

**IRSN**INSTITUT  
DE RADIOPROTECTION  
ET DE SÛRETÉ NUCLÉAIRE

## Évaluation de la dose d'ingestion unitaire de certaines denrées alimentaires provenant de l'environnement du site COMURHEX de Malvési

DEI/SESURE N°2009-02

DIRECTION DE L'ENVIRONNEMENT ET DE  
L'INTERVENTION

Service d'étude et de surveillance de la radioactivité dans  
l'environnement

Demandeur	AREVA				
N° action/Processus de rattachement	R5				
<p><b>Évaluation de la dose d'ingestion unitaire de certaines denrées alimentaires provenant de l'environnement du site COMURHEX de Malvési</b></p> <p>L. POURCELOT, Ph. RENAUD</p> <p>Laboratoire d'Etudes Radioécologiques en milieux continental et marin</p> <p>DEI/SESURE/2009-02</p>					
	Réservé à l'unité		Visas pour diffusion		
	Auteur(s)	Vérificateur	Chef du SESURE	Directeur de la DEI	Directeur Général de l'IRSN
Noms	L. POURCELOT	S. ROUSSEL-DEBET	J-M. PERES	D. CHAMPION	J. REPUSSARD
Dates	11/3/2009	11/03/2009	6/04/09	16/04/09	
Signatures					

DIFFUSION : Libre  Interne  Limitée

---

---

LISTE DES PARTICIPANTS

Nom	Organisme
D. Mourier	IRSN/DEI/SESURE/LERCM
L. Pourcelot	IRSN/DEI/SESURE/LERCM
Ph. Renaud	IRSN/DEI/SESURE/LERCM

---

---

## RESUME

L'objectif de ce rapport est d'estimer à partir de résultats de mesures de certains radionucléides et au moyen d'hypothèses sur les équilibres radioactifs et les rapports isotopiques, les doses consécutives à l'ingestion de certaines denrées (blé, fruits et poissons) provenant de l'environnement de l'usine COMURHEX, située à Malvés, au Nord-Ouest de Narbonne (Aude). Les doses efficaces unitaires, c'est-à-dire correspondant à l'ingestion d'un kilogramme de produit frais ingéré par un adulte, sont faibles, de l'ordre de quelques  $\mu\text{Sv}\cdot\text{kg}^{-1}$  ou inférieures à cette valeur. Elles sont principalement d'origine naturelle ( $^{40}\text{K}$ ). Toutefois, l'ingestion d'un kilogramme de blé prélevé en 2007 à une vingtaine de mètres environ de la clôture conduirait à une dose significativement plus élevée de  $14 \mu\text{Sv}\cdot\text{kg}^{-1}$  frais ingérés. Dans ce cas, bien que la contribution des radionucléides provenant de l'installation soit estimée à 34%, la dose reste principalement liée à  $^{210}\text{Pb}$  et  $^{210}\text{Po}$ , issus de la désintégration du radon atmosphérique. En dehors de cette zone de proximité immédiate, les doses d'ingestion unitaires estimées sont plus faibles ( $0,3$  à  $0,7 \mu\text{Sv}\cdot\text{kg}^{-1}$  frais ingéré).

---

---

## Sommaire

<b>1 INTRODUCTION</b> .....	<b>1</b>
<b>2 RAPPEL SUR LES CHAINES DE DECROISSANCE RADIOACTIVES</b> .....	<b>2</b>
<b>3 LES ACTIVITES DANS LES PRODUITS DE LA CHAINE ALIMENTAIRE PRELEVES DANS L'ENVIRONNEMENT DE MALVESI</b> .....	<b>3</b>
3.1 LES FRUITS ET LE BLE.....	3
3.2 LES POISSONS .....	5
<b>4 ESTIMATION DES DOSES UNITAIRES PAR INGESTION DE CHAQUE DENREE</b> .....	<b>6</b>
4.1 HYPOTHESES DE CALCUL.....	6
4.1.1 Hypothèse sur les équilibres des descendants de $^{238}\text{U}$ .....	6
4.1.2 Hypothèse permettant d'Estimer les activités en transuraniens et en $^{230}\text{Th}$ dans les fruits .....	8
4.2 DOSES UNITAIRES PAR INGESTION CALCULEES POUR CHAQUE DENREE .....	9
<b>5 CONCLUSION</b> .....	<b>12</b>
<b>6 BIBLIOGRAPHIE</b> .....	<b>13</b>

# 1 INTRODUCTION

En réponse à la commande d'AREVA du 1/06/2007 (contrat 2007 400-184-12) concernant la réalisation d'un état de référence radioécologique du site COMURHEX de Malvési (Aude), l'IRSN a effectué en 2007 une étude de l'environnement de ce site, basée sur des mesures de radioactivité d'échantillons prélevés en milieu aquatique et en milieu terrestre (Rapport IRSN/DEI/SESURE 2008-20). Ce rapport présente notamment les résultats des mesures de l'uranium et de ses descendants dans des productions alimentaires locales (fruits, blé, poissons). A la demande d'AREVA-NC, l'IRSN a réalisé un travail complémentaire pour l'estimation des doses consécutives à l'ingestion de ces denrées. Ce travail est restitué dans le présent rapport, après un rappel des concentrations en radioactivité mesurées dans ces denrées. Les résultats sont exprimés sous forme de dose efficace pour un adulte par ingestion unitaire d'un kilogramme de chaque denrée ( $\mu\text{Sv}\cdot\text{kg}^{-1}$  frais ingéré).

## 2 RAPPEL SUR LES CHAINES DE DECROISSANCE RADIOACTIVES

La radioactivité des isotopes de l'uranium ( $^{238}\text{U}$  et  $^{235}\text{U}$ ) et du thorium ( $^{232}\text{Th}$ ) produits des descendants dont les périodes radioactives sont très variables (figure 1). Dans les organismes vivants, l'uranium et ses descendants ne sont pas *a priori* à l'équilibre. Ces déséquilibres proviennent des propriétés biogéochimiques différentes des divers radionucléides lors des transferts vers les plantes (Bourdon, 2003). Les plantes vont absorber dans les sols les radionucléides biodisponibles comme le radium ou l'uranium, au détriment des radionucléides les moins biodisponibles, comme le thorium ou le plomb. Les déséquilibres proviennent également des périodes radioactives qui au regard de la durée de vie des organismes ne permettent pas la mise à l'équilibre des radionucléides de périodes différentes.

