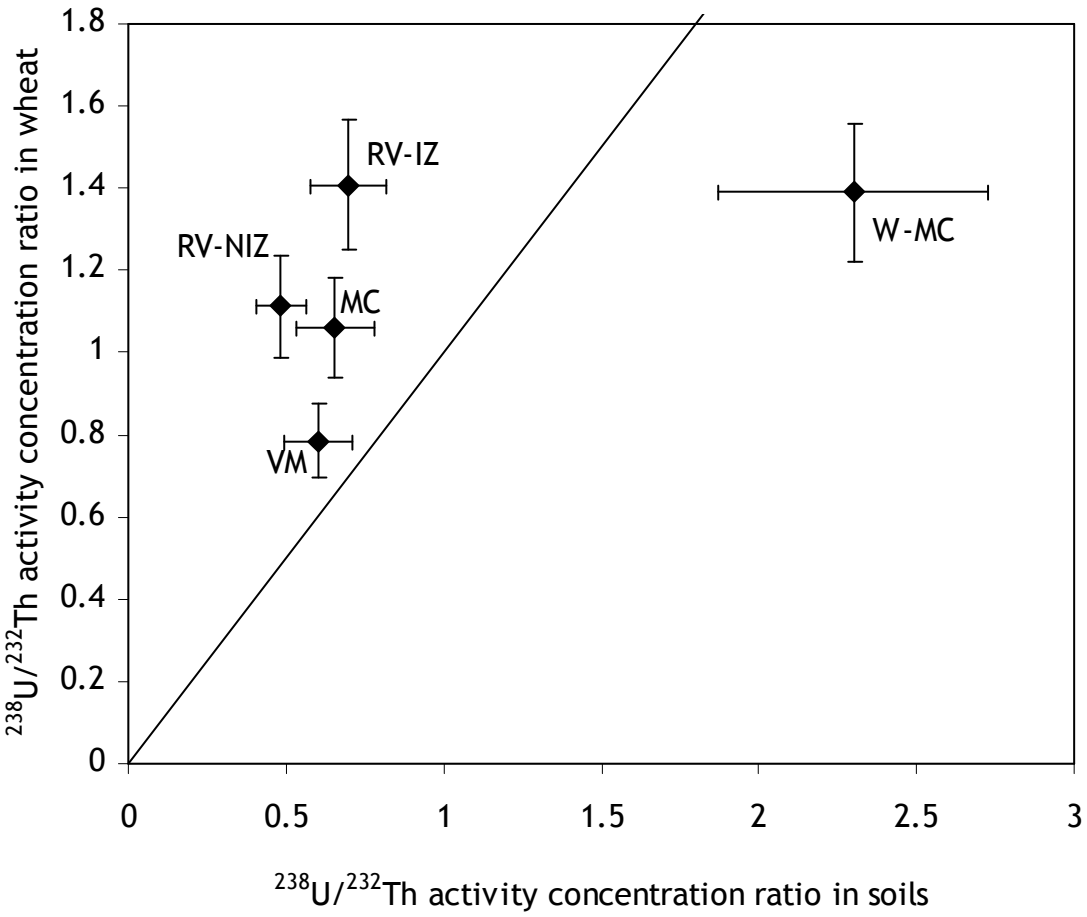
1



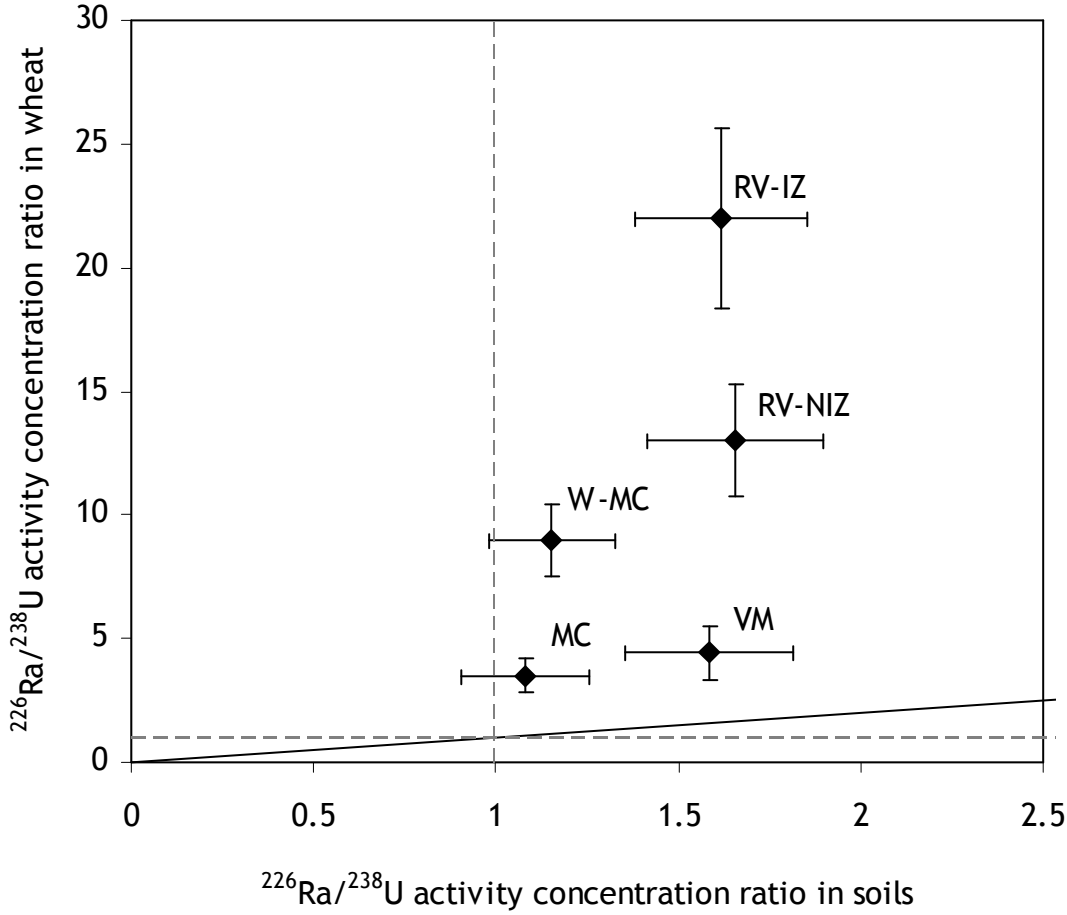
2

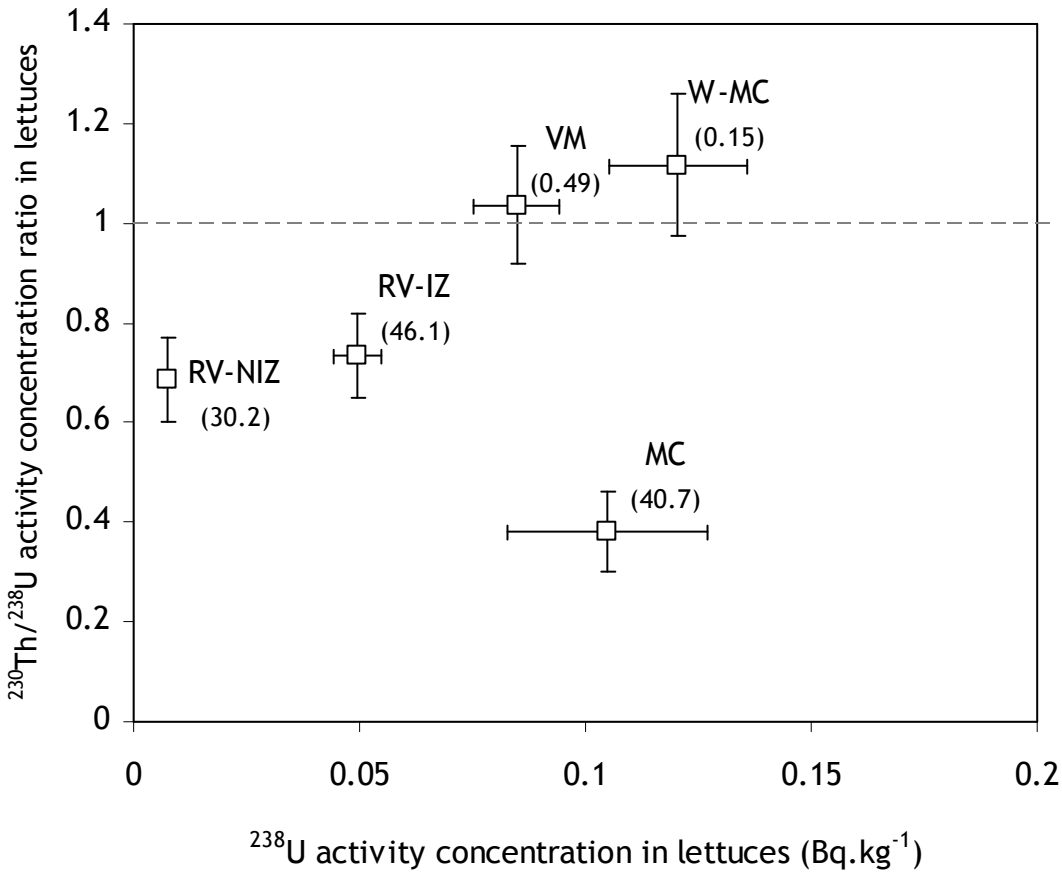

60
50
40
30
20
10
0
0
0,5
1
1,5
2
Wheat
Lettuce
VM
MC
RV-NIZ
RV-IZ
W-MC
MC
VM
W-MC
$^{210}Pb_{tot}/^{210}Pb_{sup}$ activity concentration ratio
Activity concentration of $^{210}Pb_{sup}$ in secular equilibrium with ^{226}Ra ($Bq.kg^{-1}$ f.w)

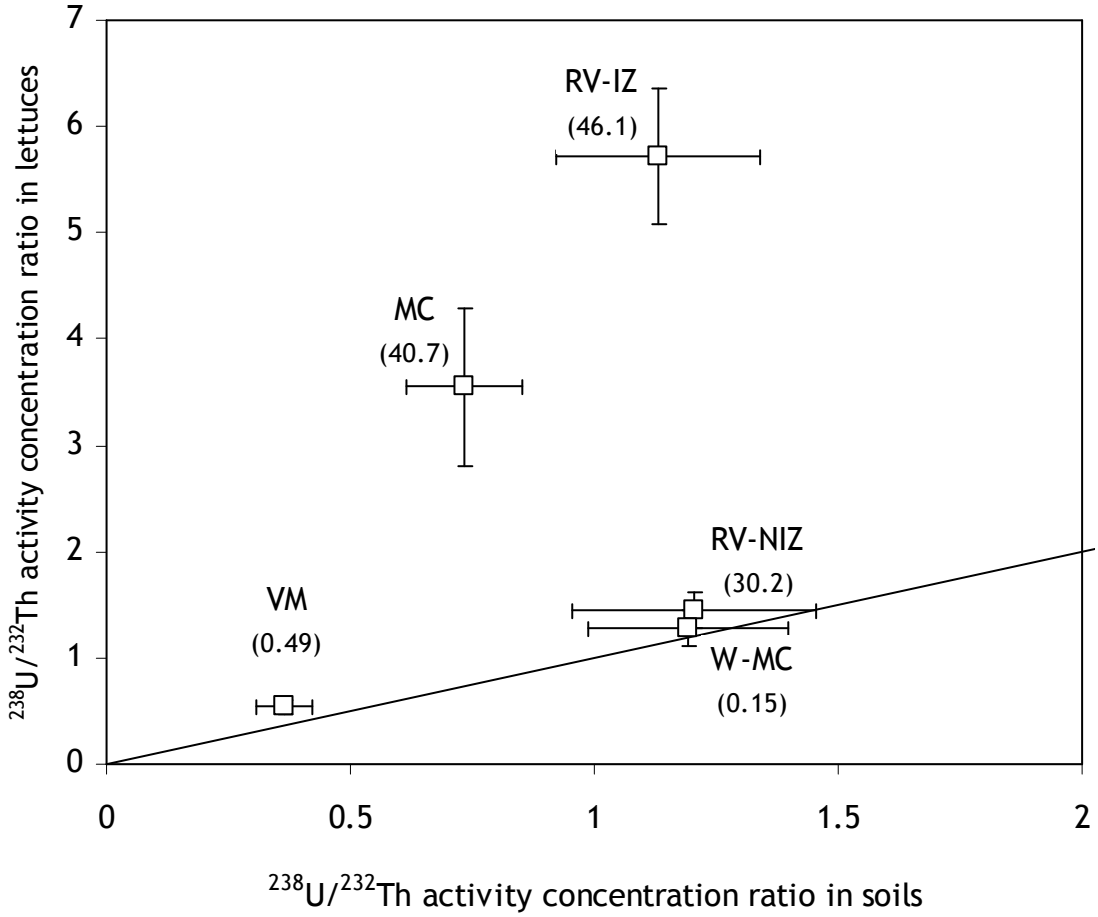
3


1.8
1.6
1.4
1.2
1
0.8
0.6
0.4
0.2
0
0
0.5
1
1.5
2
2.5
3
RV-IZ
RV-NIZ
MC
VM
W-MC
238U/232Th activity concentration ratio in wheat
238U/232Th activity concentration ratio in soils

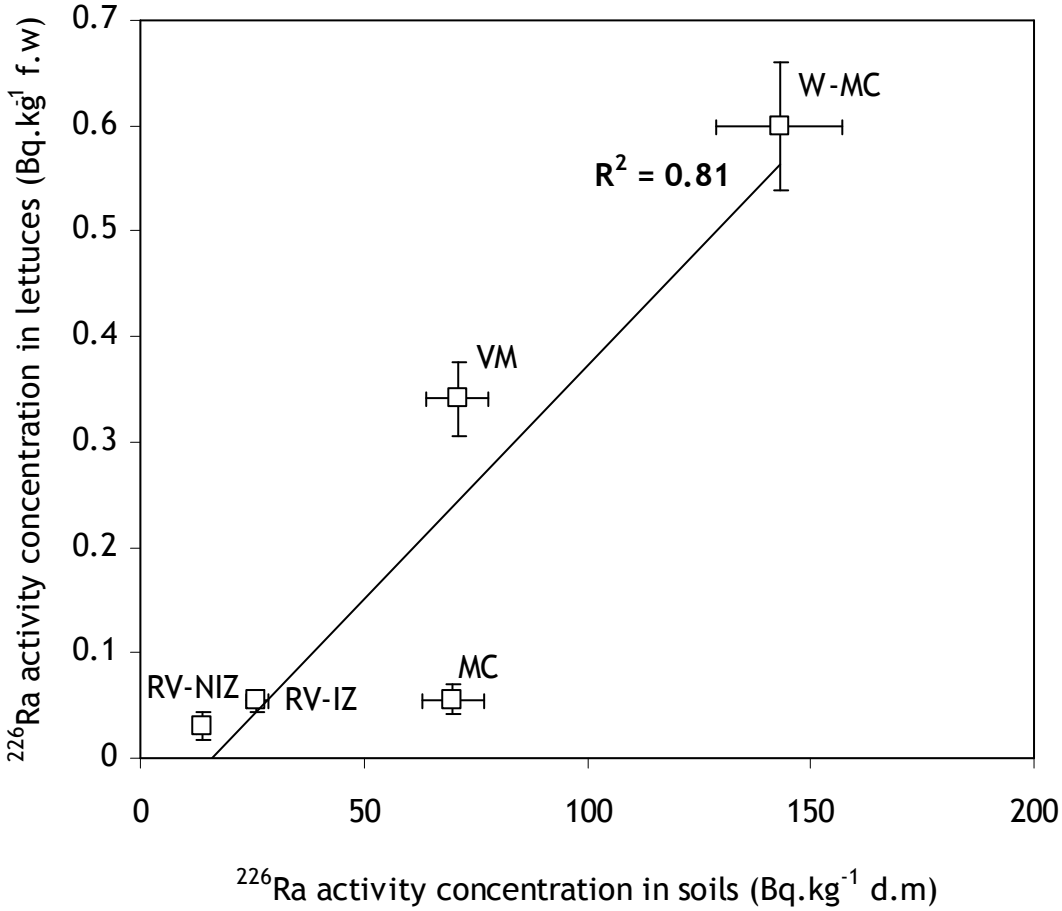
4


30
25
20
15
10
5
0
0
0.5
1
1.5
2
2.5
RV-IZ
RV-NIZ
W-MC
MC
VM
226Ra/238U activity concentration ratio in wheat
226Ra/238U activity concentration ratio in soils

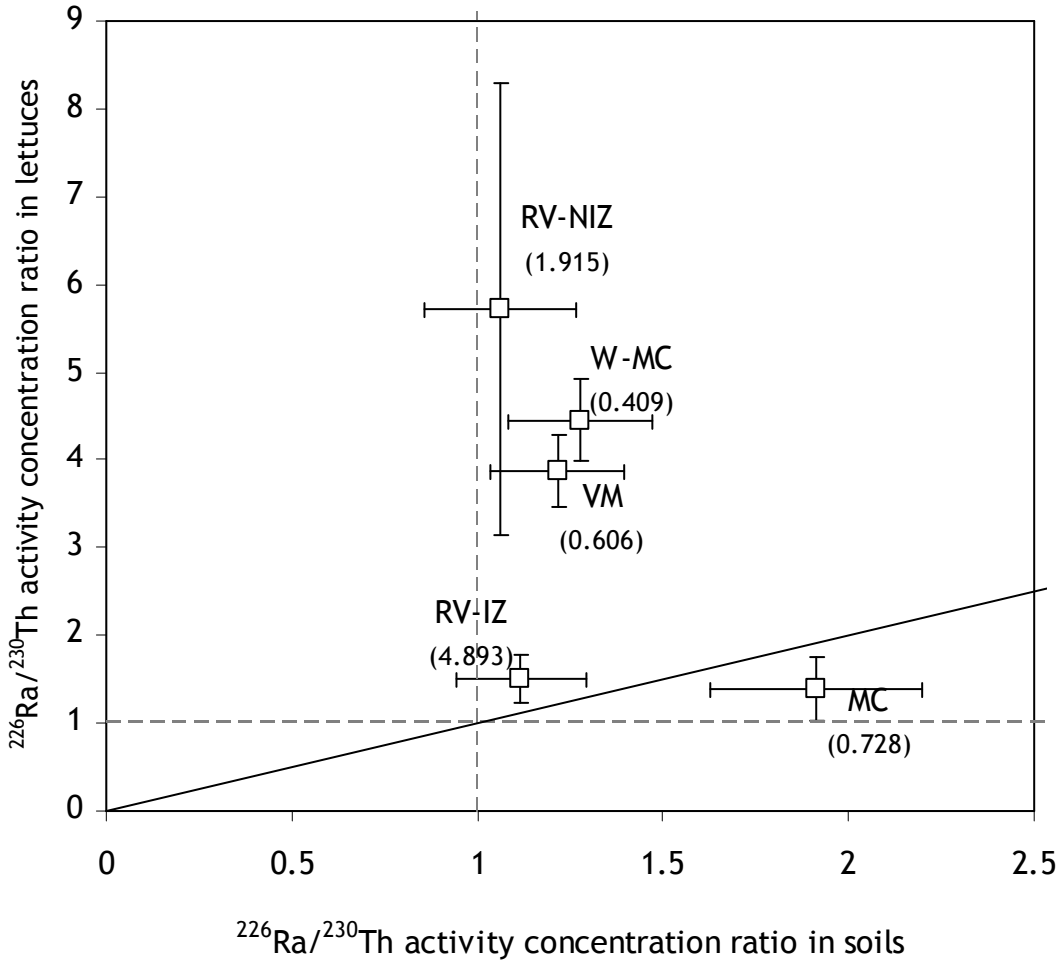

1.4
1.2
1
0.8
0.6
0.4
0.2
0
0
0.05
0.1
0.15
0.2
230Th/238U activity concentration ratio in lettuces
238U activity concentration in lettuces (Bq.kg-1)
W-MC
(0.15)
VM
(0.49)
RV-IZ
(46.1)
RV-NIZ
(30.2)
MC
(40.7)


RV-IZ
(46.1)
MC
(40.7)
RV-NIZ
(30.2)
VM
(0.49)
W-MC
(0.15)
0
1
2
3
4
5
6
7
0
0.5
1
1.5
2
238U/232Th activity concentration ratio in lettuces
238U/232Th activity concentration ratio in soils

7


0.7
0.6
0.5
0.4
0.3
0.2
0.1
0
0
50
100
150
200
W-MC
R² = 0.81
VM
MC
RV-NIZ
RV-IZ
226Ra activity concentration in lettuces (Bq.kg-1 f.w)
226Ra activity concentration in soils (Bq.kg-1 d.m)

8


9
8
7
6
5
4
3
2
1
0
0
0.5
1
1.5
2
2.5
RV-NIZ
(1.915)
W-MC
(0.409)
VM
(0.606)
RV-IZ
(4.893)
MC
(0.728)
226Ra/230Th activity concentration ratio in lettuces
226Ra/230Th activity concentration ratio in soils

Chapitre 4 : Transferts des radionucléides naturels à la viande de volaille et aux œufs

Ce chapitre présente l'étude sur les transferts des radionucléides naturels des chaînes de l'uranium et du thorium à la viande de volaille et aux œufs qui a fait l'objet d'une publication acceptée dans *Journal of Environmental Monitoring* sous le titre « Study on transfers of uranium, thorium and decay products from grain, water and soil to chicken meat and egg contents ».

La variabilité des activités des principaux radionucléides de ces chaînes, à l'échelle du territoire, est tout d'abord présentée. La contribution des sources potentielles (eau, sol et aliments) est ensuite étudiée. A partir de ces données, les rapports de concentrations et les coefficients de transfert ont été calculés.

Journal of Environmental Monitoring

Dynamic Article Links

Cite this: *J. Environ. Monit.*, 2012, **14**, 2170

www.rsc.org/jem

PAPER

Study on transfers of uranium, thorium and decay products from grain, water and soil to chicken meat and egg contents

M. Jeambrun,*[ab] L. Pourcelot,[a] C. Mercat,[c] B. Boulet,[d] J. Loyen,[e] X. Cagnat[d] and F. Gauthier-Lafaye[b]

Received 12th December 2011, Accepted 17th April 2012
DOI: 10.1039/c2em10994h

Activity concentrations of the uranium and thorium series radionuclides were determined in chicken meat and eggs as well as in soil, water and other dietary intakes of poultry at five sites of the French territory. These data allow the calculation of transfer coefficients which enrich the database given by the technical report series no. 472 of the IAEA. In egg contents, the highest activity concentrations (in mBq kg^{-1} fresh weight) are for ^{226}Ra, ranging between 136 and 190 and are much lower for uranium (between 0.51 and 1.30 for ^{238}U). In chicken meat, ^{238}U activity concentration is higher than in egg contents and ranges between 1.7 and 9.7. Concerning ^{232}Th, its activity concentration is lower than uranium and ranges between 0.5 and 4.9. Daily ingested activity concentration by the animals was assessed taking into account the activity concentrations measured in the grains, in the soil and in the drinking water. The activity concentration in grains and the daily intakes allow the calculation of concentration ratios and transfer coefficients for chicken meat and egg contents. In chicken meat the transfer coefficients (d kg^{-1}) range between 0.0018 and 0.0073 for ^{238}U and between 0.0008 and 0.0028 for ^{232}Th. In egg contents they range from 0.00018 to 0.0018 for ^{238}U and are much higher for radium isotopes (0.10–0.23 for ^{226}Ra and 0.07–0.11 for ^{228}Ra).

1. Introduction

Chicken meat and eggs are widely consumed all over the world. Indeed, in 2007 the world mean annual consumption per capita was 12.6 kg per year for chicken meat and 8.6 kg per year for eggs.[1] Moreover, chicken meat is one of the most consumed meat in the world just after pig meat (5 kg per year). Eggs also enter in the composition of many foodstuffs like cakes and pastas particularly in industrialized countries. In 2007 for example, egg consumption was 12.8 kg per year in Europe.[1] Unfortunately there are few data on the activity concentrations of uranium, thorium and their decay products in chicken meat and egg contents and the data available vary significantly. Indeed, Anke *et al.*[2] measured an average activity concentration of ^{238}U in Germany of 10 ± 1 mBq kg^{-1} fresh weight in chicken meat and 49 ± 5 mBq kg^{-1} fresh weight in eggs, whereas in the studies of Pietrzak-Flis *et al.*[3,4] the range of ^{238}U concentrations in Poland was 1.7–2.6 mBq kg^{-1} fresh weight in chicken meat and 1.6–1.8 mBq kg^{-1} fresh weight in eggs.

The predominant transfer pathway of most radionuclides to animals is the ingestion of food, soil and drinking water.[5] Intake

[a]*Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire, Bat 153 BP3 13115 St Paul lez Durance cedex, France. E-mail: marion.jeambrun@irsn.fr; laurent.pourcelot@irsn.fr*
[b]*Université de Strasbourg, CNRS, LHyGeS, 1 rue Blessig 67000 Strasbourg, France. E-mail: fgl@unistra.fr*
[c]*AREVA NC, BP44 26701 Pierrelatte Cedex, France. E-mail: catherine.mercat@areva.com*
[d]*Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire, Bat 501 Bois des Rames 91400 Orsay, France. E-mail: beatrice.boulet@irsn.fr; xavier.cagnat@irsn.fr*
[e]*Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire, Bat C4, 31 rue de l'Ecluse BP35 78116 Le Vésinet, France. E-mail: jeanne.loyen@irsn.fr*

Environmental impact

Natural radionuclides, among them uranium, thorium and their decay products are present in the environment and can be transferred to animals and animal products and ultimately to humans. The present study of the radionuclide activity concentrations in chicken meat and egg contents at five different sites allows the assessment of the natural radioactivity and contributes to the dose assessment for humans. Moreover, the study of the activity concentrations in grain mixture, drinking water and soil particles ingested by poultry permits a better understanding of the main sources of each radionuclide and the calculation of concentration ratios and transfer coefficients for chicken meat and egg contents. These data could be used to implement the modelling of the transfer of natural radionuclides to animal products.

This journal is © The Royal Society of Chemistry 2012

via drinking water is generally a small contributor to the total radionuclide intake and normally restricted soon after an accident. Radionuclide intake *via* soil ingestion can be significant but the availability for absorption of soil associated radionuclides may be low. Thus it is essential to have robust and reliable methods to quantify the transfer of radionuclides to animal products in case of chronic or accidental releases of radioactivity into the environment. Although some reviews have provided compilations of transfer values for animal products[5] the values concerning natural radionuclides are relatively scarce. For chicken meat and egg contents the mean transfer values for uranium (0.75 d kg^{-1} and 1.1 d kg^{-1} respectively) are only based on two results from the study of Prister.[6]

The main objective of this work is to improve the knowledge of radionuclide activity concentrations in chicken meat and egg contents and their transfer as well, in natural environments. In this way, the activity concentrations of uranium, thorium and some decay products were determined in chicken meat and egg contents from five different regions of the French territory. One of these sites is located in the area influenced by the releases of the nuclear fuel fabrication facility of Tricastin (Rhône Valley) to estimate the potential influence of the discharges. Moreover, in order to assess the contribution of other potential sources of radionuclides for animals, the activity concentrations in the feeding grains, in the drinking water and in the potentially ingested soil were also determined. The results of this investigation allow the calculation of the concentration ratios and the transfer coefficients of chicken meat and egg contents.

2. Materials and methods

2.1 Study sites and sampling strategy

Five sites were selected within France, according to their geological background in order to cover the variability of uranium activity concentrations in French soils. The first site (VM) is located in the Vosges Mountains, with a granite bedrock; the second site (W-MC), characterized by a substrate of leucogranites, is located in the western part of the Massif Central. The third site (MC), in the central part of the Massif Central, is characterized by a volcanic substrate. The last two sites are in the Rhône Valley which is an alluvial region. The difference between these last two sites is based on the potential influence of the nuclear fuel fabrication facility at Tricastin (conversion and enrichment of uranium). The first one (RV-IZ) is located under the dominant winds of the nuclear facility and the other one (RV-NIZ) is out of the influence (Fig. 1). During the summer of 2010, chickens and eggs were punctually taken from each site as well as the grains for feeding animals, the consumed water and the soil of the chicken coop. Chickens were purchased from local farms, previously slaughtered, plucked and eviscerated. The chicken samples consisted of the meat of 4 or 5 individuals and egg samples consisted of 7 dozens of egg contents in order to get the mass necessary for the measurements. In all farms, the chickens and the laying hens were bred outdoors and were free to roam through meadows, to eat grass and earthworms and to ingest soil particles. Data obtained from the farmers (breed, weight, age and daily food intake at slaughter) are given in Table 1 for the meat hens. For three sites the breeds were the *Gallus gallus domesticus* and hybrids for the two other sites. The mean bodyweights ranged between 1.26 and 2.14 kg depending on the age at slaughter (from 84 to 150 days old). The age of laying hens ranged from five to fifteen months, thus the daily food intake varied among individuals and was on average approximately 120 g d^{-1} of grains. For meat hens, the daily food intake was also related to the age and ranged between 100 and 200 g. Thus the agricultural practices from site to site were slightly different and could induce some variations in the activity concentrations measured in meat and egg contents. However a higher influence for the ingested sources was assumed, as strong variability is observed in the concentrations of radionuclide sources (activity concentrations in grains, soil and water) (see Section 3.2). Soil samples were composed of eight soil cores of 5 cm depth randomly collected in the free area of the chicken coop. Water samples of 10 L were collected in clean containers. Unfortunately for the site RV-IZ no water sample was collected. The grain samples (3 kg each) were taken from the grain tanks of the farms. The two sites in the Rhône Valley (RV-NIZ and RV-IZ) are geographically close (about 30 km) and the grains for animals come from the same producer, therefore the grains associated with chicken meat and egg contents are thus the same in both sites. The chickens of Massif Central (MC) were fed with two types of grains, thus two grain samples were associated with this site.

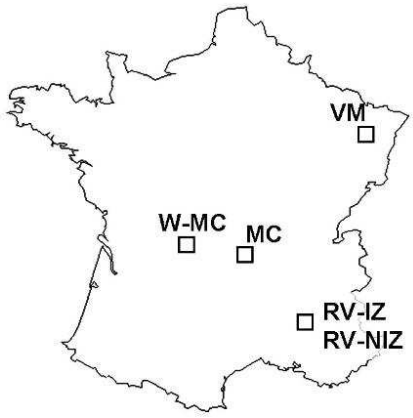


Fig. 1 Location of the various studied sites in France.

Table 1 Available data on meat hens, mean bodyweight (kg), daily feed intake (g d^{-1}), age (d) at slaughter and breed

Site	Mean bodyweight (kg)	Daily grain intake (g d^{-1})	Age at slaughter (d)	Breed
RV-IZ	1.57	100	120	*Gallus gallus domesticus*
RV-NIZ	1.94	100	From 90 to 120	*Gallus gallus domesticus*
VM	1.26	120–130	84	Red bro
MC	2.14	200	From 126 to 140	*Gallus gallus domesticus*
W-MC	1.79	125	120	JA 657

2.2 Sample preparation

All samples were prepared for analyses in the Laboratory of Radioecological Research in Continental and Marine Environment (LERCM) of the French Institute for Radioprotection and Nuclear Safety (IRSN).

2.2.1 Organic samples: chicken meat, egg contents and grains. First, the shells of the eggs were removed. The egg contents (albumen and yolk) without the shell were homogenized and weighed. The chickens (plucked and eviscerated) and the grains were also weighed to get the fresh weight and all these samples were dried at 80 °C. Then, the chicken meat was carefully separated from the bones and weighed. Finally, all the samples were ashed at 480 °C and weighed before analysis.

2.2.2 Inorganic samples: soil and water. Soil samples were sieved at 2 mm and lyophilized. Then they were crushed into fine powder before measurements.

Water samples were acidified but not filtered in order to measure the activity concentration actually ingested by the animals.

