

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

# Bilan radioécologique de l'environnement du site de Malvési

Étude complémentaire menée en 2008  
DEI/SESURE N° 2009-17

DIRECTION DE L'ENVIRONNEMENT ET DE  
L'INTERVENTION

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

Demandeur	AREVA-NC				
N° action/Processus de rattachement	Action 3.1.2.13 processus R5				
<p><b>Bilan radioécologique de l'environnement du site de Malvési</b></p> <p><b>Étude complémentaire menée en 2008</b></p> <p>L. POURCELOT</p> <p>Laboratoire d'Etudes Radioécologiques en milieux Continental et Marin</p> <p>DEI/SESURE/2009-17</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	Ph. RENAUD	J-M. PERES	D. CHAMPION	J. REPUSSARD
Dates	11/03/2009	18/03/2009	14/04/09	16/04/09	
Signatures					

DIFFUSION : Libre  Interne  Limitée

---

---

LISTE DES PARTICIPANTS

Nom	Organisme
B. Boulet	IRSN/DEI/STEME/LMRE
X. Cagnat	IRSN/DEI/STEME/LMRE
C. Cossonnet	IRSN/DEI/STEME/LMRE
R. Gurriaran	IRSN/DEI/STEME/LMRE
C. Le Corre	IRSN/DEI/STEME/LMRE
M. Masson	IRSN/DEI/SECRE/LRC
D. Mourier	IRSN/DEI/SESURE/LERCM

---

---

## RESUME

L'étude radioécologique menée en 2008 à la demande d'AREVA-NC (contrat 2008 400-296-95) dans l'environnement du site COMURHEX de Malvési (Aude), objet du présent rapport, a pour but de répondre aux questions et recommandations de l'IRSN faites à l'issue de la précédente étude de 2007 (rapport IRSN/DEI/SESURE 2008-20).

Avec une teneur en plutonium 40 fois moindre, l'échantillon de blé prélevé en 2008 confirme l'hypothèse que la contamination élevée du blé prélevé en 2007 au même endroit, résultait d'une remise en suspension de particules provenant de bassins d'entreposage, renforcée cette année-là par des travaux de terrassement sur ceux-ci. Néanmoins l'ordre de grandeur de la dose liée à l'ingestion du blé prélevé à 20 m de la clôture étant due notamment à des radionucléides d'origine naturelle ( $^{210}\text{Po}$  et  $^{210}\text{Pb}$ ), n'est pas modifié entre 2007 et 2008 (respectivement 14  $\mu\text{Sv}$  et 18  $\mu\text{Sv}$  par kilogramme ingéré).

Cette étude montre par ailleurs que les activités des végétaux en uranium et ses descendants diminuent très vite dès lors que l'on s'écarte de la direction des vents dominants ou que l'on s'éloigne de l'installation. Ainsi, à plus de 1000 mètres de la clôture du site, l'influence de l'installation n'est plus visible comme en témoignent les mesures faites sur les feuilles de cyprès. De même, les activités d'échantillons de blé prélevés à l'est du site sur une ligne orientée globalement Nord-Sud perpendiculaire aux vents dominants, présentent des activités en  $^{238}\text{U}$  qui diminuent rapidement.

Enfin, cette étude a permis de mieux caractériser les différentes sources et voies de transfert des radionucléides provenant de l'installation : d'une part celles identifiées en 2007, à savoir les rejets atmosphériques à la cheminée et la remise en suspension de particules provenant des bassins d'entreposage, et d'autre part un transfert probable par des embruns à partir de ces bassins, comme en témoigne la présence de  $^{99}\text{Tc}$  dans les feuilles de cyprès.

Cette étude menée en 2008 par l'IRSN permet de finaliser le bilan radioécologique dans l'environnement du site de Malvési pour les compartiments terrestres et aquatiques. Néanmoins elle n'aborde pas la caractérisation de l'activité de l'air à l'origine du marquage des végétaux, qui nécessiterait une instrumentation spécifique de l'environnement du site.