Lorsqu'ils sont rejetés dans l'environnement par l'industrie (industrie nucléaire, industrie des engrais, fabrication des matériaux réfractaires), l'uranium et ses descendants ne sont pas non plus en équilibre. En effet, les traitements successifs pratiqués dans l'industrie nucléaire dans le but de purifier les isotopes de l'uranium au détriment de leurs descendants radioactifs, considérés comme des déchets, rompent les chaînes de l'uranium, initialement à l'équilibre dans le minerai.

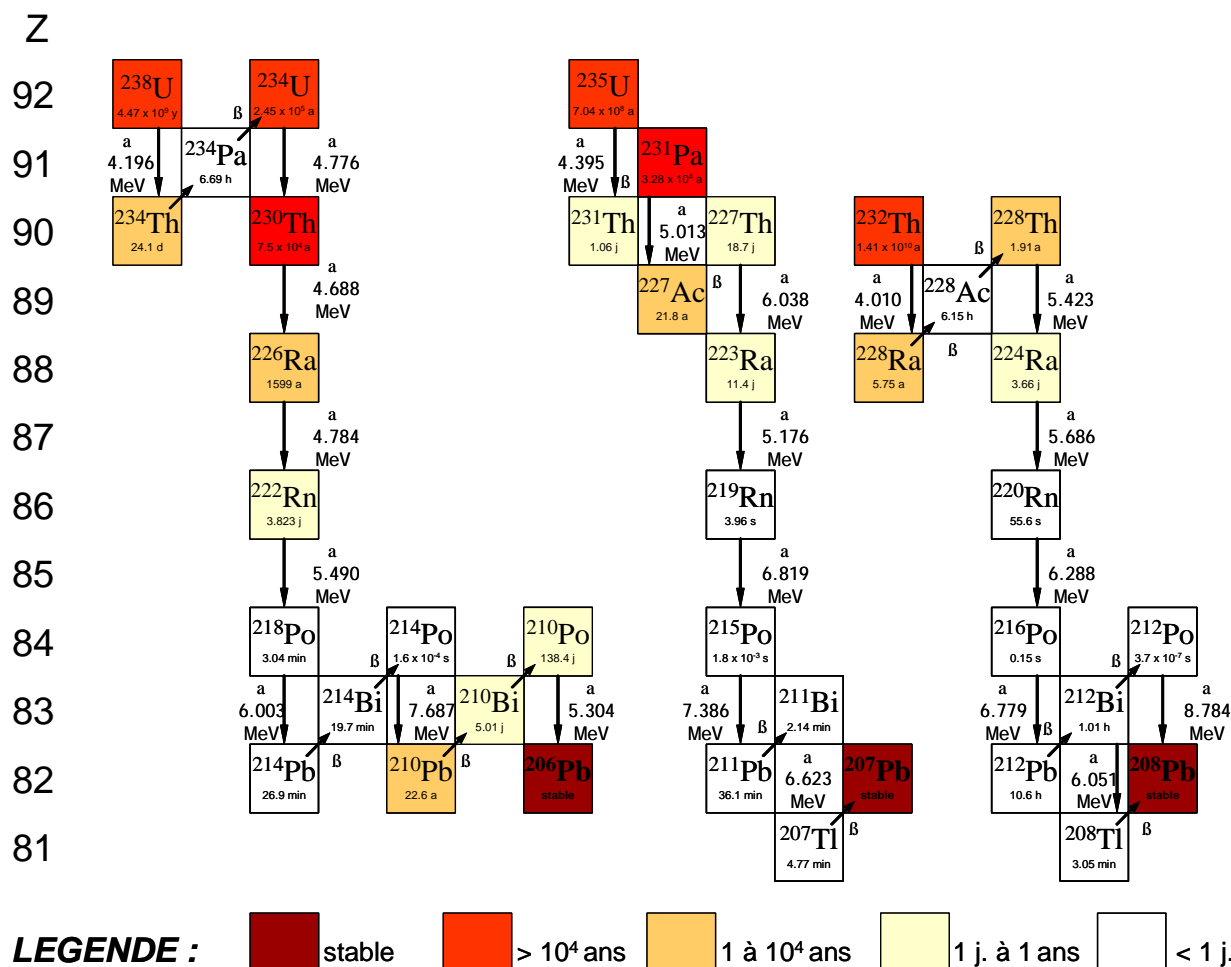


Figure 1 : Schémas des désintégrations radioactives des chaînes U-Th (modifié d'après Bourdon et al., 2003). L'échelle de couleur, plus ou moins foncée, traduit une plus ou moins longue période radioactive.

### 3 LES ACTIVITES DANS LES PRODUITS DE LA CHAINE ALIMENTAIRE PRELEVES DANS L'ENVIRONNEMENT DE MALVESI

Les estimations de dose réalisées dans le présent rapport s'appuient sur les données acquises dans le cadre de l'étude radioécologique menée en 2007 par l'IRSN à la demande d'AREVA (Rapport IRSN/DEI/SESURE 2008-20). Dans ce rapport, la variabilité des activités en uranium et en ses descendants dans les fruits (figues, raisins, tomates et prunes), le blé et les poissons a été décrite et interprétée. Ces données sont rappelées dans le présent chapitre.