2.3 Sample analysis

In order to determine the radionuclide activity concentrations, various analyses were performed depending on the sample nature. The organic samples are usually characterized by low activity concentrations and were therefore measured by ICP-MS in order to obtain the activity concentrations of uranium and thorium isotopes. They were also measured by gamma spectrometry to get the activity concentrations of the decay products (^{228}Ra, ^{224}Ra, ^{226}Ra, ^{210}Pb). The soil samples characterised by the highest activity concentrations were only measured by gamma spectrometry to obtain uranium, thorium and their decay products. All these analyses were performed at the Laboratory of Environmental Radioactivity Measurements (LMRE) of IRSN. The water samples were prepared at the sample processing laboratory (LTE) and measured by alpha spectrometry at the Laboratory for Nuclear Measurements (LMN) of IRSN to obtain the activity concentrations of uranium isotopes.

2.3.1 Isotopic analysis of uranium and thorium

2.3.1.1 Organic samples. Isotopic analyses of uranium and thorium in chicken meat, egg contents and grains were performed by ICP-MS (X Series 2 from Thermo Fisher Scientific) after sample digestion and purification. Approximately 0.5 g of the sample ashes were spiked with a certified ^{233}U solution and ^{229}Th solution (UBP10020 from AEA Technology, composed of 99.67% ^{233}U and ^{229}Th from Eckert and Ziegler isotope products, composed of 75.62% ^{229}Th, respectively). Then, the samples were digested at 80 °C for 3 days in a DigiPREP Jr system (SCP Science®) under reflux conditions with concentrated HNO_3, HCl, H_2O_2, and a few drops of HF. The samples were evaporated and 3 M HNO_3 was added to dissolve them. The samples were separated in two aliquots, one for uranium purification in an extraction UTEVA chromatography column (Triskem®), the other one for thorium purification in an extraction AG1X4 chromatography column (Bio-Rad®). For uranium purification, 1.5 mL of the UTEVA resin was washed and conditioned with 3 M HNO_3 before 10 mL of the sample were added. The resin was then rinsed with 10 mL of 3 M HNO_3 and 5 mL of 5 M HCl were added to remove Th and other impurities from the samples. Finally, U was collected in 15 mL of 0.01 M HCl. The U fractions were evaporated and recovered with 0.5 M HNO_3 for measurement. For thorium purification, 12 mL of the AG1X4 resin were first washed three times following the cycle water, 8 M HNO_3, water, 30% HCl. The aliquot of the sample for thorium purification was evaporated at 80 °C and recovered in 8 M HNO_3. $NaNO_2$ was then added to the samples 12 h before the introduction in the column. The resin was conditioned with 8 M HNO_3 before the introduction of the sample, followed by 180 mL of 8 M HNO_3 to rinse. Th was collected in 120 mL of 30% HCl. The Th fractions were then evaporated and recovered in 8 M HNO_3. The fractions were evaporated once more and dissolved in 0.5 M HNO_3 for measurement. All the acids used were of supra-pure grade (Merck®). In each batch, a blank sample was prepared and measured and a reference material was regularly analyzed. Uranium and thorium were measured with an inductively coupled plasma quadrupole mass spectrometer (ICP-QMS). The detection system was composed of an electron multiplier. The sample introduction comprised a cyclonic chamber and a classical concentric nebulizer (Meinhard® or Arimist®, 400 μL min^{-1}). All ICP-QMS data were acquired in electrostatic scanning and peak-jumping mode. The mass bias factor correction was measured precisely between each two samples and the linear correction model was applied. The activity concentrations of each isotope of U and Th were calculated respectively from the responses of the ^{233}U and ^{229}Th internal standards added at the beginning of the samples preparation with isotope dilution calculations. This method gave significant results for ^{238}U, ^{234}U, ^{235}U and for ^{232}Th. Unfortunately, no significant result was obtained in chicken meat and egg contents for ^{230}Th. They were all below the limit of quantification (14 mBq kg^{-1} f.w.).

2.3.1.2 Inorganic samples. The activity concentrations of ^{238}U and ^{232}Th in soil samples were determined by gamma spectrometry by measuring the gamma ray emission of their decay products ^{234}Th and ^{228}Ac respectively. The analytical procedure is detailed in the next section.

Uranium isotopes in water samples were determined by alpha spectrometry after chemical separation. About 500 mL of the sample test portion were spiked with a known concentration of ^{232}U as a tracer (certified solution A07251 provided by the National Physics Laboratory of London, UK). The digestion of the test portion was based on addition of HNO_3 followed by dry evaporation. The residue was dissolved with HNO_3, and H_2O_2. The first purification step was made by co-precipitation with $Ca_3(PO_4)_2$. The precipitate obtained was then dissolved in HNO_3 with $Al(NO_3)_3$. The thorium isotopes contained in the test portion were separated from uranium isotopes and the sample was purified through a UTEVA specific chromatographic extraction resin (Triskem®). Uranium isotopes were eluted with diluted HCl. A co-precipitation of uranium isotopes in a thin layer on a filter was obtained through CeF_3 whereas tetravalent uranium isotopes were co-precipitated with rare earths in the form of fluorides. The test portion was filtered through a 0.1 μm membrane filter (Millipore polypropylene filter $d = 47$ mm) and

This journal is © The Royal Society of Chemistry 2012

rinsed with H_2O. Then, the filter was dried and placed on a stainless steel disk. The sample geometry obtained was ready for alpha spectrometry measurements. All the reagents used were of analytical grade (Merck®). A blank sample was prepared with every batch in order to evaluate the background with accuracy. The efficiency of chemical separation was validated by analyzing certified reference materials such as the water sample IAEA-381. Isotopic measurements of U were performed on a semi conductor detection type apparatus (Alpha analyst, Canberra, USA). The counting time was about 300 000 seconds. Isotopic activity concentrations were established from the response of the internal standard ^{232}U added at the beginning of the sample preparation.

2.3.2 Measurement of decay products of uranium and thorium. The decay products of uranium and thorium were measured by gamma spectrometry whatever the samples. Prior to gamma spectrometric analysis, the ashes were ground and compacted in a 60 mL cylinder box. These boxes were then vacuum-packed in airtight packets in order to conserve ^{222}Rn and to keep the same measurement geometry. Measurements were performed at least 24 days after packaging, which is the required time period for the decay products of ^{226}Ra to reach equilibrium. Indeed, after this delay, corresponding to more than six half-lives of ^{222}Rn, the activity concentration of this radionuclide is close to 99% of the ^{226}Ra activity concentration, and therefore it can be assumed that equilibrium has been reached. Gamma spectrometry was performed by counting for 80 000 s using hyper-pure germanium (HPGe) detectors with a relative efficiency greater than 50% (BEGe detectors from Canberra, or Profile-FX detectors from Ortec). These new-generation detectors exhibit better resolution and a lower background than coaxial n-type HPGe detectors. In chicken meat gamma measurements did not yield any significant results, all of them being below the detection limit. In egg contents and grains, this type of gamma spectrometry allowed for the determination of ^{226}Ra, ^{214}Pb, ^{214}Bi (daughters of ^{238}U), ^{228}Ac and ^{212}Pb (daughters of ^{232}Th). The results of ^{210}Pb were below the detection limit of 444 mBq kg^{-1} f.w. for egg contents. The ^{226}Ra activity concentration determined by gamma spectrometry was associated with a large uncertainty, but measurements of ^{214}Bi and ^{214}Pb in equilibrium with ^{226}Ra allowed a better estimation of the distribution of ^{226}Ra. ^{228}Ac and ^{212}Pb were also in equilibrium with their parents, ^{228}Ra and ^{224}Ra. In this study, the activity concentrations of ^{228}Ra, ^{224}Ra and ^{226}Ra in all the samples were deduced from the activity concentrations of their decay products, ^{228}Ac, ^{212}Pb and ^{214}Pb respectively.

3. Results and discussion

The activity concentrations given here for the chicken meat and the egg contents relate to fresh weights, whereas the activity concentrations given for soil and grains relate to the dry mass and the activity concentrations for water are expressed in Bq L^{-1}.

3.1 Activity concentrations of uranium, thorium and some decay products in chicken meat and egg contents

Activity concentrations of ^{238}U, ^{226}Ra, ^{232}Th, ^{228}Ra and ^{224}Ra in chicken meat and egg contents collected in the five regions of France are given in Table 2. In egg contents the highest activity concentrations are measured for radium isotopes. For ^{226}Ra, the range of the activity concentrations is between 136 and 190 mBq kg^{-1} and for ^{228}Ra between 73 and 109 mBq kg^{-1}. For ^{224}Ra lower activity concentration is observed and significant results are only recorded for two samples (12 and 17 mBq kg^{-1}). These results are relatively homogenous from site to site. Comparatively, the activity concentrations of uranium isotopes are even lower. For ^{238}U the activity concentration ranges between 0.51 and 1.30 mBq kg^{-1}; for ^{234}U between 0.5 and 1.4 mBq kg^{-1}; and for ^{235}U between 0.025 and 0.063 mBq kg^{-1}, but the variability from site to site is higher (a factor of three) than that of radium isotopes. The measurement of ^{232}Th activity concentration by ICP-QMS gave only one significant result (0.6 mBq kg^{-1}) which is very close to the limit of quantification. In chicken meat, the ^{238}U activity concentration is higher than in egg contents and ranges between 1.7 and 9.7 mBq kg^{-1}. Thus the variations of ^{238}U activity concentration from site to site reach about one order of magnitude. The ^{232}Th activity concentration is lower than for the ^{238}U (0.5 to 4.9 mBq kg^{-1}) but exhibits almost the same variability. In addition, data show that ^{238}U and ^{232}Th activity concentrations are correlated (R^2 = 0.71) (Fig. 2). In all samples, the uranium isotopes are in radioactive equilibrium

Table 2 Activity concentrations of ^{238}U, ^{226}Ra, ^{232}Th, ^{228}Ra and ^{224}Ra (in mBq kg^{-1} fresh weight), activity concentration ratio $^{234}U/^{238}U$ and mass ratio $^{235}U_m/^{238}U_m$ measured in chicken meat and egg contents from five sites in France

Site	FM/DM[a]	^{238}U	^{226}Ra (^{214}Pb)	^{232}Th	^{228}Ra (^{228}Ac)	^{224}Ra (^{212}Pb)	$^{234}U/^{238}U$	$^{235}U_m/^{238}U_m$ (%)
Activity concentrations in egg contents (mBq kg^{-1} fresh weight)								
RV-IZ	4.31	0.67 ± 0.08	136 ± 15	<0.5	109 ± 22	17 ± 5	1.2 ± 0.4	0.71 ± 0.03
RV-NIZ	3.96	1.30 ± 0.15	140 ± 15	<0.6	73 ± 18	12 ± 5	1.1 ± 0.3	0.72 ± 0.03
VM	2.59	0.48 ± 0.06	158 ± 20	<0.2	<204	<35	1.1 ± 0.6	0.72 ± 0.03
MC	3.87	1.14 ± 0.36	190 ± 22	0.6 ± 0.4	<140	<33	1.0 ± 0.5	0.73 ± 0.03
W-MC	4.16	0.51 ± 0.07	153 ± 20	<0.4	88 ± 39	<39	1.1 ± 0.4	0.75 ± 0.04
Activity concentrations in chicken meat (mBq kg^{-1} fresh weight)								
RV-IZ	2.77	3.0 ± 0.3	<84	1.2 ± 0.2	<95	<63	1.0 ± 0.2	0.73 ± 0.03
RV-NIZ	3.13	4.3 ± 0.5	<18	0.6 ± 0.1	<66	<13	0.9 ± 0.2	0.73 ± 0.03
VM	2.94	9.7 ± 1.1	<101	4.9 ± 0.8	<113	<79	1.5 ± 0.3	0.71 ± 0.03
MC	2.88	7.2 ± 1.8	<21	2.7 ± 1.8	<68	<47	1.0 ± 0.4	0.72 ± 0.04
W-MC	3.02	1.7 ± 0.2	<67	0.5 ± 0.1	<84	<61	1.1 ± 0.3	0.73 ± 0.04

[a] FM/DM: fresh mass and dry mass ratio.

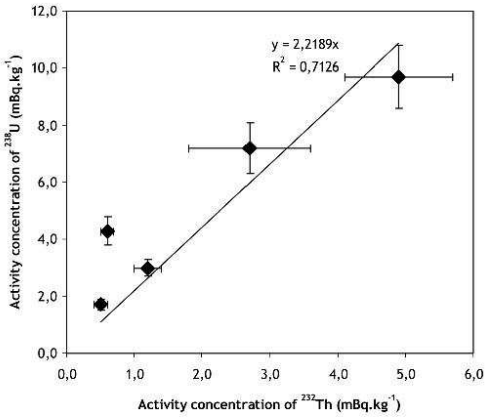


Fig. 2 Activity concentration of ^{238}U *versus* the ^{232}Th activity concentration in chicken meat (mBq kg^{-1} fresh weight).

($^{234}U/^{238}U = 1$), except for one sample of chicken meat from the Vosges Mountains (VM) which has a $^{234}U/^{238}U$ value slightly higher than unity (1.5 ± 0.3). The isotopic ratio $^{235}U_m/^{238}U_m$ can be used to highlight any influence due to uranium releases in the environment from a nuclear fuel facility.[7] However in the present study, no isotopic anomaly has been measured in the samples, the mass ratio $^{235}U_m/^{238}U_m$ giving the natural value (0.72%). Thus, in the matrices analysed in the present work no influence from the nuclear fuel facility of Tricastin can be detected with uranium isotopes.

Our results for egg contents are in the range of the values published by Pietrzak-Flis[3,4] whereas they are much lower than the data of Anke *et al.*[2] (Table 3). In contrast, the activity concentrations measured in chicken meat in the present work are higher than the ones from Pietrzak-Flis *et al.*,[3,4] but are in good agreement with the data from Anke *et al.*[2] The variability of the data from the literature is high, however the activity concentrations measured in the present study are within the range of this variability.

3.2 Source contribution by a qualitative approach

The aim of this section is to determine through a qualitative approach, the relations between the activity concentrations in egg contents and chicken meat to the consumed grains, the drinking water and the ingested soil particles. The activity concentrations of the grains, presented in Table 4 are heterogeneous, reflecting the various compositions of the samples. Indeed, grains can be composed of various cereals and legumes in various proportions. The ^{238}U activity concentration ranges between 0.09 and 15.45 Bq kg^{-1}. For ^{226}Ra, the activity concentration is low compared to ^{238}U (between 0.26 and 3.25 Bq kg^{-1}) except for two samples (VM and MC). The ^{232}Th activity concentration is lower than the one of ^{238}U and ranges between

Table 3 Activity concentrations of ^{238}U, ^{234}U, ^{230}Th, ^{226}Ra, ^{232}Th, ^{228}Ra, ^{224}Ra in egg contents and chicken meat from the literature (mBq kg^{-1} fresh weight)

Country	N^a	^{238}U	^{234}U	^{230}Th	^{226}Ra	^{232}Th	^{228}Ra	^{224}Ra	References
Activity concentrations in egg contents (mBq kg^{-1} fresh weight)									
S-W Poland	—	1.78 ± 0.27	1.33 ± 0.23	1.56 ± 0.57	186 ± 6	2.47 ± 0.3		22.5 ± 3.0	Pietrzak-Flis *et al.*, 1997[4]
Central Poland	3	1.63 ± 0.01	1.35 ± 0.04	1.46 ± 0.15	100 ± 5	1.52 ± 0.25		20.1 ± 1.0	Pietrzak-Flis *et al.*, 2001[3]
Germany	6	49 ± 5	51 ± 5						Anke *et al.*, 2009[2]
Activity concentrations in chicken meat (mBq kg^{-1} fresh weight)									
Korea	12			2.66 ± 0.21	25.7 ± 0.1	1.27 ± 0.15	24.4 ± 0.2	8.58 ± 0.39	Choi *et al.*, 2008[8]
S-W Poland	—	1.74 ± 0.28	1.82 ± 0.29	2.06 ± 0.68	8.5 ± 1.5	1.65 ± 0.6		2.48 ± 0.76	Pietrzak-Flis *et al.*, 1997[4]
Central Poland	3	2.62 ± 0.22	3.21 ± 0.08	1.95 ± 0.7	7.1 ± 0.3	1.31 ± 0.33		3.8 ± 0.04	Pietrzak-Flis *et al.*, 2001[3]
Germany	6	10.0 ± 0.1	10.2 ± 0.1						Anke *et al.*, 2009[2]

[a] Number of samples.

Table 4 Activity concentrations of ^{238}U, ^{226}Ra, ^{232}Th, ^{228}Ra and ^{224}Ra in the grains for meat hens and laying hens (Bq kg^{-1} dry matter) and the activity concentration ratios $^{234}U/^{238}U$ and the mass ratios $^{235}U_m/^{238}U_m$

Site	^{238}U	^{226}Ra (^{214}Pb)	^{232}Th	^{228}Ra (^{228}Ac)	^{224}Ra (^{212}Pb)	$^{234}U/^{238}U$	$^{235}U_m/^{238}U_m$ (%)
Activity concentrations of grains for laying hens (Bq kg^{-1} dry matter)							
RV-IZ	4.7 ± 0.6	3.3 ± 0.3	5.4 ± 0.9	5.6 ± 0.8	5.9 ± 0.7	0.9 ± 0.2	0.72 ± 0.03
RV-NIZ							
VM	16 ± 2	2.0 ± 0.2	0.22 ± 0.04	0.4 ± 0.1	0.29 ± 0.03	0.9 ± 0.2	0.72 ± 0.02
MC	13 ± 2	1.6 ± 0.2	0.08 ± 0.01	<0.3	0.13 ± 0.04	0.9 ± 0.2	0.73 ± 0.03
W-MC	8 ± 1	1.1 ± 0.1	0.28 ± 0.05	1.0 ± 0.2	0.6 ± 0.1	0.9 ± 0.2	0.72 ± 0.03
Activity concentrations of grains for meat hens (Bq kg^{-1} dry matter)							
RV-IZ	4.7 ± 0.6	3.3 ± 0.3	5.4 ± 0.9	5.6 ± 0.8	5.9 ± 0.7	0.9 ± 0.2	0.72 ± 0.03
RV-NIZ							
VM	0.36 ± 0.04	0.72 ± 0.09	0.25 ± 0.04	0.4 ± 0.1	0.40 ± 0.06	0.9 ± 0.2	0.74 ± 0.03
MC	0.09 ± 0.01	0.26 ± 0.04	0.04 ± 0.01	0.2 ± 0.1	0.16 ± 0.03	0.9 ± 0.2	0.72 ± 0.03
MC	4.4 ± 0.5	0.47 ± 0.06	0.05 ± 0.01	1.0 ± 0.2	0.64 ± 0.07	0.8 ± 0.2	0.72 ± 0.03
W-MC	n.m.	0.34 ± 0,04	n.m.	0.4 ± 0.1	0.28 ± 0.03	n.m.	n.m.

This journal is © The Royal Society of Chemistry 2012

Table 5 Activity concentrations of ^{238}U, ^{226}Ra, ^{232}Th and ^{224}Ra in the soils of the chicken coop used for laying and meat hens (Bq kg^{-1}dry matter) and the mass ratio $^{235}U_m/^{238}U_m$

Site	^{238}U (^{234}Th)	^{226}Ra (^{214}Pb)	^{232}Th (^{228}Ac)	^{224}Ra (^{212}Pb)	$^{235}U_m/^{238}U_m$ (%)
Activity concentrations in soil of chicken coop used for laying hens (Bq kg^{-1} dry matter)					
RV-IZ	21 ± 3	27 ± 3	24 ± 3	23 ± 2	n.m.
RV-NIZ	13 ± 2	14 ± 1	11 ± 1	11 ± 1	n.m.
VM	60 ± 7	65 ± 6	64 ± 8	67 ± 7	0.80 ± 0.30
MC	50 ± 6	63 ± 6	57 ± 7	57 ± 6	0.81 ± 0.48
W-MC	53 ± 6	51 ± 5	56 ± 7	58 ± 6	0.82 ± 0.25
Activity concentrations in soil of chicken coop used for meat hens (Bq kg^{-1} dry matter)					
RV-IZ	21 ± 3	27 ± 3	24 ± 3	23 ± 2	n.m.
RV-NIZ	13 ± 2	14 ± 1	11 ± 1	11 ± 1	n.m.
VM	65 ± 7	77 ± 8	87 ± 11	85 ± 9	n.m.
MC	66 ± 7	90 ± 9	57 ± 7	55 ± 6	0.78 ± 0.25
W-MC	48 ± 6	52 ± 5	25 ± 3	25 ± 2	0.58 ± 0.43

0.04 and 5.37 Bq kg^{-1}. ^{228}Ra and ^{224}Ra (daughters of ^{232}Th) are enriched compared to their parent. Their activity concentrations range between 0.23 and 5.55 Bq kg^{-1} for ^{228}Ra and between 0.16 and 5.87 Bq kg^{-1} for ^{224}Ra. In all samples, ^{234}U is in radioactive equilibrium with its parent (*i.e.* $^{234}U/^{238}U = 1$) and the mass ratio $^{235}U_m/^{238}U_m$ is close to the natural ratio (0.72%).

The soil samples (Table 5) exhibit the highest activity concentrations compared to the other studied compartments (grains and water). Indeed, the ^{238}U activity concentration ranges between 13 and 66 Bq kg^{-1}. The ^{226}Ra is in radioactive equilibrium with its radioactive parent or slightly enriched. The ^{232}Th activity concentration ranges between 11 and 87 Bq kg^{-1} and its daughters (^{228}Ra and ^{224}Ra) are in radioactive equilibrium. The mass ratio $^{235}U_m/^{238}U_m$ is close to the natural ratio in all soil samples. The activity concentration of ^{238}U in water consumed by animals (Table 6) varies between 0.0019 and 0.030 Bq L^{-1}. The ^{234}U is in radioactive equilibrium with ^{238}U in all samples, except in the water from the Vosges Mountains (VM) where ^{234}U is enriched compared to its parent. The analysis of ^{235}U gave only one significant result (0.002 ± 0.001 Bq L^{-1}).

The recorded variations of ^{238}U and ^{232}Th in the chicken meat and the potential sources for the different studied areas are illustrated in Fig. 3 whereas the same variations for ^{238}U and ^{226}Ra in the egg contents are illustrated in Fig. 4. The ^{228}Ra and ^{224}Ra activity concentrations measured in the chicken meat and the ^{232}Th activity concentration in the egg contents are too low to be considered here. On these figures, some visual trends appear. First the activity concentration of ^{238}U in chicken meat seems to be more related to the activity concentrations in water and soil than to the activity concentration in grains. Similar trends of variation of ^{238}U are noticeable in chicken meat, water and soil. Indeed, the highest activity concentration of ^{238}U in chicken meat is found in the sample from the Vosges Mountains (VM) where the highest ^{238}U activity concentrations in soil and water are also measured. In comparison the ^{238}U activity concentration in the grains is relatively low for this site. For ^{232}Th, the lack of analysis of water samples does not allow to explain the variations observed in the chicken meat. In this case, the activity concentration seems to be more related to the activity concentration of the soils rather than the grains. The variations observed in egg contents do not follow the variations observed in soils and grains. Although the highest ^{238}U activity concentrations are measured in the soil and in the grains of the Vosges Mountains (VM), the egg sample from this area has the lowest activity concentration. In the two sites (RV-NIZ and MC) where water samples exhibit significant ^{238}U activity concentration, the egg contents show the highest ^{238}U activity concentration. The three other water samples yield values below the detection limit (0.004 Bq L^{-1}). They correspond to the egg samples with the lowest ^{238}U activity concentrations. It seems therefore that the variations of ^{238}U in egg contents are mostly determined by the activity concentration of ^{238}U in the water. A constant activity concentration of ^{226}Ra is observed in egg contents while the activity concentrations in soils and grains show large variations (14 to 65 Bq kg^{-1} and 1.1 to 3.2 Bq kg^{-1} respectively) and low activity concentration is measured in the water samples (below 0.017 Bq L^{-1}). Although the potential sources of radium isotopes remain difficult to identify due to nearly constant activity concentrations in egg contents, some assumptions can be made regarding the transfer mechanism of this radioisotope. Indeed, it is possible that Ra substitutes for Ca because these two elements have the same chemical properties and the same affinities.[9] This assumption would mean that radium uptake in egg contents is homeostatically controlled by Ca requirement. For example, any depletion of the Ca intake would increase the transfer of Ra in egg contents. Homeostatic control of an artificial radionuclide (such as ^{90}Sr) by calcium intake has been reported in milk.[10] More information is required in order to deeply characterize the transfer of radium isotopes to egg contents, which among the studied radionuclides exhibit the highest activity concentrations.

Table 6 Activity concentration of ^{238}U in water consumed by laying and meat hens (Bq L^{-1}) and the activity concentration ratio $^{234}U/^{238}U$

Site	^{238}U	$^{234}U/^{238}U$
Activity concentrations in water consumed by laying hens (Bq L^{-1})		
RV-NIZ	0.006 ± 0.002	1.3 ± 0.7
VM	<0.004	—
MC	0.004 ± 0.002	1.3 ± 0.8
W-MC	<0.004	—
Activity concentrations in water consumed by meat hens (Bq L^{-1})		
RV-NIZ	0.006 ± 0.002	1.5 ± 0.7
VM	0.030 ± 0.005	1.9 ± 0.4
MC	0.0019 ± 0.0017	1.5 ± 1.6
W-MC	0.005 ± 0.002	0.8 ± 0.5

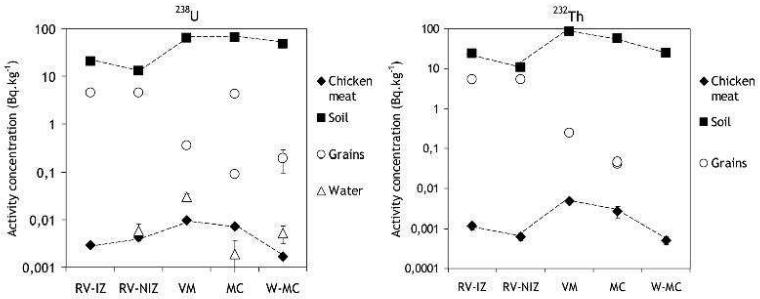


Fig. 3 Activity concentrations of ^{238}U and ^{232}Th in chicken meat, soil, grains and water samples at the five sites in France.

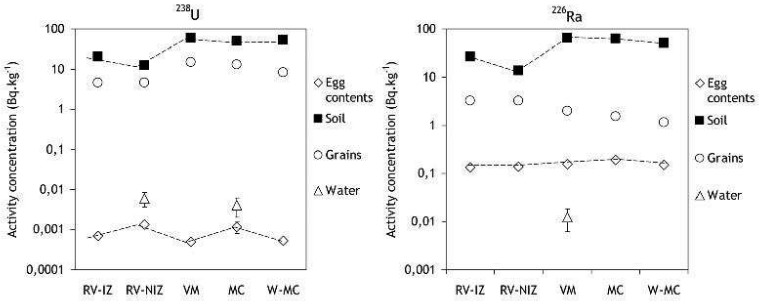


Fig. 4 Activity concentrations of ^{238}U and ^{226}Ra in egg contents, soil, grains and water samples at the five sites in France.

Due to the low variability of the activity concentrations in the egg contents, only the chicken meat samples are considered below. In order to evaluate the respective contribution of grains, water and soil on the activity concentration in the chicken meat, the daily ingested activity concentrations by the poultry were calculated. According to the information from the farmers (Table 1) the daily ingested rate of grains varied between 100 and 200 g d^{-1} (dry matter). In order to confirm these data, allometric functions were used to estimate food intake based on body-weight.[11] Results indicated food consumption rates around 100 g d^{-1} which are in agreement with the value given by Larbier and Leclercq (1992).[12] This value is also close to the one recommended for the modelling of radionuclide transfer to poultry which is 90 g d^{-1} (fresh weight).[13] We have therefore used a value of 100 g d^{-1} (dry matter) for the calculation of the daily ingested rate of grains. For the daily ingested rate of soil the value used here is 20 g d^{-1}. The value currently used for modelling varies between 10% and 30% of the daily rate intake depending on the food type.[14] Finally, the daily water consumption selected for the calculation is 0.25 L d^{-1}.[15] These assumptions of daily intakes allowed the calculation of the daily ingested activity concentrations of ^{232}Th and ^{238}U (Bq d^{-1}) for each source (Table 7). Although the results obtained are highly dependent on the assumptions, we can assume that the variability of the concentrations in the various sources has a higher influence. Whatever the considered radionuclide, the daily ingested activity concentration by soil intake varies from 0.22 to 1.32 Bq d^{-1} whereas the daily ingested activity concentration by consumption of grains is low (in any case below 0.5 Bq d^{-1}). For two sites (VM and MC) the highest thorium contribution comes from the ingestion of soil particles (>1 Bq d^{-1}) due to the high activity concentration of ^{232}Th in this compartment. For RV-IZ the contribution of the soil is close to that of the grains. For RV-NIZ the contribution of the grains is twice that of the soil. The main sources of uranium

Table 7 Contribution of the main sources to the ingestion of thorium and uranium by meat hens (in Bq d^{-1}) assuming a daily grain intake of 100 g d^{-1}, a daily soil intake of 20 g d^{-1} and a daily water consumption of 0.25 L d^{-1}

	RV-IZ	RV-NIZ	VM	MC	W-MC
Daily ingested ^{232}Th activity concentration (Bq d^{-1})					
Soil	0.48 ± 0.06	0.22 ± 0.03	1.74 ± 0.22	1.14 ± 0.14	0.50 ± 0.07
Grains	0.54 ± 0.09	0.54 ± 0.09	0.025 ± 0.04	0.004 ± 0.001	n.m.
Daily ingested ^{238}U activity concentration (Bq d^{-1})					
Soil	0.42 ± 0.06	0.26 ± 0.04	1.30 ± 0.14	1.32 ± 0.14	0.96 ± 0.12
Grains	0.47 ± 0.06	0.47 ± 0.06	0.036 ± 0.004	0.22 ± 0.03	n.m.
Water	n.m.	0.0015 ± 0.0006	0.0075 ± 0.0005	0.0005 ± 0.0004	0.0013 ± 0.0006

This journal is © The Royal Society of Chemistry 2012

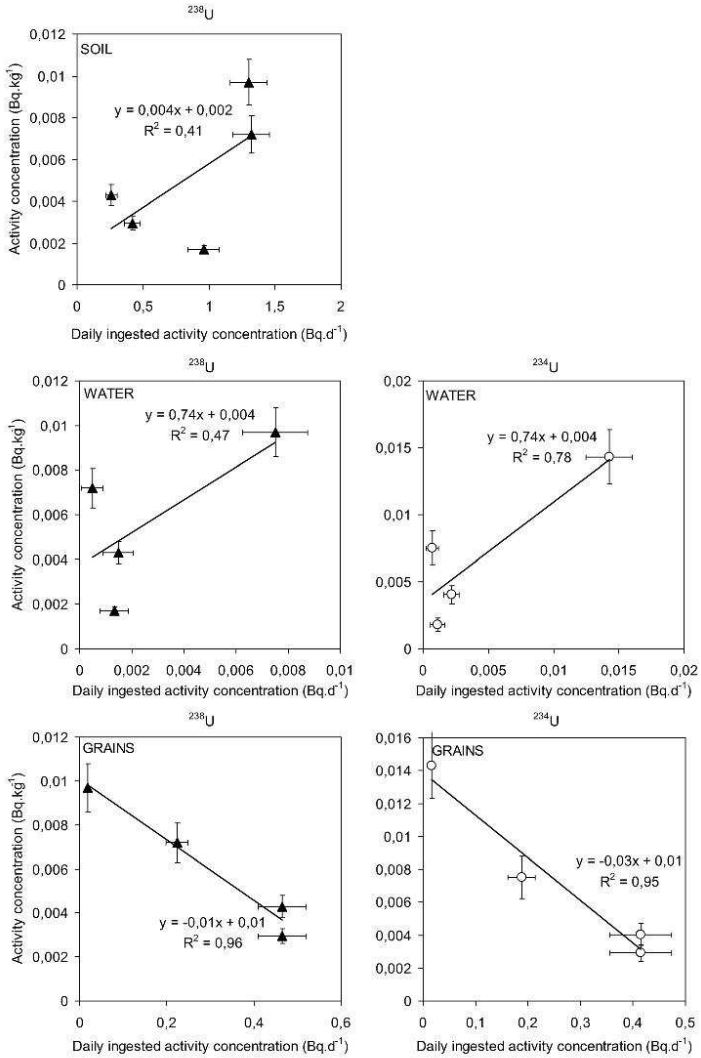


Fig. 5 Activity concentrations of ^{238}U and ^{234}U in chicken meat depending on the daily ingested activity concentrations.

isotopes vary from one site to another, with three sites (VM, MC and W-MC) whose the main contribution is that of soil and with two other sites (RV-IZ and RV-NIZ) whose the main contribution is the grains. Whatever the sites, the contribution of water is low, about three orders of magnitude lower than that of grains and soils (from 0.0005 to 0.0075 Bq d^{-1}).

