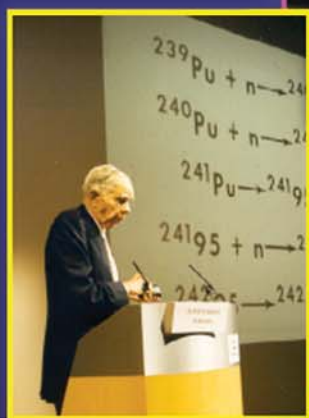


# PLUTONIUM

## Mythes et Réalités



HENRI MÉTIVIER



# Plutonium

*mythes et réalités*

Henri Métivier



17, avenue du Hoggar  
Parc d'Activités de Courtabœuf, BP 112  
91944 Les Ulis Cedex A, France

Conception de la couverture : Jérôme Lo Monaco

Illustrations de couverture (*de gauche à droite et de haut en bas*) : Seaborg lors de son allocution à Orsay lorsque l'Université lui a décerné le titre de Docteur Honoris Causa (© Dominique Calmet). Pastille de plutonium 238 portée au rouge (dans certaines configurations, la température de surface d'un échantillon de plutonium 238 peut atteindre 1000 °C). Boîte à gants permettant de travailler le plutonium (© CEA). Sonde Cassini explorant Saturne (vue d'artiste, © NASA). Assemblage MOX (© AREVA).

Mise en pages : Patrick Leleux

Imprimé en France

ISBN : 978-2-7598-0438-2

Tous droits de traduction, d'adaptation et de reproduction par tous procédés, réservés pour tous pays. La loi du 11 mars 1957 n'autorisant, aux termes des alinéas 2 et 3 de l'article 41, d'une part, que les « copies ou reproductions strictement réservées à l'usage privé du copiste et non destinées à une utilisation collective », et d'autre part, que les analyses et les courtes citations dans un but d'exemple et d'illustration, « toute représentation intégrale, ou partielle, faite sans le consentement de l'auteur ou de ses ayants droit ou ayants cause est illicite » (alinéa 1<sup>er</sup> de l'article 40). Cette représentation ou reproduction, par quelque procédé que ce soit, constituerait donc une contrefaçon sanctionnée par les articles 425 et suivants du code pénal.

© EDP Sciences 2010

# Sommaire

---

<b>Préface</b> .....	7
<b>Introduction</b> .....	11
<b>Chapitre 1 – Le plutonium, un radioélément naturel ?</b> .....	15
D'où vient le plutonium ? .....	15
Le plutonium et l'évolution de la vie .....	19
Un composé naturellement présent à l'état de trace .....	21
<b>Chapitre 2 – Le plutonium, découverte et propriétés</b> .....	23
La naissance du plutonium .....	24
Le plutonium parmi les actinides .....	28
Les propriétés physiques du métal .....	30
Les degrés d'oxydation .....	33
Les composés du plutonium .....	34
Les interactions avec les protéines et d'autres substances d'intérêt biologique .....	39
<b>Chapitre 3 – Nagasaki, le péché originel</b> .....	41
L'Europe cherchait la bombe .....	41
Les États-Unis, sur la voie du projet Manhattan .....	43
Le plutonium vu pour la première fois par un œil humain .....	44
Le projet Manhattan .....	45
Reste à faire la bombe .....	48
Que faire de la bombe ? .....	49
L'après-bombe .....	53
Aujourd'hui dans le monde .....	54