Les prélèvements de fruits et de blé ont majoritairement été effectués à l'est du site d'étude, c'est-à-dire dans la zone potentiellement sous l'influence des rejets atmosphériques, en fonction des vents dominants. En particulier, un prélèvement de blé et de figues a été réalisé à 20 m environ de la clôture (échantillons 19 et 51, respectivement) (tableaux 1 et 2). D'autres échantillons ont été prélevés à des distances variant entre 400 m (échantillon 52) et 900 m environ (échantillons 56, 59 et 60). Enfin, des échantillons ont été prélevés dans la même direction, à plus de 1 km de Malvés, mais également au Nord (oppidum de Montlaurès) et au Sud (quartier de Hortes-Neuves).

Les échantillons de poissons proviennent du Canal de Tauran (échantillon 75), ainsi que du Canal de la Mayral (échantillon 71) et du Canal de la Robine (échantillon 78), situés à l'aval hydraulique du rejet dans l'hydrosystème. Enfin, des poissons ont également été pêchés dans le Canal de la Robine, en amont du rejet (échantillon 76).

Les mesures ont été réalisées au Laboratoire de Mesure de la Radioactivité dans l'Environnement de l'IRSN (Orsay). Les isotopes du plutonium et de l'uranium y ont été dosés par ICP-MS. L'américium-241 a été mesuré par spectrométrie  $\alpha$ . Les activités des descendants de l'uranium-238 ont été mesurées par spectrométrie  $\gamma$ .

#### 3.1 LES FRUITS ET LE BLE

L'IRSN dispose des mesures des activités en  $^{40}\text{K}$ ,  $^7\text{Be}$ ,  $^{235}\text{U}$ ,  $^{238}\text{U}$  et ses descendants dans un échantillon de blé et dans 22 échantillons de fruits (tableaux 1 et 2). Dans le cas du blé, l'IRSN a effectué des mesures complémentaires des activités des transuraniens (isotopes du plutonium et américium), car cet échantillon témoigne de fortes activités en  $^{238}\text{U}$  (10 Bq.kg<sup>-1</sup>).

		$^{239+240}\text{Pu}$	$^{238}\text{Pu}$	$^{241}\text{Am}$	$^{40}\text{K}$	$^7\text{Be}$		
19	blé	0,445±0,018	0,017±0,001	0,089±0,006	119±11	21±2		

		$^{238}\text{U}$	$^{234}\text{Th}$	$^{234}\text{U}$	$^{234}\text{Pa}$	$^{230}\text{Th}$	$^{226}\text{Ra}$	$^{214}\text{Pb}$
19	blé	10±1,1	11±1,1	10,7±2,0	10±2,5	19±4	<1,8	1,1±0,1

		$^{214}\text{Bi}$	$^{210}\text{Pb}$	$^{235}\text{U}$
19	blé	0,8±0,1	4,3±0,5	0,5±0,1

Tableau 1 : Activités en transuraniens,  $^{40}\text{K}$ ,  $^7\text{Be}$ ,  $^{235}\text{U}$ ,  $^{238}\text{U}$  et en ses principaux descendants dans le blé prélevé à proximité de la clôture de Malvés en 2007 (en Bq.kg<sup>-1</sup> frais).



	<sup>40</sup> K	<sup>7</sup> Be	<sup>238</sup> U	<sup>234</sup> Th	<sup>234</sup> U	<sup>234</sup> Pa	<sup>230</sup> Th	<sup>226</sup> Ra	<sup>214</sup> Pb	<sup>214</sup> Bi	<sup>210</sup> Pb	<sup>235</sup> U
51 Figes	100 ±10	0,7 ±0,1	0,15 ±0,02	0,25 ±0,08	0,14 ±0,04	< 3,5	< 2,0	< 0,8	0,1 ±0,03	0,12 ±0,02	< 40	0,0067 ±0,0008
52 Figes	86 ±8	0,4 ±0,1	0,14 ±0,02	< 0,68	0,142 ±0,03	< 2,7	< 1,9	< 0,7	< 0,14	< 0,11	< 24	0,0064 ±0,0008
53 Figes	110 ±10	0,1 ±0,1	0,01 ±0,001	< 0,16	0,010 ±0,003	< 1,9	< 1,4	< 0,6	0,1 ±0,01	0,07 ±0,01	< 13	0,0005 ±0,00005
54 Raisin	65 ±6	0,5 ±0,2	0,006 ±0,001	< 0,25	0,006 ±0,001	< 3,7	< 2,5	< 1,1	< 0,20	0,05 ±0,02	< 26	0,0003 ±0,00003
55 Raisin	65 ±6	1,7 ±0,2	0,006 ±0,001	< 0,51	0,006 ±0,001	< 3,2	< 1,6	< 0,8	< 0,13	< 0,11	< 23	0,0003 ±0,00003
56 Raisin	56 ±5	0,4 ±0,1	0,06 ±0,006	0,09 ±0,05	0,049 ±0,01	< 2,4	< 1,2	< 0,5	< 0,12	< 0,07	< 18	0,0025 ±0,0002
57 Figes	91 ±8	0,2 ±0,1	0,004 ±0,0005	< 0,20	0,0048 ±0,001	< 2,5	< 1,9	< 0,2	< 0,13	< 0,09	< 50	0,0002 ±0,00002
58 Figes	60 ±5	0,4 ±0,1	0,009 ±0,001	< 0,12	0,0097 ±0,003	< 1,6	< 1,2	< 0,1	0,02 ±0,01	0,01 ±0,007	< 25	0,0043 ±0,00005
59 Raisin	61 ±6	0,4 ±0,1	0,06 ±0,006	< 0,15	0,056 ±0,01	< 2,1	< 1,5	< 0,2	0,03 ±0,02	0,03 ±0,01	< 40	0,0026 ±0,0003
60 Tomates	83 ±7	< 0,3	0,005 ±0,001	< 0,54	0,0047 ±0,002	< 3,0	< 1,9	< 0,8	< 0,16	< 0,11	< 29	0,0002 ±0,00003
61 Tomates	72 ±6	< 0,2	0,002 ±0,0002	< 0,14	0,0022 ±0,0006	< 2,5	< 1,4	< 0,6	< 0,12	< 0,08	< 2	0,0001 ±0,00001
62 Oignons	38 ±4	< 0,2	nm	< 0,10	nm	< 1,7	< 1,0	< 0,2	< 0,07	< 0,05	< 100	nm
63 Raisin	80 ±7	0,4 ±0,1	0,006 ±0,0007	< 0,28	0,0060 ±0,001	< 3,7	< 2,8	< 0,4	< 0,19	< 0,05	< 19	0,0003 ±0,00003
64 Prunes	69 ±7	< 0,4	0,006 ±0,0007	< 0,28	0,0062 ±0,001	< 3,8	< 2,8	< 0,4	< 0,09	< 0,1	< 23	0,0003 ±0,00003
65 Tomates	73 ±8	< 0,4	0,002 ±0,0002	< 0,76	0,0019 ±0,0004	< 10,6	< 2,4	< 1,4	< 0,21	< 0,1	< 19	0,0001 ±0,00001
66 Figes	111 ±10	< 0,3	0,02 ±0,002	< 0,20	0,0210 ±0,005	< 3,4	< 1,9	< 0,9	< 0,16	< 0,1	< 19	0,0009 ±0,0001
67 Tomates	82 ±8	< 0,3	0,005 ±0,0006	< 0,22	0,0054 ±0,002	< 3,1	< 2,2	< 0,3	< 0,17	< 0,2	< 22	0,0002 ±0,00003
68 Tomates	77 ±8	< 0,2	0,001 ±0,0001	< 0,14	0,0013 ±0,0004	< 2,0	< 1,4	< 0,2	< 0,09	< 0,02	< 12	0,0001 ±0,00001
34 Prunes	61 ±6	0,7 ±0,1	nm	< 0,10	nm	< 1,3	< 1,0	< 0,1	< 0,06	< 0,04	0,14 ±0,05	nm
36 Prunes	61 ±5	0,6 ±0,1	nm	< 0,37	nm	< 10,2	< 2,0	< 0,5	< 0,07	< 0,05	< 24	nm
37 Prunes	64 ±7	0,4 ±0,1	nm	< 0,41	nm	< 13,8	< 1,9	< 0,5	< 0,09	< 0,04	< 21	nm
38 Prunes	48 ±5	0,4 ±0,1	nm	< 0,21	nm	< 4,8	1,0	< 0,2	< 0,04	< 0,03	< 40	nm