Fig. 5 and 6 illustrate the activity concentrations of ^{238}U, ^{234}U and ^{232}Th in chicken meat *versus* the daily ingested activity concentrations by the various sources (soil, water and grains) computed according to the previous calculation mode (Table 7). No strong correlation is found between the activity concentration of ^{238}U in chicken meat and the daily ingested activity concentrations by soil ingestion and by water consumption (r^2 = 0.41 for soil; r^2 = 0.47 for water), but the lowest activity concentration measured in chicken meat is related to the lowest daily ingested activity concentrations. However, the correlation between the activity concentrations in chicken meat and the daily ingested activity concentrations by water consumption is stronger for ^{234}U than for ^{238}U (r^2 = 0.78), suggesting a possible relationship. Whatever the considered radionuclide, the daily ingested activity concentration by grain consumption is negatively correlated to the activity

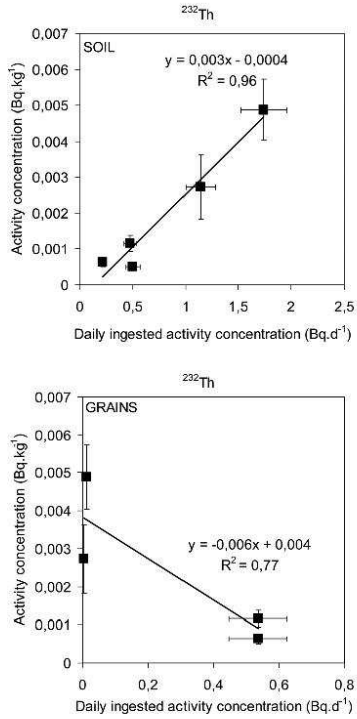


Fig. 6 Activity concentration of ^{232}Th in chicken meat depending on the daily ingested activity concentrations.

concentration in the chicken meat (^{238}U, $r^2 = 0.96$; ^{234}U, $r^2 = 0.95$; ^{232}Th, $r^2 = 0.77$) confirming that grains do not contribute to the activity concentration measured in chicken meat. In Fig. 6, the ^{232}Th activity concentration in chicken meat is strongly correlated with the daily ingestion of ^{232}Th *via* soil particle intakes ($r^2 = 0.96$). This means that the stronger the activity concentration of the soils, the stronger the contribution to the daily ingested activity concentration is observed, although the bioavailability of radionuclides and especially of thorium associated with soil particles may be low. Indeed, part of the thorium in soil is located inside the minerals (heavy minerals such as thorites, monazites and zircons) or is adsorbed at the surface of the minerals and organic particles or forms complexes with various phases. Only extraction experiments could evaluate the availability of radionuclides. Frelon *et al.* (2007)[16] performed analyses on sand samples to assess the radiological risk after internal exposure to uranium and thorium by ingestion of sand particles. It was found that the final Th percentage after synthetic gut digestion ranged between 0.14 and 0.07%. For U the percentage available ranged between 0.37 and 0.49% depending on the pH.

3.3 Concentration ratios and transfer coefficients

The concept of transfer coefficients (TF) was first proposed by Ward *et al.*[17] to describe the transfer of radiocaesium from the diet to the milk of dairy cattle. They defined the transfer coefficient expressed in d kg^{-1} as the equilibrium ratio between the activity concentration in the food product and the daily dietary radionuclide intake. Following this publication, it was widely adopted as the basis for quantifying transfer to meat for all radionuclides.[18] In our case, the transfer coefficients must take into account not only the contribution of grains but also the ingestion of soil and water, when those parameters were significant. The calculation of the transfer coefficients for both chicken meat and egg contents is based on the assumptions described earlier: 100 g d^{-1} of daily grains intake, 20 g d^{-1} of daily soil particles intake and 0.25 L d^{-1} of daily water intake. However, the consumption rates are dependent on many factors (biological and environmental factors and agricultural practices), and might differ substantially. Indeed, the grain consumption by hens is related to the age and to the bodyweight of the animal and also to the energy requirements.[12] Concerning the water consumption[15] and the soil ingestion,[14] they can be influenced by the type of food and the temperature. An alternative method to reduce the uncertainties due to intakes consists of using the concentration ratios (CR) which is expressed as the ratio of the radionuclide activity concentration in chicken meat or egg contents (fresh weight) divided by radionuclide concentration in feed (dry matter).[18]

3.3.1 Concentration ratios and transfer coefficients for egg contents. The concentration ratios and the transfer coefficients of ^{238}U, ^{226}Ra, ^{232}Th, ^{228}Ra, and ^{224}Ra for egg contents are displayed in the Table 8. The CR of ^{238}U is extremely low, ranging between 0.000031 and 0.00028. In contrast the CR of ^{232}Th obtained at the Vosges Mountain (VM) is higher (0.008 ± 0.006) and is in the same order of magnitude as the CR of radium isotopes (from 0.002 to 0.13). The CR of ^{226}Ra shows the highest values ranging between 0.042 and 0.13 whereas those of ^{228}Ra and ^{224}Ra range from 0.013 to 0.08 and from 0.0020 to 0.0029 respectively. The values of the transfer coefficients of ^{238}U show high variability (around one order of magnitude) and range between 0.00018 and 0.0018 d kg^{-1}. The only value that we could calculate for ^{232}Th is in the same range as for ^{238}U (0.0006 d kg^{-1}). The radium isotopes exhibit the highest values ranging between 0.10 and 0.23 for ^{226}Ra, between 0.07 and 0.11 for ^{228}Ra and 0.015 and 0.016 d kg^{-1} for ^{224}Ra. The values for radium isotopes are high compared to uranium and thorium and are consistent with the higher activity concentrations of radium in egg contents.

3.3.2 Concentration ratios and transfer coefficients for chicken meat. The CR and the transfer coefficient of ^{238}U and ^{232}Th for chicken meat are highly variable, more than two orders of magnitude, whatever the radionuclides (Table 9). Indeed, for ^{238}U the CR ranges between 0.0006 and 0.08 and for ^{232}Th it ranges from 0.00012 to 0.06. This high variability is in agreement with the previous observations which showed a negative correlation between the activity concentration of ^{238}U in chicken meat and the daily ingested activity concentration of grain consumption. The transfer coefficients of ^{238}U and ^{232}Th for chicken meat are quite similar, with values for uranium ranging between 0.0018 and 0.0073 and between 0.0008 and 0.0028 d kg^{-1} for thorium.

This journal is © The Royal Society of Chemistry 2012

Table 8 Concentration ratios and transfer coefficients (d kg^{-1}) of ^{232}Th, ^{228}Ra, ^{224}Ra, ^{238}U and ^{226}Ra for egg contents

Sites	^{238}U	^{226}Ra	^{232}Th	^{228}Ra	^{224}Ra
Concentration ratios					
RV-IZ	0.00014 ± 0.00002	0.042 ± 0.006	—	0.020 ± 0.005	0.0029 ± 0.0008
RV-NIZ	0.00028 ± 0.00005	0.043 ± 0.007	—	0.013 ± 0.004	0.0020 ± 0.0008
VM	0.000031 ± 0.000005	0.08 ± 0.01	—	—	—
MC	0.00009 ± 0.00003	0.12 ± 0.02	0.008 ± 0.006	—	—
W-MC	0.00006 ± 0.00001	0.13 ± 0.02	—	0.08 ± 0.04	—
Transfer coefficients					
RV-IZ	0.0008 ± 0.0001	0.16 ± 0.02	—	0.11 ± 0.03	0.016 ± 0.005
RV-NIZ	0.0018 ± 0.0003	0.23 ± 0.04	—	0.09 ± 0.03	0.015 ± 0.006
VM	0.00018 ± 0.00003	0.10 ± 0.02	—	—	—
MC	0.0005 ± 0.0002	0.13 ± 0.02	0.0006 ± 0.0004	—	—
W-MC	0.00027 ± 0.00005	0.13 ± 0.2	—	0.07 ± 0.03	—

Table 9 Concentration ratios and transfer coefficients (d kg^{-1}) of ^{232}Th and ^{238}U for chicken meat

Sites	^{238}U	^{232}Th
Concentration ratios		
RV-IZ	0.0006 ± 0.0001	0.00022 ± 0.00005
RV-NIZ	0.0009 ± 0.0002	0.00012 ± 0.00003
VM	0.027 ± 0.004	0.020 ± 0.005
MC	0.08 ± 0.01	0.06 ± 0.02
W-MC	0.009 ± 0.005	—
Transfer coefficients		
RV-IZ	0.0033 ± 0.0006	0.0011 ± 0.0003
RV-NIZ	0.0059 ± 0.0011	0.0008 ± 0.0002
VM	0.0073 ± 0.0011	0.0028 ± 0.0006
MC	0.0047 ± 0.0013	0.0024 ± 0.0016
W-MC	0.0018 ± 0.0003	0.0010 ± 0.0003

3.3.3 Comparison with the data from IAEA (2010).[5] The transfer coefficients for uranium found in this study are not consistent with those cited previously (0.75 and 1.1 d kg^{-1} for chicken meat and egg contents respectively[1]). Such a discrepancy is mainly due to the methodology used for both approaches. In our work the poultry are under natural conditions, while the technical document no. 1616 of IAEA[19] reports an experimental work where the uranium is not included in the diet of poultry but directly administered orally. Thus, the chemical form of the radionuclides can strongly influence the incorporation by the hens particularly during the gut absorption.[20] Sheppard *et al.* (2010)[21] studied transfer coefficients for poultry fed with grains and found a significantly lower value of U transfer coefficient compared to the technical report series of IAEA.[5] Indeed, the transfer coefficient for egg contents reported by Sheppard[21] is close to the mean value found in the present study (0.0007 d kg^{-1}).

4. Conclusion

This study has provided new data on the activity concentrations of uranium, thorium and their decay products in chicken meat and egg contents which are poorly documented. Through the study of the various potential sources it has also provided new elements allowing a better understanding of the transfer mechanisms. For chicken meat, water would be the most influential parameter contributing to its uranium activity concentration while soil would be more important for thorium. Thus, in case of accidental release leading to the contamination of the environment, the contamination of meat by uranium is emphasized by the consumption of water. Radium would be incorporated in egg contents by homeostatic transfer, presumably regulated by the supply of calcium to the animals. Moreover, the calculation of transfer coefficients and concentration ratios made in this work is in agreement with the recommendation of IAEA to improve the knowledge of thorium and radium transfer to egg contents and chicken meat.

Acknowledgements

The authors would like to thank T. Hinton for his help in correcting the language errors. All the technicians of the LERCM are also thanked for their assistance and especially D. Mourier for his help during the different field trips. Thank you to N. Cariou and A. Pichavant for the analyses performed at the LMRE.

References

1 Food and Agriculture Organisation of the United Nations, FAOSTAT-Nutrition Database, http://faostat.fao.org/default.aspx, accessed September 2011, 2007.
2 M. Anke, O. Seeber, R. Müller, U. Schäfer and J. Zerull, *Chem. Erde*, 2009, **69**, 75.
3 Z. Pietrzak-Flis, L. Rosiak, M. M. Suplinska, E. Chrzanowski and S. Dembinska, *Sci. Total Environ.*, 2001, **273**, 163.
4 Z. Pietrzak-Flis, M. M. Suplinska and L. Rosiak, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 1997, **222**, 189.
5 IAEA, *Handbook of Parameter Values for the Prediction of Radionuclide Transfer in Terrestrial and Freshwater Environments*, Technical Reports Series No. 472, International Atomic Energy Agency, 2010, p. 194.
6 B. S. Prister, *Doklany. Vashnil*, 1967, **1**, 31.
7 L. Pourcelot, B. Boulet and C. Cossonnet, *Radioprotection*, 2011, **46**, 345.
8 M. S. Choi, X. J. Lin, S. A. Lee, W. Kim, H. D. Kang, S. H. Doh, D. S. Kim and D. M. Lee, *J. Environ. Radioact.*, 2008, **99**, 1319.
9 J. D. Harrison and P. Fritsch, *Radiat. Prot. Dosim.*, 1992, **41**, 71.
10 N. A. Beresford, R. W. Mayes, H. S. Hansen, N. M. J. Crout, K. Hove and B. J. Howard, *Radiat. Environ. Biophys.*, 1998, **37**, 129.
11 C. R. MacDonald, *Ingestion Rates and Radionuclide Transfer in Birds and Mammals on the Canadian Shield*, Report TR-722 COG-95-551, AECL, Ontario, 1996.
12 M. Larbier and B. Leclercq, *Nutrition et alimentation des volailles*, INRA, Paris, 1992, p. 218.
13 H. Müller and G. Pröhl, *Health Phys.*, 1993, **64**, 232.

14 C. Joindreville, A. Travel and C. Feidt, *Proceedings of the 2nd National Research Meeting on Polluted Sites and Soils*, Paris, 2009.
15 W. Winchell, *Canada Plan Service*, 2001, **5603**, p. 2.
16 S. Frelon, V. Chazel, E. Tourlonias, E. Blanchardon, P. Bouisset, L. Pourcelot and F. Paquet, *Radiat. Prot. Dosim.*, 2007, **127**, 64.
17 G. M. Ward and J. E. Johnson, *Health Phys.*, 1965, **11**, 95.
18 B. J. Howard, N. A. Beresford, C. L. Barnett and S. Fesenko, *J. Environ. Radioact.*, 2009, **100**, 263.
19 IAEA, *Quantification of Radionuclide Transfers in Terrestrial and Freshwater Environments for Radiological Assessments*, IAEA-TECDOC-1616, International Atomic Energy Agency, 2009, p. 616.
20 S. Fesenko, N. Isamov, B. J. Howard, G. Voigt, N. A. Beresford and N. Sanzharova, *J. Environ. Radioact.*, 2007, **98**, 85.
21 S. C. Sheppard, J. M. Long and B. Sanipelli, *J. Environ. Radioact.*, 2010, **101**, 895.

This journal is © The Royal Society of Chemistry 2012

Chapitre 5 : Synthèse générale

Ce chapitre final a pour but de synthétiser l'ensemble des résultats acquis lors de ce travail de thèse.

Rappelons que les objectifs de la thèse sont l'amélioration des connaissances sur les niveaux des radioéléments des chaînes de l'uranium et du thorium dans les produits alimentaires et leur variabilité à l'échelle du territoire français, ainsi que l'amélioration des connaissances sur les mécanismes de transfert de ces radionucléides aux denrées. La première partie de ce chapitre a pour objectif de synthétiser les avantages et les inconvénients de chacune des techniques analytiques employées pour la mesure des activités dans les produits alimentaires. La pertinence du choix de ces méthodes est ensuite discutée en fonction de leur contribution à l'atteinte des objectifs fixés qui nécessite des limites de détection basses et des incertitudes de mesures faibles.

Dans une deuxième partie, nous verrons comment l'exploitation des résultats, publiée et soumise dans deux articles à *Journal of Environmental Monitoring,* a permis d'améliorer les connaissances sur les sources et les mécanismes de transfert aux salades, au blé, à la viande de volaille et aux œufs. Les conclusions des études menées dans ces domaines seront discutées et des perspectives de recherche seront proposées.

Enfin, la dernière partie de cette synthèse est dédiée aux calculs des doses efficaces liées à l'ingestion de denrées. Cette évaluation a été menée dans le but de compléter notre étude en évaluant les conséquences sanitaires. Pour cela, la dose radiologique est comparée à la toxicité chimique, par l'évaluation des quantités quotidiennes à ingérer pour atteindre les limites réglementaires de protection du public.

1. Comparaison des techniques analytiques

1.1. Performances et limites observées pour chaque technique analytique

Dans le but d'améliorer les connaissances sur les niveaux de la radioactivité dans les denrées, plusieurs techniques analytiques ont été employées. La spectrométrie γ s'est avérée un très bon outil pour caractériser les principaux radionucléides des chaînes de décroissance de l'uranium et du thorium (^{234}Th, ^{226}Ra, ^{214}Pb, ^{214}Bi, ^{228}Ac, ^{212}Pb, ^{212}Bi) dans les matrices alimentaires présentant des concentrations élevées, telles que les végétaux. Cependant, pour les matrices animales (viande, œufs, lait et fromage), caractérisées par des concentrations plus faibles, très peu de résultats significatifs (i.e., supérieurs aux limites de détection) ont été obtenus par cette technique (*cf*. annexe A).

Les mesures par ICP-QMS[1] des activités des isotopes de l'uranium sont très satisfaisantes car tous les résultats obtenus sont supérieurs aux limites de détection. Bien que les précisions obtenues soient variables d'un échantillon à l'autre, les mesures permettent cependant de caractériser la variabilité géographique entre les différents sites d'étude. En revanche, le rapport isotopique ^{234}U/^{238}U est assez peu précis (incertitude de 7 à 67%) ce qui ne permet que rarement de mettre en évidence des enrichissements en ^{234}U qui témoigneraient de la contribution des eaux d'irrigation ou d'abreuvage connues pour leur enrichissement en ^{234}U (Cherdyntsev *et al.*, 1955 ; Koide et Goldberg, 1964 ; Ku, 1965 ; Rosholt *et al.*, 1966 ; Moreira-Nordemann, 1980 ; Thurber, 1962 ; Vigier *et al.*, 2001 ; Henderson, 2002). Le rapport ^{235}U/^{238}U présente des incertitudes plus basses, comprises entre 2 et 7%. Les mesures ICP-QMS permettent également de mesurer ^{236}U, avec une précision sur le rapport ^{236}U/^{238}U comprise entre 20 et 40%.

Les mesures par ICP-QMS ont donné des résultats satisfaisants pour les activités en ^{232}Th dans les matrices où cet isotope est relativement abondant, ce qui a permis de compléter les données sur les activités des radionucléides dans les végétaux (salades, blé et romarin) et la viande de volaille. Aucun résultat significatif n'a cependant été obtenu pour les échantillons d'œuf, de lait et de fromage. De même, les activités en ^{230}Th n'ont donné aucun résultat significatif. Ceci a conduit à remesurer certains échantillons par MC-ICP-MS[2] afin d'obtenir des valeurs de ^{230}Th supérieures aux limites de détection dans les salades et le blé ainsi qu'une meilleure précision sur les activités en ^{232}Th.

L'étude des relations entre les activités mesurées dans les denrées et les sources potentielles de radionucléides requiert des mesures précises des activités afin de révéler de fins

---

[1] ICP-QMS : Inductively Coupled Plasma Quadrupole Mass Spectrometer.

[2] MC-ICP-MS : Multi Collection Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometer

déséquilibres dans les matrices, qui ne peuvent parfois être expliqués que par la contribution prédominante d'une des sources potentielles de radionucléides. Certaines techniques analytiques employées dans notre étude ont été à la hauteur de ces objectifs. En effet, les mesures réalisées par MC-ICP-MS sur les échantillons de salade et de blé ont donné des résultats très précis (incertitudes de 1 et 2% pour ^{230}Th et ^{232}Th). Faute de temps et de moyens, seules ces matrices ont été mesurées par MC-ICP-MS. Cette technique analytique aurait pu être transposée aux autres échantillons alimentaires ainsi qu'aux échantillons de sol et d'eau afin d'identifier les relations entre les activités dans les aliments et dans les sources potentielles de radionucléides et ainsi évaluer leur contribution.

Les mesures faites par TIMS[3] de l'uranium et du radium, dans les échantillons d'eau uniquement, ont donné des résultats très précis (incertitudes de 2% pour ^{238}U, ^{234}U, ^{235}U, ^{226}Ra). L'utilisation de cette technique pour d'autres matrices aurait pu révéler des excès de ^{234}U par rapport à ^{238}U et aurait alors démontré de manière plus directe une contribution prépondérante de l'eau aux activités en uranium dans les matrices alimentaires. De même, une meilleure précision des rapports ^{235}U/^{238}U (qui peut être réduite à 0,3% avec une mesure par TIMS) dans le blé et le romarin prélevés en aval des installations nucléaire du Tricastin aurait peut être révélé une valeur anormale du rapport, confirmant l'influence du site nucléaire. En effet, la présence de ^{236}U dans l'environnement traduit un apport d'uranium de retraitement et s'accompagne souvent d'une augmentation du rapport ^{235}U/^{238}U (Durand *et al.*, 1991 ; Wood, 2008). Du fait des incertitudes liées aux mesures par ICP-QMS, aucun enrichissement en ^{235}U n'a pu être observé dans ces végétaux.

1.2. Synthèse des avantages et des inconvénients de chaque technique

La mise en place de la mesure par spectrométrie γ est très rapide et nécessite très peu de préparation. En effet, une fois les échantillons conditionnés sous vide, seul un délai de mise à l'équilibre des radionucléides, de 24 jours au moins, doit être respecté avant l'analyse. En outre, le temps de comptage est relativement court (inférieur à une journée). L'importante quantité de matière nécessaire à l'obtention d'un résultat significatif représente le principal inconvénient. En effet, plusieurs kilogrammes frais d'échantillon sont nécessaires afin d'obtenir une quantité de cendres suffisante, comprise entre 35 et 15 g d'échantillon selon le volume de la géométrie utilisée (60 ou 17 mL). Toutefois, cette technique est non destructrice et son avantage majeur réside dans la conservation de l'échantillon, qui peut alors être réutilisé pour d'autres analyses.

Toutes les autres techniques utilisées (spectrométrie α, ICP-QMS, MC-ICP-MS, TIMS) nécessitent *a minima* une étape de minéralisation et de mise en solution des échantillons afin de permettre l'homogénéisation de la solution traceur/échantillon, suivie selon les cas d'une extraction radiochimique de l'élément à analyser. La spectrométrie α ne répond pas du tout aux objectifs fixés par notre étude, au vu de ses limites de détection et de ses incertitudes. Ses

---

[3] TIMS : Thermal Ionization Mass Spectrometer

performances pourraient être améliorées en augmentant la masse de la prise d'essai, le temps de comptage et en bénéficiant d'un détecteur à haute résolution.

Les mesures par spectrométrie de masse ont l'avantage de nécessiter très peu de matières (0,1 à 1 g). La durée de la mise en solution des échantillons dépend de leur nature et peut s'étendre jusqu'à quatre semaines. L'ICP-QMS donne des résultats très satisfaisants pour les isotopes de l'uranium, ce qui permet d'évaluer la variabilité des activités en fonction de la diversité des substrats géologiques des sites étudiés. Pour des études plus précises sur l'évaluation des transferts des radionucléides, une plus grande précision des résultats est requise et les techniques MC-ICP-MS, pour les isotopes du thorium, et TIMS, pour le radium et les isotopes de l'uranium, seraient tout à fait justifiées, malgré leur complexité et leur durée de mise en œuvre.

Le tableau 5.1 regroupe les différentes techniques analytiques utilisées dans le cadre de cette étude et présente une appréciation qualitative de la rapidité et de la facilité de chaque mesure, de leur limite de détection et des incertitudes associées aux résultats. Les données exactes sur les limites de détection et les incertitudes sont présentées dans les tableaux de l'annexe A.

Techniques	Rapidité de mise en œuvre	Eléments mesurés	l.d	Incertitude
Spectrométrie γ	++	^{234}Th - ^{234}U - ^{230}Th - ^{235}U - ^{227}Th ^{226}Ra - ^{214}Pb - ^{214}Bi ^{210}Pb ^{228}Ac - ^{212}Pb- ^{212}Bi	- + ++ +	- + ++ +
Spectrométrie α	-	^{238}U - ^{234}U - ^{235}U	-	-
ICP-QMS	-	^{238}U - ^{234}U - ^{235}U - ^{236}U ^{230}Th - ^{232}Th	++ -	++ -
MC-ICP-MS	-	^{230}Th - ^{232}Th	+++	+++
TIMS	-	^{238}U - ^{234}U - ^{235}U - ^{226}Ra	+++	+++

Tableau 5.1 : Appréciation qualitative des différentes techniques analytiques utilisées pour la mesure des radionucléides des chaînes de décroissance de ^{238}U, ^{235}U et ^{232}Th dans les matrices alimentaires et végétales, les échantillons de sol et les échantillons d'eau.
(- peu satisfaisant ; + correct ; ++ satisfaisant ; +++ très satisfaisant) ; l.d = limite de détection.

1.3. Perspectives analytiques proposées pour répondre aux lacunes persistantes

Les délais à respecter pour les mesures par spectrométrie γ entraînent la mise à l'équilibre des descendants de courtes périodes de ^{226}Ra (^{214}Pb et ^{214}Bi). Or, il serait intéressant de connaître les activités de ces radionucléides dans les denrées au moment du prélèvement, car elles apporteraient une information intéressante sur le comportement de leur élément père, ^{222}Rn, dans

les organismes vivants (plantes ou animaux). En effet, jusqu'à ce jour, nul ne sait si ce radionucléide gazeux se diffuse à l'extérieur des cellules vivantes et quitte l'organisme, provoquant ainsi la rupture de l'équilibre entre ^{226}Ra et ses descendants, ou bien s'il reste dans l'organisme. Afin d'obtenir ces informations, il pourrait être envisagé de réduire au maximum les délais entre le moment du prélèvement et l'analyse. Dans cette optique, les échantillons devraient être analysés sans prétraitement (séchage et calcination) au plus proche de la zone de prélèvement dans des géométries adaptées à la mesure de grand volume de matière fraîche (2 L). Dans le cadre de la présente étude, aucun moyen analytique de ce type n'était disponible pour la réalisation de ce travail, mais l'accident de Fukushima et la nécessité d'effectuer des mesures rapides ont permis de développer ce genre de structure.

Une des lacunes de ce travail réside dans l'absence de données sur ^{210}Po, connu pour ses concentrations relativement élevées dans les végétaux (Coppin et Roussel-Debet, 2004) et sa forte radiotoxicité (Rencová *et al.*, 1997). L'éloignement des laboratoires métrologiques, ainsi que le planning d'utilisation des appareils et des équipements sont à l'origine de délais analytiques importants (de 84 à 210 j). La demi-vie de ^{210}Po (138,4 j) est relativement courte au vue de ces délais ce qui implique une correction des activités mesurées afin d'obtenir l'activité de l'échantillon au moment de son prélèvement. Cette correction doit d'une part, prendre en compte la décroissance de ^{210}Po durant les délais analytiques et d'autre part, sa formation du fait de la désintégration de son élément père ^{210}Pb. Les incertitudes obtenues sur les mesures de ^{210}Pb et de ^{210}Po peuvent s'avérer trop importantes pour obtenir un résultat fiable de l'activité en ^{210}Po au moment du prélèvement. Afin d'obtenir des résultats plus précis, il est indispensable de réduire les délais entre le prélèvement et la mesure à moins de deux semaines (Pietrzak-Flis *et al.*, 1997a). Ceci impliquerait de posséder sur place les équipements nécessaires à la dissolution des échantillons et à leur mesure par spectrométrie α (Henricsson *et al.*, 2011). Une autre possibilité serait d'effectuer deux mesures espacées dans le temps de plusieurs mois afin de permettre la croissance de ^{210}Po à partir de ^{210}Pb de l'échantillon et ainsi remonter à l'activité initiale en ^{210}Po (Charmasson *et al.*, 2011).

Les techniques analytiques utilisées dans la présente étude n'ont permis d'apporter aucune information sur les activités des radionucléides de la chaîne de ^{235}U, excepté pour ^{235}U lui-même. Les descendants directs de ^{235}U : ^{231}Pa et ^{227}Ac, sont toutefois des radionucléides de grand intérêt étant donnée leur forte radiotoxicité. Pour ces radionucléides, les limites de détections des mesures par spectrométrie γ sont trop importantes pour obtenir des résultats significatifs (20 à 100 Bq.kg^{-1} de cendres pour ^{231}Pa et 5 à 20 Bq.kg^{-1} de cendres pour ^{227}Th à l'équilibre avec ^{227}Ac). Il serait donc important d'améliorer les techniques de mesures de ces radionucléides. Certains auteurs utilisent la spectrométrie α pour déterminer l'activité en ^{227}Ac, par sa propre raie d'émission (Martin *et al.*, 1995) ou par celle de son descendant radioactif, ^{227}Th (Geibert *et al.*, 2002 ; Nozaki et Yamada, 1990). ^{231}Pa a également été mesuré par spectrométrie α après radiochimie des échantillons, ou

bien par AMS[4] (Christl *et al.*, 2007). Les niveaux d'activité mesurés dans ces études sont en général supérieurs aux niveaux rencontrés dans les denrées, c'est pourquoi il est nécessaire d'adapter ces techniques aux mesures de bas niveaux.

[4] AMS : Accelerator Mass Spectrometer

2. Apports de la présente étude aux connaissances sur les transferts des radionucléides

2.1. Les transferts des radionucléides naturels aux plantes

2.1.1. Description des études existantes sur les transferts des radionucléides aux végétaux

La plupart des études qui traitent des transferts aux plantes des radionucléides des chaînes de décroissance de l'uranium et du thorium se focalisent uniquement sur les transferts par voie racinaire (Blanco-Rodriguez *et al.*, 2010 ; Bunzl et Trautmannsheimer, 1999 ; Chen *et al.*, 2005 ; Ehlken et Kirchner, 2002 ; Köhler *et al.*, 2000 ; Martínez-Aguirre *et al.*, 1996 ; Oufni *et al.*, 2011 ; Vera-Tomé *et al.*, 2002, 2003), mais très peu d'entre elles incluent les autres voies de transfert que sont les apports foliaires de radionucléides par les eaux d'irrigation, par les particules atmosphériques et par la remise en suspension de particules de sol. Or, il a été révélé par le passé que ces facteurs pouvaient contribuer de manière significative aux activités mesurées dans les plantes (Lakshmanan et Venkateswarlu, 1988 ; Hakonson-Hayes *et al.*, 2002 ; Pietrzak-Flis et Skowronska-Smolak, 1995). La compréhension des transferts sol-plante représente un challenge scientifique car le nombre de paramètres susceptibles d'influencer l'ampleur des transferts est très important (Bettencourt *et al.*, 1988). Les caractéristiques physico-chimiques des sols, les conditions climatiques, le type de plantes, la partie de la plante concernée (feuilles, fruits, tiges, racines, etc.) et la forme physico-chimique des radionucléides sont autant de facteurs à prendre en compte pour comprendre la variabilité des transferts. Au vu de tous ces paramètres, l'influence de l'eau d'irrigation, des particules de sol et des particules atmosphériques trouvent rarement sa place dans ces études.