<b>Chapitre 4 – La production de plutonium et l’inventaire international</b> . . . . .	57
La production de plutonium en réacteur . . . . .	57
L’inventaire mondial . . . . .	61
<b>Chapitre 5 – Comment manipuler le plutonium en toute sécurité</b> . . . . .	65
Les premiers pas de la radioprotection, le principe de précaution. . . . .	66
Les règles d’aujourd’hui . . . . .	72
Les règles fondamentales de sûreté en France . . . . .	81
<b>Chapitre 6 – Aujourd’hui et demain, l’avenir du plutonium</b> . . . . .	85
Pourquoi recycler le plutonium ? . . . . .	87
Le combustible MOX. . . . .	89
Le MOX dans les VVER . . . . .	94
Le MOX dans les réacteurs à eau bouillante (REB) . . . . .	95
Le MOX dans les réacteurs à eau lourde. . . . .	95
La fabrication du combustible MOX . . . . .	96
<b>Chapitre 7 – Le plutonium, après-demain: Génération IV</b> . . . . .	99
Les réacteurs en développement . . . . .	100
Les réacteurs à neutrons rapides . . . . .	103
Les réacteurs à neutrons rapides refroidis à l’hélium (RNR-G). . . . .	105
Les réacteurs à très haute température (RTHT) . . . . .	105
<b>Chapitre 8 – La non-prolifération et le recyclage des armes</b> . . . . .	109
Militaire ou non militaire . . . . .	111
Les traités et accords internationaux contre la prolifération . . . . .	114
Des accords bilatéraux. . . . .	115
La réduction des stocks de plutonium militaire . . . . .	117
La France très active, AIDA-MOX et Savannah River . . . . .	120
La polémique autour des MOX . . . . .	121
<b>Chapitre 9 – Les applications du <sup>238</sup>Pu</b> . . . . .	125
Les générateurs thermoélectriques à radio-isotopes (GTR) . . . . .	125
L’épopée des pacemakers. . . . .	132
Les détecteurs de fumées. . . . .	136
<b>Chapitre 10 – Le plutonium dans l’environnement</b> . . . . .	137
Les sources . . . . .	138
Le comportement du plutonium dans l’environnement . . . . .	157
<b>Chapitre 11 – Le devenir biologique du plutonium</b> . . . . .	161
Les voies d’entrée . . . . .	161
Notions de doses. . . . .	179

<b>Chapitre 12 – La toxicité du plutonium</b> .....	185
Les études animales.....	185
Les études épidémiologiques.....	196
Conclusions .....	208
<b>Chapitre 13 – L’homme cobaye</b> .....	211
Les injections de plutonium .....	212
Le rôle de Wright Langham .....	218
Une vraie mesure de l’exposition, le programme d’analyse de tissus humains .....	219
L’affaire Karen Silkwood .....	221
<b>Chapitre 14 – Le traitement des personnes contaminées</b> .....	225
La réduction de l’irradiation par voie médicamenteuse.....	226
Le lavage pulmonaire .....	238
La décontamination du plutonium est-elle efficace en terme de risque ?	241
<b>Chapitre 15 – Plutonium et terrorisme</b> .....	245
Un scénario meurtrier efficace, l’affaire Litvinenko.....	245
Un scénario terroriste : contaminer l’alimentation en eau d’une ville, Paris par exemple .....	247
Le scénario de l’inhalation .....	248
La gestion et le coût économique .....	250
<b>Chapitre 16 – Le plutonium sous haute surveillance</b> .....	253
L’organisation française .....	254
L’organisation européenne.....	254
La protection et le contrôle.....	255
Les transports .....	256
Les aspects techniques du contrôle .....	258
La comptabilité au gramme près est-elle possible ?.....	260
<b>Chapitre 17 – Plutonium et déchets</b> .....	263
Le cadre législatif en France .....	263
Séparation et transmutation des actinides.....	266
<b>Quelle conclusion ?</b> .....	271
<b>Remerciements</b> .....	275
<b>Pour en savoir plus</b> .....	277

**Vj ku' r ci g' l' p v g p v k q p c m { ' i g h v' d i r e p m**

## Préface

---

Le plutonium est un élément exceptionnel pour les scientifiques, tant au plan de ses propriétés nucléaires, que physiques, chimiques et biochimiques. L'étude de toutes ces propriétés a largement fait progresser les connaissances sur les actinides, dont il est un élément central. Les actinides sont impliqués dans tout ce qui touche au « nucléaire ». Dans ce domaine, le plutonium contribue aux stratégies de dissuasion et à la production d'énergie électrique. Il est jalousement conservé par les États et soumis à une surveillance internationale constante. C'est aussi un élément médiatique. Son origine et ses propriétés restent mystérieuses. Il cristallise les angoisses du public face au danger du nucléaire. Il est devenu, dans la deuxième moitié du XX<sup>e</sup> siècle, le mythe, au sens symbolique du terme, de l'élément diabolique. Pour toutes ces raisons, qui d'entre nous n'a jamais entendu parler du plutonium ? Qui n'a jamais lu dans la presse, un article à son propos ?