nm : non mesuré

Tableau 2 : Activités en <sup>40</sup>K, <sup>7</sup>Be, <sup>235</sup>U, <sup>238</sup>U et en ses principaux descendants dans les fruits prélevés dans l'environnement de Malvési en 2007 (en Bq.kg<sup>-1</sup> frais).

## 3.2 LES POISSONS

L'IRSN dispose de quelques mesures des activités en  $^{40}\text{K}$ ,  $^{235}\text{U}$ ,  $^{238}\text{U}$  et en ses descendants dans les poissons (Tableau 3).

Localisation	$^{40}\text{K}$	$^{235}\text{U}$	$^{238}\text{U}$	$^{234}\text{Th}$	$^{234}\text{U}$	$^{234}\text{Pa}$
71 Mayral	106 ±10	nm	nm	< 1,4	nm	< 22
74 Tauran	78 ±7	0,0013 ±0,0002	0,03 ±0,004	< 0,21	0,03 ±0,009	< 2,58
76 Robine amont	77 ±7,5	0,0002 ±0,00003	0,005 ±0,0006	< 0,7	0,01 ±0,004	< 10
78 Robine aval	102 ±11	0,0005 ±0,0001	0,01 ±0,002	< 2	0,01 ±0,003	< 11

Localisation	$^{230}\text{Th}$	$^{226}\text{Ra}$	$^{214}\text{Pb}$	$^{214}\text{Bi}$	$^{210}\text{Pb}$
71 Mayral	< 4,4	< 2,8	< 0,3	< 0,4	< 1,0
74 Tauran	< 2,0	< 0,2	< 0,10	< 0,14	0,31 ±0,1
76 Robine amont	< 6,5	< 1,3	< 0,5	< 0,6	< 2,6
78 Robine aval	< 7,1	< 1,3	< 0,5	< 0,6	< 0,9

nm : non mesuré

Tableau 3 : Activités en  $^{40}\text{K}$ ,  $^{235}\text{U}$ ,  $^{238}\text{U}$  et en ses principaux descendants dans les poissons prélevés dans l'environnement de Malvésí en 2007 (en  $\text{Bq.kg}^{-1}$  frais).

## 4 ESTIMATION DES DOSES UNITAIRES PAR INGESTION DE CHAQUE DENREE

### 4.1 HYPOTHESES DE CALCUL

Les activités des produits de la chaîne alimentaire telles qu'elles sont présentées dans le chapitre 3 constituent le point de départ de l'évaluation de dose du présent rapport. Un certain nombre de lacunes apparaît dans les données. Certaines de ces lacunes proviennent de difficultés analytiques. Ainsi, il est difficile d'évaluer l'activité en  $^{226}\text{Ra}$  par spectrométrie  $\gamma$ , à cause d'interférence avec des pics de  $^{235}\text{U}$ . D'autre part, la limite de détection des activités de certains radionucléides mesurées par spectrométrie  $\gamma$  ( $^{234}\text{Pa}$ ,  $^{230}\text{Th}$ ) est élevée pour les matrices analysées ( $> 1 \text{ Bq.kg}^{-1}$ ). D'autres lacunes proviennent d'un manque de données, comme par exemple de l'absence de mesures des activités en transuraniens dans les fruits. Deux hypothèses ont permis de pallier ces lacunes.