2.1.2. Particularités de la présente étude par rapport aux conditions d'obtention des données

Afin d'étudier la variabilité des activités des radionucléides des chaînes de l'uranium et du thorium dans les salades et le blé, des prélèvements *in-situ* ont été effectués sur différents sites caractérisés par des activités dans les sols, plus ou moins élevées. Dans le but de s'affranchir de la diversité des pratiques agricoles (apport d'engrais ou de pesticides, labour, irrigation, etc.), qui est susceptible d'induire une variabilité des activités mesurées (Ehlken et Kirchner, 2002), nous avons sélectionné des exploitations agricoles répondant aux mêmes critères pour le prélèvement d'échantillons de salade et de blé (*cf.* Chapitre 2). Grâce au panel de techniques analytiques et au choix de ces sites, les activités des principaux radionucléides des chaînes de décroissance naturelles ont pu être caractérisées, ce qui a permis d'obtenir une large gamme d'activités, d'un ordre de grandeur environ, dans les salades et le blé. Ces activités sont bien représentatives de la variabilité au sein du territoire français et reflètent les activités dans les sols correspondants, étant donné que

les activités les plus fortes sont mesurées dans les végétaux cultivés sur les sols les plus riches en radionucléides.

Le choix de l'étude *in-situ* ne permet pas de contrôler tous les facteurs susceptibles d'influencer les activités. Ainsi, la durée précise de culture des plantes est variable d'un site à l'autre. L'étude aurait gagné à être menée sur des cultures ayant eu la même durée de croissance, mais, pour des raisons logistiques, il n'a pas été possible de caler la durée de croissance des plantes sur les différents sites. De même, la diversité des sites sélectionnés a induit une grande diversité des conditions climatiques, des types de sol et de leurs caractéristiques physico-chimiques qui peuvent interagir sur la biodisponibilité et le transfert des radionucléides. Les eaux d'irrigation prélevées présentent différentes origines. Certaines sont issues du réseau d'eau potable alors que d'autres proviennent de puits ou de bassins et sont exemptes de traitement chimique. Des activités en uranium plus importantes semblent résulter de cette absence de traitement chimique et pourraient s'expliquer par une relation entre l'uranium et la présence de colloïdes (Sivry *et al.*, 2006). En effet, lors des traitements chimiques pour la potabilisation de l'eau une grande partie des colloïdes est éliminée, alors que dans les eaux de puits et de bassin non traitées, ils restent présents.

L'absence de relation linéaire entre les activités mesurées dans les végétaux et celles mesurées dans les sols (Blanco-Rodriguez *et al.*, 2002) peut ainsi être imputée aux différentes caractéristiques des sols, à la durée de culture des végétaux, à la variabilité climatique d'un site à l'autre ou bien à la contribution des apports liés aux eaux d'irrigation, aux particules de sol et aux particules atmosphériques. Au vu des nombreux facteurs existants, l'étude des relations entre les activités dans les végétaux et celles des sources potentielles n'aurait pas pu conduire à l'avancée des connaissances sur les transferts des radionucléides. C'est pourquoi nous avons axé la présente étude sur l'examen des rapports d'activités des radionucléides dans les végétaux et dans les sources potentielles de radionucléides.

2.1.3. Examen des rapports d'activités des radionucléides et conséquences sur la connaissance des transferts aux végétaux

L'étude des rapports d'activités permet de rechercher dans les matrices végétales la signature des sources potentielles autre que celle imputable à un simple transfert par voie racinaire.

La présence de particules de sol à la surface des végétaux peut se traduire par la mesure de rapport d'activités similaires dans les plantes et les sols. Par exemple, il est connu que le radium possède une mobilité plus grande que l'uranium qui est lui-même plus mobile que le thorium (Linsalata *et al.*, 1989). Au cours du transfert racinaire, on s'attend donc à ce que la plante incorpore plus de radium et d'uranium que de thorium ce qui a pour effet d'augmenter les rapports $^{238}U/^{232}Th$, $^{226}Ra/^{238}U$ et $^{226}Ra/^{230}Th$ dans les plantes par rapport à ceux des sols. Nos mesures ont cependant révélé que les rapports dans les plantes et dans les sols pouvaient être très proches, ce qui peut être imputé à la présence de particules de sol à la surface des végétaux. Cette hypothèse

pourrait être vérifiée par la mesure des terres rares qui sont très difficilement absorbées par les plantes et dont la présence suggère une contribution directe des particules de sol (Sheppard *et al.*, 2010 ; Sheppard et Evenden, 1995). Beresford *et al.* (2002) proposent également d'utiliser le titane qui est un élément difficilement absorbé par la végétation.

La contribution des apports d'uranium par les eaux d'irrigation a pu être mise en avant par l'étude des rapports isotopiques de l'uranium ($^{234}U/^{238}U$) dans les salades. En effet, les mesures réalisées ont montré que les échantillons de salade qui ont été arrosés avec des eaux riches en uranium présentaient un excès de ^{234}U par rapport à ^{238}U. Cet excès ne peut être attribué qu'à l'apport d'uranium par les échantillons d'eau d'irrigation étant donné que les rapports mesurés dans les sols sont proche de l'équilibre séculaire ($^{234}U/^{238}U = 1$) et que les isotopes de l'uranium ne subissent pas de fractionnement isotopique au cours du transfert racinaire. L'amélioration des connaissances sur le transfert de l'uranium de l'eau d'irrigation aux plantes passe par une mesure plus précise des rapports isotopiques dans les salades et les sols. Cette meilleure précision permettrait d'évaluer la proportion d'uranium provenant des eaux et celle provenant du transfert racinaire sol-plante, en supposant que la signature isotopique de la salade résulte de la combinaison des signatures isotopiques des eaux et des sols.

La contribution des apports de particules atmosphériques à l'activité mesurée dans les plantes est surtout visible pour ^{210}Pb. Ce radionucléide, descendant du radon gazeux, est en effet présent en grande quantité dans les particules atmosphériques. Dans notre étude, aucun prélèvement de particules atmosphériques n'a pu être réalisé étant donné le caractère ponctuel de nos campagnes d'échantillonnage, le coût de l'appareillage et la distance entre chaque région et chaque point de prélèvements. L'étude du rapport d'activités $^{210}Pb_{tot}/^{210}Pb_{sup}$ ($^{210}Pb_{tot}$ étant l'activité en ^{210}Pb mesurée et $^{210}Pb_{sup}$ étant l'activité en ^{210}Pb à l'équilibre avec son père ^{226}Ra, dite « supporté ») confronté à l'activité en ^{210}Pb supporté des végétaux, permet de visualiser les excès de ^{210}Pb provenant de l'atmosphère par rapport à ^{210}Pb issu de la désintégration de ^{226}Ra contenu dans les plantes. Ces rapports révèlent que du fait de sa longue période de croissance, le blé est plus fortement soumis aux apports atmosphériques que ne le sont les salades. Il apparaît également que les particules atmosphériques contribuent d'autant plus à l'activité mesurée en ^{210}Pb que l'activité en ^{210}Pb supporté est faible. L'étude des activités en ^{7}Be (produit dans l'atmosphère lors de réactions de spallation d'atome d'azote et d'oxygène sous l'effet du rayonnement cosmique) permettrait de vérifier que cet excès provient bien d'un apport atmosphérique. En effet, Pourcelot *et al.* (2011b) démontrent l'existence d'une forte corrélation entre les activités en ^{210}Pb et en ^{7}Be du fait de l'origine atmosphérique de ^{210}Pb.

La présente étude sur les apports de radionucléides des chaînes de l'uranium et du thorium par les différentes sources de radionucléides aux plantes (particules atmosphériques, particules de sol et eaux d'irrigation) souligne l'importance de leur prise en compte lors de l'évaluation des transferts aux plantes. En effet, une estimation plus précise des transferts ne peut se limiter aux simples échanges sol-plante. Les facteurs de transfert sol-plante, couramment utilisés dans les études radioécologiques afin de prédire l'impact d'une contamination de l'environnement,

devraient impérativement tenir compte des autres voies de transfert que le simple transfert racinaire.

2.2. Les transferts des radionucléides aux produits animaux

Très peu d'études se sont intéressées aux transferts des radionucléides des chaînes de l'uranium et du thorium à la viande de volaille et aux œufs (Izak-Biran *et al.*, 1989 ; Ng *et al.*, 1982 ; Prister, 1967 ; Sheppard *et al.*, 2010). Les seules études disponibles sont réalisées en laboratoire et ont pour objectif de définir des coefficients de transfert entre les activités ingérées et les activités mesurées dans la viande de volaille et les œufs. Ces études se basent sur l'ingestion par voie orale de radionucléides qui sont, soit ingérés seuls, soit incorporés artificiellement à l'alimentation ce qui peut significativement différer des conditions normales d'ingestion de radionucléides par les animaux.

2.2.1. Particularités de la présente étude par rapport aux conditions d'obtention des données

Afin d'étudier les transferts des radionucléides des chaînes de l'uranium et du thorium à la viande de volaille et aux œufs, des prélèvements ont été réalisés sur des sites permettant d'obtenir des activités variables dans les sols, les grains et les eaux. Les gammes d'activités s'étendent sur un ordre de grandeur quelle que soit la matrice, ce qui permet d'étudier les transferts des radionucléides dans différentes conditions. Cette étude *in-situ* présente cependant des limites. La composition des aliments consommés par les animaux est variable d'un site à l'autre (grains, mélange de céréales, légumineuses) or ces différences sont susceptibles de modifier les transferts des radionucléides aux animaux du fait des différents taux de digestibilité des aliments (AIEA 2010). L'âge et le poids des volailles à l'abattage ainsi que la race élevée sont également des paramètres qui varient d'un site de prélèvement à l'autre et qui sont susceptibles d'avoir un effet sur les transferts des radionucléides aux animaux (Fesenko *et al.*, 2009). La compréhension des mécanismes de transfert aurait été plus aisée dans des conditions d'élevages similaires mais nous avions également pour objectif de caractériser la variabilité des activités dans différentes conditions.

Les résultats obtenus sur ces matrices animales (viande de volaille et œufs) se sont heurtés au problème de très faibles concentrations des radionucléides dans les échantillons analysés et aux faibles quantités d'échantillon disponibles pour les analyses. Ainsi, la plupart des échantillons ont été conditionnés dans des géométries de 17 mL par manque de matière au lieu de 60 mL habituellement. De ce fait, pour la viande de volaille aucun résultat significatif sur les descendants radioactifs de l'uranium et du thorium n'a été obtenu par spectrométrie γ. Seules les mesures ICP-QMS ont permis de caractériser les activités en uranium (^{238}U, ^{234}U et ^{235}U) et en thorium (^{232}Th). Dans les œufs, des résultats significatifs ont été obtenus pour les activités en ^{226}Ra, ^{228}Ra et ^{224}Ra

par spectrométrie γ et pour les activités en ^{238}U, ^{234}U et ^{235}U par ICP-QMS. Un seul résultat significatif a été obtenu dans cette matrice pour les activités en ^{232}Th par ICP-QMS.

Ce manque de données nous a conduit à préférer l'étude comparative des activités dans chaque type de matrice plutôt que l'étude des rapports d'activités.

2.2.2. Examen des activités massiques des diverses matrices et hypothèses sur les voies de transfert

La comparaison des activités dans la viande de volaille et les œufs avec celles des différentes sources de radionucléides (sols, aliments, eaux) a permis de mettre en évidence plusieurs relations. Tout d'abord, il est apparu que les activités en uranium dans les œufs semblaient être liées aux activités en uranium dans les eaux. La spectrométrie α utilisée pour l'évaluation des activités dans les eaux a donné très peu de valeurs significatives qui sont entachées d'incertitudes relativement importantes empêchant une interprétation plus précise des résultats. Afin de vérifier la contribution de l'eau à l'activité en uranium dans les œufs, il serait nécessaire de recourir à des mesures plus performantes des activités en uranium par TIMS par exemple.

Les activités en ^{226}Ra sont très homogènes quel que soit l'échantillon d'œuf alors que les activités dans les sols et les aliments sont assez variables. Le radium étant un analogue chimique du calcium (Harrison et Fritsch, 1992), il est probable que le transfert du radium soit homéostatiquement régulé par les besoins de l'œuf en calcium. Des études expérimentales pourraient être menées pour s'assurer de cette hypothèse, en faisant varier les taux de calcium contenus dans les aliments des poules pondeuses et en évaluant la variation des activités en radium dans les œufs. On s'attendrait donc à mesurer une augmentation des activités en radium lors de carences en calcium et à l'inverse une diminution des activités en radium lors d'excès en calcium. Un tel mécanisme a été démontré pour le transfert de ^{90}Sr dans le lait qui est accentué lorsque les apports en calcium dans la nourriture sont faibles (Beresford *et al.,* 1998 ; Beresford *et al.,* 2000).

Concernant les échantillons de viande de volaille, certaines tendances laissent suggérer que l'eau d'abreuvage pourrait contribuer à l'activité en uranium dans la viande, notamment les corrélations mises en évidence entre les activités en ^{234}U dans la viande et dans les eaux ($R^2 = 0,78$). De surcroît, malgré les imprécisions, un excès de ^{234}U par rapport à ^{238}U apparaît dans l'échantillon de volaille prélevé dans les Vosges. Or, il s'agit du site pour lequel l'eau d'abreuvage montre l'activité en ^{238}U la plus importante (0,03 $Bq.L^{-1}$). Un tel enrichissement ne peut être imputé qu'à l'apport d'uranium par l'eau consommée, connue pour être enrichi en ^{234}U (Henderson, 2002). Des mesures plus précises des rapports isotopiques de l'uranium permettraient probablement de révéler l'existence d'enrichissement en ^{234}U par rapport à ^{238}U dans d'autres échantillons de viande, et confirmeraient l'existence d'apport d'uranium par l'eau à la viande de volaille. Cette approche pourrait être transposée aux échantillons de lait et de fromage afin de déterminer la source d'uranium pour ces denrées. Froidevaux *et al.* (2004) se sont déjà penchés sur la question et ont démontré que l'eau d'abreuvage pouvait contribuer aux apports d'uranium pour le lait et le fromage étant donné que les rapports isotopiques $^{234}U/^{238}U$ mesurés montrent un excès en ^{234}U.

La confrontation des activités en ^{232}Th dans les sols et dans la viande de volaille révèle l'existence d'une forte corrélation (R^2 = 0,96). L'activité en ^{232}Th dans la viande de volaille aurait ainsi pour origine l'ingestion de particules de sol. Toutefois, il serait intéressant de connaître la fraction de thorium réellement délivrée par le sol lors de sa digestion. L'utilisation de méthodes d'extraction *in vitro*, similaires aux conditions rencontrées dans les voies digestives (Höllriegl *et al.*, 2010) permettrait d'obtenir cette information et de vérifier la persistance de la relation entre l'activité en ^{232}Th dans la viande et la fraction disponible pour l'absorption intestinale et le transfert dans le système sanguin.

Contre toute attente, aucune relation n'a pu être mise en évidence entre les activités mesurées dans la viande de volaille et dans les œufs et celles mesurées dans les aliments des volailles, quel que soit le radionucléide considéré. Cette absence de relation pourrait être due à l'absence de conditions d'équilibre entre les activités ingérées *via* les aliments et celles mesurées dans la viande et les œufs. Or, les données bibliographiques sur le sujet donnent pour l'uranium un délai de 25 jours avant que cet équilibre ne soit atteint (*cf.* figure 1.3 chapitre 1) (Calmon, 2006). Au vu de la durée de vie des volailles (de 100 à 200 jours), nous pouvons supposer que ce délai est largement atteint à condition que les éleveurs n'aient pas changé l'alimentation des volailles au cours de leur croissance.

Cette absence de relation entre les activités dans les aliments et celles mesurées dans la viande de volaille et les œufs pourrait également provenir de la prépondérance des autres sources (eaux et particules de sol) qui masquerait la contribution des aliments aux activités des radionucléides. Afin de vérifier cette hypothèse, des prélèvements dans des exploitations hors sol pourraient être effectués, ce qui supprimerait complètement la contribution du sol aux activités incorporées par les animaux.

Les facteurs de transfert calculés dans notre étude tiennent compte des activités ingérées par le biais des aliments, du sol et de l'eau d'abreuvage et montrent, notamment pour la viande de volaille, une plus grande homogénéité que les rapports de concentrations calculés (activités mesurées dans la viande par rapport aux activités dans les aliments). Ceci illustre bien l'importance de la prise en compte de toutes les sources de radionucléides (aliments, eau, sol).

3. Impact dosimétrique et sanitaire lié à l'ingestion des radionucléides étudiés

Afin de compléter les données acquises durant cette thèse, les conséquences sanitaires liées à l'ingestion des denrées prélevées ont été évaluées. Pour cela, des calculs de dose efficace par ingestion unitaire de denrées (pour un kilogramme de denrée ingérée) sont réalisés. La dose efficace est une grandeur physique (exprimée en Sv) qui rend compte de l'impact sur les tissus biologiques d'une exposition à un rayonnement ionisant. La radiotoxicité de l'uranium est ensuite comparée à sa toxicité chimique par la confrontation des quantités quotidiennes à ingérer pour atteindre les limites règlementaires de protection du public.

3.1. Dose et facteur de dose

Le calcul des doses reçues par l'homme suite à l'ingestion de certaines denrées se fait à partir des activités massiques de chaque radionucléide mesurées dans les denrées, d'un coefficient de dose propre à chaque radionucléide et de la masse de denrées ingérées. Le calcul de la dose efficace totale par ingestion présente des imprécisions étant donné la variabilité des régimes alimentaires d'une région à l'autre et d'un individu à l'autre. Le calcul de la dose efficace unitaire permet ainsi de s'affranchir de la quantité de denrées consommées en comparant les doses efficaces dues à l'ingestion d'un kilogramme d'aliment.

Les coefficients de dose efficace employés pour le calcul de la dose par ingestion pour un adulte sont issus de la base de données CIPR 30 (1980) (Commission Internationale de Protection Radiologique) et sont présentés dans le tableau 5.2.

Radionucléide	Coefficient de dose efficace	Radionucléide	Coefficient de dose efficace
^{232}Th	0,23	^{234}U	$4,90 \times 10^{-2}$
^{228}Ra	0,69	^{230}Th	0,21
^{228}Ac	$4,30 \times 10^{-4}$	^{226}Ra	0,28
^{228}Th	$7,20 \times 10^{-2}$	^{214}Pb	$1,40 \times 10^{-4}$
^{224}Ra	$6,50 \times 10^{-2}$	^{214}Bi	$1,10 \times 10^{-4}$
^{235}U	$4,70 \times 10^{-2}$	^{210}Pb	0,69
^{238}U	$4,50 \times 10^{-2}$	^{210}Bi	$1,30 \times 10^{-3}$
^{234}Th	$3,40 \times 10^{-3}$		

Tableau 5.2 : Coefficients de dose efficace par ingestion, pour l'adulte, des principaux radionucléides des chaînes de décroissance de ^{232}Th, ^{235}U et ^{238}U ($\mu Sv.Bq^{-1}$) issus de la base de données CIPR 30 (1980).

Les coefficients de dose par ingestion de ^{228}Ra et ^{210}Pb sont les plus élevés (0,69 $\mu Sv.Bq^{-1}$), suivis de ceux de ^{226}Ra, ^{232}Th et ^{230}Th (respectivement, 0,28, 0,23 et 0,21 $\mu Sv.Bq^{-1}$). Les coefficients de dose des isotopes de l'uranium sont 10 fois plus faibles et sont compris entre $4,50 \times 10^{-2}$ et $4,90 \times 10^{-2}$ $\mu Sv.Bq^{-1}$. Dans le même ordre de grandeur, on trouve les coefficients de dose de ^{228}Th et ^{224}Ra. Les coefficients de dose les plus faibles sont ceux de ^{228}Ac, ^{234}Th, ^{214}Pb, ^{214}Bi et ^{210}Bi.

3.2. Calcul des doses efficaces unitaires par ingestion de denrées

Dans les végétaux (salades et blé), des activités significatives ont été obtenues pour la plupart des radionucléides ce qui permet de calculer les doses efficaces unitaires pour l'adulte par ingestion d'un kilogramme de ces denrées. Pour les autres denrées étudiées, l'absence de résultats significatifs pour de nombreux radionucléides (^{232}Th, ^{228}Ra, ^{230}Th, ^{226}Ra, ^{210}Pb) ne permet pas une comparaison cohérente des données obtenues.

Les doses calculées pour le blé sont comprises entre 1,08 et 8,80 $\mu Sv.kg^{-1}$ de blé ingéré, alors que pour les salades, les valeurs sont plus variables (0,013 à 1,42 $\mu Sv.kg^{-1}$ de salade ingérée). Cette variabilité résulte de l'absence de résultats significatifs pour ^{210}Pb dans certains échantillons de salade, qui présentent alors les doses efficaces les plus faibles. La contribution de ^{210}Pb à la dose s'avère très importante, notamment pour le blé (figure 5.1). Cette forte contribution est liée d'une part aux fortes concentrations mesurées dans les végétaux du fait de leur exposition au dépôt de particules atmosphériques riches en ^{210}Pb et d'autre part au coefficient de dose important associé à ce radionucléide. Les salades présentent des activités plus faibles en ^{210}Pb, c'est pourquoi la contribution de ^{228}Ra et ^{226}Ra à la dose efficace est plus marquée dans ces échantillons.

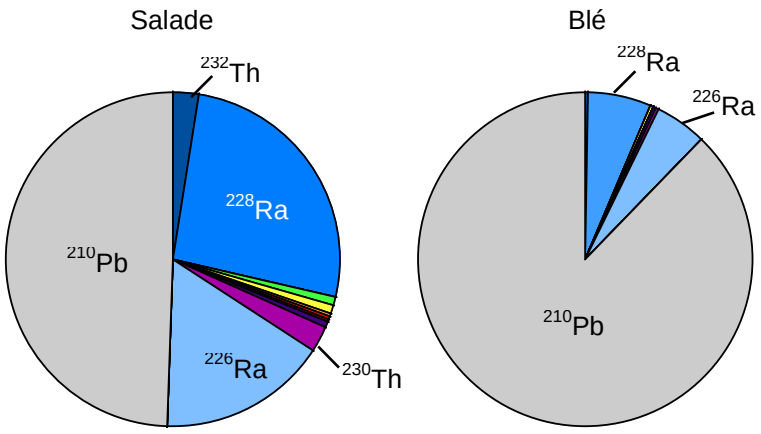


Figure 5.1 : Principaux radionucléides contribuant à la dose efficace pour un adulte par ingestion unitaire (1 kg) de salade, à gauche et de blé, à droite (échantillons W-MC).

3.3. Contribution à la dose et toxicité chimique de l'uranium

3.3.1. Evaluation de la dose unitaire par ingestion pour l'uranium

Les activités des isotopes de l'uranium ayant été mesurées dans tous les échantillons, nous avons choisi de ne présenter que les doses efficaces unitaires d'ingestion pour les isotopes de l'uranium (^{238}U, ^{234}U, ^{235}U). Elles sont calculées à partir des activités présentées en annexe E, pour un kilogramme frais de denrées ingérées. Les résultats obtenus pour chaque site et chaque denrée sont présentés dans le tableau 5.3.

Site[5]	Romarin	Blé	Salades	Œufs	Volailles	Fromage	Lait
RV-IZ	15,69	0,72	4,91	0,071	0,28	0,46	0,54
RV-NIZ	5,49	0,67	0,77	0,13	0,40	0,18	0,28
VM	-	0,76	8,31	0,049	1,16	-	4,28
VM	-	-	-	-	-	0,38	2,00
MC	-	2,62	10,85	0,11	0,71	0,21	0,43
W-MC	-	9,56	11,62	0,051	0,17	-	0,39

Tableau 5.3 : Doses efficaces par ingestion (isotope de l'uranium uniquement) calculées dans le cas d'un adulte consommant un kilogramme de denrées (en $nSv.kg^{-1}$ frais et $nSv.L^{-1}$ pour le lait).

[5] RV-IZ : Vallée du Rhône Zone Influencée ; RV-NIZ : Vallée du Rhône Zone Non Influencée ; VM : Vosges ; MC : Massif central ; W-MC : Ouest du Massif central.

Les doses d'ingestion unitaire de l'uranium présentent une grande variabilité selon le type de denrée alimentaire et sont comprises entre 0,049 et 16,69 $nSv.kg^{-1}$. Les doses les plus faibles sont calculées pour les œufs quel que soit le site considéré, et sont comprises entre 0,049 et 0,13 $nSv.kg^{-1}$. Les valeurs les plus fortes sont obtenues dans l'échantillon de romarin du site RV-IZ (15,69 $nSv.kg^{-1}$), dans les échantillons de salade des sites MC et W-MC (respectivement 10,85 et 11,62 $nSv.kg^{-1}$) et dans l'échantillon de blé du site W-MC (9,56 $nSv.kg^{-1}$). Les doses calculées pour les échantillons de blé ne sont cependant pas représentatives de la dose réellement ingérée par l'homme. En effet, l'activité à partir de laquelle est calculée la dose est celle de l'épi dans son ensemble et non des grains de blé qui sont l'unique partie comestible. Des mesures complémentaires ont ainsi été réalisées afin de connaître la part d'activité contenue dans les grains et celle provenant des résidus de meuneries (enveloppes et téguments). Les résultats montrent que pour l'échantillon concerné, l'activité en uranium dans les grains ne représente que 22% de l'activité de l'épi de blé complet. La dose liée à l'ingestion des grains de blé, est alors 5 fois moins importante. Globalement, les produits d'origine animale (viande, œufs, fromage, lait) présentent des doses d'ingestion plus faibles (de 0,022 à 1,70 $nSv.kg^{-1}$) que les produits végétaux (de 0,34 à 7,59 $nSv.kg^{-1}$ frais).

3.3.2. Toxicité chimique de l'uranium

Les dangers liés à la toxicité chimique de l'uranium en tant que métaux lourds sont considérés comme étant supérieurs de six ordres de grandeur à ceux liés à sa radioactivité (Schnug *et al.*, 2005), pour une composition isotopique de l'uranium proche de celle de l'uranium naturel. La valeur toxicologique de référence (VTR), correspondant pour l'uranium à la dose journalière admissible ou acceptable (DJA) a été défini par Health Canada (2004) et équivaut à 0,6 $\mu g.kg^{-1}.j^{-1}$ (kg de poids corporel). Pour un homme de 70 kg, la DJA de l'uranium est donc de 42 $\mu g.j^{-1}$. Dans le but d'estimer la toxicité chimique des denrées échantillonnées, les activités en uranium (^{238}U, ^{234}U, ^{235}U) ont été converties en concentrations massiques afin d'obtenir la concentration en uranium totale des échantillons (tableau 5.4). Les concentrations obtenues s'étendent de 0,14 à 13,67 $\mu g.kg^{-1}$ frais.

Site	Romarin	Blé	Salades	Œufs	Volailles	Fromage	Lait
RV-IZ	12,54	0,98	4,01	0,05	0,24	0,37	0,45
RV-NIZ	4,62	0,89	0,62	0,10	0,35	0,16	0,23
VM	-	1,03	6,87	0,04	0,79	-	3,05
VM	-	-	-	-	-	0,31	1,72
MC	-	3,85	8,50	0,09	0,58	0,17	0,35
W-MC	-	13,67	9,76	0,04	0,14	-	0,31

Tableau 5.4 : Concentrations massiques des échantillons en uranium (µg.kg^{-1} frais et µg.L^{-1} pour le lait).

3.3.3. Radiotoxicité vs toxicité chimique de l'uranium

La dose efficace maximale admissible, du fait des activités nucléaires concernant le public a été fixée par la règlementation française[6] à 1 mSv.an^{-1}. Les quantités quotidiennes de denrées qu'il faudrait consommer pour atteindre cette limite sont présentées dans le tableau 5.5 et sont confrontées aux quantités qu'il faudrait consommer pour atteindre la dose journalière admissible (DJA) de 42 µg.j^{-1}.

	Quantité d'aliment à ingérer pour atteindre la dose efficace maximale admissible (kg.j^{-1} ou L.j^{-1})	Quantité d'aliment à ingérer pour atteindre la DJA (kg.j^{-1} ou L.j^{-1})
Romarin	175 – 499	10 – 68
Blé	287 – 4 119	3 – 47
Salades	236 – 3 569	4 – 68
Œufs	21 232 – 55 832	401 – 1069
Volailles	2 365 – 16 268	53 – 304
Fromage	5 997 – 15 408	112 – 264
Lait	641 – 9 871	14 - 182

Tableau 5.5 : Quantité quotidienne (minimale et maximale) d'aliments à ingérer pour atteindre la dose efficace annuelle de 1 mSv.an^{-1} (en kg.j^{-1} et L.j^{-1} pour le lait) et la dose journalière admissible de 42 µg.j^{-1}.

[6] La limite de dose efficace annuelle (article R1333-8 du Code de la Santé Publique) reçue par une personne du public du fait des activités nucléaires est fixée à 1 mSv.

Toutes les quantités présentées dans le tableau 5.5 sont, de loin, supérieures aux quantités journalières moyennes consommées en France (FAOSTAT, 2007). Les quantités quotidiennes de denrées à ingérer pour atteindre la dose efficace limite, représentent des valeurs très élevées, de 361 à 125 663 $kg.j^{-1}$, impossibles à atteindre quel que soit le produit alimentaire considéré. En revanche, les quantités à ingérer pour atteindre la valeur de référence toxicologiques sont bien plus faibles (de 2 ordres de grandeur). Les quantités les plus faibles sont calculées pour les échantillons de blé (W-MC) et de salade (VM, MC et W-MC), et sont de l'ordre de 3 à 6 $kg.j^{-1}$ alors que pour les denrées pauvres en uranium et notamment pour les œufs, les quantités d'aliments à ingérer peuvent atteindre des valeurs supérieures à 1 000 $kg.j^{-1}$.

Ces résultats illustrent que, dans le cas de l'uranium, l'ingestion de denrées issues de régions riches en radionucléides naturels, telles que celles où nous avons effectué nos prélèvements, ne présentent pas de risque sanitaire que ce soit d'un point de vue chimique ou radiologique.

Conclusion

Le présent travail montre que l'étude *in-situ* est une approche indispensable pour garantir la représentativité des niveaux d'activités des principaux radionucléides naturels dans les denrées et évaluer leur variabilité à l'échelle du territoire français en fonction des différents substrats géologiques. Cependant, nous avons pu voir qu'elle doit impérativement mettre en œuvre une procédure rigoureuse d'échantillonnage qui demande une étude approfondie de la géologie des sites choisis pour le prélèvement des échantillons et qui s'accompagne d'une enquête préliminaire auprès des agriculteurs. Ces investigations permettent d'identifier les sources de variabilité liées à la géologie et aux pratiques agricoles propres à chaque site et à chaque exploitation et sont indispensables à l'exploitation des résultats.

D'un point de vue métrologique, la caractérisation de l'ensemble des radionucléides des chaînes de décroissance de l'uranium et du thorium nécessite des délais analytiques réduits qui permettent la mesure des activités des radionucléides de faible demi-vie avant que les équilibres séculaires ne soient atteints (^{214}Pb, ^{214}Bi ou ^{210}Po, par exemple). Ce travail met également en évidence le besoin d'améliorer les outils métrologiques afin d'estimer les activités des descendants de ^{235}U (^{231}Pa et ^{227}Ac), connus pour leur forte radiotoxicité, dans les denrées.

L'approche *in-situ* souligne également l'importance de la contribution des différentes sources de radionucléides (eau, sol, particules atmosphériques pour les végétaux ; aliments, eau, sol pour les produits animaux) aux activités mesurées dans les denrées, ce qui permet une meilleure compréhension de la variabilité des activités rencontrées dans les productions alimentaires. L'étude des transferts des radionucléides naturels aux denrées nécessite des techniques analytiques très fines, telles que les mesures par MC-ICP-MS et TIMS afin d'obtenir une meilleure précision permettant de quantifier des excès ou des appauvrissements liés à la contribution plus ou moins importante des différentes sources. Dans nos travaux, nous avons mis en évidence cette contribution par l'étude comparative des activités et des rapports d'activités des principaux radionucléides naturels dans les denrées et dans les différentes sources possibles. Cependant, la connaissance approfondie des mécanismes de transfert doit passer par une expérimentation *in-vitro*, dont les paramètres essentiels sont maîtrisés et dans laquelle chaque source peut être étudiée séparément. En effet, les études réalisées jusqu'à présent révèlent l'importance des paramètres intrinsèques aux différentes sources de radionucléides (granulométrie, teneur en matière organique, capacité d'échange cationique et pH pour les sols ; taux de digestibilité pour les aliments à destination des animaux), aux denrées (physiologie et durée de croissance de la plante, âge et poids des animaux) et aux radionucléides (solubilité, forme physico-chimique) sur les transferts aux denrées.