Les premiers atomes et le premier nanogramme de plutonium sont nés de l'alchimie moderne qui a suivi la découverte de la radioactivité artificielle. Ses modes de production, comme pour tout radioélément artificiel, conduisent à différentes compositions isotopiques auxquelles correspondent différentes qualités de plutonium. Aujourd'hui, chaque tonne de combustible standard usé, retiré des réacteurs nucléaires contient une dizaine de kilogrammes de plutonium, dit civil, et le monde a déjà produit de l'ordre de 200 000 tonnes de ce combustible. Le stock de plutonium militaire, qui a été séparé de l'uranium irradié pour faire des armes, doit



être de quelques centaines de tonnes. La saga du plutonium s'inscrit dans cette double façon d'utiliser les propriétés de fission de ses isotopes. Mais le plutonium a aussi trouvé des applications fondées sur la propriété radioactive d'un de ses isotopes d'être un émetteur alpha convenable pour fournir l'énergie des sondes spatiales. Dans la pratique des nombreuses opérations sur le plutonium, il faut se prémunir à la fois contre les possibilités de fission et les effets de sa radioactivité alpha, et la radioactivité de ses descendants. Son utilisation à des fins militaires a conduit à une dissémination globale sur toute la terre. Aussi le retrouve-t-on maintenant à l'état naturel dans l'environnement, mais à une concentration si faible qu'il n'est que très difficilement détectable. Pour autant, cet aspect environnemental est lié au grand problème de la gestion des déchets radioactifs à vie longue que les générations futures devront continuer d'assumer.

On a compris que le plutonium est fascinant à plusieurs égards. Il a fasciné l'auteur de ce livre, qui l'avoue lui-même, et beaucoup d'autres scientifiques. En tout cas, Henri Métivier est un passionné du plutonium.

Cela se perçoit clairement à la lecture de l'ouvrage qu'il publie aujourd'hui au terme d'une longue carrière de radiochimiste pendant laquelle il a travaillé sur cet élément. De ses travaux expérimentaux sur les solutions et les composés du plutonium, de sa longue expérience en matière de radioactivité et de radioprotection, des contacts qu'il a eus avec d'autres éminents spécialistes du domaine ou, au contraire, avec des non spécialistes, il a tiré la conclusion qu'il y avait encore beaucoup à dire sur le plutonium. Il l'écrit très bien en mêlant, dans la rigueur, les aspects scientifiques, l'Histoire et la petite histoire. C'est le roman du plutonium qu'il déroule, un roman que le lecteur aura plaisir à découvrir et qui recoupe, au-delà de cet élément, l'odyssée du nucléaire. Au total un livre attachant, plein de renseignements et d'enseignements, qui ajoute aux ouvrages sur le plutonium la touche du vécu.

Henri Métivier eût été heureux de nous faire partager son enthousiasme sous une double signature, la sienne et celle de Charles Madic, mais il en a été autrement...

Robert Guillaumont

*Académie des sciences, Institut de France*

*À mon ami Charles Madic*



À gauche, Charles Madic aux cotés de Glenn Seaborg dans son bureau de Berkeley en Californie.

**Vj ku' r ci g' l' p v g p v k q p c m { ' i g h v' d i r e p m**

## Introduction

---

Lorsque John W. Gofman affirma en 1976 qu'une seule particule de plutonium était suffisante pour provoquer un cancer du poumon, il fit naître la théorie du point chaud. Les études radiotoxicologiques ont réfuté en vain cette affirmation qui reste le cheval de bataille des opposants au nucléaire. Mais John W. Gofman avait participé à Berkeley à la découverte de plusieurs isotopes d'actinides et aux premières recherches sur le plutonium, avant de se reconvertir dans des études de médecine, en 1947, donc il savait...

Cette peur fut un argument fort pour les opposants au développement de l'énergie nucléaire des années 1970 et surtout lors de la discussion en 1977 du projet de construction de l'usine de retraitement du combustible de Windscale, aujourd'hui Sellafield, au nord-ouest de l'Angleterre. Analysant le déroulement de l'enquête publique, « *the Windscale Inquiry* », le Britannique Robin Mole, figure emblématique de l'unité de radiobiologie du Medical Research Council de Harwell en Grande-Bretagne, s'étonnait alors qu'aucun des pourfendeurs du plutonium n'ait effectué personnellement un réel travail scientifique sur sa toxicité; leurs argumentations provenaient des travaux d'autres chercheurs. Ainsi, les désaccords portaient essentiellement sur des hypothèses et des interprétations.

Aujourd'hui on s'aperçoit que rien n'a changé.

La peur que suscite le plutonium n'est pas seulement liée à sa toxicité. Sa capacité à fissionner de manière explosive et permettre ainsi la fabrication d'armes nucléaires est le second argument qui entretient les craintes.