---

---

## SOMMAIRE

1 INTRODUCTION .....	2
2 PRINCIPAUX ENSEIGNEMENTS DE L'ÉTUDE RÉALISÉE EN 2007 .....	3
3 OBJECTIFS DES PRELEVEMENTS ET DES MESURES COMPLÉMENTAIRES DANS L'ENVIRONNEMENT DE MALVÉSI .....	4
4 PLAN D'ÉCHANTILLONNAGE .....	5
4.1 PRELEVEMENTS RÉALISÉS DANS DES ZONES NON INFLUENCÉES PAR LES REJETS .....	5
4.2 PRÉLÈVEMENTS RÉALISÉS DANS DES ZONES POTENTIELLEMENT INFLUENCÉES PAR LES REJETS À LA CHEMINÉE .....	6
4.3 PRÉLÈVEMENTS POUR LA MESURE DE L'ACTIVITÉ EN <sup>99</sup> Tc.....	7
5 MÉTHODES DE PRÉLÈVEMENT, DE TRAITEMENT ET D'ANALYSE DES ÉCHANTILLONS .....	9
5.1 MÉTHODES DE PRÉLEVEMENT ET DE TRAITEMENT .....	9
5.2 MÉTHODES D'ANALYSES .....	9
6 PRÉSENTATION DES RÉSULTATS.....	11
6.1 ZONES NON INFLUENCÉES PAR LES REJETS.....	11
6.1.1 Les sols.....	11
6.1.2 Les végétaux .....	13
6.1.3 Les sédiments.....	15
6.2 ZONES POTENTIELLEMENT INFLUENCÉES PAR LES REJETS .....	16
6.2.1 Les sols.....	16
6.2.2 Les végétaux .....	19
6.3 ACTIVITÉS EN <sup>99</sup> Tc DES SÉDIMENTS ET DES VÉGÉTAUX.....	23
7 SYNTHÈSE DES DONNÉES.....	24
7.1 ÉVOLUTION DU MARQUAGE AVEC LA DISTANCE À L'INSTALLATION.....	24
7.2 LES SOURCES DE LA RADIOACTIVITÉ NATURELLE ET ARTIFICIELLE.....	25
7.2.1 Les sources de l'uranium des sols .....	25
7.2.2 Les sources de radioactivité MESURÉES dans la végétation .....	25
7.2.3 les sources des transuraniens MESURÉES DANS Les sols et Les sÉdiments .....	26
7.2.4 Les sources de <sup>99</sup> Tc.....	27
7.3 CALCUL DES DOSES UNITAIRES D'INGESTION.....	27
8 CONCLUSION SUR LES ÉTUDES MENEES EN 2007 ET 2008 PAR L'IRSN AUTOUR DU SITE DE MALVÉSI ET NOUVELLES RECOMMANDATIONS .....	30
9 BIBLIOGRAPHIE.....	33

# **1 INTRODUCTION**

En réponse à une demande d'AREVA (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 un bilan radioécologique dans l'environnement de ce site, basé sur des mesures d'échantillons prélevés en milieu aquatique et en milieu terrestre (rapport IRSN/DEI/SESURE 2008-20). À la suite de cette étude, des prélèvements et des analyses complémentaires de végétaux (blé, légumes feuilles), de sols et de sédiments se sont révélés nécessaires et ont été réalisés en 2008, à la demande d'AREVA (contrat 2008 400-296-95). Dans le présent rapport, après un rappel des principaux enseignements de l'étude réalisée en 2007 par l'IRSN, les données de l'environnement du site de Malvési acquises en 2008 sont commentées et interprétées. Enfin, la conclusion dresse un bilan général des campagnes faites en 2007 et 2008, incluant les principaux résultats d'évaluations dosimétriques, liées à l'ingestion de denrées locales.