Le travail qui a été réalisé au cours de cette thèse contribue à la surveillance radiologique de l'environnement français en proposant une gamme d'activités naturelles à l'échelle du territoire pour différentes denrées, qui était jusqu'à maintenant inexistante. Pour les produits végétaux

(salade et blé), les gammes de variabilité des activités s'étendent de 10^{-4} à 10 $Bq.kg^{-1}$ frais et pour les produits animaux (volailles et œufs) de 10^{-5} à 10^{-1} $Bq.kg^{-1}$ frais. Une telle gamme permettra de situer les niveaux d'activités dans les denrées mesurés dans des zones influencées par des rejets industriels chroniques ou accidentels et permettra ainsi de mettre en perspective les risques sanitaires qui en découlent.

Bibliographie

Aarkrog, A., Lippert, J., 1971. Direct contamination of barley with Cr-51, Fe-59, Co-58, Zn-65, Hg-203 and Pb-210. *Radiation Botany*, **11**, 463-472.

Aarkrog, A., 1972. Direct contamination of barley with Be-7, Na-22, Cd- 115, Sb-125, Cs- 134 and Ba- 133. RISOE report No. 256. Dannish Atomic Energy Commission, pp 163-175.

Aarkrog, A., 1975. Radionuclide levels in mature grain related to radiostrontium content and time of direct contamination. *Health Physics*, **28**, 557-562.

Ahmed, N.K., El-Arabi, G.M., 2005. Natural radioactivity in farm soil and phosphate fertilizer and its environmental implications in Qena governorate, Upper Egypt. *Journal of Environmental Radioactivity*, **84**, 51–64.

AIEA, International Atomic Energy Agency, 1985. Uranium Biogeochemistry: A bibliography and report on the State of the art, IAEA-TECDOC N°327, pp 9-15.

AIEA, International Atomic Energy Agency, 1994. Handbook of parameter values for radionuclide transfers in temperate environment. Technical report No 364, AIEA, Vienne, Autriche.

AIEA, International Atomic Energy Agency, 2009. Quantification of radionuclide transfer in terrestrial and freshwater environments for radiological assessments. IAEA-TECDOC-1616, Vienne, Autriche.

AIEA, International Atomic Energy Agency, 2010. Handbook of Parameter Values for the Prediction of Radionuclide Transfer in Terrestrial and Freshwater Environments. Technical Report No 472. AIEA, Vienne, Autriche.

Akinlua, A., Ajayi, T.R., Adeleke, B.B., 2006. Preliminary assessment of rare earth element contents of Niger-Delta oils. *Journal of Applied Sciences*, **6**, 11–14.

Akovali, Y.A., 1994. Nuclear data sheets for A = 234. *Nuclear Data Sheets 71*, 18.

Albrecht, A., Schultze, U., Liedgens, M., Fluhler, H., Frossard, E., 2002. Incorporating soil structure and root distribution into plant uptake models for radionuclides: toward a more physically based transfer model. *Journal of Environmental Radioactivity*, **59**, 329–350.

Amaral, R.D.S, De Vasconcelos, W.E., Borges, E., Silveira, S.V., Mazzilli, B.P., 2005. Intake of uranium and radium-226 due to food crops consumption in the phosphate region of Pernambuco – Brazil. *Journal of Environmental Radioactivity*, **82**, 383-393.

Amaral, E.C.S., Paretzke, H.G., Campos, M.J., Pires do Rio, M.A., Franklin, M., 1994. The contribution of soil adhesion to radiocaesium uptake by leafy vegetables. Radiation and Environmental Biophysics, **33**, 373-379.

Anderson, R.F., Bacon, M.P., Brewer, P.G., 1982. Elevated concentration of actinides in Mono Lake. *Science*, **216**, 514-516.

Anke, M., Groppel, B., Glei, M., 1994. Der Einfluss des Nutzungszeitpunktes auf den Mengen-und Spurenelement-gehalt des Grünfutters. *Das Wirtschaftseigene Futter*, **40**, 304–319.

Anke, M., Seeber, O., Müller, R., Schäfer, U., Zerull, J., 2009. Uranium transfer in the food chain from soil to plants, animals and man. *Chemie der Erde Geochemistry*, **69**, 75-90.

Arogunjo, A.M., Höllriegl, V., Giussani, A., Leopold, K., Gerstmann, U., Veronese, I., Oeh, U., 2009. Uranium and thorium in soils, mineral sands, water and food samples in a tin mining area in Nigeria with elevated activity. *Journal of Environmental Radioactivity*, **100**, 232-240.

Aubert, M., Bouiller, R., Camus, G., Cochet, A., D'Arcy, D., Giot, D., Jeambrun, M., Roche, A., Bonhommet, N., 1973. Notice explicative de la feuille Clermont-Ferrand à 1/50 000 N°693. BRGM éditions Service géologique national, Orléans, France.

Azouazi, M., Ouahidi, Y., Fakhi, S., Andres, Y., Abbe, J.C., Benmansour, M., 2001. Natural radioactivity in phosphates, phosphogypsum and natural waters in Morocco. *Journal of Environmental Radioactivity*, **54**, 231–242.

Banat, K.M., Howari, F.M., Al-Hamad, A.A., 2005. Heavy metals in urban soils of central Jordan: should we worry about their environmental risks?. *Environmental Research Section A*, **97**, 258–273.

Barber, D.A., 1968. Microorganisms and the inorganic nutrition of higher plants. *Annual Review of Plant Physiology*, **19**, 71–88.

Barber, D.A., Lee, R.B., 1974. The effect of microorganisms on the absorption of manganese by plants. *The New Phytologist*, **73**, 97–106.

Barbier, J., 1968. Etude pétrographique et géochimique du granite à deux micas des monts de Blond (Limousin, France). *Science de la Terre*, Nancy, tome XIII, n°3, pp 183-206.

Barci, V., Barci-Funel, G., Michel, H., Féraud, G., Dubar, M., Alabdullah, J., Potot, C., 2009. Sediment dating and groundwater residence time in lower basin of the Var river by radiochemistry and γ-ray spectrometry methods. *Comptes Rendus Chimie*, **12**, 861-864.

Bennett, B.G., 1997. Exposures to natural radiation worldwide. Dans : Proceedings of the 4th International Conference on High Levels of Natural radiation, Beijing, China, pp. 15–23.

Beresford, N.A., Barnett, C.L., Coward, P.A., Howard, B.J., Mayes, R.W., 2002. A simple method for the estimation of the bioavailability of radiocaesium from herbage contaminated by adherent soil. *Journal of Environmental Radioactivity*, **63**, 77-84.

Beresford, N.A., Mayes, R.W., Barnett, C.L., Howard, B.J., 2007. The transfer of radiocaesium to ewes through a breeding cycle – an illustration of the pitfalls of the transfer coefficient. Journal of Environmental Radioactivity, 98, 24-35.

Beresford, N.A., Mayes, R.W., Colgrove, P.M., Barnett, C.L., Bryce, L., Dodd, B.A., Lamb, C.S., 2000. A comparative assessment of the potential use of alginates and dietary calcium manipulation as countermeasures to reduce the transfer of radiostrontium to the milk of dairy animals. *Journal of Environmental Radioactivity*, **51**, 321-334.

Beresford, N.A., Mayes, R.W., Hansen, H.S., Crout, N.M.J., Hove, K., Howard, B.J., 1998. Generic relationship between calcium intake and radiostrontium transfer to the milk of dairy ruminants. *Radiation and Environmental Biophysics*, **37**, 129-131.

Beresford, N.A., Wright, S.M., 2005. Non-linearity in radiocaesium soil to plant transfer: Fact or fiction?. *Radioprotection*, **40**, 67-72.

Besson, B., 2009. *Sensibilité radioécologique des zones de prairies permanentes*. Thèse Sciences de la vie et de l'environnement. Besançon : Université de Franche-Comté, 2009, pp 295.

Bettencourt, A.O., Teiveira, M.M.G.R., Elieas, M.D.T., Faisca, M.C., 1988. Soil to plant transfer of Radium-226. *Journal of Environmental Radioactivity*, **6**, 49-60.

Birkefeld, A., Schulin, R., Newack, B., 2006. In situ investigation of dissolution of heavy metal containing mineral particles in an acidic forest soil. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, **70**, 2726–2736.

Blanco Rodríguez, P., Vera Tomé, F., Lozano, J.C., 2002. About the assumption of linearity in soil-to-plant transfer factors for uranium and thorium isotopes and ^{226}Ra. *The Science of the Total Environment*, **284**, 167-175.

Blanco Rodríguez, P., Vera Tomé, F., Lozano, J.C., Pérez Fernández, M.A., 2008. Influence of soil texture on the distribution and availability of ^{238}U, ^{230}Th, and ^{226}Ra in soils. *Journal of Environmental Radioactivity*, **99**, 1247-1254.

Blanco Rodríguez, P., Vera Tomé, F., Lozano, J.C., Pérez Fernández, M.A., 2010. Transfer of ^{238}U, ^{230}Th, ^{226}Ra and ^{210}Pb from soils to tree and shrub species in a Mediterranean area. *Applied Radiation and Isotopes*, **68**, 1154-1159.

Blanco Rodríguez, P., Vera Tomé, F., Pérez Fernández, M.A., Lozano, J.C., 2006. Linearity assumption in soil-to-plant transfer factors of natural uranium and radium in Helianthus annuus L. *Science of the Total Environment*, **361**, 1–7.

Bolca, M., Saç, M.M., Çokuysal, B., Karali, T., Ekdal, E., 2007. Radioactivity in soils and various foodstuffs from the Gediz River Basin of Turkey. *Radiation Measurements*, **42**, 263-270.

Bonin, B., Blanc, P.L., 2001. L'uranium dans le milieu naturel, des origines jusqu'à la mine, dans : EDP Sciences (Ed.), *L'uranium de l'environnement à l'Homme*, Collection IPSN, Les Ulis, pp 7-41.

Bonotto, D.M., 1998. Implications of groundwater weathered profile interactions to the mobilization of radionuclides. *Journal of South American Earth Sciences,* **11**, 389–405.

Bouisset, P., Calmet, D., 1997. « Hyper Pure Gamma-Ray Spectrometry Applied to Low-Level Environmental Sample Measurements », Proceedings of the International Workshop on the Status of Measurement Techniques for the Identification of Nuclear Signatures. Geel, pp. 73-81.

Bundt, M., Albrecht, A., Froidevaux, P., Blaser, P., Fluhler, H., 2000. Impact of flow on radionuclide distribution in soil. *Environmental Science and Technology*, **34**, 3895–3899.

Bunzl, K., Trautmannsheimer, M., 1999. Transfer of ^{238}U, ^{226}Ra and ^{210}Pb from slagcontaminated soils to vegetables under field conditions. *The Science of the Total Environment,* **231**, 91-99.

Butnik, A.S., Ischenko, G.S., 1989. Effect of mineral and organic fertilizers on uptake of uranium and thorium by cotton and wheat. *Agrokhimiya,* **11**, 42–47.

Calmon, P., 2006. *Equations et paramètres du logiciel Astral V2.3,* IRSN, Report IRSN/DEI/SESURE 2006-47.

Carini, F., 1999. Radionuclides in plants bearing fruit: an overview. *Journal of Environmental Radioactivity*, **46**, 77-97.

Carini, F., 2009. Transfer to fruits. Dans : AIEA, *Quantification of radionuclide transfer in terrestrial and freshwater environments for radiological assessments*, IAEA-TECDOC-1616, Vienne, pp 311-330.

Carini, F., Green, N., Spalla, S., 2006. Radionuclides in fruit systems: A review of experimental studies. *Science of the Total Environment*, **359**, 188-193.

Carvalho, F.P., Oliveira, J.M., 2010. Uranium isotopes in the Balkan's environment and foods following the use of depleted uranium in the war. *Environmental International*, **36**, 352-360.

Carvalho, F.P., Oliveira, J.M., Malta, M., 2009. Analyses of radionuclides in soil, water, and agriculture products near the Urgeiriça uranium mine in Portugal. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, **281**, 479-484.

Chabaux, F., Cohen, A.S., Onions, R.K., Hein, J.R., 1995. ^{238}U-^{234}U-^{230}Th chronometry of Fe-Mn crusts: Growth processes and recovery of thorium isotopic ratios of seawater. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, **59**, 633-638.

Chalupnik, S., Michalik, B., Wysocka, M., Skubacz, K., Mielnikow, A., 2001. Contamination of settling ponds and rivers as a result of discharge of radium-bearing waters from Polish coal mines. *Journal of Environmental Radioactivity*, **54**, 85-98.

Chamel, A., Gaillardon, P. Gauvrit, C., 1991. La pénétration foliaire des herbicides. Dans : Institut National de la Recherche Agronomique, *Les herbicides: mode d'action et principes d'utilisation.* Sous la direction de R. Scalla, Paris, pp 8-49.

Champenois, M., Conquy, Y., Desoignies, J., 1971. Notice explicative de la feuille Orange à 1/50 000 N°914. Editions du BRGM, Service géologique national, Orléans, France.

Charmasson, S., Le Faouder, a., Loyen, J., Cosson, R.P., Sarradin, P.M., 2011. ^{210}Po and ^{210}Pb in tissues of the deep-sea hydrothermal vent mussel *Bathymodiolus azoricus* from the Menez Gwen field (Mid-Atlantic Ridge). *Science of the Total Environment*, **409**, 771-777.

Chen, S.B., Zhu, Y.G., Hu, Q.H., 2005. Soil to plant transfer of ^{238}U, ^{226}Ra and ^{232}Th on a uranium mining-impacted soil from south eastern China. *Journal of Environmental Radioactivity,* **82,** 223-236.

Cheng, H., Edwards, R.L., Hoff, J., Gallup, C.D., Richards, D.A. & Asmerom, Y., 2000. The half-lives of uranium-234 and thorium-230. *Chemical Geology,* **169**, 17-33.

Cherdyntsev, V.V, Chalov, P.I., Khaidarov, G.Z., 1955. Uranium series disequilibrium dating. In Trans 3rd Sess. Commission for determining the absolute age of geological formations. Izd. Akad. Nauk, SSSR, 175-182.

Cherdyntsev, V.V., 1971. Uranium-234. Israel Program for Scientific Translations, Jerusalem.

Chèvremont, P., Constans, J., Ledru, P., Ménillet, F., 1992. Notice explicative de la feuille Oradour-Sur-Glane à 1/50 000 N°663. Editions du BRGM, Orléans, France.

Choi, M.S., Lin, X.J., Lee, S.A., Kim, W., Kang, H.D., Doh, S.H, Kim, D.S., Lee, D.M., 2008. Daily intakes of naturally occurring radioisotopes in typical Korean foods. *Journal of Environmental Radioactivity,* **99**, 1319-1323.

Choppin, G.R., Rydberg, J., 1980. Nuclear Chemistry. Pergamon, Oxford.

Choukri, A., Hakam, O.K., Zairi, M., 2007. Technique de datation des échantillons riches en uranium par les séries de l'uranium en utilisant la spectrométrie gamma à basse énergie. *Afrique Science*, **3**, 52-63.

Christl, M., Wacker, L., Lippold, J., Synal, H.A., Suter, M., 2007. Protactinium-231: A new radionuclide for AMS. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, **262**, 379-384.

CIPR, 1991. *Limits of Intakes of radionuclides by workers*. Publication CIPR 30, Commission Internationale de Protection Radiologique.

Colle, C., Garnier-Laplace, J., Roussel-Debet, S., Adam, C., Baudin, J.P. , 2001. Comportement de l'uranium dans l'environnement. Dans : EDP Sciences (Ed.), *L'uranium de l'environnement à l'Homme*. Collection IPSN, Les Ulis, pp 187-213.

Coppin, F., Roussel-Debet, S., 2004. ^{210}Po behaviour in terrestrial environment: A review. *Radioprotection*, **39**, 39-58.

Coughtrey, P.J., Thorne, M.C., 1983. Radionuclide Distribution and Transport in Terrestrial and Aquatic Ecosystems: A Critical Review of Data, vol. 1, A.A. Balkema Publishers, Leiden, 1985, pp 105–336.

Courchesne, F., Gobran, G.R., 1997. Mineralogical variations of bulk and rhizosphere soils from a Norway spruce stand. *Soil Science Society of America Journal,* **61**, 1245–1249.

Cowart, J.B., Burnett, W.C., 1994. The distribution of Uranium and Thorium Decay-Series Radionuclides in the Environment-A review. *Journal of Environmental Quality*, **23**, 651-662.

Code de la Santé Publique, article R1333-8

Debelmas, J., Ballesio, R., Brochier, J.L., Fourneaux, C., Moûtier, L., Triat, J.M., 2004. Notice explicative de la feuille à 1/50 000 N°890. Editions du BRGM, Service géologique national, Orléans, France.

Durand, R.A., Durret, L.F., Courcier, P., Thiebaut, B., Leers, H., 1991. En aval du retraitement : recyclage de l'uranium et du plutonium, l'expérience des fabricants, Revue Générale Nucléaire 4, 293-297.

Ebbs, S.D., Brady, D.J., Kochian, L.V., 1998. Role of uranium speciation in the uptake and translocation of uranium by plants. *Journal of experimental botany*, **49**, 1183-1190.

Echevarria, G., Sheppard, M.I., Morel, J.L., 2001. Effect of pH on the sorption of uranium in soils. *Journal of Environmental Radioactivity,* **53**, 257–264.

Ehlken, S., Kirchner, G., 2002. Environmental processes affecting plant root uptake of radioactive trace elements and variability of transfer factor data: A review. *Journal of Environmental Radioactivity*, **58**, 97-112.

Ekdal, E., Karali, T., Saç, M.M., 2006. ^{210}Po and ^{210}Pb in Soils and Vegetables in Kucuk Menderes basin of Turkey. *Radiation Measurements*, **41**, 72–77.

Fesenko, S., Isamov, N., Howard, B.J., Beresford, N.A., Barnett, C.L., Sanzharova, N., Voigt, G., 2009. Review of Russian language studies on radionuclide behaviour in agricultural animals : 3. Transfer to muscle. *Journal of Environmental Radioactivity*, **100**, 215-231.

Fesenko, S., Isamov, N., Howard, B.J., Voigt, G., Beresford, N.A., Sanzharova, N., 2007. Review of Russian language studies on radionuclide behaviour in agricultural animals: part 1. Gut absorption. *Journal of Environmental Radioactivity*, **98**, 85-103.

Fleischer, R.L., Raabe, O.G., 1978. Recoiling alpha-emitting nuclei. Mechanisms for uranium-series disequilibrium. *Geochimica et Cosmochimica Acta,* **42**, 973-978.

Fleischer, R.L., 1980. Isotopic disequilibrium of uranium: alpha recoil damage and preferential solution effects. *Science*, **207**, 979-981.

Food and Agriculture Organization of the United Nations. *FAOSTAT 2007*. Disponible sur : http://faostat.fao.org/ (consulté en Avril 2012)

Food and Agriculture Organization of the United Nations. *FAOSTAT 2010*. Disponible sur : http://faostat.fao.org/ (consulté en Avril 2012)

Franke, W., 1967. Mechanisms of foliar penetration of solutions. *Annual Review of Plant Physiology,* **18**, 281-300.

Fries, G.F., 1995. Transport of organic environmental contaminants to animal products. *Reviews of Environmental Contamination and Toxicology*, **141**, 71-109.

Fries, G.F., Marrow, G.S., Snow, P.A., 1982a. Soil ingestion by diary cattle. *Journal of Dairy Sciences*, **65**, 611-618.

Fries, G.F., Marrow, G.S., Snow, P.A., 1982b. Soil ingestion by swine as a route of contaminant exposure. *Environmental Toxicol. Chemistry*, **1**, 201-204.

Frissel, M.J., 1992. An update of the recommended soil-to-plant transfer factors of ^{90}Sr, ^{137}Cs and transuranics, 8th Report of the Working Group Meeting on Soil-to-Plant Transfer Factors, IUR Madrid, pp 16-25.

Froidevaux, P., Geering, J.J., Pillonel, L., Bosset, J.O., Valley, J.F., 2004. ^{90}Sr, ^{238}U, ^{234}U, ^{137}Cs, ^{40}K and $^{239/240}Pu$ in Emmental type cheese produced in different regions of Western Europe. *Journal of Environmental Radioactivity*, **72**, 287-298.

Fulco, C.E., Liverman, C.T., Sox, H.C., 2000. *Gulf War and health*. vol I depleted uranium, sarin, pyridostignine bromide, vaccines. Washington DC: National Academy Press.

Gaffney, J.S., Marley, N.A., Orlandini, K.A., 1992. Evidence for thorium isotopic disequilibria due to organic complexation in natural waters. *Environmental Science & Technology,* **26**, 1248–1250.

Gaffney, J.S., Marley, N.A. , 2007. Radionuclide Sources. Dans : Pöschl, M. and Nollet, L.M.L. (Eds.), *Radionuclide Concentrations in Food and the Environment,* CRC Press Taylor & Francis group, Paris, pp 23-37.

Galle, P., 1997. Uranium. Dans : Masson (Ed.), *Toxiques nucléaires,* P. Galle, 2ème édition, *Paris,* pp 187-207.

Gambini, D.J. & Granier, R., 1992. Manuel pratique de radioprotection. Editions Médicales Internationales, Paris.

Garcia, F., Barioni, A., Arruda-Neto, J.D.T., Deppman, A., Milian, F., Mesa, J., Rodriguez, O., 2006. Uranium levels in the diet of São Paulo City residents. *Environment International,* **32**, 697-703.

Gascoyne, M., 1992. Geochemistry of the actinides and their daughters. Dans : Ivanovich, M. and Harmon R.S. (Eds.), *Uranium series disequilibrium: Applications to earth, marine, and environmental sciences*, 2nd ed. Clarendon Press, Oxford, pp 34-61.

Geibert, W., Rutgers van der Loe¡, M.M., Hanfland, C., Dauelsberg, H.J., 2002. Actinium-227 as a deep-sea tracer: sources, distribution and applications. *Earth and Planetary Science Letters*, **198**, 147-165.

Ghiassi-Nejad, M., Beitollahi, M.M., Asefi, M., Reza-Nejad, F., 2003. Exposure to ^{226}Ra from consumption of vegetables in the high level natural radiation area of Ramsar-Iran. *Journal of Environmental Radioactivity*, **66**, 215-225.

Ghiassi-Nejad, M., Beitollahi, M.M., Fujinami, N., Morishima, H., 2000. Radiological parameters for a house with high levels of natural radiation Ramsar-Iran. Dans : Proceedings at the 5th International Conference on High Levels of Natural Radiation and Radon Areas: Radiation Dose and Health Effects, 4–7 Sept. 2000, Munich, pp 33–37.

Giri, S., Singh, G., Jha, V.N., Tripathi, R.M., 2010. Ingestion of U(nat), ^{226}Ra, ^{230}Th and ^{210}Po in vegetables by adult inhabitants of Bagjata uranium mining area, Jharkhand, India. *Radioprotection*, **45**, 183-199.

Hakonson-Hayes, A.C., Fresquez, P.R., Whicker, F.W., 2002. Assessing potential risks from exposure to natural uranium in well water. *Journal of Environmental Radioactivity*, **59**, 29-40.

Hansen, R.O., Huntington, G.L., 1969. Thorium movements in morainal soils of the high Sierra, California. *Soil Sciences*, **108**, 257-265.

Harada, R.O., Burnett, W.C., LaRock, P.A. & Cowart; J.B., 1989. Polonium in Florida groundwater and its possible relationship to the sulphur cycle of bacteria. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, **53**, 143-150.

Haridasan, P.P., Paul, A.C., Desai, M.V.M., 2001. Natural radionuclides in the aquatic environment of a phosphogypsum disposal area. *Journal of Environmental Radioactivity*, **53**, 155–165.

Harrison, J.D., Fritsch, P., 1992. The effect of age on the absorption and intestinal retention of ingested radionuclides. *Radiation Protection Dosimetry*, **41**, 71-76.

Health Canada, 2004. *L'évaluation du risque pour les lieux contaminés fédéraux au Canada*, Partie II : Les Valeurs Toxicologiques de Référence (VTR) de Santé Canada. Sa Majesté la Reine du chef du Canada, 2004. ISBN0-662-77958-4. pp 12.

Healy, W.B., 1968. Ingestion of soil by dairy cows. *New Zealand Journal of Agricultural Research*, **11**, 487-499.

Healy, W.B., Cutress, T.W., Michie, C., 1967. Weat of sheep's teeth. IV. Reduction of soil ingestion and tooth wear by supplementary feeding. *New Zealand Journal of Agricultural Research*, **10**, 201-209.

Healy, W.B., Drew, K.R., 1970. Ingestion of soil by hoggest grazing Swedes. *New Zealand Journal of Agricultural Research*, **13**, 940-944.

Healy, W.B., Ludwig, T.G., 1965. Wear of sheep's teeth. I. The role of ingested soil. *New Zealand Journal of Agricultural Research*, **8**, 737-752.

Henderson, G.M., 2002. Seawater ($^{234}U/^{238}U$) during the last 800 thousand years. *Earth and Planetary Science Letters*, **199**, 97-110.

Henricsson, F., Ranebo, Y., Holm, E., Roos, P., 2011. Aspects on the analysis of ^{210}Po. *Journal of Environmental Radioactivity*, **102**, 415-419.

Hill, C.R., 1960. Lead-210 and polonium-210 in grass. *Nature*, **187**, 211-212.

Hinsinger, P., Jaillard, B., 1993. Root-induced release of interlayer potassium and vermiculitization of phlogopite as related to potassium depletion in the rhizosphere of ryegrass. *Journal of Soil Science*, **44**, 525–534.

Hoffman, F.O., Thiessen, K.M., Rael, R.M., 1995. Comparison of interception and initial retention of wet-deposited contaminants on leaves of different vegetation types. *Atmospheric Environment*, **29**, 1771-1775.

Holden, N.E., 1990. Total half-lives for selected nuclides. *Pure and Applied Chemistry,* **62**, 941-958.

Höllriegl, V., Li, W.B., Leopold, K., Gerstmann, U., Oeh, U., 2010. Solubility of uranium and thorium from a healing earth in synthetic gut fluids: A case study for use in dose assessments. *The Science of the Total Environment*, **408**, 5794-5800.

Howard, B.J., Beresford, N.A., Barnett, C.L., Fesenko, S., 2009. Radionuclide transfer to animal products: revised recommended transfer coefficient values. *Journal of Environmental Radioactivity*, **100**, 263-273.

Hunsen, R.O., Huntington, G.L., 1969. Thorium movements in morainal soils of the high Sierra, California. *Soil Science,* **108**, 257-265.

Ilyin, D.I., Moskalev, Y.I., 1957. On the problem of the metabolic exchange of caesium, strontium and a mixture of beta emitters in cows. *Atomnay Energiya*, **2**, 163-168.

Ibrahim, S.A., Whicker, F.W., 1988. Comparative uptake of U and Th by native plants at a U production site. *Health Physics*, **54**, 413-419.

Ioannides, K.G., Mertzimekis, T.J., Papachristodoulou, C.A., Tzialla, C.E., 1997. Measurements of natural radioactivity in phosphate fertilizers. *Science of Total Environment*, **196**, 63–67.

Izak-Biran, T., Schlesinger, T., Weingarten, R., Even, O., Shamai, Y., Israeli, M., 1989. Concentrations of U and Po in animal feed supplements in poultry meat and in eggs. *Health Physics*, **56**, 315-319.

Jibiri, N.N., Farai, I.P., Alausa, S.K., 2007. Estimation of annual effective dose due to natural radioactive elements in ingestion of foodstuffs in tin mining area of Jos-Plateau, Nigeria. *Journal of Environmental Radioactivity*, **94**, 31-40.

Jondreville, C., Travel, A., Besnard, J., Dziurla, M.-A., Feidt, C., 2010. Intake of herbage and soil by free-range laying hens offered a complete diet compared to a wholewheat diet. Dans : Duclos, M., Nys, Y., (Eds.). XIIIth European Poultry Conference, Tours, 23–27 August 2010, France, *World's Poultry Science Journal*, **66**, p. 4.

Jungk, A., Claassen, N., 1986. Availability of phosphate and potassium as the result of interactions between root and soil in the rhizosphere. *Zeitschrift für Pflanzenernährung und Bodenkunde*, **149**, 411–427.

Kabata-Pendias, A.L., Pendas, H., 2000. Trace Elements in Soil and Plants, third ed. CRC Press, Boca Raton.

Karunakara N., Avadhani D.N., Mahesh H.M., Somashekarappa, H.M., Narayana Y., Siddappa K., 2000. Distribution and enrichment of ^{210}Po in the environment of Kaiga in South India. *Journal of Environmental radioactivity*. **51**, 349-362.

Kigoshi, K., 1971. Alpha-recoil thorium-234: dissolution into water and the uranium-234/uranium-238 disequilibrium in nature. *Science*, **173**, 47-48.

Kinnersley, R.P., Scott, L.K., 2001. Aerial contamination of fruit through wet deposition and particulate dry deposition. *Journal of Environmental Radioactivity*, **22**, 191-213.

Kirchner, G., 1994. Transport of iodine and caesium via the grass-cow-milk pathway after the Chernobyl accident. *Health Physics*, **66**, 653-665.

Kirchmann, R., Darcheville, M., Koch, G., 1980. Accumulation of radium-226 from phosphate fertilizers in cultivated soils and transfer to crops. P 1667-1672. In Proc. 3rd Int. Symp. On Natural Radiation Environment, Houston, TX. 23-28 Apr. 1978. Symp. Ser. 51. US. Department of Energy, Washington, DC.

Köhler, M., Gleisberg, B., Niese, S., 2000. Investigation of the soil-plant transfer of primordial radionuclides in tomatoes by low-level γ-ray spectrometry. *Applied Radiation and Isotopes*, **53**, 203-208.

Koide, M., Goldberg, E.D., 1964. ^{234}U/^{238}U ratios in sea water. Progress in Oceanography, 3. Pergamon, Oxford, pp 173.

Koide, M., Bruland, K.W., Goldberg, E.D., 1973. Th-228/Th-232 and Pb-210 geochronologies in marine and lake sediments. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, **37**, 1171-1187.

Ku, T.L., 1965. An evaluation of the ^{234}U/^{238}U method as a tool for dating pelagic sediments. *Journal of Geophysical research*, **70**, 3457-3474.

Ku, T.L., 1972. Radium in the oceans. Dans : Fairbridge, R.W. (Ed.), *Encyclopedia of geochemistry and environmental sciences*. Van Nostrand Reinhold, New York. pp 1008-1675.

Ku, T. L., 1976. The uranium-series methods of age determination. *Annual Review of Earth planetary Sciences*, **4**, 347–380.

Kuo, Y.C., Lai, S.Y., Huand, C.C., Lin, Y.M., 1997. Activity concentrations and population dose from radium-226 in food and drinking water in Taiwan. *Applied Radiation Isotopes*, **48**, 1245-1249.

Ladinskaya, L.A., Parvenov, Y.D., Popov, D.K., Fedrova, A.V., 1973. ^{210}Pb and ^{210}Po content in air, water, foodstuffs and the human body. *Archives of Environmental Health*, **27**, 254-258.

Lakshmanan, A.R., Venkateswarlu, K.S., 1988. Uptake of uranium by vegetables and rice. *Water, Air & Soil Pollution*, **38**, 151-155.

Langmuir, D., 1978. Uranium solution-mineral equilibria at low temperatures with application to sedimentary ore deposits. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, **42**, 547–569.

Lauria, D.C., Riebeiro, F.C.A., Conti, C.C., Loureiro, F.A., 2009. Radium and uranium levels in vegetables grown using different farming management systems. *Journal of Environmental Radioactivity*, **100**, 176-183.