#### 4.1.1 HYPOTHESE SUR LES EQUILIBRES DES DESCENDANTS DE $^{238}\text{U}$

Comme cela est précisé dans le chapitre 2, les activités des radionucléides qui proviennent de la décroissance de  $^{238}\text{U}$  quels que soient leur origine (origine naturelle ou rejets dans l'environnement) ou leurs modes de transfert à la plante (transfert racinaire ou dépôt sur les feuilles ou les fruits), ne sont pas en équilibre dans les plantes. En revanche, une fois que les radionucléides ont été incorporés dans le végétal, on peut considérer qu'un élément « fils » de la chaîne de décroissance de  $^{238}\text{U}$  est en équilibre avec son « père », dans la mesure où la période de ce dernier est beaucoup plus grande que celle du premier. En effet, les mesures effectuées dans le blé témoignent de l'équilibre entre  $^{238}\text{U}$  (période radioactive : 4,4 milliards d'années) et ses descendants  $^{234}\text{Th}$  (24,1 jours) et  $^{234}\text{Pa}$  (1,2 minutes), dont les activités sont de l'ordre de  $10 \text{ Bq.kg}^{-1}$  (tableau 1).

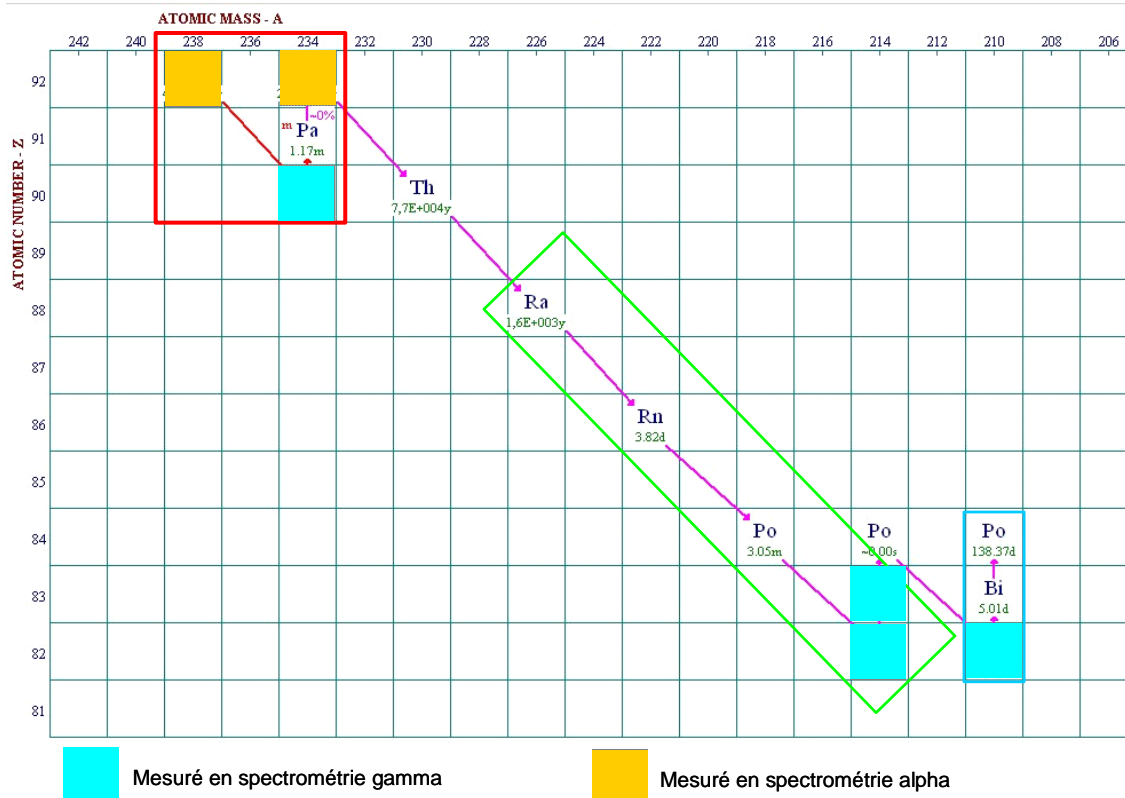


Figure 2 : Chaîne de décroissance radioactive de  $^{238}\text{U}$  et périodes radioactives de ses descendants. Isotopes mesurés par spectrométrie alpha ou gamma et équilibres supposés en début de chaîne ( $^{238}\text{U}$  et ses descendants de plus courtes périodes :  $^{234}\text{Th}$ ,  $^{234}\text{Pa}$ ), en milieu de chaîne ( $^{226}\text{Ra}$  et ses descendants de plus courtes périodes :  $^{218}\text{Po}$ ,  $^{214}\text{Pb}$  et  $^{214}\text{Bi}$ ) et en fin de chaîne ( $^{210}\text{Pb}$  et ses descendants de plus courtes périodes :  $^{210}\text{Bi}$  et  $^{210}\text{Po}$ ) dans les produits alimentaires analysés dans le cadre de cette étude.

En conséquence, l'hypothèse de l'équilibre père/fils peut être appliquée dans trois cas afin de combler un certain nombre de lacunes dans la chaîne de  $^{238}\text{U}$  (figure 2). Ainsi, on peut faire l'hypothèse que  $^{238}\text{U}$ , mesuré par spectrométrie alpha, est en équilibre avec ses descendants de courtes périodes  $^{234}\text{Th}$  et  $^{234}\text{Pa}$  (24 j et 1,17 min., respectivement) et en déduire leurs activités. Le même raisonnement peut permettre de déduire l'activité en  $^{226}\text{Ra}$  des fruits (période : 1600 années), à partir des mesures par spectrométrie gamma de ses descendants de périodes plus courtes  $^{214}\text{Pb}$  (26 min.) et  $^{214}\text{Bi}$  (19,9 min.), supposés en équilibre avec le radium. Enfin, l'activité en  $^{210}\text{Po}$  est estimée à partir des mesures de l'activité de son père,  $^{210}\text{Pb}$  (22 ans), réalisées par spectrométrie gamma et supposé en équilibre avec  $^{210}\text{Po}$ . Seulement quelques mesures de ces deux radionucléides dans les feuilles des végétaux sont disponibles dans la littérature scientifique, qui montrent que les activités de ces deux radionucléides seraient proches de l'équilibre dans le compartiment atmosphérique dont ils sont issus (Pietrzak-Flis et Skowronska-Smolak, 1995).