## 2 PRINCIPAUX ENSEIGNEMENTS DE L'ÉTUDE RÉALISÉE EN 2007

Les résultats de l'étude réalisée en 2007 montrent que le marquage de l'environnement du site de Malvési par les rejets atmosphériques et liquides de l'installation, est net tant dans le milieu terrestre qu'aquatique, jusqu'à 2 km sous les vents dominants ainsi qu'à l'aval des points de rejet dans les cours d'eau (rapport IRSN/DEI/SESURE 2008-20). Les concentrations en uranium dans les fruits prélevés à vingt mètres environ de la clôture de Malvési ( $10 \mu\text{g.kg}^{-1}$  frais) sont jusqu'à 20 fois supérieures au niveau mesuré à plus grande distance, probablement représentatif du bruit de fond naturel mesurable dans les fruits de la région. Le marquage de bio-indicateurs comme les feuilles de cyprès en uranium, isotopes du plutonium, américium 241 et thorium 230, suggère une contamination atmosphérique contemporaine, directe par les rejets en cheminée et diffuse par la remise en suspension de particules provenant de bassins d'entreposage.

Plus particulièrement, une contamination en plutonium 1000 fois supérieure à celle attendue a été observée dans un échantillon de blé prélevé à proximité de la clôture. Des travaux de terrassement pratiqués durant la culture de ce blé, pourraient être à l'origine d'une augmentation de la remise en suspension de particules provenant des bassins d'entreposage, et la cause de cette contamination élevée. Il importait de vérifier cette hypothèse, la fin des travaux en 2007 devant se traduire par une moindre contamination du blé cultivé en 2008.

Enfin, le marquage de l'environnement par les rejets passés et présents de l'installation est aussi observé dans les sols et les sédiments, mais dans une moindre mesure, en raison de la teneur initiale de ces matrices en uranium d'origine naturelle et en transuraniens par rémanence des retombées des essais d'armes nucléaires.

En conséquence, l'IRSN a recommandé à AREVA de réaliser des prélèvements et des analyses supplémentaires avec pour objectifs : 1) de vérifier si les travaux de terrassement menés en 2007 étaient bien la cause des activités les plus élevées mesurées notamment dans le blé (auquel cas, l'arrêt de ces travaux devaient conduire à une baisse des activités en 2008), 2) de mieux délimiter la zone influencée en procédant à des prélèvements de végétaux sensibles aux dépôts atmosphériques (légumes feuilles, céréales et feuilles de cyprès) et 3) de préciser les contributions des différentes sources de radionucléides et mieux caractériser le bruit de fond et sa variabilité par des prélèvements à distance du cône d'influence des rejets.

### **3 OBJECTIFS DES PRELEVEMENTS ET DES MESURES COMPLEMENTAIRES DANS L'ENVIRONNEMENT DE MALVESI**

Afin de répondre aux recommandations émises à la suite de l'étude de 2007, les travaux conduits dans le cadre de la présente étude traitent principalement trois aspects :

- l'influence des rejets à la cheminée, en examinant les compartiments de l'environnement ayant été marqués par les rejets d'uranium appauvri, effectués lors des opérations conduites à Malvési en 2008, sur des stocks d'oxydes d'uranium provenant de Bessines ;
- l'importance de la diffusion dans l'environnement du site, de radionucléide provenant de l'eau des bassins sous forme d'embruns. Le  $^{99}\text{Tc}$  présent dans les eaux des bassins, contenu initialement dans l'uranium de retraitement (URT) en provenance de Marcoule entre 1960 et 1983, permet de disposer d'un traceur de la radioactivité provenant de l'eau de ces bassins. Les deux seules mesures d'activité en  $^{99}\text{Tc}$  réalisées par l'IPSN en 1992 dans l'environnement du site (Baudin-Jaulent, 1993) indiquent la possibilité d'une telle voie de transfert ;
- la caractérisation des sources que constituent l'uranium naturel ainsi que les transuraniens provenant des retombées des essais nucléaires. A cette fin, les activités représentatives du bruit de fond géochimique de l'uranium et de ses principaux descendants, ainsi que des transuraniens peuvent être quantifiées dans les matrices du milieu terrestre de la région d'étude, en particulier dans la basse vallée de l'Aude.

## 4 PLAN D'ECHANTILLONNAGE

### 4.1 PRELEVEMENTS REALISES DANS DES ZONES NON INFLUENCEES PAR LES REJETS

Des prélèvements de sols et de végétaux (cyprés et blé) ont été réalisés à 4,5 à 7,5 km environ au nord de Malvési, sur la commune de Cuxac-d'Aude (tableau 1). Les prélèvements de sols ont été réalisés dans cette zone, car elle présente une formation fluviale analogue au substratum sur lequel est implantée l'usine de Malvési (figure 1).