Lee, C.W., Kang, M.J., Lee, W., Choi, G.S., Cho, Y.H., Kim, H.R., Chung, K.H., 2009. Assessment of ^{210}Po in foodstuffs consumed in Korea. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, **272**, 519-522.

Leenhouts, H.P., Stoop, P., Van Tuinen, S.T., 1996. Nonnuclear industries in the Netherlands and radiological risks. Report no. 610053003. National Institute of Public Health and the Environment, the Netherlands.

Le Guern, F., Le Roulley, J.C., Lambert, G., 1982. *Condensation du polonium dans les gaz volcaniques*, C. R.Acad. Sci. Paris, Sér. II, **294**, 887-890.

Leslie, B.W., Pickett, D.A., Pearcy, E.C., 1999. Vegetation-derived insights on the mobilization and potential transport of radionuclides from the Nopal I natural analog site, Mexico. Materials Research Society symposium proceedings, **556**, 833-842, Warrendale, PA (US).

Lin, J.C., Broecker, W.S., Anderson, R.F., Hemming, S., Rubenstone, J.L., Bonani, G., 1996. New ^{230}Th/U and ^{14}C ages from lake Lahontan carbonates, Nevada, USA and a discussion of the origin of initial thorium. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, **60**, 2817-2832.

Linsalata, P., Morse, R., Ford, H., Eisenbud, M., Franca, E.P., De Castro, M.B., Lobao, N., Sachett, I., Carlos, M., 1989. An assessment of soil-to-plant transfer factors for some natural analogues of the transuranic elements, *Health Physics*, **1**, 33-46.

Lorenz, S. E., Hamon, R. E., McGrath, S. P., Holm, P. E., Christensen, T. H., 1994. Applications of fertilizer cations affect cadmium and zinc concentrations in soil solutions and uptake by plants. *European Journal of Soil Science*, **45**, 159–165.

Louw, I., Faanhof, A., Kotze, D., 2009. Determination of Polonium-210 in various foodstuffs after microwave digestion. *Radioprotection*, **44**, 89-95.

Louw, I., Faanhof, A., Kotze, D., Willemse, M., 2011. A first order assessment of the potential radiological impact of foodstuffs grown in a catchment area influenced by mining and mineral processing industries. *Radioprotection*, **46**, 213-222.

Lung, M., 1997. A present review of the thorium nuclear fuel cycles. Final report of the European Commission on Nuclear Science and Technology, p 302.

Luo, S., Ku, T., Roback, R., Murrel, M., Mcling, T.L., 2000. In-situ radionuclide transport and preferential groundwater flows at INEEL (Idaho): decay-series disequilibrium studies. *Geochimica et Cosmochimica Acta,* **64**, 867–881.

Ma, L., Chabaux, F., Pelt, E., Granet, M., Sak, P.B., Gaillardet, J., Lebedeva, M., Brantley, S.L., 2012. The effect of curvature on weathering rind formation: Evidence from Uranium-series isotopes in basaltic andesite weathering clasts in Guadeloupe. *Geochimica et Cosmochimica Acta,* **80**, 92-107.

Madic, C., Genet, M., 2001. Propriété physiques et chimiques de l'uranium. Dans : EDP Sciences (Ed.), *L'uranium de l'environnement à l'homme*. Les Ulis, Collection IPSN, pp 43-81.

Madoz-Escande, C., Henner, P., Bonhomme, T., 2004. Foliar contamination of Phaseolus vulgaris with aerosols of ^{137}Cs, ^{85}Sr, ^{133}Ba and ^{123m}Te: influence of plant development stage upon contamination and rain. *Journal of Environmental Radioactivity*, **73**, 49-71.

Markose, P.M., Bhat, I.S., Pillai, K.C.K., 1993. Some characteristics of ^{226}Ra transfer from soil and uranium mill tailings to plants. *Journal of Environmental Radioactivity*, **21**, 131-142.

Marschner, P., Godbold, D.L., Jentschke, G., 1996. Dynamics of lead accumulation in mycorrhizal and non-mycorrhizal Norway spruce (Picea abies (L.) Karst). *Plant and Soil*, **178**, 239–245.

Martin, P., Hancock; G.J., Paulka, S., Akber, R.A., 1995. Determination of ^{227}Ac by α-Particle Spectrometry. *Applied Radiation and Isotopes,* **46**, 1065-1070.

Martin, W.E., 1964. Losses of Sr^{90}, Sr^{89} ans I^{131} from fallout of contaminated plants. *Radiation Botany,* **4**, 1286-1290.

Martínez-Aguirre, A., García-Orellana, I., García-León, M., 1997. Transfer of Natural Radionuclides from Soils to Plants in a Marsh Enhanced by the Operation of Non-Nuclear Industries. *Journal of Environmental Radioactivity*, **35**, 149-171.

Martyushov, V.Z., Burov, N.I., Antakova, N.N., 1984. Uranium metabolism in farm animals. Dans : *Proceedings of the II All Union Conference on Agricultural Radiology*, vol. II. RIAR, Obninsk, pp. 150-151.

Mas, J.L., García-León, M., García-Tenorio, R., Bolívar, J.P., 2007. Radionuclide Concentrations in Water. Dans : Pöschl, M. and Nollet, L.M.L. (Eds.), *Radionuclide Concentrations in Food and the Environment*. CRC Press Taylor & Francis Group, New York, pp 59-113.

Mathevon, G., Rothé, J.P., 1968. Teneur en éléments radioactifs de quelques roches des Vosges. C. R. Acad. Sci., Paris, t. 267, 2276-2279.

Mayes, R.W., Beresford, N.A., Howard, B.J., Vandecasteele, C.M., Stakelum, G., 1996. Use of the true absorption coefficient as a measure of the bioavailability of radiocaesium in ruminants. *Radiation and Environmental Biophysics*, **35**, 101-109.

Mayland, H.F., Florence, A.R., Rosenau, R.C., Lazar, V.A., Turner, H.A., 1975. Soil ingestion by cattle on semiarid range as reflected by titanium analysis of feces. *Journal of Range Management*, **28**, 448-452.

McDonald, C.R., 1996. Ingestion rates and radionuclide transfer in birds and mammals on the Canadian shield. Report TR-722 COG-95-551. AECL, Ontario.

McDonald, P., Jackson, D., Leonard, D.R.P., McKay, K., 1999. An assessment of ^{210}Pb and ^{210}Po in terrestrial foodstuffs from the regions of England and wales. *Journal of Environmental radioactivity*, **43**, 15-29.

McDowell-Boyer, L.M., Watson, A.P., Travis, C.C., 1980. A review of parameters describing terrestrial food-chain transport of lead-210 and radium-226. *Nuclear Safety,* **21**, 486-495.

McGrath, D., Pool, D.B.R., Fleming, G.A., Sinnott, J., 1982. Soil ingestion by grazing sheep. *Irish Journal of Agriculture Research*, **21**, 135-145.

Mench, M., Morel, J.L., Guckert, A., Guillet, B., 1988. Metal bindingwith root exudates of low molecular weight. *Journal of Soil Science*, **39**, 521–527.

Ménillet, F., Hameurt, J., Fluck, P., Von Eller, J.P., 1978. Notice explicative de la feuille Gérardmer à 1/50 000 N°341. Editions du BRGM, Service géologique national, Orléans, France.

Merckx, R., Sinnaeve, J., Van Ginkel, J. H., Cremers, A., 1983. The effect of growing plant roots on the speciation of Co-60, Zn-65, Mn-54 and Fe-59 in the rhizosphere. *Proceedings of the seminar on the transfer of radioactive materials in the terrestrial environment subsequent to an accidental release to atmosphere*, vol. 1 (pp. 275–288), Commission of the European Communities, Luxembourg.

Michel, J., 1987. Sources. Dans : Cothern, C.R. and Smith, J.E. (Ed.), *Environmental radon. Plenum, New York.*

Middleton, L.J., 1958. Absorption and translocation of strontium and caesium by plants from foliar sprays. *Nature*, **181**, 1300-1303.

Middleton, L.J., 1959. Radioactive strontium and caesium in the edible parts of crop plants after foliar contamination. *International Journal of Radiation Biology*, **4**, 387-402.

Middleton, L.J., Squire, H.M., 1963. Further studies of radioactive strontium and caesium in agricultural crops after direct contamination. *International Journal of Radiation Biology*, **6**, 549-558.

Milvy, P., Cothern, C.R., 1989. Naturally occurring radionuclides in drinking water: An exercise in risk benefit analysis. *Environmental Geochemistry and Health*, **11**, 62-72.

Moreira-Nordemann, L.M., 1980. Use of $^{234}U/^{238}U$ disequilibrium in measuring chemical weathering rates of rocks. *Geochimica et Cosmochimica Acta,* **44**, 103-108.

Mortvedt, J.J., 1994. Plant and soil relationship of uranium and thorium decay series radionuclides–A review. *Journal of Environmental Quality*, **23**, 643-650.

Mustonen, R., 1985. Radioactivity of fertilizers in Finland. *Sciences of Total Environment*, **45**, 127–134.

Naidu, R., Harter, R.D., 1998. Effect of different organic ligands on cadmium sorption by and extractability from soils. *Soil Science Society of America Journal*, **62**, 644–650.

Nalezinski, S., Ruhm, W., Wirth, E., 1996. Development of a general equation to determine the transfer-factor feed-to-meat for radiocaesium on the basis of the body mass of domestic animals. *Health Physics,* **70**, 717-721.

Ng, Y.C., Colsher, C.S., Quinn, D.J., Thompson, S.E., 1977. Transfer coefficients for the prediction of the dose to man via the forage-cow-milk pathway from radionuclides released to the biosphere. UCRL-51939, Lawrence Livermore National Laboratory, Livermore, 139 pp.

Ng, Y.C., Colsher, C.S., Thompson, S.E., 1982. Transfer Coefficients for Assessing the Dose from Radionuclides in Meat and Eggs. NUREG/CR-2976, UCID-19464. Lawrence Livermore National Laboratory, California.

Nozaki, Y., Yamada, M., 1990. The marine geochemistry of actinium-227: evidence for its migration through sediment pore water. *Geophysical research letter*, **17**, 1933-1936.

Nyarko, B.J.B., Adomako, D., Serfor-Armah, Y., Dampare, S.B., Adotey, D., Akaho, E.H.K., 2006. Biomonitoring of atmospheric trace element deposition around an industrial town in Ghana. *Radiation Physics and Chemistry*, **75**, 954–958.

Ogunleye, P.O., Mayaki, M.C., Amapu, L.Y., 2002. Radioactivity and heavy metal composition of Nigerian phosphate rocks: possible environmental implications. *Journal of Environmental Radioactivity*, **62,** 39–48.

Olofsson, U., Allard, B., 1983. Complexes of actinides with naturally occurring organic substances. Literature survey. SKBF KBS Teknisk rapport 83-09 Sweden.

Osburn, W.S., 1965. Primordial radionuclides: their distribution, movement, and possible effect within terrestrial ecosystems. *Health Physics*, **11**, 1275-1295.

Osmond, J.K., Cowart, J.B., 1976. The theory and uses of natural uranium isotopic variations in hydrology. *Atomic Energy Review*, **14**, 621-679.

Oufni, L., Taj, S., Manaut, B., Eddouks, M., 2011. Transfer of uranium and thorium from soil to different parts of medicinal plants using SSNTD. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, **287**, 403-410.

Papaefthymiou, H., Kritidis, P., Anousis, J., Sarafidou, J., 2005. Comparative assessment of natural radioactivity in fallout samples from Patras and Megalopolis, Greece. *Journal of Environmental Radioactivity,* **78**, 249-265.

Papastefanou, C., 2010. Escaping radioactivity from coal-fired power plants (CPPs) due to coal burning and the associated hazards: A review. *Journal of Environmental Radioactivity*, **101**, 191-200.

Parvenov, Y.D., 1974. Polonium-210 in the environment and in the human organism. *Atmos Energy Rev*, **12**, 75-143.

Paul, A.C., Gupta, V.K., 1998. Population exposure at the natural high background radiation areas in India. *Radiation Protection Environment*, **21**, 173–177.

Paulin, R., 1997. Radionucléides naturels. Dans : Masson (Ed.), *Toxiques nucléaires*. P. Galle, 2ème edition, Paris, pp 3-22.

Peirson, D. H., Cambray, R.S., Spicer, G.S., 1966. Lead-210 and polonium-210 in the atmosphere. *Tellus XVIII*, **2**, 427-433.

Persson, R.B.R., 1974. Stable lead and ^{210}Pb in the food chain lichen-reindeerman. IAEA-SM-175/18. International Atomic Energy Agency, Vienna, Austria, pp 231-247.

Pettersson, H.B.L., Hallstadius, L., Hedvall, R., Holm, E., 1988. Radioecology in the vicinity of prospected uranium mining sites in the subarctic environment. *Journal of Environmental Radioactivity*, **6**, 25-40.

Pettersson, H.B.L., Holm, E., 1992. Investigation of aerial dispersion of uranium isotopes from a nuclear fuel fabrication facility. *Waste Management*, **12**, 85-97.

Pietrzak-Flis, Z., Chrzanowski, E., Dembinska, S., 1997a. Intake of ^{226}Ra, ^{210}Pb and ^{210}Po with food in Poland. *The Science of the Total Environment*, **203**, 157-165.

Pietrzak-Flis, Z., Rosiak, L., Suplinska, M.M., Chrzanowski, E. & Dembinska, S., 2001. Daily intakes of ^{238}U, ^{234}U, ^{232}Th, ^{230}Th, ^{228}Th and ^{226}Ra in the adult population of central Poland. *Science of the Total Environment*, **273**, 163-169.

Pietrzak-Flis, Z., Skowronska-Smolak, M., 1995. Transfer of ^{210}Pb and ^{210}Po to plants via root system and above-ground interception. *Sciences of the Total Environment*, **162**, 139-147.

Pietrzak-Flis, Z., Suplinska, M.M., Rosiak, L., 1997b. The dietary intake of ^{238}U, ^{234}U, ^{230}Th, ^{232}Th, ^{228}Th and ^{226}Ra from food and drinking water by inhabitants of the Walbrzych region. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, **222**, 189-193.

Pinera, T., Pringent, R., 1990. Comité d'instrumentation de radioprotection et centre technique d'homologation de l'instrumentation de radioprotection. Fiches de synthèse : limites de détection. CEA.

Popova, O.N., Taskaev, A.I., 1980. Contamination of air by lead-210 and polonium-210 in territories with high natural radioactivity. Dans : Gesell, T.F., Lowder, W.M. (Eds.), *Natural Radiation Environment III*. Technical Information Center, US Department of Energy, Washington, USA, pp 440-444.

Pourcelot, L., Boulet, B., Cossonnet, C., 2011a. Contribution des isotopes de l'uranium à l'expertise des sources de ce radioélément dans l'environnement. *Radioprotection*, **46**, 345-358.

Pourcelot, L., Boulet, B., Le Corre, C., de Vismes Ott, A., Cagnat, X., Loyen, J., Fayolle, C., Van Hecke, W., Martinez, B., Petit, J., Kaltenmeier, R., Gieré, R., 2011b. Actinides and decay products in selected produce and bioindicators in the vicinity of uranium plant. *Journal of Environmental Monitoring*, **13**, 1327-1336.

Pourcelot, L., Louvat, D., Gauthier-Lafaye, F., Stille, P., 2003. Formation of radioactivity enriched soils in mountain areas. *Journal of Environmental Radioactivity*, **68**, 215-233.

Prister, B.S., 1967. About behaviour of U in some components of biological chain. *Dokl. VASHNIL*, 131-33.

Pulhani, V.A., Dafauti, S., Hedge, A.G., Sharma, R.M., Mishra, U.C., 2005. Uptake and distribution of natural radioactivity in wheat plants from soil. *Journal of Environmental Radioactivity*, **79**, 331-346.

Ragnarsdottir, K.V., Charlet, L., 2000. Uranium behaviour in natural environments. Dans : Cotter-Howells, J. (Ed.) *Environmental Mineralogy: Microbial Interactions, Anthropogenic Influences, Contaminate Land and Waste Management*. The Mineralogical Society of Great Britain & Ireland.

Remon, E., Bouchardon, J.L., Cornier, B., Guy, B., Leclerc, J.C., Faure, O., 2005. Soil characteristics, heavy metal availability and vegetation recovery at a formal metallurgical landfill: implication in risk assessment and site restoration. *Environmental Pollution*, **137**, 316–323.

Rencová, J., Svoboda, V., Holuša, R., Volf, V., Jones, M.M., Singh, P.K., 1997. Reduction of subacute lethal radiotoxicity of polonium-210 in rats by chelating agents. *International Journal of Radiation Biology,* **72**, 341-348.

Rihs, S., Prunier, J., Thien, B., Lemarchand, D., Pierret, M.C., Chabaux, F., 2011. Using short-lived nuclides of the U- and Th-series to probe the kinetics of colloid migration in forested soils. *Geochemica et Cosmochimica Acta*, **75**, 7707-7724.

Ribera, D., Labrot, F., Tisnerat, G., Narbonne, J.F., 1996. Uranium in the environment: occurrence, transfer, and biological effects. *Reviews of Environmental Contamination and Toxicology*, **146,** 53-89.

Richards, B.N., 1987. The microbiology of terrestrial ecosystems. Harlow: Longman Scientific & Technical.

Rosholt, J., Doe, B., Tatsumoto, M., 1966. Evolution of the isotopic composition of uranium and thorium in soil profiles. *Geological Society of America Bulletin*, **77**, 987-1004.

Rosholt, J.N., Shields, W.R., Garner, E.L., 1963. Isotopic fractionation of uranium in sandstone. *Science*, **139**, 224-226.

Rothé, J.P., 1961. Carte radiogéologique des Vosges hercyniennes. Feuille de Gérardmer à 1/50000. Bull. Serv. Carte géol. Als. Lorr., 14, 3, 73-86.

Rufyikiri, G., Wannijn, J., Wang, L., Thiry, Y., 2006. Effects of phosphorus fertilization on the availability and uptake of uranium and nutrients by plants grown on soil derived from uranium mining debris. *Environmental Pollution*, **141**, 420–427.

Russell, E. W., 1973. Soil conditions and plant growth (10th ed.). London, UK: William Clowes & Sons.

Saad, S., 1974. Aspectos econômicos do aproveitamento do urânio associado aos fosfatos do Nordeste. Boletim no 7. Comissão Nacional de Energia Nuclear - CNEN.

Sam, A.K., Eriksson, Å., 1995. Radium-226 uptake by vegetation grown in western Sudan. *Journal of Environmental Radioactivity*, **29**, 27-38.

Santos, E.E., Lauria, D.C., Amaral, E.C.S., Rochedo, E.R., 2002. Daily ingestion of ^{232}Th, ^{238}U, ^{226}Ra, ^{228}Ra and ^{210}Pb in vegetables by inhabitants of Rio de Janeiro City. *Journal of Environmental Radioactivity*, **62**, 75-86.

Sanzharova, N., Fesenko, S., Reed, E., 2009. Processes governing radionuclide transfer to plants. Dans : AIEA, *Quantification of radionuclide transfer in terrestrial and freshwater environments for radiological assessments*, IAEA-TECDOC-1616, Vienne, pp 123-134.

Schnug, E., Steckel, H., Haneklaus, S., 2005. Contribution of uranium in drinking waters to the daily uranium intake of humans – a case study from northern Germany. *FAL Agricultural Research*, **4**, 227-236.

Shanti, G., Maniyan, C.G., Allan Gnana Raj, G., Thampi Thanka Kumaran, J., 2009. Radioactivity in food crops from high-background radiation area in southwest India. *Current Science,* **97**, 1331-1335.

Sharma, H. D., Kalin, M., 1982. Lead-210 and total lead uptake in plants growing on abandoned or inactive uranium mill railings. 3rd Annual Conference of Canadian Nuclear Society, June 9, Toronto, Canada.

Shaw, G., Minski, M.J., Bell, J.N.B., 1992. Retention, loss and translocation of radionuclides applied to foliar surfaces of wheat. *Environmental and Experimental Botany*, **32**, 391-404.

Sheppard, M.I., 1980. The environmental behaviour of uranium and thorium, Atomic Energy of Canada Limited, AECL-6795, 1980.

Sheppard, S.C., 1995. A model to predict concentration enrichment of contaminants on soil adhering to plants and skin. *Environmental Geochemistry and Health,* **17**, 13-20.

Sheppard, S.C., 2001. Toxicants in the environment: bringing radioecology and ecotoxicology together. Dans : Bréchignac, F., Howard, B.J. (Eds.), *Radioactive Pollutants Impact on the Environment*. EDP Sciences, France, pp. 63–74.

Sheppard, S.C., Evenden, W.G., 1995. Systematic identification of analytical indicators to measure soil load on plants for safety assessment purposes. *International Journal of Environmental Analytical Chemistry*, **59**, 239-252

Sheppard, S.C., Long, J.M., Sanipelli, B., 2010. Plant/soil concentration ratios for paired field and garden crops, with emphasis on iodine and the role of soil adhesion. *Journal of Environmental Radioactivity*, **101**, 1032-1037.

Shtangeeva, I., 2010. Uptake of uranium and thorium by native and cultivated plants. *Journal of Environmental Radioactivity*, **101**, 458-463.

Shtangeeva, I., Ayrault, S., 2004. Phytoextraction of thorium from soil and water media. *Water Air Sol Pollution*, **154**, 19-35.

Simon, S.L., Ibrahim, S.A., 1987. The soil/plant concentration ratio for calcium, radium, lead and polonium: Evidence for non-linearity with reference to substrate concentration. *Journal of Environmental Radioactivity*, **5**, 123-142.

Simon, S.L., Ibrahim, S.A., 1988. Biological uptake of radium by terrestrial plants: A review. Radium in the environment. Institute of Atomic Energy Agency, Vienna, Austria.

Sims, K.W.W., Gill, J.B., Dosseto, A., Hoffmann, D.L., Lundstrom, C.C., Williams, R.W., Ball, L., Tollstrup, D., Turner, S., Prytulak, J., Glessner, J.G., Standish, J.J. & Elliott, T., 2008. An inter-laboratory assessment of the thorium isotopic composition of synthetic and rock reference materials. *Geostandards and Geoanalytical Research,* **32**, 65-91.

Sipitanos, K.M., Voyatzakis, E., Melidis, S.B., 1977. Etude sur les cendres volantes des lignites grecs – Utilisation dans le ciment – Influence du degree de finesse II – Région de Ptolemaide. *Revue des Matériaux de Construction*, **707**, 211-213.

Sirotkin, A.N., 1987. Radionuclides exchange in body of agricultural animals. Dans : Korneyev, N.A., Sirotkin, A.N. (Eds.), *Foundations of Radioecology of Farm Animals*. Energoatomizdat, Moscow, pp. 21-99.

Sivry, Y., Riotte, J., Dupré, B., 2006. Study of exchangeable metal on colloidal humic acids and particulate matter by coupling ultrafiltration and isotopic tracers: Application to natural waters. *Journal of Geochemical Exploration,* **88,** 144-147.

Smirnova, A.P., 1973. *^{210}Pb and ^{210}Po in cattle organs and tissues*. Candidate thesis (biology). Leningrad, 24 pp.

Štroc, M., Smodiš, B., 2012. Transfer of natural radionuclides from hay and silage to cow's milk in the vicinity of a former uranium mine. *Journal of Environmental Radioactivity*, **110**, 64-68.

Subcommittee on Feed Intake, 1987. Predicting feed intake of food-producing animals. National Academy Press, Washington DC.

Syed, H.S., 1999. Comparison studies adsorption of thorium and uranium on pure clay minerals and local Malaysian soil sediments. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, **222**, 257-262.

Tagami, K., Uchida, S., 2009. Radium-226 transfer factor from soils to crops and its simple estimation method using uranium and barium concentrations. *Chemosphere,* **77**, 105-114.

Tegen, I., Dörr, H., Münnich, K.O., 1991. Laboratory experiments to investigate the influence of microbial activity on the migration of caesium in a forest soil. *Water, Air, and Soil Pollution*, **57-58**, 441–447.

Thorne, M., 2003. Estimation of animal transfer factors for radioactive isotopes of iodine, technetium, selenium and uranium. *Science of the Total Environment*, **70**, 3-20.

Thornton, I., Abrahams, P., 1981. Soil ingestion- A major pathway of heavy metals into livestock grazing contaminated land. *Science of the total Environment*, **28**, 287-294.

Thurber, D.L., 1962. Anomalous ^{234}U/^{238}U in nature. *Journal of Geophycical Research*, 67, 4518-4523.

Tracy, B.L., Prantl, F.A., Quinn, J.M., 1983. Transfer of ^{226}Ra, ^{210}Pb, and uranium from soil to garden produce: Assessment of risk. *Health Physics*, **44**, 469-477.

Treeby, M., Marschner, H., Römheld, V., 1989. Mobilization of iron and other micronutrient cations from a calcareous soil by plant-borne, microbial, and synthetic metal chelators. *Plant and Soil*, **114**,
217–226.

Tricca, A., Wasserburg, G.J., Porcelli, D., Baskaran, M., 2001. The transport of U- and Th-series nuclides in a sandy unconfined aquifer. *Geochimica et Cosmochimica Acta,* **65**, 1187–1210.

United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, 1993. Sources and Effects of Ionizing Radiation. Report to the General Assembly, with Scientific Annexes. United Nations sales publication E.94.IX.2. United Nations, New York, 1993.

United Nation Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, 2000. Sources and Effects of Ionizing Radiation. Volume I: Sources ; Annexe B : Exposures from natural radiation sources. Report to the General Assembly, with scientific annexes. United Nations sales publications E.00.IX.3. United Nations, New York, 2000.

United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, 2008. Sources and Effects of Ionizing Radiation. Volume I: Sources. Report to the General Assembly, with Scientific Annexes. United Nations sales publications E.10.XI.3. United Nations, New York, 2008.

Vandenhove, H., 2000. European sites contaminated by residues from the ore extracting and processing industries. Dans : AIEA, *Restoration of Environments with Radioactive Residues*. Proceeding Series. STI/PUB/1092. Vienne, pp 61-89.

Vandenhove, H., Van Hees, M., 2007. Predicting radium availability and uptake from soil properties. *Chemosphere*, **69**, 664-674.

Vanmarcke, H., Paridaens, J., Froment, P., Van Cauteren, J., Tmmermans, C., Cosemans, C., Sassi, F., 2003. Synoptique de la problématique NORM dans l'industrie belge. SCK-CEN, NRG en AV-Controlatom R-3775. Mol (October 2003).

Venuat, M., 1975. Les ciments contenant du laitier ou des cendres volantes. *Revues des Matériaux de Construction*, **703**, 30-35.

Vera Tomé, F., Blanco Rodríguez, P., Lozan, J.C., 2002. Distribution and mobilization of U, Th and ^{226}Ra in the plant-soil compartments of a mineralizes uranium area in south-west Spain. *Journal of Environmental Radioactivity*, **59**, 41-60.

Vera Tomé, F., Blanco Rodríguez, P., Lozan, J.C., 2003. Soil-to-plant transfer factors for natural radionuclides and stable elements in a Mediterranean area. *Journal of Environmental Radioactivity*, **65**, 161-175.

Vigier, N., Bourdon, B., Turner, S., Allègre, C.J., 2001. Erosion timescales derived from U-decay series measurements in rivers. *Earth and Planetary Science Letters*, **193**, 549-563.

Vinogradov, A.P., 1959. The Geochemistry of Rare and Dispersed Chemical Elements in Soils, second ed. Consultants Bureau, New York.

Voyatzakis, E., Sipitanos, K.M., Christaki-Papageorgiou, A., 1976. Etude sur les cendres volantes des lignites grecs-Utilisation dans le ciment- Région de Ptolemaide. *Revue des Matériaux de Construction*, **708**, 341-344.

Ward, G.M., Johnson, J.E., Stewart, H.F., 1965. Cesium-137 passage from precipitation to milk. Dans : Klement, A.W. (Ed.), *Proceedings of the Second Conference on Radioactive Fallout from Nuclear Weapons Tests*. National Technical Information Service, Springfield, pp. 703–710.

Wilkins, B.T., Cooke, A.I., Green, N., Rimmer, D.L., Weekes, T.E.C., 1997. The availability of soil-associated radionuclides for uptake by ruminants: Implications for radiological assessment models. *Radiation Protection Dosimetry*, **69**, 111-116.

Witherspoon, J.P., Taylor, F.G., 1970. Interception and retention of simulated fallout by agricultural plants. *Health Physics*, **19**, 439-499.

Wood, H.G., 2008. Effects of separation processes on minor uranium isotopes in enrichment cascades, *Science & Global Security*, **16**, 26-36.

Wright, R.J., 1972. Thorium: Element and geochemistry. Dans : Fairbridge, R.W. (Ed.), *Encyclopedia of geochemistry and environmental sciences*. Van Nostrand Reinhold, New York, pp 1183-1189.

Wysocka, M., Chalupnik, S., Michalik, B., Skowronek, J., Skubacz, K., 2002. Environmental impact of coal mining on the natural environment in Poland. Dans : AIEA, *Technologically Enhanced Natural Radiation (TENR II)*. IAEA-TECDOC-1271, Vienne, pp 10-18.

Yunoki, E., Katoaka, Y., Michiro, K., Sugiyama, H., Mori, M.T., 1989. Activity concentrations of ^{238}U and ^{226}Ra in agricultural samples. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry Articles*, **174**, 223–228.

Zezina, N.V., Savchuk, S.A., Kutlakhmedov, Y.A., Serdiuk, E.M., Izzheurova, V.V., 1992. Influence of some physical and biological factors on the values of Cs-137 transfer factor. Dans : International Union of Radioecologists (Ed.), *VIIIth report of the working group soil-to-plant transfer factors*. IUR Pub R-9212-02, Balen, Belgium, pp. 8–11.

Annexes

Annexe A : Incertitudes, limites de détection et nombre de résultats significatifs obtenus pour chaque radionucléide et chaque technique analytique.

	Echantillons organiques		
Radionucléides	Spectrométrie γ (N=48)	ICP-QMS (N=45)	MC-ICP-MS (N=10)
^{238}U	-	10 à 20% *45**	-
^{234}Th	10 à 63 % l.d = 5 $Bq.kg^{-1}$ cendres *13**	-	-
^{234}U	~50% l.d = 170 $Bq.kg^{-1}$ cendres *1**	10 à 70% *45**	-
^{230}Th	l.d = 60 $Bq.kg^{-1}$ cendres *0**	~40% l.d = 0,11 $Bq.kg^{-1}$ cendres *5**	2% *10**
^{226}Ra	15 à 67% l.d = 7 $Bq.kg^{-1}$ cendres *14**	-	-
^{214}Pb	10 à 45% l.d = 0,9 $Bq.kg^{-1}$ cendres *36**	-	-
^{214}Bi	12 à 36% l.d = 2,1 $Bq.kg^{-1}$ cendres *31**	-	-
^{210}Pb	10 à 33% l.d = 7 $Bq.kg^{-1}$ cendres *26**	-	-
^{232}Th	-	15 à 30 % l.d = 0.025 $Bq.kg^{-1}$ cendres *34**	1% *10**
^{228}Ac	16 à 68% l.d = 2,7 $Bq.kg^{-1}$ cendres *25**	-	-
^{212}Pb	10 à 57% l.d = 1,2 $Bq.kg^{-1}$ cendres *27**	-	-
^{212}Bi	18 à 50% l.d = 7 $Bq.kg^{-1}$ cendres *7**	-	-
^{235}U	12 à 50% l.d = 0,5 $Bq.kg^{-1}$ cendres *5**	10 à 20% *45**	-
^{227}Th	l.d = 1,1 $Bq.kg^{-1}$ cendres *0**	-	-

Tableau A.1 : Incertitudes (%) et limites de détection (l.d) des techniques analytiques utilisées pour la mesure des activités des principaux radionucléides des chaînes de désintégration naturelles dans les échantillons organiques.