#### 4.1.2 HYPOTHESE PERMETTANT D'ESTIMER LES ACTIVITES EN TRANSURANIENS ET EN <sup>230</sup>Th DANS LES FRUITS

Des prélèvements et des mesures de feuilles de cyprès ont été réalisés à des distances croissantes de la clôture Est du site à 20 m, 400 m et 900 m de la clôture, où ont été également prélevés des figes (échantillons 51 et 52), du raisin (échantillons 56 et 59) et des tomates (échantillon 60). Or, l'interprétation des données des cyprès a montré que les activités mesurées dans cette matrice sont représentatives de la contamination de l'atmosphère qui provient non seulement du rejet atmosphérique en uranium, mais également de l'envol de poussières contaminées (<sup>230</sup>Th et transuraniens) émises lors des travaux de terrassement des bassins de stockage effectués en 2007. Dans le tableau 4, les activités en <sup>230</sup>Th et en transuraniens des fruits sont estimées (en grisé) à partir des mesures dans les cyprès (rapports d'activités <sup>230</sup>Th/U, Pu/U et Am/U), réalisées à la même distance du site.

	<i>localisation</i>	<sup>238</sup> U	<sup>230</sup> Th	<sup>239+240</sup> Pu	<sup>241</sup> Am	<sup>230</sup> Th/U	Pu/U	Am/U
19	blé 20 m	11	19	0,445	0,089	1,7	0,04	0,008
41	cyprès 20 m	180	142	-	0,525	0,8	-	0,003
40	cyprès 400 m	228	13			0,1		
39	cyprès 900 m	83	6,6			0,1		
51	figes 20 m	0,15	2,0	0,00575	0,00074			
52	figes 400 m	0,14	0,008	-	-			
56	raisin 900 m	0,054	0,004	-	-			
59	raisin 900 m	0,057	0,005	-	-			
60	tomates 900 m	0,005	0,0004	-	-			

Tableau 4 : Activités en <sup>230</sup>Th et en transuraniens des fruits (en grisé et en Bq.kg<sup>-1</sup> frais) déduites des activités en uranium mesurées dans les fruits (en Bq.kg<sup>-1</sup> frais) ainsi que des rapports d'activités mesurés dans les cyprès et le blé (<sup>230</sup>Th/U, Pu/U et Am/U) à la même distance.

Ainsi, les activités en <sup>230</sup>Th des fruits déduites par cette méthode diminuent avec la distance dans une proportion comparable à celle observée dans les bio-indicateurs.

Les coefficients de dose employés pour le calcul de la dose par ingestion pour un adulte sont issus de la base de données des coefficients de dose utilisée par l'IRSN, ECRIN (<http://www-ecrin.irsn.org/>). Ces facteurs de dose, provenant originellement de la directive EURATOM 96/29, intègrent les filiations radioactives. Le tableau 5 précise les valeurs affectées à chaque radionucléide des chaînes de décroissances de <sup>238</sup>U et <sup>235</sup>U ainsi que celles relatives à <sup>40</sup>K, <sup>7</sup>Be et aux transuraniens.

$^{239+240}\text{Pu}$	$^{238}\text{Pu}$	$^{241}\text{Am}$	$^{40}\text{K}$	$^7\text{Be}$	$^{228}\text{Ac}$	$^{235}\text{U}$	$^{227}\text{Th}$		
$2,50 \cdot 10^{-07}$	$2,30 \cdot 10^{-07}$	$2,00 \cdot 10^{-07}$	$6,20 \cdot 10^{-09}$	$2,80 \cdot 10^{-11}$	$4,30 \cdot 10^{-10}$	$4,70 \cdot 10^{-08}$	$8,80 \cdot 10^{-09}$		
$^{238}\text{U}$	$^{234}\text{Th}$	$^{234}\text{Pa}$	$^{234}\text{U}$	$^{230}\text{Th}$	$^{226}\text{Ra}$	$^{214}\text{Pb}$	$^{214}\text{Bi}$	$^{210}\text{Pb}$	$^{210}\text{Po}$
$4,50 \cdot 10^{-08}$	$3,40 \cdot 10^{-09}$	$5,10 \cdot 10^{-10}$	$4,90 \cdot 10^{-08}$	$2,10 \cdot 10^{-07}$	$2,80 \cdot 10^{-07}$	$1,40 \cdot 10^{-10}$	$1,10 \cdot 10^{-10}$	$6,90 \cdot 10^{-07}$	$1,20 \cdot 10^{-06}$

Tableau 5 : Coefficients de dose de chaque radionucléide (en Sv.Bq<sup>-1</sup> ingéré), employés pour le calcul de la dose efficace par ingestion pour l'adulte (données ECRIN).

## 4.2 DOSES UNITAIRES PAR INGESTION CALCULEES POUR CHAQUE DENREE

Les doses calculées pour l'ingestion de blé et de fruits sont comprises entre 0,3 et 14 µSv.kg<sup>-1</sup> frais ingérés (tableau 6). Les valeurs les plus fortes sont obtenues pour l'échantillon de blé (échantillon 19 : 14 µSv.kg<sup>-1</sup>) ainsi que pour un échantillon de figes (échantillon 51 : 1,1 µSv.kg<sup>-1</sup>), prélevés à 20 m environ de la clôture.