Dans cette zone, des sédiments ont été également prélevés dans le Canal de la Robine, en amont hydraulique des rejets aqueux (n° 102).

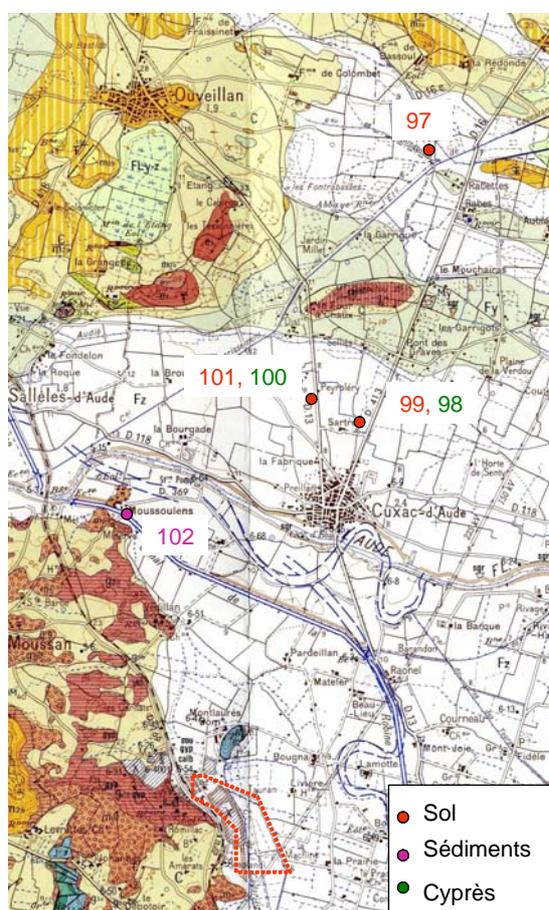


Figure 1 : Extrait de la carte géologique de la basse-vallée de l'Aude et localisation des prélèvements réalisés dans des zones non influencées par les rejets.

N°	Nature	LAT	LONG	Situation
97	sol	43°16'53"	3°00'45"	N. Cuxac d'Aude
98	blé	43°15'09"	3°00'11"	N. Cuxac d'Aude
99	sol	43°15'09"	3°00'11"	N. Cuxac d'Aude
100	cyprès	43°15'24"	2°59'45"	N. Cuxac d'Aude
101	sol	43°15'24"	2°59'45"	N. Cuxac d'Aude
102	sédiments	43°14'36"	2°58'07"	Moussoulens, Canal de la Robine

Tableau 1 : Nature et localisation des échantillons prélevés par l'IRSN en 2008 dans des zones non influencées par les rejets.

## 4.2 PRÉLÈVEMENTS REALISES DANS DES ZONES POTENTIELLEMENT INFLUENCEES PAR LES REJETS A LA CHEMINEE

Des prélèvements de sols ont été effectués au NW de Malvési, à 800 m environ de la clôture Nord (n° 92, 93 et 94) ainsi qu'au Sud (n° 106) (Tableau 2). Un sol supposé peu ou pas remanié a également été prélevé au SW du site de Malvési, sous un pylône (n° 90). Le blé et des légumes feuilles à maturité ont également été prélevés à l'Est de l'installation, zone sous l'influence des rejets (Figure 2).