* Nombre de résultats significatifs obtenus.

	Echantillons d'eau	
Radionucléides	Spectrométrie α (N=16)	TIMS (N=5)
^{238}U	10 à 90% l.d = 3 mBq.L^{-1} *11**	2% *5**
^{234}U	~10 à 90% l.d = 3 mBq.L^{-1} *11**	2% *5**
^{226}Ra	-	2% *5**
^{235}U	30 à 70% l.d = 1 mBq.L^{-1} *4**	2% *5**

Tableau A.2 : Incertitudes (%) et limites de détection (l.d) des techniques analytiques utilisées pour la mesure des activités des principaux radionucléides des chaînes de désintégration naturelles dans les échantillons d'eau.

* Nombre de résultats significatifs obtenus.

	Echantillons de sols	
Radionucléides	Spectrométrie γ (N=24)	ICP-QMS (N=6)
^{238}U	-	~10% *6**
^{234}Th	10% *24**	-
^{234}U	l.d = 120 $Bq.kg^{-1}$ sec *0**	~10% *6**
^{230}Th	26 à 51% l.d = 40 $Bq.kg^{-1}$ sec *12**	34 à 50% *6**
^{226}Ra	15 à 45% l.d = 34 $Bq.kg^{-1}$ sec *21**	-
^{214}Pb	~10% *24**	-
^{214}Bi	~10% *24**	-
^{210}Pb	10% *24**	-
^{232}Th	-	15 à 45% *6**
^{228}Ac	~10% *24**	-
^{212}Pb	~10% *24**	-
^{212}Bi	12 à 26% *24**	-
^{235}U	22 à 72% l.d = 35 $Bq.kg^{-1}$ sec *16**	~10% *6**
^{227}Th	20 à 53% l.d = 1,6 $Bq.kg^{-1}$ sec *16**	-

Tableau A.3 : Incertitudes (%) et limites de détection (l.d) des techniques analytiques utilisées pour la mesure des activités des principaux radionucléides des chaînes de désintégration naturelles dans les échantillons de sol.

* Nombre de résultats significatifs obtenus.

Annexe B : Protocole détaillé des étapes de séparation et de purification de l'uranium (tableau B.1) et du thorium (tableau B.2) en vue des mesures par ICP-QMS réalisées au LMRE à Orsay.

En fin de minéralisation, les échantillons sont repris dans HNO_3 afin d'être introduit dans les colonnes UTEVA servant à la purification de l'uranium.

Etapes	Acides	Volumes
Rinçage	HNO_3 3M	2 x 4 mL
Introduction de l'échantillon par fraction de 3 mL (9 mL HNO_3 3M)		
Lavage	HNO_3 3M HCl 30% HCl 5M	2 x 5 mL 2 x 4 mL 3 x 5 mL
Elution U	HCl 0,01 M	3 x 5 mL

Tableau B.1 : Protocole de purification de l'uranium sur colonne UTEVA.

A la fin de la procédure de purification, l'échantillon obtenu est évaporé à sec à 80°C et est ensuite repris avec 6 mL HNO_3 0,5M pour la mesure.

L'aliquote destinée à la purification du thorium est évaporée à sec à 80°C et est reprise dans 20 mL HNO_3 8M auxquels est ajoutée une pincée de $NaNO_2$, environ 12h avant l'introduction sur la colonne. 12 mL de résine AG1X4 sont dans un premier temps lavés à l'eau milli-Q puis selon le cycle suivant : 60 mL HNO_3 8M, 60 mL d'eau milli-Q, 60 mL HCl 30% et 60 mL d'eau milli-Q, qui est effectué 3 fois. La procédure de purification du thorium suit ensuite le protocole décrit dans le Tableau B.2.

Etapes	Acides	Volumes
Conditionnement	HNO_3 8M	2 x 60 mL
Introduction de l'échantillon (20 mL HNO_3 8M)		
Lavage	HNO_3 8M	3 x 60 mL
Elution U	HCl 30%	2 x 60 mL

Tableau B.2 : Procédure de purification du thorium sur colonne AG1X4.

L'éluât obtenu est évaporé à 120°C, puis repris avec 20 mL HNO_3 8M, à nouveau évaporé à 80°C et finalement repris avec 6 mL HNO_3 0,5 M pour la mesure.

Annexe C : Protocole détaillé des étapes de séparation et de purification du thorium (tableaux C.1 à C.3) en vue des mesures par MC-ICP-MS réalisées au LHyGeS à Strasbourg.

Pour la première étape 20 mL de résine AG1X8 sont nécessaires et sont préalablement lavés avec 200 mL HCl 6N suivi de 50 mL H_2O, de 100 mL HNO_3 0,25N et de 100 mL H_2O. La deuxième étape est identique à la première, seuls les volumes de résine et d'éluants sont modifiés et sont divisés par 5 (tableau C.1)

Etapes	Acides	Volumes Etape 1	Volumes Etape 2
Lavage	HNO_3 0,25N	2 x 50 mL	2 x 10 mL
Conditionnement	HNO_3 7,5N	2 x 10 mL	2 x 2 mL
Introduction de l'échantillon (HNO_3 7,5N)		5 mL	1 mL
Elution	HNO_3 7,5N	4 x 3,5 mL	4 x 0,7 mL
Elution Th	H_2O HCl 0,5N HCl 0,5N HCl 6N HCl 6N	2 x 2,5 mL 2 x 2,5 mL 25 mL 2 x 2,5 mL 25 mL	2 x 0,5 mL 2 x 0,5 mL 5 mL 2 x 0,5 mL 5 mL

Tableau C.1 : Etape 1 et 2 du protocole de séparation et de purification du thorium sur résine AG1X8.

A la fin de la première étape, les échantillons sont évaporés à sec à 100°C, puis ils sont repris avec 2 mL HNO_3 7,5N, 4 mL HCl 6N et 500 µL Hf supra-pur et sont chauffés à 110 °C afin de bien dissoudre le résidu. Ils sont à nouveau évaporés à 130°C, puis repris à chaud deux fois consécutives dans 1 mL HNO_3 7,5N et sont mis aux ultrasons avant d'être introduit dans les colonnes pour la deuxième étape (tableau C.1). En fin de deuxième étape, les échantillons sont évaporés à sec à 100°C, et sont repris à chaud dans 0,2 mL HNO_3 7,5N, puis ils sont évaporés à sec une deuxième fois, repris à chaud dans 0,4 mL HNO_3 7,5N et placés aux ultrasons. L'étape suivante nécessite 0,6 mL de résine AG1X8, lavés au préalable avec 10 mL HCl 0,5N ce qui permet de supprimer les éléments majeurs présents dans la résine. La séparation suit ensuite le protocole décrit dans le Tableau C.2.

Etapes	Acides	Volumes
Lavage	HNO_3 0,25N	2 x 10 mL
Conditionnement	HNO_3 7,5N	2 x 2 mL
Introduction de l'échantillon (HNO_3 7,5N)		0,4 mL
Elution	HNO_3 7,5N HNO_3 7,5N	4 x 0,4 mL 4 mL
Elution Th	H_2O HCl 6N HCl 6N	2 x 0,5 mL 2 x 0,5 mL 4 mL

Tableau C.2 : Etape 3 du protocole de séparation et de purification du thorium sur 0,6 mL de résine AG1X8.

Le thorium élué lors de l'étape 3 est évaporé à sec à 100°C, repris à chaud dans 0,1 mL HNO_3 7,5N et à nouveau évaporé à sec. Le résidu est alors repris dans 0,1 mL HNO_3 7,5N et est mis aux ultrasons. La dernière étape de purification du thorium (tableau C.3) requiert un volume de 0,15 mL de résine lavé dans un premier temps avec 4 fois 2 mL HCl 6N, 2 mL H_2O suivi de 2 fois 2 mL HNO_3 0,25N et deux fois 2 mL H_2O.

Etapes	Acides	Volumes
Lavage	HNO_3 0,25N	3 x 0,4 mL
Conditionnement	HNO_3 7,5N	2 x 0,4 mL
Introduction de l'échantillon (HNO_3 7,5N)		0,1 mL
Elution	HNO_3 7,5N HNO_3 7,5N	4 x 0,1 mL 3 x 0,4 mL
Elution Th	H_2O HCl 6N HCl 6N HCl 6N	2 x 0,1 mL 0,1 mL 0,2 mL 3x 0,4 mL

Tableau C.3 : Etape 4 du protocole de séparation et purification du thorium sur 0,15 mL de résine AG1X8.

L'échantillon est évaporé à sec à 100°C, puis il est repris à chaud dans 0,1 mL HNO_3 7,5N, à nouveau évaporé à sec et repris dans 0,1 mL HNO_3 7,5N. 0,9 mL H_2O sont ensuite ajoutés et l'échantillon est placé à 50°C jusqu'au moment de la mesure.

Annexe D : Protocole détaillé des étapes de séparation et de purification de l'uranium (tableaux D.1 et D.2) et du radium (tableaux D.3 à D.5) suivi du protocole de dépôt des échantillons sur filaments, en vue des mesures par TIMS réalisées au LHyGeS à Strasbourg.

La première étape de séparation et de purification de l'uranium nécessite 0,6 mL de résine préalablement lavés en HNO_3 0,25 N et à l'eau mQ.

Etapes	Acides	Volumes
Lavage	HNO_3 0,25N	2 x 10 mL
Conditionnement	HNO_3 7,5N	2 x 2 mL
Introduction de l'échantillon (HNO_3 7,5N)		0,2 mL
Elution	HNO_3 7,5N	4 x 0,4 mL
Elution U	HNO_3 0,25N HNO_3 0,25N	2 x 0,4 mL 4 mL

Tableau D.1 : Première étape de la séparation et de la purification de l'uranium sur 0,6 mL de résine AG1x8.

Durant cette étape, la fraction de radium est récupérée à partir de l'introduction de l'échantillon jusqu'à l'élution de l'uranium. Cette fraction est évaporée et conservée afin d'être utilisée pour la séparation et la purification du radium. L'éluât contenant l'uranium est évaporé à 110°C et est repris dans 0,2 mL HCl 6N. Il est à nouveau évaporé et repris dans 0,4 mL HCl 6N. La seconde étape de chimie nécessite 0,6 mL de résine AG1x8 lavés avec 2 mL HCl 0,5N et environ 10 mL d'eau mQ.

Etapes	Acides	Volumes
Lavage	HCl 6N HCl 0,5N HCl 6N	1 mL 2 x 10 mL 4 x 1 mL
Introduction de l'échantillon (HCl 6N)		0,4 mL
Elution	HCl 6N Acétone + HCl 6N Acétone + HCl 6N HCl 6N	2 x 0,4 mL 2 x 0,6 mL 4 mL 4 x 0,6 mL
Elution U	HCl 0,5N HCl 0,5N	2 x 0,4 mL 4 mL

Tableau D.2 : Deuxième étape de séparation et de purification de l'uranium sur 0,6 mL de résine AG1x8.

La fraction d'uranium obtenue est évaporée à 110°C et est conservée en vue du dépôt sur filament.

La fraction de radium éluée lors de la première étape de séparation de l'uranium est reprise successivement dans 2 fois 1 mL de HCl 2N avant son introduction sur colonne de 2 mL de résine 50Wx8.

Etapes	Acides	Volumes
Lavage	HNO_3 4N H_2O	2 x 10 mL 2 mL
Conditionnement	HCl 2N	2 x 2 mL
Introduction de l'échantillon (HCl 2N)		1 mL
Elution	HCl 2N HCl 2N H_2O HNO_3 2N	2 x 0,5 mL 8 mL 50 µL 2 x 1 mL
Elution Ra	HNO_3 2N	10 + 1 mL

Tableau D.3 : Première étape de séparation et de purification du radium sur 2 mL de résine 50Wx8.

La fraction de radium récupérée est évaporée à 110°C et le résidu est repris dans 0,5 mL HCl 3N avant d'être à nouveau évaporé et repris dans 1 mL HCl 3N. L'échantillon est alors introduit dans la colonne de chromatographie constituée de 1 mL de résine 50Wx8 préalablement lavé avec environ 6 mL HNO_3 4N et 1 mL H_2O.

Etapes	Acides	Volumes
Conditionnement	HCl 3N	2 x 1 mL
Introduction de l'échantillon (HCl 3N)		1 mL
Elution	HCl 3N HCl 3N HCl 3N	3 x 0,5 mL 2 mL 3 mL
Elution Ra	HCl 6N	2 x 3 mL

Tableau D.4 : Deuxième étape de séparation et de purification du radium sur 1 mL de résine 50Wx8.

Le radium élué est évaporé et repris dans 100 µL HNO_3 3N, à nouveau évaporé et repris dans 500 µL HNO_3 3N. La dernière étape nécessite 500 µL de résine Sr-Spec et débute par le lavage de la résine (tableau D.6).

Etapes	Acides	Volumes
Lavage	HNO_3 7,5N H_2O HNO_3 7,5N H_2O HNO_3 0,05N	1 mL 1 mL 1 mL 1 mL 2 x 6 mL
Conditionnement	HNO_3 3N	2 x 500 µL
Introduction de l'échantillon (HNO_3 3N)		500 µL
Elution	HNO_3 3N HNO_3 3N	2 x 100 µL 300 µL
Elution Ra	HNO_3 3N	1,5 mL

Tableau D.5 : Troisième étape de séparation et de purification du radium sur 500 µL de résine Sr-Spec.

La fraction récupérée est évaporée et le résidu est repris dans 2,5 µL HNO_3 1N pour être déposé sur filament.

Les dépôts d'uranium et de radium se font sur des filaments de rhénium, préalablement dégazés à 5 A sous un vide de 2 x 10^{-7} torr plusieurs jours avant le dépôt des échantillons.

Pour le dépôt sur filament, le résidu sec d'uranium est repris dans 2,5 µL HNO_3 1N. La procédure de dépôt consiste ensuite à déposer sur les filaments soumis à un courant de 0,7 A, un volume de 1 µL d'acide phosphorique (H_3PO_4). Une fois le filament sec (2 minutes après), 3 µL de graphite en suspension sont utilisés pour enduire le filament qui est alors chauffé à 0,5 A. Le graphite possédant une très grande surface spécifique va avoir pour effet d'augmenter la surface d'émission et d'améliorer l'adhésion de l'échantillon au filament. Lorsque le graphite est sec, l'uranium est petit à petit déposé sur le filament à une intensité de 0,5 A. Une fois toute la solution déposée, le filament est chauffé à 0,8 A. Après 10 secondes le filament est amené à 1 A et 10 secondes plus tard, à 1,5 A pendant 20 secondes. La procédure de dépôt se termine alors en diminuant progressivement l'ampérage.

La procédure de dépôt du radium diffère quelque peu de celle de l'uranium. Avant le dépôt, 1 µL d'oxyde de tantale (Ta_2O_5) est déposé sur le filament. L'intensité est alors amenée à 0,3 A. L'échantillon est lentement déposé sur le filament et l'intensité est augmentée à 0,5 A. Après 2 minutes, 1 µL de Ta_2O_5 est à nouveau déposé sur le filament. L'intensité est maintenue à 0,5 A pendant 1 minute et est progressivement amenée à 1,5 A pendant 10 secondes puis à 2 A pendant 5 secondes. La procédure de dépôt se termine enfin par la diminution progressive de l'ampérage.

Annexe E : Présentation des résultats obtenus dans les différentes matrices alimentaires et leurs échantillons complémentaires (sol de culture, eaux d'irrigation, alimentation animale, sol, eaux d'abreuvage).

Les techniques utilisées pour obtenir les résultats sont précisées (γ : spectrométrie γ ; ICP-MS : Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry ; MC-ICP-MS : Multi Collection Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry ; α : spectrométrie α ; TIMS : Thermo Ionization Mass Spectrometry).

Résultats obtenus dans les échantillons de blé et leurs sols de culture :

Site	N°	^{232}Th (ICP-MS)	^{232}Th (MC-ICP-MS)	^{228}Ac (γ)	^{212}Pb (γ)	^{212}Bi (γ)	^{235}U (γ)	^{235}U (ICP-MS)
RV-IZ	31	0,0088 ± 0,0015	0,008613 ± 0,000086	0,243 ± 0,056	0,050 ± 0,012	< 0,33	< 0,051	0,00057 ± 0,00007
RV-NIZ	35	0,0092 ± 0,0017	0,009837 ± 0,000098	0,238 ± 0,047	0,019 ± 0,011	< 0,69	< 0,036	0,00053 ± 0,00006
VM	79	0,0204 ± 0,0035	0,01623 ± 0,00016	0,086 ± 0,039	< 0,070	< 0,28	< 0,032	0,00060 ± 0,00007
MC	97	0,076 ± 0,013	0,04487 ± 0,00045	< 0,37	0,068 ± 0,014	< 0,37	< 0,054	0,00222 ± 0,00027
W-MC	111	0,140 ± 0,024	0,1214 ± 0,0012	0,77 ± 0,18	0,176 ± 0,039	< 1,1	< 0,16	0,0079 ± 0,0010

Tableau E.1 : Activités des radionucléides des chaînes du thorium, de l'uranium-235 et de l'uranium-238 dans les échantillons de blé (Bq.kg^{-1} frais).

Site	N°	^{238}U (ICP-MS)	^{234}Th (γ)	^{234}U (γ)	^{234}U (ICP-MS)	^{230}Th (γ)	^{230}Th (ICP-MS)	^{230}Th (MC-ICP-MS)	^{226}Ra (γ)	^{214}Pb (γ)	^{214}Bi (γ)	^{210}Pb (γ)
RV-IZ	31	0,0121 ± 0,0014	< 0,23	< 8,0	0,0117 ± 0,0030	< 3,3	< 0,024	0,00909 ± 0,00018	0,290 ± 0,094	0,267 ± 0,033	0,257 ± 0,037	1,73 ± 0,23
RV-NIZ	35	0,0109 ± 0,0012	< 0,16	< 5,5	0,0116 ± 0,0030	< 1,6	< 0,022	0,00967 ± 0,00019	0,145 ± 0,066	0,143 ± 0,019	0,137 ± 0,022	1,26 ± 0,16
VM	79	0,0127 ± 0,0015	< 0,18	< 7,0	0,0128 ± 0,0032	< 1,8	< 0,047	0,01276 ± 0,00026	< 0,49	0,056 ± 0,012	0,056 ± 0,018	2,39 ± 0,26
MC	97	0,0476 ± 0,0054	< 0,23	< 7,9	0,0484 ± 0,0077	< 2,3	< 0,14	0,0562 ± 0,0011	< 0,88	0,167 ± 0,025	0,150 ± 0,031	3,43 ± 0,37
W-MC	111	0,169 ± 0,020	< 2,0	< 65	0,181 ± 0,033	< 7,2	< 0,27	0,1972 ± 0,0039	1,50 ± 0,39	1,51 ± 0,16	1,41 ± 0,19	11,2 ± 1,2

Tableau E.1 : Activités des radionucléides des chaînes du thorium, de l'uranium-235 et de l'uranium-238 dans les échantillons de blé (Bq.kg^{-1} frais) (suite).

Partie	N°	^{232}Th (ICP-MS)	^{228}Ac (γ)	^{212}Pb (γ)	^{235}U (γ)	^{235}U (ICP-MS)
Epi	124	0,0102 ± 0,0017	0,214 ± 0,038	0,0427 ± 0,0064	< 0,026	0,000526 ± 0,000061
Grain	125-1	0,00080 ± 0,00018	0,077 ± 0,032	0,0206 ± 0,0075	< 0,015	0,000114 ± 0,000013
Enveloppes	125-2	0,0084 ± 0,0014	0,156 ± 0,039	0,035 ± 0,010	< 0,019	0,00177 ± 0,00021

Tableau E.2 : Activités des radionucléides des chaînes de désintégration du thorium-232, de l'uranium-235 et de l'uranium-238 dans les épis de blé, les grains de blé et les enveloppes (Bq.kg^{-1} frais).

Partie	N°	^{238}U (ICP-MS)	^{234}Th (γ)	^{234}U (γ)	^{234}U (ICP-MS)	^{230}Th (γ)	^{230}Th (ICP-MS)	^{230}Th (MC-ICP-MS)	^{226}Ra (γ)	^{214}Pb (γ)	^{214}Bi (γ)
Epi	124	0,0114 ± 0,0012	< 0,14	< 17	0,0116 ± 0,0018	< 1,4	0,0118 ± 0,0087	0,228 ± 0,052	0,222 ± 0,023	0,220 ± 0,029	2,54 ± 0,26
Grain	125-1	0,00247 ± 0,00028	< 0,15	< 5,4	0,00266 ± 0,00073	< 1,5	< 0,0066	< 0,24	0,118 ± 0,017	0,107 ± 0,022	< 0,17
Enveloppes	125-2	0,0385 ± 0,0042	< 0,13	< 4,3	0,0441 ± 0,0068	< 1,3	0,0100 ± 0,0051	0,225 ± 0,080	0,146 ± 0,019	0,148 ± 0,026	2,67 ± 0,27

Tableau E.2 : Activités des radionucléides des chaînes de désintégration du thorium-232, de l'uranium-235 et de l'uranium-238 dans les épis de blé, les grains de blé et les enveloppes (Bq.kg^{-1} frais) (suite).

Site	N°	^{232}Th (ICP-MS)	^{228}Ac (γ)	^{212}Pb (γ)	^{212}Bi (γ)	^{235}U (γ)	^{235}U (ICP-MS)
RV-IZ	32	33,9 ± 5,6	23,9 ± 3,1	23 ± 2,3	21 ± 4	< 5	0,771 ± 0,087
RV-NIZ	34	28 ± 13	23,3 ± 2,9	23,8 ± 2,3	24 ± 4	0,7 ± 0,4	0,525 ± 0,06
VM	80	37,9 ± 5,3	44 ± 6	44 ± 5	44 ± 6	1,5 ± 0,9	1,23 ± 0,14
MC	96	n.m	58 ± 8	58 ± 6	62 ± 9	1,4 ± 0,6	n.m
W-MC	110	n.m	40 ± 6	39 ± 4	40 ± 7	3,4 ± 1	n.m

Tableau E.3 : Activités des radionucléides des chaînes du thorium-232, de l'uranium-235 et de l'uranium-238 dans les sols de culture du blé ($Bq.kg^{-1}$ sec).

Site	N°	^{238}U (ICP-MS)	^{234}Th (γ)	^{234}U (γ)	^{234}U (ICP-MS)	^{230}Th (γ)	^{230}Th (ICP-MS)	^{226}Ra (γ)	^{214}Pb (γ)	^{214}Bi (γ)	^{210}Pb (γ)
RV-IZ	32	16,7 ± 1,8	20,9 ± 2,8	< 240	15,9 ± 2,2	< 50	28 ± 9,9	< 60	27 ± 2,6	25,4 ± 2,9	26,7 ± 3,2
RV-NIZ	34	11,3 ± 1,3	15,6 ± 2,2	< 270	10,1 ± 1,6	< 40	16,4 ± 5,7	21 ± 7	18,7 ± 1,8	16,6 ± 2,0	27,7 ± 3,2
VM	80	26,5 ± 2,9	31 ± 4	< 400	24 ± 3,4	< 60	33 ± 11	47 ± 15	42 ± 4	40 ± 5	45 ± 5
MC	96	n.m	38 ± 5	< 400	n.m	< 60	n.m	53 ± 11	41 ± 4	39 ± 5	47 ± 6
W-MC	110	n.m	92 ± 10	< 600	n.m	104 ± 29	n.m	131 ± 19	106 ± 11	100 ± 12	81 ± 9

Tableau E.3 : Activités des radionucléides des chaînes du thorium-232, de l'uranium-235 et de l'uranium-238 dans les sols de culture du blé ($Bq.kg^{-1}$ sec) (suite).

Résultats obtenus dans les échantillons de salade, leurs sols de culture et dans leurs eaux d'irrigation.

Site	N°	^{232}Th (ICP-MS)	^{232}Th (MC-ICP-MS)	^{228}Ac (γ)	^{212}Pb (γ)	^{212}Bi (γ)	^{235}U (γ)	^{235}U (ICP-MS)
RV-IZ	51	0,0063 ± 0,0011	0,008663 ± 0,000087	< 0,18	< 0,029	< 0,18	< 0,020	0,00229 ± 0,00028
RV-NIZ	55	0,0045 ± 0,0008	0,005245 ± 0,000053	< 0,12	< 0,060	< 0,33	< 0,013	0,00035 ± 0,00005
VM	78	0,1662 ± 0,0284	0,1570 ± 0,0016	1,22 ± 0,16	0,347 ± 0,036	0,30 ± 0,10	< 0,034	0,00392 ± 0,00047
MC	83	0,0220 ± 0,0036	0,02957 ± 0,00030	< 0,32	0,024 ± 0,001	< 0,32	< 0,055	0,0049 ± 0,0011
W-MC	104	0,115 ± 0,020	0,09410 ± 0,00094	0,39 ± 0,06	0,143 ± 0,017	0,17 ± 0,08	< 0,031	0,00563 ± 0,00080

Tableau E.4 : Activités des radionucléides des chaînes du thorium-232, de l'uranium-235 et de l'uranium-238 dans les échantillons de salade (Bq.kg^{-1} frais).

Site	N°	^{238}U (ICP-MS)	^{234}Th (γ)	^{234}U (γ)	^{234}U (ICP-MS)	^{230}Th (γ)	^{230}Th (ICP-MS)	^{230}Th (MC-ICP-MS)	^{226}Ra (γ)	^{214}Pb (γ)	^{214}Bi (γ)	^{210}Pb (γ)
RV-IZ	51	0,0495 ± 0,0055	< 0,13	< 4,6	0,0524 ± 0,0074	< 1,3	0,033 ± 0,013	0,03639 ± 0,00073	< 0,37	0,055 ± 0,010	0,065 ± 0,014	< 0,15
RV-NIZ	55	0,0076 ± 0,0009	< 0,21	< 7,5	0,0084 ± 0,0012	< 2,1	< 0,0088	0,00521 ± 0,00010	< 0,22	0,030 ± 0,013	< 0,13	< 0,75
VM	78	0,0848 ± 0,0095	0,20 ± 0,07	< 15,8	0,088 ± 0,012	< 1,9	< 0,33	0,0879 ± 0,0018	0,33 ± 0,21	0,341 ± 0,036	0,311 ± 0,040	0,54 ± 0,10
MC	83	0,105 ± 0,022	< 0,23	< 8,8	0,120 ± 0,029	< 2,2	< 0,039	0,03987 ± 0,00080	< 0,22	0,055 ± 0,014	< 0,13	0,41 ± 0,11
W-MC	104	0,121 ± 0,015	0,16 ± 0,05	< 13,5	0,121 ± 0,020	< 1,2	< 0,20	0,1346 ± 0,0027	0,67 ± 0,10	0,599 ± 0,061	0,624 ± 0,080	0,75 ± 0,10

Tableau E.4 : Activités des radionucléides des chaînes du thorium-232, de l'uranium-235 et de l'uranium-238 dans les échantillons de salade (Bq.kg^{-1} frais) (suite).

Site	N°	^{232}Th (ICP-MS)	^{228}Ac (γ)	^{212}Pb (γ)	^{212}Bi (γ)	^{235}U (γ)	^{235}U (ICP-MS)
RV-IZ	53	n.m	20,6 ± 2,8	22,9 ± 2,3	22,3 ± 2,8	0,9 ± 0,6	n.m
RV-NIZ	56	n.m	10,8 ± 1,4	10,5 ± 1,1	10,9 ± 2,7	< 0,7	n.m
VM	77	172 ± 77	160 ± 19	160 ± 16	158 ± 20	2 ± 0,9	2,69 ± 0,31
MC	82	74 ± 13	50 ± 6	51 ± 5	46 ± 7	< 4	1,68 ± 0,2
W-MC	105	163 ± 30	94 ± 12	98 ± 10	94 ± 12	5,7 ± 2,1	5,17 ± 0,62

Tableau E.5 : Activités des radionucléides des chaînes du thorium-232, de l'uranium-235 et de l'uranium-238 dans les échantillons de sol de culture des salades (Bq.kg^{-1} sec).

Site	N°	^{238}U (ICP-MS)	^{234}Th (γ)	^{234}U (γ)	^{234}U (ICP-MS)	^{230}Th (γ)	^{230}Th (ICP-MS)	^{226}Ra (γ)	^{214}Pb (γ)	^{214}Bi (γ)	^{210}Pb (γ)
RV-IZ	53	n.m	23,3 ± 2,9	< 330	n.m	< 50	n.m	31 ± 9	26 ± 2,5	24,8 ± 2,9	29 ± 4
RV-NIZ	56	n.m	13 ± 2,1	< 120	n.m	< 40	n.m	22 ± 7	13,8 ± 1,4	12,3 ± 1,6	21,5 ± 2,8
VM	77	58,4 ± 6,4	75 ± 9	< 800	57,5 ± 7,7	< 100	75 ± 37	94 ± 17	71 ± 7	69 ± 8	69 ± 8
MC	82	36,6 ± 4	34 ± 5	< 330	38,7 ± 5,8	66 ± 23	77 ± 26	67 ± 30	70 ± 7	65 ± 8	52 ± 6
W-MC	105	112 ± 13	120 ± 12	< 500	110 ± 17	150 ± 40	159 ± 56	150 ± 40	143 ± 14	129 ± 14	112 ± 11

Tableau E.5 : Activités des radionucléides des chaînes du thorium-232, de l'uranium-235 et de l'uranium-238 dans les échantillons de sol de culture des salades (Bq.kg^{-1} sec) (suite).

Région	N°	^{238}U (α)	^{238}U (TIMS)	^{234}U (α)	^{234}U (TIMS)	^{226}Ra (TIMS)	^{235}U (α)	^{235}U (TIMS)
RV-ZI	50	46 ± 6	46,19 ± 0,92	52 ± 6	51,83 ± 1,04	4,893 ± 0,098	2,5 ± 1,1	2,122 ± 0,042
RV-ZNI	54	7,7 ± 2,5	30,29 ± 0,61	11 ± 3	36,45 ± 0,73	1,915 ± 0,038	< 1,3	1,392 ± 0,028
VM	76	<3,3	0,495 ± 0,010	< 3,2	1,299 ± 0,026	0,606 ± 0,012	< 1,2	0,0227 ± 0,0005
MC	84	114 ± 13	40,77 ± 0,82	133 ± 15	47,86 ± 0,96	0,728 ± 0,109	5,5 ± 1,7	1,873 ± 0,038
W-MC	121	n.m	0,156 ± 0,003	n.m	0,180 ± 0,004	0,409 ± 0,008	n.m	0,0071 ± 0,0001

Tableau E.6 : Activités des radionucléides des chaînes de désintégration de l'uranium-238 et 235 dans les échantillons d'eau d'irrigation des salades ($mBq.L^{-1}$)

Résultats obtenus dans les échantillons de romarin et leurs sols correspondants :

Site	N°	^{232}Th (ICP-MS)	^{228}Ac (γ)	^{212}Pb (γ)	^{212}Bi (γ)	^{235}U (γ)	^{235}U (ICP-MS)
RV-IZ	29	0,090 ± 0,015	0,61 ± 0,13	0,248 ± 0,032	< 0,58	< 0,084	0,00748 ± 0,00087
RV-NIZ	36	0,075 ± 0,012	0,346 ± 0,086	0,222 ± 0,032	0,40 ± 0,20	< 0,092	0,00271 ± 0,00032

Tableau E.7 : Activités des radionucléides des chaînes de décroissance du thorium-232, de l'uranium-235 et de l'uranium-238 dans les échantillons de romarin (Bq.kg^{-1} frais).