		<i>Dose d'ingestion (Sv.kg<sup>-1</sup> frais de denrée)</i>	<i>Dose d'ingestion (Sv.kg<sup>-1</sup> frais de denrée)</i>
<b>19</b>	blé	$1,4 \cdot 10^{-05}$	<b>64</b> prunes $4,3 \cdot 10^{-07}$
<b>51</b>	figes	$1,1 \cdot 10^{-06}$	<b>65</b> tomates $4,5 \cdot 10^{-07}$
<b>52</b>	figes	$5,5 \cdot 10^{-07}$	<b>66</b> figes $6,9 \cdot 10^{-07}$
<b>53</b>	figes	$7,1 \cdot 10^{-07}$	<b>67</b> tomates $5,1 \cdot 10^{-07}$
<b>54</b>	raisin	$4,2 \cdot 10^{-07}$	<b>68</b> tomates $4,8 \cdot 10^{-07}$
<b>55</b>	raisin	$4,0 \cdot 10^{-07}$	<b>34</b> prunes $6,4 \cdot 10^{-07}$
<b>56</b>	raisin	$3,6 \cdot 10^{-07}$	<b>36</b> prunes $3,7 \cdot 10^{-07}$
<b>57</b>	figes	$5,7 \cdot 10^{-07}$	<b>37</b> prunes $4,0 \cdot 10^{-07}$
<b>58</b>	figes	$3,8 \cdot 10^{-07}$	<b>38</b> prunes $2,9 \cdot 10^{-07}$
<b>59</b>	raisin	$4,0 \cdot 10^{-07}$	<b>71</b> chevesnes $6,6 \cdot 10^{-07}$
<b>60</b>	tomates	$5,1 \cdot 10^{-07}$	<b>74</b> anguilles $1,1 \cdot 10^{-06}$
<b>61</b>	tomates	$4,4 \cdot 10^{-07}$	<b>76</b> anguilles $4,8 \cdot 10^{-07}$
<b>62</b>	oignons	$2,3 \cdot 10^{-07}$	<b>78</b> carassins $6,3 \cdot 10^{-07}$
<b>63</b>	raisin	$5,0 \cdot 10^{-07}$	

Tableau 6 : Doses d'ingestion calculées dans le cas d'un d'adulte consommant un kilogramme de blé, de fruits ou de poissons prélevés dans l'environnement de Malvésí (en Sv.kg<sup>-1</sup> frais de denrée).

Dans le cas des figes, la dose provient principalement du  $^{230}\text{Th}$  (40 % de la dose totale par ingestion unitaire),  $^{226}\text{Ra}$  (3 %), des isotopes de l'uranium et des transuraniens (1 %) (figure 3). Dans le cas du blé, la dose provient du  $^{230}\text{Th}$  (30 % de la dose totale par ingestion unitaire),  $^{226}\text{Ra}$  (2 %), des isotopes de l'uranium et des transuraniens (3,5 %), mais surtout du  $^{210}\text{Po}$  et du  $^{210}\text{Pb}$  (environ 60 % de la dose totale d'ingestion unitaire de blé).  $^{230}\text{Th}$  mesuré dans ces végétaux provient des bassins de stockage de Malvési.  $^{210}\text{Po}$  et du  $^{210}\text{Pb}$  mesurés dans les plantes sont issus de la décroissance radioactive du radon présent dans l'atmosphère (Pietrzak-Flis et Skowronska, 1995). L'existence d'une contribution des rejets de l'installation à l'activité en Radon et donc en  $^{210}\text{Po}$  et  $^{210}\text{Pb}$  dans son voisinage ne peut être écartée.

En 2008, des échantillonnages complémentaires de blé seront réalisés dans l'environnement et hors influence du site pour confirmer le marquage de cette matrice par des radionucléides provenant de Malvési ( $^{230}\text{Th}$  et Pu) et évaluer l'origine du  $^{210}\text{Pb}$  dans le blé (origine naturelle ou site de Malvési).

Dans le cas des échantillons prélevés à plus grande distance du site (400, 900 m ou plus) ou dans une autre direction, on observe des doses plus faibles et plus homogènes ( $3 \cdot 10^{-7}$  à  $7 \cdot 10^{-7}$  Sv.kg $^{-1}$ ), dont les faibles variations sont corrélées avec la teneur en  $^{40}\text{K}$  des différentes matrices étudiées (figure 4). Ce radionucléide, d'origine naturelle, représente alors plus de 90 % de la dose par ingestion unitaire (1 kg). Notons que pour les fruits la contribution de  $^{210}\text{Pb}$  et  $^{210}\text{Po}$  à la dose est négligeable probablement parce que ces radionucléides, provenant des dépôts atmosphériques, marquent peu ces matrices en comparaison du blé.

Bien que le nombre d'analyses de poissons soit plus réduit, les doses liées à l'ingestion de cette denrée varient entre 0,5 et 1  $\mu\text{Sv.kg}^{-1}$  ingérés. C'est le polonium qui est à l'origine de la dose liée à l'ingestion des anguilles provenant du Canal de Tauran (échantillon 74).

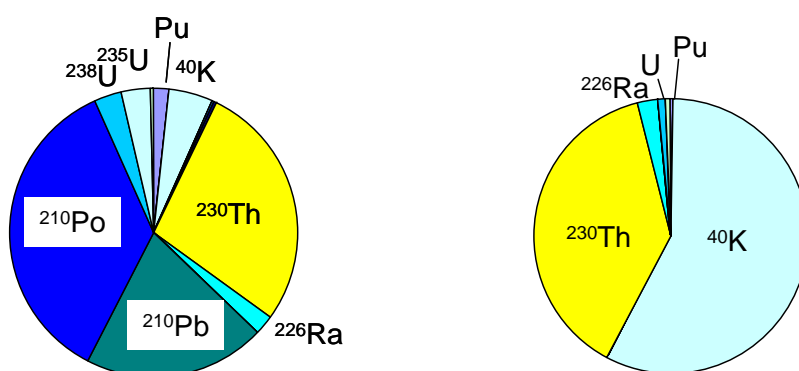


Figure 3 : Les principaux radionucléides qui contribuent à la dose par ingestion unitaire (1 kg) par un adulte du blé, à gauche (échantillon 19) et des figes, à droite (échantillon 51), prélevés à 20 m environ de la clôture Est de Malvési (en %).