Même si ces arguments sont partiellement vrais, ils ne sont pas l'apanage du seul plutonium. Combien de produits toxiques manipulons-nous chaque jour et quelles armes font aujourd'hui le plus de victimes ? Certes l'arme nucléaire reste à ce jour un puissant outil de dissuasion. La prolifération est un risque, mais les pays voulant fabriquer l'arme atomique choisissent-ils le plutonium comme argument de chantage ? L'uranium enrichi dont la technologie de production est moins compliquée supplante aujourd'hui largement le plutonium.

Il ne fait aucun doute que le plutonium est un poison dangereux, mais il n'y a aucune raison de croire ou faire croire qu'il est le seul et surtout le plus dangereux. Paradoxalement, il est moins toxique que certains produits *naturels*. Il n'y a aucune raison de l'exclure *a priori*, car nous savons, près de 70 ans après sa découverte, le maîtriser, le surveiller. Nous pouvons même aujourd'hui en faire un trésor d'énergie pour les générations futures. Le plutonium est tout simplement, comme beaucoup des fruits de la science, utilisable pour le meilleur ou pour le pire. C'est à nous de choisir le meilleur. Mais pour cela, il faut connaître les conséquences de son utilisation et c'est ce que je m'attacherai à faire dans cet ouvrage.

Le plutonium peut être un atout si les risques qui l'accompagnent sont maîtrisés. Sa production et son utilisation dans les réacteurs nucléaires multiplient de manière considérable la réserve de matière fissile qui risque de faire défaut. C'est le pari que font certains États, dont la France.

Dans cet ouvrage, je considère tous les aspects de cet élément au comportement parfois si étrange, en essayant de rétablir une vérité, trop souvent déformée, sans masque ni compromission, pour poser la question : le pari du plutonium est-il jouable comme source future d'énergie ?

Ce livre est le fruit d'une carrière autour du plutonium. Fasciné mais pas dupe, j'ai pensé qu'il fallait traiter au grand jour toutes les questions que le plutonium suscite et y répondre à partir de faits incontestés et d'expériences multiples. Cette fascination pour le plutonium est une longue histoire, elle date de mon entrée dans la vie professionnelle, où j'ai été tour à tour radiochimiste puis biologiste. Il a été la clef qui m'a ouvert les portes de la Commission Internationale de Protection Radiologique, la CIPR, dont je fus membre pendant près de 20 ans.

Les grands laboratoires, américains, français et anglais principalement, qui avaient comme programme la toxicité du plutonium, des actinides et des produits de fission se sont pratiquement tous reconvertis vers d'autres approches du risque radiologique. Combien restent, de par le monde, de chercheurs ayant réellement travaillé sur ces sujets ? Pire encore, combien se souviennent des études réalisées, qui toutes ont permis de bien connaître les effets biologiques du plutonium ? Au moment où l'on parle

d'un renouveau du nucléaire avec l'émergence d'une quatrième génération de réacteurs qui mettra le plutonium et les actinides au cœur du problème, il sera nécessaire de reprendre certaines études. Il en va du maintien de la qualité de la radioprotection, telle que les Américains l'ont initiée durant le projet Manhattan.

Au début de cet ouvrage, je tiens à remercier tous ceux qui m'ont aidé, soit en m'apportant des informations, soit en me donnant des conseils, soit tout simplement en relisant et commentant les ébauches successives. Deux personnes, dès les premières années, m'ont aidé à mieux connaître le plutonium : Madame Michèle Lutz, qui m'a recruté au CEA pour accomplir un programme si vaste qu'il n'est toujours pas achevé, et Robert Guillaumont qui m'a appris la radiochimie et avec qui nous avons déjoué certains pièges que nous tendait le plutonium. Ensuite, Jacques Lafuma et Roland Masse ont fait le pari de travailler avec un chimiste dans un domaine que certains pensaient uniquement réservé aux seuls médecins. Hors de France, je citerai William J. Bair de Richland, spécialiste de la toxicologie du plutonium. Nous avons, il y a bien longtemps, comparé nos résultats de part et d'autre de l'Atlantique.

Les chimistes français tiennent depuis longtemps une grande place dans les recherches sur le plutonium et les actinides dont Charles Madic.

Je n'oublie pas que nous devons rédiger ensemble cet ouvrage ; nous partageons Charles et moi cette fascination envers le plutonium. Dès notre première rencontre, Charles a compris les liens étroits entre la radiochimie et la surveillance des travailleurs. La maladie a voulu que je travaille seul. Ce livre lui est dédié.

Merci également à Daniel Blanc, professeur émérite à l'université Paul Sabatier de Toulouse, pour qui l'édition scientifique est une seconde nature, qui m'a continuellement encouragé durant la rédaction de cet ouvrage, et merci de nouveau à Robert Guillaumont qui m'a fait de nombreuses remarques lors d'une relecture attentive de mon manuscrit.