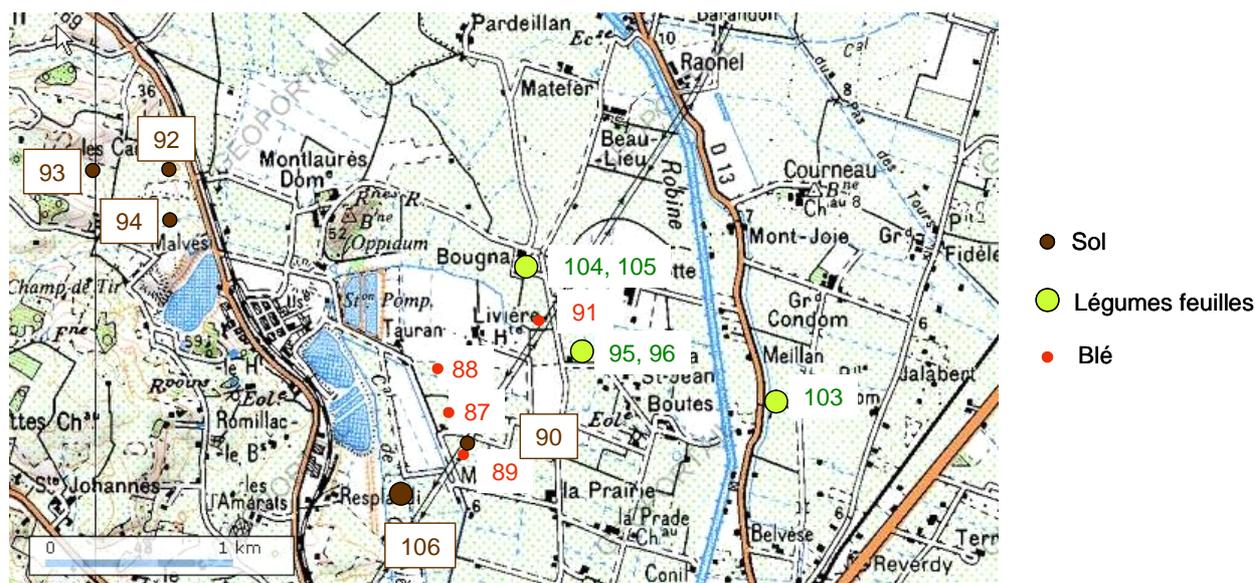


Figure 2 : Localisation des prélèvements réalisés dans des zones potentiellement influencées par les rejets.

<b>N°</b>	<b>Nature</b>	<b>LAT</b>	<b>LONG</b>	<b>Situation</b>
<b>87</b>	blé	43°12'39	2°59'23	E de Malvési
<b>88</b>	blé	43°12'44	2°59'21	E de Malvési
<b>89</b>	blé	43°12'24	2°59'32	E de Malvési
<b>90</b>	sol	43°12'25	2°59'30	E de Malvési
<b>91</b>	blé	43°12'51	2°59'53	E de Malvési
<b>92</b>	sol	43°13'16	2°58'22	NW de Malvési
<b>93</b>	sol	43°13'06	2°58'18	NW de Malvési
<b>94</b>	sol	43°13'15	2°58'03	NW de Malvési
<b>95</b>	blettes	43°12'43	3°00'00	E de Malvési
<b>96</b>	salades	43°12'43	3°00'00	E de Malvési
<b>103</b>	salades	43°12'33	3°00'48	E de Malvési
<b>104</b>	salades	43°13'01	2°59'50	E de Malvési
<b>105</b>	blettes	43°13'01	2°59'50	E de Malvési
<b>106</b>	sol	43°12'23	2°59'15	S de Malvési

Tableau 2 : Nature et localisation des échantillons prélevés par l'IRSN en 2008 dans des zones potentiellement influencées par les rejets du site COMURHEX de Malvési.

#### 4.3 PRÉLÈVEMENTS POUR LA MESURE DE L'ACTIVITE EN <sup>99</sup>Tc

En milieu aquatique, les activités en <sup>99</sup>Tc ont été mesurées dans des sédiments provenant des Canaux de Tauran, de Cadariège, d'un bassin de la Livière et du Bassin de Régulation. Des baldingères ont également été prélevées dans les Canaux de Cadariège et de Tauran (figure 3). Enfin, en milieu terrestre, des feuilles de cyprès prélevées en 2007 à une vingtaine de mètres et à 400 mètres environ de la clôture Est du site ont été analysées (échantillons 82 et 84, respectivement).