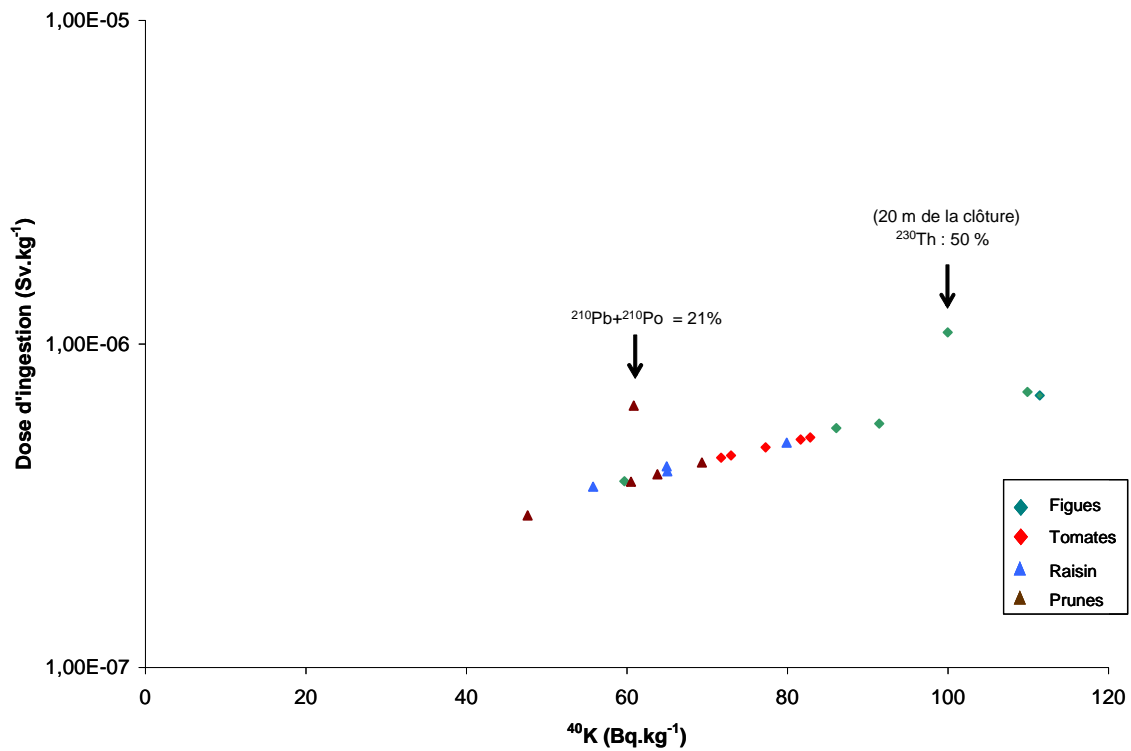


Figure 4 : Variations des doses par ingestion unitaires et des activités en  $^{40}\text{K}$  des fruits prélevés dans l'environnement du site de Malvés. Si l'on excepte l'échantillon de figes prélevé à proximité immédiate de la clôture, les doses par ingestion unitaire sont corrélées avec l'activité massique en  $^{40}\text{K}$  et sont donc essentiellement liées à ce radionucléide dont on ne peut pas suspecter une origine autre que naturelle.



## 5 CONCLUSION

Dans la limite des hypothèses qui ont servi de base de calcul, l'estimation des doses consécutives à l'ingestion d'un kilogramme de chacune des denrées échantillonnées dans l'environnement du site COMURHEX de Malvési (blé, fruits et poissons) montre que ce n'est qu'à proximité immédiate de ce site que la contribution des rejets pourrait conduire à une augmentation de la dose par ingestion. Au-delà de quelques dizaines de mètres, les doses sont dues à des radionucléides d'origine naturelle, présents dans les fruits, notamment  $^{40}\text{K}$ .

Par ailleurs, la dose résultant de l'ingestion de blé prélevé à 20 m de la clôture a été évaluée ; elle serait de 14  $\mu\text{Sv}$  par kilogramme ingéré par un adulte. Bien que la contribution des radionucléides provenant de l'installation (isotopes de l'uranium,  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{239+240}\text{Pu}$  et  $^{230}\text{Th}$ ) soit estimée à 34%, cette dose reste principalement liée à  $^{210}\text{Pb}$  et  $^{210}\text{Po}$  (issus de la désintégration du radon atmosphérique). En ce qui concerne la dose relative à l'ingestion d'un kilogramme de figues prélevées également en bordure du site, elle résulte principalement de la présence de  $^{230}\text{Th}$  qui n'est pas lié au process actuel de l'usine, mais à la remise en suspension de poussières provenant de déchets d'une activité industrielle antérieure de cette installation. Ainsi, les doses unitaires par ingestion calculées sont représentatives du marquage des denrées prélevées à une période précise (2007) et des prélèvements réalisés en 2008 doivent montrer si la contamination de ces denrées perdure.

Par ailleurs, ces doses restent faibles pour les figues ( $1,1 \mu\text{Sv}\cdot\text{kg}^{-1}$ ) au regard des quantités qui peuvent être consommées. En ce qui concerne le blé ( $14 \mu\text{Sv}\cdot\text{kg}^{-1}$ ) et dans l'éventualité où les activités à l'origine des doses perdurent, il serait pertinent d'évaluer, en fonction de la production locale, dans quelle proportion ce blé peut entrer dans une ration alimentaire afin de préciser la dose ajoutée par sa consommation.

## 6 BIBLIOGRAPHIE

Bourdon B., Henderson G. M., Lundstrom C. C., and Turner S. P. (2003) - Uranium-series geochemistry. In *Reviews in mineralogy and geochemistry*, Vol. 52 (ed. J. J. Rosso and P. H. Ribbe), pp. 656. Mineralogical society of America.

IRSN/DEI/SESURE2008-20 - Etude radioécologique de l'environnement du site de Malvési (société COMURHEX), 67 p.

Pietrzak-Flis, Z., Skowronska-Smolak, M. 1995. Transfer of  $^{210}\text{Pb}$  and  $^{210}\text{Po}$  to plants via root system and above-ground interception, *Science of the Total Environment*, 162, 139-147.