Mais il faut surtout remercier Marie-Hélène, ma femme, à qui le plutonium a volé et vole encore, bien des moments de vie commune. Quelle patience lui faut-il !

Henri MÉTIVIER

**Vj ku' r ci g' l' p v g p v k q p c m { ' i g h v' d i r e p m**

# 1

## Le plutonium, un radioélément naturel ?

---

Nous vivons sur la Terre grâce à un réacteur nucléaire de fusion ; le Soleil. La radioactivité naturelle est partout, sur le sol de notre planète, en nous et autour de nous, mais on ne savait pas la déceler jusqu'au début du XX<sup>e</sup> siècle. Peu de temps après la découverte des rayons X par Roentgen, Becquerel découvrit en 1896, la radioactivité de l'uranium. Pierre et Marie Curie obtinrent le prix Nobel de physique en 1903. Marie Curie reçut en 1911 un nouveau prix Nobel, de chimie cette fois, pour sa découverte et ses travaux sur le radium et le polonium.

### ■ D'où vient le plutonium ?

Il existe dans la croûte terrestre une série d'isotopes radioactifs (radionucléides) qui perdurent depuis la formation de notre planète. Ce sont les sources des expositions aux rayonnements terrestres. Leur importance aujourd'hui dépend de leur abondance lors de la formation de la Terre. Ceux qui restent aujourd'hui sont ceux qui ont une période radioactive comparable à l'âge de la Terre. Ceux de moins de 100 millions d'années ont disparu, ceux ayant une période supérieure à 10 milliards d'années ont très peu décréu, ils existent encore, on les appelle les radionucléides primordiaux.



### Radionucléides et radioéléments

Un **radionucléide** est un isotope radioactif d'un élément chimique:  $^3\text{H}$ ,  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  ou  $^{239}\text{Pu}$  sont des radionucléides.

Un **radioélément** est un élément chimique dont tous les isotopes sont radioactifs; le plutonium et l'uranium sont des radioéléments alors que  $^{239}\text{Pu}$  et  $^{238}\text{U}$  sont des radionucléides.

Les radionucléides **cosmogéniques** sont produits par l'interaction des rayonnements cosmiques avec l'atmosphère terrestre, par exemple  $^3\text{H}$ ,  $^7\text{Be}$ ,  $^{14}\text{C}$ . Les radionucléides **primordiaux** sont présents depuis l'origine de la Terre. Leur abondance relative dépend de leur abondance au moment de la formation de la Terre.

Il est surprenant de constater que les rapports entre ces éléments sont les mêmes au sein de notre galaxie que dans les nébuleuses extragalactiques. Les radionucléides primordiaux sont ceux dont la période radioactive est comparable à l'âge de l'Univers. Citons par exemple  $^{40}\text{K}$ ,  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{235}\text{U}$  et  $^{238}\text{U}$ . Ces radionucléides produisent par désintégration des radionucléides secondaires, par exemple les familles ayant pour origine  $^{238}\text{U}$ ,  $^{232}\text{Th}$  et  $^{235}\text{U}$ ; certains, même de période courte, sont présents en permanence sur la croûte terrestre. L'un d'eux, le radon, gazeux, est considéré comme un toxique important pour l'homme.

Mais ces isotopes à vie très longue se désintègrent, ils donnent naissance à des isotopes beaucoup plus radioactifs qui se désintègrent en permanence, il en résulte un équilibre par le jeu des périodes radioactives. Parmi la vingtaine de radionucléides primordiaux, le  $^{40}\text{K}$  ( $1,26 \cdot 10^9$  ans), le  $^{232}\text{Th}$  ( $1,4 \cdot 10^{10}$  ans) l' $^{235}\text{U}$  ( $7,04 \cdot 10^8$  ans) et l' $^{238}\text{U}$  ( $4,47 \cdot 10^{10}$  ans) sont les plus connus et les plus abondants. Ces trois derniers produisent plus ou moins rapidement des radionucléides secondaires par décroissance radioactive. Ce sont les trois grandes familles radioactives naturelles. L'une commence avec l'uranium 238 (figure 1.1). L'un des produits de filiation est gazeux, le  $^{222}\text{Rn}$ ; avec ses descendants, il contribue le plus à exposition naturelle de l'homme.