<b>n°</b>	<b>date prélèvement</b>	<b>nature</b>	<b>LAT</b>	<b>LONG</b>	<b>situation</b>
<b>5</b>	02/07/2007	sédiments	43,2123	2,9883	Canal de Tauran
<b>8</b>	02/07/2007	sédiments	43,2063	2,9866	Canal de Cadariège
<b>23</b>	03/07/2007	sédiments	43,2013	2,9872	Bassin Livière
<b>43</b>	11/07/2007	sédiments	43,2159	2,9757	Bassin Régulation
<b>79</b>	20/12/2007	baldingères	43,2063	2,9866	Canal de Cadariège
<b>83</b>	20/12/2007	baldingères	43,2123	2,9883	Canal de Tauran
<b>82</b>	20/12/2007	cyprès	43,2088	2,9903	Ferme Tauran-Sud
<b>84</b>	20/12/2007	cyprès	43,2139	2,9925	Mas Livière haute

Tableau 3 : Nature et localisation des échantillons prélevés en 2007 dans l'environnement aquatique et terrestre du site COMURHEX de Malvési, en vue de la mesure de l'activité en <sup>99</sup>Tc.



Figure 3 : Localisation des échantillons prélevés en 2007 dans l'environnement aquatique et terrestre du site COMURHEX de Malvési, en vue de la mesure de l'activité en  $^{99}\text{Tc}$ .

## 5 MÉTHODES DE PRÉLÈVEMENT, DE TRAITEMENT ET D'ANALYSE DES ÉCHANTILLONS

### 5.1 METHODES DE PRELEVEMENT ET DE TRAITEMENT

Les prélèvements ont été réalisés par des techniciens du Laboratoire d'Études Radioécologiques en milieux Continental et Marin de l'IRSN (IRSN/DEI/SESURE/LERCM), conformément aux procédures définies par ce laboratoire, en application des règles normatives (AFNOR ou AIEA) lorsque celles-ci existent, ou des procédures et de modes opératoires de l'IRSN en l'absence de celles-ci. Les prélèvements de sols ont été réalisés à l'aide d'une tarière jusqu'à 40 cm de profondeur, ceci afin d'observer la distribution verticale des radioéléments naturels et artificiels dans les profils échantillonnés.

Les techniques de traitement des échantillons sont destinées à concentrer les radionucléides par séchage (étuvage, lyophilisation). Cette étape est éventuellement suivie d'une incinération pour les matrices solides. Des modes opératoires spécifiques à chacune des matrices précisent les modalités de préparation à mettre en œuvre avant conditionnement de l'échantillon pour envoi en analyse. Les différentes matrices sont préparées dans des salles spécifiques (sédiments-sols, faune-flore) ou dans des zones réservées et aménagées pour chaque catégorie (hotte, bacs de rétention, paillasse dédiée). Cette compartimentation réduit les risques de contamination croisée d'échantillons de natures différentes.

### 5.2 METHODES D'ANALYSES

Les analyses ont été réalisées au Laboratoire de Mesure de la Radioactivité dans l'Environnement d'Orsay (IRSN/DEI/STEME/LMRE), accrédité COFRAC depuis 1999 pour la mesure bas-niveau des activités dans des matrices de l'environnement (n° 1-0993), en conformité avec les procédures en cours dans ce laboratoire.

La spectrométrie  $\gamma$  fournit une estimation de l'activité en uranium par le biais du  $^{234}\text{Th}$ , son descendant radioactif direct quand l'équilibre séculaire est atteint, ainsi que de l'activité en certains de ses descendants radioactifs ( $^{234}\text{Pa}$ ,  $^{230}\text{Th}$ ,  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{214}\text{Pb}$ ,  $^{214}\text{Bi}$ ,  $^{210}\text{Pb}$ ). La comparaison des rapports isotopiques permet, sous certaines hypothèses, de quantifier l'excès d'uranium issu du rejet industriel dans les sols et les sédiments, par rapport au bruit de fond provenant de l'uranium naturel et de ses descendants radioactifs en équilibre.

La radiochimie et la mesure par ICP-MS permettent de quantifier l'uranium dans les sols, les sédiments ainsi que dans les végétaux. Des mesures de l'activité des transuraniens (isotopes du plutonium et de l'américium) par spectrométrie  $\alpha$  ont également été effectuées dans des sols et des végétaux.