Site	N°	^{238}U (ICP-MS)	^{234}Th (γ)	^{234}U (γ)	^{234}U (ICP-MS)	^{230}Th (γ)	^{230}Th (ICP-MS)	^{226}Ra (γ)	^{214}Pb (γ)	^{214}Bi (γ)	^{210}Pb (γ)
RV-IZ	29	0,155 ± 0,017	< 0,45	< 16	0,171 ± 0,024	< 5,5	< 0,17	0,87 ± 0,58	1,00 ± 0,10	0,97 ± 0,13	12,9 ± 1,3
RV-NIZ	36	0,0571 ± 0,0063	< 0,40	< 14	0,0571 ± 0,0081	< 4,0	< 0,15	0,75 ± 0,20	0,689 ± 0,075	0,608 ± 0,081	12,4 ± 1,4

Tableau E.7 : Activités des radionucléides des chaînes de décroissance du thorium-232, de l'uranium-235 et de l'uranium-238 dans les échantillons de romarin (Bq.kg^{-1} frais) (suite).

Site	N°	^{228}Ac (γ)	^{212}Pb (γ)	^{212}Bi (γ)	^{235}U (γ)	^{234}Th (γ)	^{234}U (γ)	^{230}Th (γ)	^{226}Ra (γ)	^{214}Pb (γ)	^{214}Bi (γ)	^{210}Pb (γ)
RV-IZ	30	24,4 ± 3,2	23,4 ± 2,3	25 ± 5	0,9 ± 0,4	21,1 ± 2,7	< 400	< 110	32 ± 6	26,8 ± 2,6	26,9 ± 3,1	31 ± 4
RV-NIZ	37	10,2 ± 1,5	10,6 ± 1,1	8,4 ± 2,2	n,m	14,4 ± 2,1	< 400	28 ± 14	< 34	20,2 ± 2,0	19,4 ± 2,3	49 ± 6

Tableau E.8 : Activités des radionucléides des chaînes de décroissance du thorium-232, de l'uranium-235 et de l'uranium-238 dans les échantillons de sol de romarin (Bq.kg^{-1} sec).

Résultats obtenus dans les échantillons de viande de volaille, les aliments pour les volailles, leurs eaux d'abreuvage et les sols des poulaillers :

Site	N°	^{232}Th (ICP-MS)	^{228}Ac (γ)	^{212}Pb (γ)	^{212}Bi (γ)	^{235}U (γ)	^{235}U (ICP-MS)
RV-IZ	27	0,00116 ± 0,00022	< 0,095	< 0,063	< 0,27	< 0,013	0,000140 ± 0,000017
RV-NIZ	47	0,00063 ± 0,00013	< 0,066	< 0,013	< 0,19	< 0,0089	0,000200 ± 0,000025
VM	61	0,00488 ± 0,00085	< 0,11	< 0,079	< 0,33	< 0,015	0,000440 ± 0,000053
MC	95	0,0027 ± 0,0018	< 0,068	< 0,047	< 0,21	< 0,012	0,000330 ± 0,000089
W-MC	113	0,00051 ± 0,00011	< 0,084	< 0,061	< 0,26	< 0,014	0,000080 ± 0,000010

Tableau E.9 : Activités des radionucléides des chaînes du thorium-232, de l'uranium-235 et de l'uranium-238 dans les échantillons de viande de volaille (Bq.kg^{-1} frais).

Site	N°	^{238}U (ICP-MS)	^{234}Th (γ)	^{234}U (γ)	^{234}U (ICP-MS)	^{230}Th (γ)	^{230}Th (ICP-MS)	^{226}Ra (γ)	^{214}Pb (γ)	^{214}Bi (γ)	^{210}Pb (γ)
RV-IZ	27	0,00295 ± 0,00034	< 0,19	< 7,4	0,00291 ± 0,00051	< 1,8	< 0,0024	< 0,20	< 0,084	< 0,042	< 0,20
RV-NIZ	47	0,0043 ± 0,00050	< 0,13	< 5,5	0,00403 ± 0,00066	< 1,3	< 0,0024	< 0,13	< 0,018	< 0,025	< 0,16
VM	61	0,0097 ± 0,0011	< 0,20	< 7,9	0,0143 ± 0,0020	< 2,1	< 0,0080	< 0,23	< 0,10	< 0,15	< 0,27
MC	95	0,0072 ± 0,0018	< 0,14	< 5,3	0,0075 ± 0,0026	< 1,4	< 0,014	< 0,16	< 0,021	< 0,094	< 0,16
W-MC	113	0,00170 ± 0,00019	< 0,20	< 7,0	0,00180 ± 0,00049	< 2,0	< 0,0032	< 0,20	< 0,067	< 0,12	< 0,23

Tableau E.9 : Activités des radionucléides des chaînes du thorium-232, de l'uranium-235 et de l'uranium-238 dans les échantillons de viande de volaille (Bq.kg^{-1} frais) (suite).

Site	N°	^{232}Th (ICP-MS)	^{228}Ac (γ)	^{212}Pb (γ)	^{212}Bi (γ)	^{235}U (γ)	^{235}U (ICP-MS)
RV-IZ	28	5,37 ± 0,90	5,55 ± 0,82	5,87 ± 0,65	5,55 ± 0,98	0,23 ± 0,11	0,216 ± 0,028
VM	64	n.m	0,13 ± 0,03	0,068 ± 0,012	< 0,32	< 0,018	n.m
VM	65	0,247 ± 0,041	0,46 ± 0,13	0,402 ± 0,056	< 0,94	< 0,13	0,0168 ± 0,0020
MC	92	0,043 ± 0,007	0,230 ± 0,096	0,163 ± 0,034	< 2,3	< 0,039	0,00413 ± 0,00049
MC	93	0,047 ± 0,01	1,01 ± 0,17	0,643 ± 0,067	0,88 ± 0,25	0,168 ± 0,050	0,202 ± 0,024
W-MC	112	n.m	0,361 ± 0,069	0,280 ± 0,033	< 0,99	< 0,060	n.m

Tableau E.10 : Activités des radionucléides des chaînes du thorium-232, de l'uranium-235 et de l'uranium-238 dans les échantillons d'aliments pour volaille (Bq.kg^{-1} frais).

Site	N°	^{238}U (ICP-MS)	^{234}Th (γ)	^{234}U (γ)	^{234}U (ICP-MS)	^{230}Th (γ)	^{230}Th (ICP-MS)	^{226}Ra (γ)	^{214}Pb (γ)	^{214}Bi (γ)	^{210}Pb (γ)
RV-IZ	28	4,65 ± 0,55	5,71 ± 0,82	< 36	4,15 ± 0,59	< 11	< 8,5	3,92 ± 1,63	3,25 ± 0,34	2,95 ± 0,36	6,04 ± 0,82
VM	64	n.m	< 0,23	< 8,8	n.m	< 3,0	n.m	< 0,33	0,107 ± 0,018	0,111 ± 0,023	< 0,88
VM	65	0,359 ± 0,040	0,31 ± 0,15	< 25	0,337 ± 0,045	< 6,9	< 0,45	< 2,5	0,721 ± 0,088	0,70 ± 0,11	2,82 ± 0,44
MC	92	0,089 ± 0,010	< 0,56	< 22	0,083 ± 0,015	< 5,6	< 0,079	< 0,67	0,264 ± 0,045	0,225 ± 0,051	1,24 ± 0,28
MC	93	4,38 ± 0,50	4,42 ± 0,46	< 38	3,68 ± 0,50	< 4,2	< 0,30	< 1,3	0,471 ± 0,059	0,458 ± 0,071	1,68 ± 0,29
W-MC	112	n.m	0,193 ± 0,096	< 9,9	n.m	< 3,3	n.m	0,36 ± 0,12	0,337 ± 0,039	0,325 ± 0,048	0,48 ± 0,12

Tableau E.10 : Activités des radionucléides des chaînes du thorium-232, de l'uranium-235 et de l'uranium-238 dans les échantillons d'aliments pour volaille (Bq.kg^{-1} frais) (suite).

Site	N°	^{228}Ac (γ)	^{212}Pb (γ)	^{212}Bi (γ)	^{235}U (γ)	^{234}Th (γ)	^{234}U (γ)	^{230}Th (γ)	^{226}Ra (γ)	^{214}Pb (γ)	^{214}Bi (γ)	^{210}Pb (γ)
VM	68	87 ± 11	85 ± 9	84 ± 11	< 3,3	65 ± 7	< 500	82 ± 29	98 ± 23	77 ± 8	75 ± 9	78 ± 9
MC	94	57 ± 7	55 ± 6	55 ± 8	3,3 ± 1	66 ± 7	< 600	91 ± 26	93 ± 17	90 ± 9	87 ± 10	84 ± 9
W-MC	115	25,2 ± 3,3	24,6 ± 2,4	27 ± 6	1,8 ± 1,3	48 ± 6	< 320	55 ± 20	41 ± 12	52 ± 5	48 ± 6	58 ± 7

Tableau E.11 : Activités des radionucléides des chaînes du thorium-232, de l'uranium-235 et de l'uranium-238 dans les échantillons de sol des poulaillers ($Bq.kg^{-1}$ sec).

Site	N°	^{238}U (α)	^{234}U (α)	^{235}U (α)
RV-ZNI	49	0,0059 ± 0,0023	0,0087 ± 0,0024	< 0,0013
VM	67	0,03 ± 0,005	0,057 ± 0,007	0,002 ± 0,001
MC	91	0,0019 ± 0,0017	0,0029 ± 0,0019	< 0,0014
W-MC	114	0,0053 ± 0,0022	0,0045 ± 0,0022	< 0,0015

Tableau E.12 : Activités des radionucléides des chaînes de désintégration de l'uranium-238 et de l'uranium-235 dans les échantillons d'eau d'abreuvage des volailles ($Bq.L^{-1}$).

Résultats obtenus dans les échantillons d'œuf, les aliments pour poule pondeuse, les sols de poulailler et les eaux d'abreuvage :

Site	N°	^{232}Th (ICP-MS)	^{228}Ac (γ)	^{212}Pb (γ)	^{212}Bi (γ)	^{235}U (γ)	^{235}U (ICP-MS)
RV-IZ	25	< 0,00049	0,109 ± 0,022	0,0172 ± 0,0045	< 0,12	< 0,015	0,000034 ± 0,0000041
RV-NIZ	26	< 0,00059	0,072 ± 0,018	0,0118 ± 0,0045	< 0,12	< 0,019	0,000063 ± 0,0000075
VM	58	< 0,00024	< 0,20	< 0,03554	< 0,20	< 0,020	0,000025 ± 0,0000034
MC	98	0,00064 ± 0,00044	< 0,14	< 0,03306	< 0,17	< 0,021	0,000054 ± 0,000017
W-MC	116	< 0,00043	0,088 ± 0,039	< 0,03907	< 0,68	< 0,023	0,000024 ± 0,0000036

Tableau E.13 : Activités des radionucléides des chaînes du thorium-232, de l'uranium-235 et de l'uranium-238 dans les échantillons d'œuf (Bq.kg^{-1} frais).

Site	N°	^{238}U (ICP-MS)	^{234}Th (γ)	^{234}U (γ)	^{234}U (ICP-MS)	^{230}Th (γ)	^{230}Th (ICP-MS)	^{226}Ra (γ)	^{214}Pb (γ)	^{214}Bi (γ)	^{210}Pb (γ)
RV-IZ	25	0,00067 ± 0,000077	< 0,063	< 6,3	0,0008 ± 0,00025	< 0,63	< 0,0056	0,145 ± 0,072	0,137 ± 0,015	0,126 ± 0,017	< 0,16
RV-NIZ	26	0,00129 ± 0,00015	< 0,072	< 2,6	0,00139 ± 0,00035	< 0,72	< 0,0067	0,136 ± 0,072	0,139 ± 0,015	0,128 ± 0,018	< 0,24
VM	58	0,00048 ± 0,00006	< 0,12	< 11	0,00053 ± 0,00027	< 1,2	< 0,0027	< 0,36	0,158 ± 0,020	0,167 ± 0,027	< 0,44
MC	98	0,00114 ± 0,00036	< 0,12	< 4,1	0,00117 ± 0,00042	< 1,2	< 0,0063	0,190 ± 0,058	0,190 ± 0,022	0,169 ± 0,026	< 0,12
W-MC	116	0,00051 ± 0,000069	< 0,14	< 4,9	0,00056 ± 0,00021	< 1,4	< 0,0049	0,176 ± 0,059	0,152 ± 0,020	0,148 ± 0,023	< 0,15

Tableau E.13 : Activités des radionucléides des chaînes du thorium-232, de l'uranium-235 et de l'uranium-238 dans les échantillons d'œuf (Bq.kg^{-1} frais) (suite).

Site	N°	^{232}Th (ICP-MS)	^{228}Ac (γ)	^{212}Pb (γ)	^{212}Bi (γ)	^{235}U (γ)	^{235}U (ICP-MS)
RV-IZ	28	5,37 ± 0,90	5,55 ± 0,82	5,87 ± 0,65	5,55 ± 0,98	0,23 ± 0,11	0,216 ± 0,028
VM	57	0,222 ± 0,038	0,41 ± 0,12	0,286 ± 0,031	< 1,8	0,76 ± 0,12	0,714 ± 0,087
MC	99	0,077 ± 0,013	< 0,33007	0,132 ± 0,035	< 1,1	0,782 ± 0,098	0,623 ± 0,078
W-MC	117	0,281 ± 0,047	1,04 ± 0,17	0,573 ± 0,070	0,87 ± 0,27	0,36 ± 0,12	0,393 ± 0,050

Tableau E.14 : Activités des radionucléides des chaînes du thorium-232, de l'uranium-235 et de l'uranium-238 dans les échantillons d'aliments pour poule pondeuse (Bq.kg^{-1} frais).

Site	N°	^{238}U (ICP-MS)	^{234}Th (γ)	^{234}U (γ)	^{234}U (ICP-MS)	^{230}Th (γ)	^{230}Th (ICP-MS)	^{226}Ra (γ)	^{214}Pb (γ)	^{214}Bi (γ)	^{210}Pb (γ)
RV-IZ	28	4,65 ± 0,55	5,71 ± 0,82	< 36	4,15 ± 0,59	< 11	< 8,5	3,9 ± 1,6	3,25 ± 0,34	2,95 ± 0,36	6,04 ± 0,82
VM	57	15,5 ± 1,8	14,2 ± 4,1	17,3 ± 9,2	13,2 ± 2,0	< 7,1	1,74 ± 0,59	< 16	2,00 ± 0,20	1,83 ± 0,22	21,2 ± 2,0
MC	99	13,3 ± 1,6	14,7 ± 1,5	< 86	11,6 ± 1,6	< 9,8	0,97 ± 0,34	< 2,9	1,55 ± 0,17	1,52 ± 0,21	18,3 ± 1,8
W-MC	117	8,4 ± 1,0	7,99 ± 0,87	< 52	7,7 ± 1,1	< 6,1	1,78 ± 0,63	< 8,7	1,15 ± 0,12	1,11 ± 0,14	5,47 ± 0,61

Tableau E.14 : Activités des radionucléides des chaînes du thorium-232, de l'uranium-235 et de l'uranium-238 dans les échantillons d'aliments pour poule pondeuse (Bq.kg^{-1} frais) (suite).

Site	N°	^{228}Ac (γ)	^{212}Pb (γ)	^{212}Bi (γ)	^{235}U (γ)	^{234}Th (γ)	^{234}U (γ)	^{230}Th (γ)	^{226}Ra (γ)	^{214}Pb (γ)	^{214}Bi (γ)	^{210}Pb (γ)
VM	60	64 ± 8	67 ± 7	64 ± 9	3.1 ± 1.1	60 ± 7	< 400	< 180	64 ± 20	65 ± 6	58 ± 7	73 ± 8
MC	101	57 ± 7	57 ± 6	57 ± 8	2.6 ± 1.5	50 ± 6	< 500	68 ± 26	64 ± 24	63 ± 6	59 ± 7	71 ± 8
W-MC	119	56 ± 7	58 ± 6	52 ± 8	2.8 ± 0.8	53 ± 6	< 400	44 ± 21	52 ± 14	51 ± 5	48 ± 6	58 ± 7

Tableau E.15 : Activités des radionucléides des chaînes de désintégration du thorium-232, de l'uranium-235 et de l'uranium-238 dans les échantillons de sol de poulailler des poules pondeuses ($Bq.kg^{-1}$ sec).

Site	N°	^{238}U (α)	^{234}U (α)	^{235}U (α)
RV-ZNI	49	0.0059 ± 0.0023	0.0087 ± 0.0024	< 0.0013
VM	59	< 0.0042	< 0.0039	< 0.0013
MC	100	0.004 ± 0.002	0.005 ± 0.0021	< 0.0014
W-MC	118	< 0.0038	< 0.0043	< 0.0016

Tableau E.16 : Activités des radionucléides des chaînes de désintégration de l'uranium-238 et de l'uranium-235 dans les échantillons d'eau d'abreuvage des poules pondeuses ($Bq.L^{-1}$).

Résultats obtenus dans les échantillons de fromage, les échantillons de lait, le fourrage ou l'herbe de pâturage des vaches laitières et des chèvres, les sols correspondant et les eaux d'abreuvage :

Site	N°	^{232}Th (ICP-MS)	^{228}Ac (γ)	^{212}Pb (γ)	^{212}Bi (γ)	^{235}U (γ)	^{235}U (ICP-MS)
RV-IZ	39	0,00147 ± 0,00050	< 0,19	< 0,14	< 0,50	< 0,028	0,000216 ± 0,000026
RV-NIZ	43	< 0,00097	< 0,27	< 0,19	< 0,74	< 0,093	0,000091 ± 0,000011
VM	72	< 0,0057	< 0,45	< 0,16	< 0,65	< 0,077	0,000179 ± 0,000022
MC	86	< 0,0041	< 0,10	< 0,056	< 0,30	< 0,019	0,000101 ± 0,000013

Tableau E.17 : Activités des radionucléides des chaînes de décroissance du thorium-232, de l'uranium-235 et de l'uranium-238 dans les échantillons de fromage (Bq.kf^{-1} frais).

Site	N°	^{238}U (ICP-MS)	^{234}Th (γ)	^{234}U (γ)	^{234}U (ICP-MS)	^{230}Th (γ)	^{230}Th (ICP-MS)	^{226}Ra (γ)	^{214}Pb (γ)	^{214}Bi (γ)	^{210}Pb (γ)
RV-IZ	39	0,00462 ± 0,00055	< 0,36	< 14	0,0049 ± 0,0011	< 3,3	< 0,012	< 0,42	< 0,17	< 0,22	< 1,4
RV-NIZ	43	0,00196 ± 0,00021	< 0,46	< 15	0,0017 ± 0,0012	< 6,6	< 0,011	< 1,6	< 0,23	< 0,35	< 1,0
VM	72	0,00387 ± 0,00045	< 0,29	< 9,4	0,0040 ± 0,0011	< 2,9	< 0,065	< 1,2	< 0,20	< 0,24	0,42 ± 0,13
MC	86	0,00210 ± 0,00026	< 0,22	< 7,1	0,00230 ± 0,00063	< 2,2	< 0,045	< 0,30	< 0,10	< 0,12	< 0,56

Tableau E.17 : Activités des radionucléides des chaînes de décroissance du thorium-232, de l'uranium-235 et de l'uranium-238 dans les échantillons de fromage (Bq.kf^{-1} frais) (suite).

Site	N°	^{232}Th (ICP-MS)	^{228}Ac (γ)	^{212}Pb (γ)	^{212}Bi (γ)	^{235}U (γ)	^{235}U (ICP-MS)
RV-IZ	38	< 0,0042	< 1,9	< 0,29	< 1,2	< 0,057	0,00026 ± 0,000032
RV-NIZ	42	< 0,0064	< 0,33	< 0,21	< 0,97	< 0,045	0,000132 ± 0,000015
VM	63	0,00314 ± 0,00091	< 0,42	< 0,15	< 1,0	< 0,056	0,00176 ± 0,00021
VM	69	0,0052 ± 0,0010	< 0,37	< 0,075	< 0,93	< 0,044	0,00098 ± 0,00012
MC	87	< 0,0042	< 0,38	< 0,25	< 1,0	< 0,044	0,000203 ± 0,000025
W-MC	106	< 0,0046	< 0,39	< 0,20	< 1,0	< 0,052	0,000185 ± 0,000024

Tableau E.18 : Activités des radionucléides des chaînes de désintégration du thorium-232, de l'uranium-235 et de l'uranium-238 dans les échantillons de lait de chèvre et lait de vache (Bq.L^{-1}).

Site	N°	^{238}U (ICP-MS)	^{234}Th (γ)	^{234}U (γ)	^{234}U (ICP-MS)	^{230}Th (γ)	^{230}Th (ICP-MS)	^{226}Ra (γ)	^{214}Pb (γ)	^{214}Bi (γ)	^{210}Pb (γ)
RV-IZ	38	0,00556 ± 0,00064	< 0,93	< 36	0,0057 ± 0,0012	< 8,6	< 0,047	< 0,93	< 0,11	< 0,16	< 1,0
RV-NIZ	42	0,00286 ± 0,00031	< 0,71	< 26	0,00291 ± 0,00084	< 7,1	< 0,078	< 0,71	< 0,26	< 0,32	< 1,8
VM	63	0,0377 ± 0,0043	< 0,84	< 35	0,051 ± 0,084	< 7,7	< 0,036	< 0,84	0,105 ± 0,042	< 0,42	< 0,91
VM	69	0,0212 ± 0,0025	< 0,68	< 25	0,0204 ± 0,0028	< 6,8	< 0,050	< 0,75	0,100 ± 0,037	< 0,44	< 1,9
MC	87	0,00428 ± 0,00047	< 0,75	< 25	0,00472 ± 0,00075	< 7,5	< 0,048	< 0,75	< 0,094	< 0,13	< 0,82
W-MC	106	0,00382 ± 0,00046	< 0,79	< 26	0,00433 ± 0,00098	< 7,2	< 0,052	< 0,79	0,105 ± 0,046	< 0,52	< 2,0

Tableau E.18 : Activités des radionucléides des chaînes de désintégration du thorium-232, de l'uranium-235 et de l'uranium-238 dans les échantillons de lait de chèvre et lait de vache (Bq.L^{-1}) (suite).

Site	N°	^{232}Th (ICP-MS)	^{228}Ac (γ)	^{212}Pb (γ)	^{212}Bi (γ)	^{235}U (γ)	^{235}U (ICP-MS)
RV-IZ	40	0,314 ± 0,051	0,60 ± 0,23	0,316 ± 0,063	< 1,7	< 0,23	0,0092 ± 0,0011
RV-NIZ	44	0,84 ± 0,14	1,25 ± 0,31	1,11 ± 0,13	< 4,7	< 0,19	0,0357 ± 0,0040
VM	66	0,97 ± 0,17	6,24 ± 0,81	1,92 ± 0,20	1,97 ± 0,61	< 0,27	0,0365 ± 0,0043
VM	71	0,69 ± 0,12	1,99 ± 0,38	0,721 ± 0,092	< 3,8	< 0,21	0,0279 ± 0,0032
MC	89	0,216 ± 0,036	0,30 ± 0,13	0,276 ± 0,042	< 1,0	< 0,12	0,0093 ± 0,0011
W-MC	108	0,114 ± 0,019	0,326 ± 0,087	0,170 ± 0,024	< 0,52	< 0,070	0,0178 ± 0,0024

Tableau E.19 : Activités des radionucléides des chaînes de désintégration du thorium-232, de l'uranium-235 et de l'uranium-238 dans les échantillons d'herbes de pâturage (Bq.kg^{-1} frais).

Site	N°	^{238}U (ICP-MS)	^{234}Th (γ)	^{234}U (γ)	^{234}U (ICP-MS)	^{230}Th (γ)	^{230}Th (ICP-MS)	^{226}Ra (γ)	^{214}Pb (γ)	^{214}Bi (γ)	^{210}Pb (γ)
RV-IZ	40	0,197 ± 0,023	< 1,3	< 45	0,201 ± 0,034	< 12	< 0,59	0,81 ± 0,45	0,68 ± 0,11	0,64 ± 0,14	9,8 ± 1,2
RV-NIZ	44	0,767 ± 0,086	0,78 ± 0,31	< 31	0,73 ± 0,10	< 7,8	< 1,3	< 3,1	2,07 ± 0,23	1,83 ± 0,26	36,0 ± 3,9
VM	66	0,791 ± 0,095	1,42 ± 0,41	< 81	0,79 ± 0,11	< 9,5	< 1,8	< 6,1	3,87 ± 0,41	3,53 ± 0,47	14,1 ± 1,4
VM	71	0,599 ± 0,066	< 3,1	< 92	0,606 ± 0,084	< 10	< 1,2	< 3,8	2,22 ± 0,22	2,07 ± 0,31	25,0 ± 2,5
MC	89	0,199 ± 0,022	0,42 ± 0,27	< 27	0,199 ± 0,031	< 6,4	< 0,35	< 2,1	0,350 ± 0,058	0,350 ± 0,074	4,03 ± 0,53
W-MC	108	0,385 ± 0,046	0,39 ± 0,13	< 33	0,405 ± 0,059	< 3,3	0,33 ± 0,13	< 1,7	1,17 ± 0,13	1,17 ± 0,15	5,59 ± 0,57

Tableau E.19 : Activités des radionucléides des chaînes de désintégration du thorium-232, de l'uranium-235 et de l'uranium-238 dans les échantillons d'herbes de pâturage (Bq.kg^{-1} frais) (suite).

Site	N°	^{228}Ac (γ)	^{212}Pb (γ)	^{212}Bi (γ)	^{235}U (γ)	^{234}Th (γ)	^{234}U (γ)	^{230}Th (γ)	^{226}Ra (γ)	^{214}Pb (γ)	^{214}Bi (γ)	^{210}Pb (γ)
RV-IZ	41	25,2 ± 3,2	24,4 ± 2,4	25 ± 5	< 2,4	21,7 ± 2,9	< 400	< 110	< 50	26,8 ± 2,6	25,7 ± 3	28 ± 4
RV-NIZ	45	17,9 ± 2,5	18 ± 1,8	17 ± 4	< 1,5	17 ± 2,6	< 400	< 150	30 ± 13	26,8 ± 2,6	26,6 ± 3,1	98 ± 10
VM	73	37 ± 5	35 ± 4	32 ± 6	< 11	31 ± 4	< 500	< 150	47 ± 7	38 ± 4	35 ± 4	67 ± 7
MC	90	41 ± 5	42 ± 5	38 ± 6	2,2 ± 0,8	37 ± 5	< 400	37 ± 19	31 ± 12	36 ± 4	34 ± 4	52 ± 6
W-MC	109	48 ± 6	49 ± 5	42 ± 8	7,6 ± 1,7	140 ± 14	< 600	190 ± 50	164 ± 27	160 ± 15	153 ± 17	140 ± 14

Tableau E.20 : Activités des radionucléides des chaînes du thorium-232, de l'uranium-235 et de l'uranium-238 dans les échantillons de sol de pâturage ($Bq.kg^{-1}$ sec).

Site	N°	^{238}U (α)	^{234}U (α)	^{235}U (α)
RV-ZNI	46	0.0085 ± 0.0026	0.013 ± 0.003	< 0.0013
VM	70	< 0.0042	< 0.0039	< 0.0013
VM	67	0.03 ± 0.005	0.057 ± 0.007	0.002 ± 0.001
MC	88	< 0.0033	< 0.0032	< 0.0012
W-MC	107	0.002 ± 0.0018	< 0.004	< 0.0015

Tableau E.21 : Activités des radionucléides des chaînes de l'uranium-238 et de l'uranium-235 dans les échantillons d'eau d'abreuvage des vaches laitières et des chèvres ($Bq.L^{-1}$).

Résumé

L'uranium, le thorium et leurs descendants se trouvent à l'état de traces dans toutes les roches sur Terre. Sous l'action de l'érosion, des mécanismes de formation des sols et des transferts sol-plante, ces radionucléides sont disséminés dans toutes les composantes de l'environnement. Par le biais des chaînes alimentaires, ils sont ensuite transmis aux animaux et à l'homme. L'objectif de cette étude consiste ainsi à améliorer les connaissances sur les niveaux et la variabilité des activités de l'uranium du thorium et de leurs descendants dans différentes denrées et à faire progresser les connaissances sur leurs sources et leurs transferts.

Cette étude *in-situ* s'intéresse à la variabilité géologique des sites étudiés (zones granitique et volcanique du Massif central, massif granitique des Vosges et vallée alluviale du Rhône) sur lesquels sont prélevés différents types de denrées (légumes, céréales, viandes, œufs et produits laitiers). Les sources potentielles de radionucléides (eau d'irrigation et sol pour les végétaux ; eau d'abreuvage, aliments et sol pour les produits animaux) sont également prélevées afin d'étudier leur contribution aux activités mesurées dans les denrées.

Les résultats obtenus montrent une grande variabilité des activités dans les végétaux (^{238}U : 8-120 mBq.kg^{-1} frais dans les salades ; 12-169 mBq.kg^{-1} frais dans le blé), beaucoup moins prononcée dans les produits animaux (^{238}U : 1,7-9,7 mBq.kg^{-1} frais dans la viande de volaille ; 0,48-1,30 mBq.kg^{-1} frais dans les œufs). La source principale de radionucléides aux végétaux tels que le blé et les salades semble être le sol de culture. L'eau d'irrigation, lorsqu'elle contient des teneurs en uranium significatives (>30 mBq.L^{-1}), peut également contribuer. L'effet de la remise en suspension de particules de sol et leur adhésion à la surface des végétaux semble également important dans certains cas. Les dépôts de particules atmosphériques concernent principalement ^{210}Pb. Concernant les activités dans les produits animaux, des corrélations négatives ont été constatées avec les activités de leur alimentation (^{238}U : r^2=0,96 ; ^{232}Th : r^2=0,77). Par contre, des corrélations positives ont été mises en évidence entre les activités en ^{232}Th de la viande et celles du sol potentiellement ingéré par les animaux (r^2=0,96) révélant une contribution significative du sol à l'activité en thorium. La contribution de l'eau à l'activité en uranium dans les volailles constitue une piste à approfondir. Ainsi, l'étude des sources potentielles de radionucléides met en avant l'importance de leur rôle dans la compréhension des transferts des radionucléides aux produits alimentaires.

Summary

Uranium, thorium and their decay products are present in trace amounts in all rocks on Earth. Weathering, mechanisms of soil formation and soil-plant transfers lead to the presence of these radionuclides in all the components of the environment and, through the food-chain transfers, they are also present in animals and men. Thus, the objective of this study consists in improving the knowledge on the levels and the variability of the activities of uranium, thorium and their decay products in various foodstuffs and on their sources and transfers.

This *in-situ* study is based on the geological variability of the studied sites (granitic and volcanic zones of the Massif central, granitic massif of the Vosges and the alluvial Rhône valley) where various foodstuffs are sampled (vegetables, cereals, meat, eggs and dairy products). The possible sources of radionuclides (irrigation waters and soils for plants; water, food and soils for animals) are also sampled in order to study their contribution to the measured activities in the foodstuffs.

The results obtained present high variability of the activities in plants (^{238}U: 8-120 mBq.kg^{-1} fresh in lettuces; 12-169 mBq.kg^{-1} fresh in wheat), less pronounced in animal products (^{238}U: 1.7-9.7 mBq.kg^{-1} fresh in poultry meat; 0.48-1.30 mBq.kg^{-1} fresh in eggs). For plants (wheat and lettuce), the main radionuclide source seems to be the crop soils. Irrigation water, when it has significant uranium concentrations (>30 mBq.L^{-1}), can also significantly contribute. The effect of soil particle resuspension and their adhesion to plant surface seems to be important in some cases. The deposit of atmospheric particles mainly concerns ^{210}Pb. For the activities in animal products, negative correlations were found with the activities in animal foodstuff, for all the radionuclides (^{238}U: r^2=0.96; ^{232}Th: r^2=0.77). On the other hand, positive correlations were highlighted between ^{232}Th activities in meat and those of the soil potentially ingested by animals (r^2=0.96) which reveals a significant contribution of the soil to thorium activity. Water contribution to uranium activity in meat and eggs is an area worth further researches. Thus, this study of the possible sources of radionuclides highlights the importance of their role in the understanding of the radionuclide transfers to foodstuffs.