Les isotopes 242 et 239 du plutonium ont dû exister dans les explosions de supernovae durant la formation de l'Univers. On a émit l'hypothèse que ces deux isotopes sont les parents des deux séries thorium et actinium respectivement. Mais leurs périodes radioactives étant trop courtes par rapport à l'âge de la Terre, ils ont disparu. Si ces isotopes ont existé la question est: combien de plutonium y a-t-il eu sur la Terre ?

Le  $^{239}\text{Pu}$  « naturel » existant actuellement sur la Terre a été identifié par Glenn T. Seaborg et Isidore Perlman à l'état de traces dans un échantillon de 400 g de pechblende provenant de la région du grand lac de l'Ours au cercle arctique canadien. Plus tard, on en trouva dans de la pechblende venant du Congo belge, du Colorado, du Brésil et de Russie. L'isotope 239 dans ces minerais était quasi pur; on trouva moins de 1 % de  $^{244}\text{Pu}$ . Il est

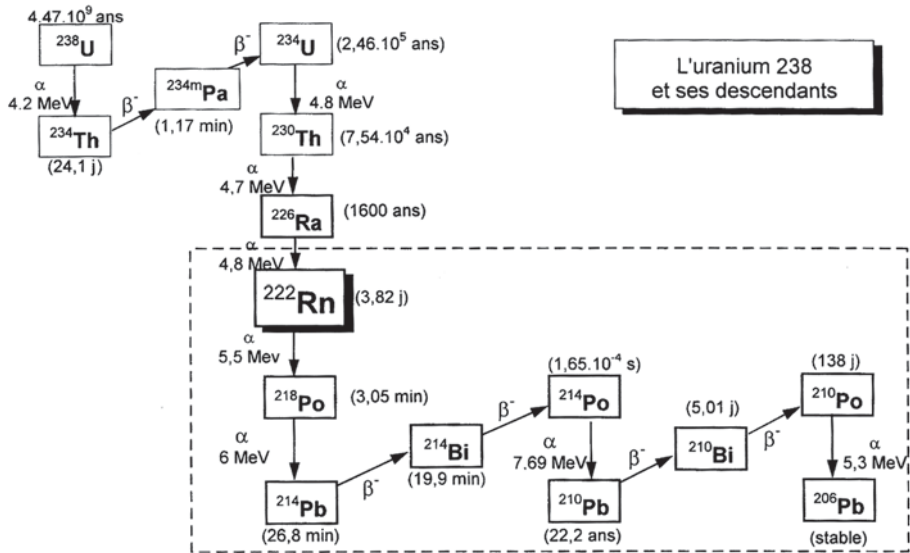


Figure 1.1. Famille radioactive naturelle de l'uranium 238.

### Période radioactive et période biologique

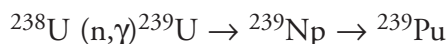
La période radioactive, ou période, est le temps nécessaire pour que la moitié des atomes d'un isotope radioactif se désintègre. Le terme demi-vie, dérivant de l'anglais *half-life* est parfois utilisé comme synonyme de période radioactive, mais il faut le proscrire. Au bout de 10 périodes, il ne restera plus qu'environ 1 millième de la radioactivité initiale.

Par analogie, la période biologique est le temps au bout duquel la moitié d'une quantité quelconque d'un isotope radioactif a été éliminée de l'organisme. Pour les isotopes à vie largement inférieure à la durée de vie de l'homme, on définira une période effective définie comme :

$$1/T_{\text{eff}} = 1/T_{\text{Radioactive}} + 1/T_{\text{Biologique}}$$

Français et Anglais n'ont pas la même appréciation du genre des produits issus de la décroissance radioactive d'un nucléide. Pour les Anglais, les produits obtenus sont des filles (*radon daughters* par exemple), chez nous ce sont des garçons (produits fils du radon).

produit par réaction neutronique sur l'<sup>238</sup>U naturel issu du rayonnement cosmique neutronique ou des neutrons de fission spontanée d'<sup>235</sup>U. Le rapport en nombre d'atomes <sup>239</sup>Pu : <sup>238</sup>U, de l'ordre de 10<sup>-11</sup> à 10<sup>-13</sup>, était toutefois trop élevé pour être produit par la fission spontanée de <sup>238</sup>U selon la réaction :



et on a supposé que les particules alpha émises par l'uranium produisent un flux de neutrons supplémentaire qui réagissait sur des éléments légers tels que l'oxygène, le silicium ou le magnésium, à moins que ce ne soient l'effet des rayons cosmiques. À partir de ces données isotopiques, il fut calculé plus tard que de 4 à 30 kg de  $^{239}\text{Pu}$  étaient produits chaque année sur la planète. On considère que le  $^{239}\text{Pu}$  reste à une concentration constante de 50  $\mu\text{Bq/kg}$  soit  $2,17 \cdot 10^{-14} \text{g/kg}$  depuis la formation de la Terre.

De grandes quantités de  $^{244}\text{Pu}$  sont probablement apparues à la formation de la Terre, mais il a pratiquement disparu, malgré sa période très longue (83 millions d'années). Des traces ont toutefois été décelées dans des minerais de terres rares riches en cérium et dans des roches précambriennes aux États-Unis. On estime aujourd'hui que le  $^{244}\text{Pu}$  existe dans la croûte terrestre à la concentration de  $7 \cdot 10^{-24}$  à  $3 \cdot 10^{-22} \text{g/kg}$ , soit environ 1 à 2 atomes de plutonium pour 0,1 à 10 g de sol. Toutefois on ne sait pas si cette présence provient du plutonium initial, d'une production permanente par le rayonnement cosmique, ou d'une explosion d'une supernova plus récente que la création du système solaire. Si l'on pense que le  $^{244}\text{Pu}$  actuel est un radionucléide primordial, sa quantité résiduelle étant de 0,2 g à 0,7 g, la masse initiale, correspondant aux 4 700 millions d'années de la Terre conduit à une valeur d'environ  $10^{13}$  à  $10^{15} \text{kg}$  et à une concentration moyenne de l'ordre de 40  $\mu\text{g/kg}$ , largement plus faible que celle du thorium (9,6 mg/kg). Comme l'état le plus stable du plutonium est le même que celui du thorium (tétravalent), on peut penser que ce plutonium cosmogénique a pu se fixer dans les minerais de thorium. Ainsi sa géochimie aurait largement suivi celle du thorium alors que le  $^{239}\text{Pu}$  généré à partir d'uranium aurait quant à lui une géochimie influencée par celle de l'uranium.

Certains estiment également aujourd'hui que le plutonium 244 présent durant les premières phases du développement du système solaire serait responsable de l'excès de  $^{129}\text{Xe}$  qui existe aujourd'hui à l'intérieur de la Terre.

Le plutonium fut également présent dans les réacteurs naturels d'Oklo au Gabon, il y a deux milliards d'années. On estime qu'il a dû s'en former 1,5 tonnes, disparues depuis par décroissance radioactive. Certains physiciens estiment que le plutonium a contribué pour environ 7 à 9 % aux réactions de fission.

Des travaux soviétiques mentionnent la présence de plutonium dans des laves et roches volcaniques montrant ainsi la possibilité d'autres réacteurs naturels sur la planète, relativement plus récents, compte tenu de la période du  $^{239}\text{Pu}$  (24 000 ans). Toutefois une étude américaine réalisée sur des laves du Vésuve, des Monts Kilauea (Hawaii) et Katmai

(Alaska) prélevées avant les essais d'armes nucléaires dans l'atmosphère ne confirment pas cette observation. Dans les roches magmatiques dont l'âge dépasse les  $10^7$  ans, il est impossible de déceler la présence de  $^{239}\text{Pu}$ .

## ■ Le plutonium et l'évolution de la vie

Contrairement au  $^{239}\text{Pu}$ , dont la concentration dans la croûte terrestre est demeurée probablement plus ou moins constante, le  $^{244}\text{Pu}$  cosmogénique s'est désintégré tout au long de l'existence de la Terre, et pendant la période la plus importante pour l'évolution de la vie sur cette planète, la concentration de  $^{239}\text{Pu}$  a excédé celle du  $^{244}\text{Pu}$  de plusieurs ordres de grandeur comme on le voit dans le tableau suivant.

**Tableau I.1.** Concentrations de plutonium dans la croûte terrestre durant l'évolution de la vie.

Millions d'années avant notre ère	Étapes de l'évolution	Moles $^{244}\text{Pu}/\text{kg}$	Moles $^{239}\text{Pu}/\text{kg}$
4 500	Formation de la croûte terrestre	$1.10^{-9}$	$1.10^{-16}$
3 500	Début du code génétique	$3.10^{-13}$	$1.10^{-16}$
$\approx 1\ 900$	Oxygène libre sur terre	$4.10^{-19}$	$1.10^{-16}$
$\approx 420$	Premiers organismes terrestres	$1.10^{-24}$	$1.10^{-16}$
$\approx 190$	Premiers mammifères	$2.10^{-25}$	$1.10^{-16}$
$\approx 4$	Premiers hommes	$4.10^{-26}$	$1.10^{-16}$

Une mole d'atome représentant  $6,022.10^{23}$  atomes (constante d'Avogadro), on voit que les atomes de  $^{244}\text{Pu}$  sont devenus très rares. La quantité de  $^{239}\text{Pu}$  est de l'ordre de  $10^7$  atomes par kg de croûte terrestre.

La concentration de  $^{239}\text{Pu}$  dans les océans est probablement de 3 à 5 ordres de grandeur plus basse que celle de la croûte terrestre, en raison de la plus faible concentration en uranium et en thorium dans les roches ignées de la croûte océanique. En effet, comme l'oxygène libre est apparu il y a 1 900 millions d'années, l'océan primordial ne contient pas d'oxygène dissous et, du coup, ne dissout pas l'uranium, le thorium et le plutonium. Une fois l'oxygène présent, on estime que les concentrations en uranium et thorium dans les océans se sont stabilisées aux alentours des valeurs actuelles de 10 nmol/kg et 4 pmol/kg respectivement, celles des isotopes 239 et 244 du plutonium étaient

**United States Transuranium Registry**, <http://www.betaustur.org>

**UNSCEAR, United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation**, <http://www.unscear.org/>

Cette organisation des Nations unies fait régulièrement le point sur les sources d'irradiations de populations et de leurs conséquences sur les travailleurs, le public et l'environnement.

**National Council on Radiation Protection and Measurements**, <http://www.ncrponline.org>

Cette organisation est l'équivalent pour les États-Unis de la CIPR. C'est elle qui fixe les normes de base pour les États-Unis.

- Scientific basis for evaluating the risks to populations from space applications of plutonium, NCRP Report N°13, Washington, 2001.
- Development of a biokinetic model for radionuclid-contaminated wounds and procedures for their assessment dosimetry and treatment, NCRP Report N°156, 2006.

On pourra également consulter

- [www.la-radioactivite.com/fr](http://www.la-radioactivite.com/fr)
- World Nuclear News, [www.world-nuclear-news.org](http://www.world-nuclear-news.org)
- National Aeronautics and Space Administration, [www.nasa.gov](http://www.nasa.gov)
- National Nuclear Security Administration, <http://nnsa.energy.gov>
- US Nuclear Regulatory Commission, [www.nrc.gov](http://www.nrc.gov)
- France diplomatie, [www.diplomatie.gouv.fr](http://www.diplomatie.gouv.fr)
- [www.ladocumontationfrancaise.fr](http://www.ladocumontationfrancaise.fr)
- [www.ciemat.es](http://www.ciemat.es)

**Les ouvrages:**

**AMERICAN NUCLEAR SOCIETY**

Protection and management of plutonium, 1995.

**E. BREZIN, éditeur**

Du combustible nucléaire aux déchets: recherches actuelles, Compte-rendus Académie des Sciences, Physique, tome 3, fascicule 7-8, Elsevier, Paris 2002.

**R. DAUTRAY**

Les isotopes du plutonium et leurs descendants dans le nucléaire civil, Rapport de l'Académie des sciences, TecDoc, Paris 2005

**D. DELACROIX, J.P. GUERRE, P. LEBLANC**

Guide pratique, radionucléides et Radioprotection, EDP Sciences, Les Ulis, 2006.

**M. EISENBUD, T. GESELL**

Environmental radioactivity from natural, industrial and military source, Fourth edition, Academic Press, San Diego, 1997.

**G.B. GERBER, C.R. WATSON, T. SUGAHARA, S. OKADA**

International Radiobiology Archives of Long-Term Animal Studies, Rapport DOE/RL-96-72, EUR 16954, 1996.

**P. GALLE**

Toxiques nucléaires, 2<sup>e</sup> édition, Masson, Paris, 1997.

**P. GUEGUENIAT, P. GERMAIN, H. METIVIER**

Radionuclides in the oceans, Inputs and inventories. EDP Sciences, Les Ulis, 1996.

**A. KUDO**

Plutonium in the environment, Elsevier, Amsterdam, 2001.

**L.R. MORSS, N. EDELSTEIN, J. FUGER**

The chemistry of the actinide and transactinide elements, Third edition, Springer, 2006.

**NATIONAL RESEARCH COUNCIL**

Radioisotopes Power Systems, An Imperative for Maintaining US Leadership in Space Exploration, National Academies Press, Washington, DC, 2009, [www.nap.edu](http://www.nap.edu)