Seules les analyses de l'activité en  $^{99}\text{Tc}$  des sédiments et des végétaux ont été réalisées au Laboratoire de Radioécologie de Cherbourg (IRSN/DEI/SECRE/LRC). Avant minéralisation, un

traceur radioactif  $^{99m}\text{Tc}$ , émetteur  $\gamma$  de 6 heures de période est ajouté à l'échantillon, dans le but d'évaluer le rendement des traitements radiochimiques successifs. Après électro-dépôt et décroissance de ce traceur, le comptage du  $^{99}\text{Tc}$  est réalisé dans un compteur  $\beta$  bas-bruit de fond.

Dans les sols et les sédiments, les activités des radionucléides naturels et artificiels sont exprimées en Becquerel par kilogramme de matière fine (fraction < 2 mm) et séchée ( $\text{Bq.kg}^{-1}$  sec). Dans les végétaux, les activités des radionucléides naturels et artificiels sont exprimées en Becquerel par kilogramme de matière séchée ( $\text{Bq.kg}^{-1}$  sec) ou de matière fraîche ( $\text{Bq.kg}^{-1}$  frais).

Enfin, l'ensemble des informations concernant les échantillons prélevés, a été saisi dans la base de données du LERCM « Sylvestre », à savoir :

- l'identification des échantillons (localisation spatiale et temporelle, nature, espèce et fraction) ;
- les caractéristiques du prélèvement, de l'échantillon et de la fraction ;
- les résultats des analyses radioactives.

## 6 PRÉSENTATION DES RÉSULTATS

### 6.1 ZONES NON INFLUENCÉES PAR LES REJETS

#### 6.1.1 LES SOLS

Les activités en  $^{234}\text{Th}$ , comprises entre 32 et 38  $\text{Bq.kg}^{-1}$ , varient très peu au sein d'un même profil ainsi qu'entre les deux profils et ne montrent pas de tendance en fonction de la profondeur (tableau 4). En considérant cet élément en équilibre avec son précurseur, ces valeurs sont proches des activités moyennes en  $^{238}\text{U}$  des sols en France, de l'ordre 40  $\text{Bq.kg}^{-1}$  (Le Roux, 2007). Aux incertitudes près de mesure (relativement importantes) des activités en  $^{230}\text{Th}$  (30 à 60 %) et en  $^{226}\text{Ra}$  (12 à 55 %), on peut considérer que ces radionucléides sont en équilibre séculaire avec leur précurseur, le  $^{234}\text{Th}$ . Dans les couches de surface (0-10 cm), on observe des excès des activités en  $^{210}\text{Pb}$  (40  $\text{Bq.kg}^{-1}$ ) par rapport à  $^{234}\text{Th}$ . Cet excès en  $^{210}\text{Pb}$  des sols provient du dépôt atmosphérique de ce radionucléide, descendant du radon atmosphérique ( $^{222}\text{Ra}$ ).

Les activités en  $^{228}\text{Ac}$  (descendant de  $^{232}\text{Th}$ ) sont très homogènes, comprises entre 38 et 40  $\text{Bq.kg}^{-1}$ , très proches des valeurs les plus communément observées dans les sols en France métropolitaine, de l'ordre de 40  $\text{Bq.kg}^{-1}$  (Le Roux, 2007).

Les activités en  $^{241}\text{Am}$ , comprises entre 0,028 et 0,042  $\text{Bq.kg}^{-1}$ , varient très peu au sein d'un même profil ainsi qu'entre les deux profils (tableau 5). Les activités en  $^{239+240}\text{Pu}$  des deux profils échantillonnés sont comparables (0,077 et 0,110  $\text{Bq.kg}^{-1}$ ), on note des activités en ce radionucléide artificiel sensiblement plus faibles entre 30 et 40 cm de profondeur (0,080 et 0,071  $\text{Bq.kg}^{-1}$ , respectivement). Le rapport massique  $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  et le rapport d'activité  $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$  sont constants (0,19 et 0,40, respectivement), en accord avec les mesures réalisées dans la Basse-vallée du Rhône, hors influence du site de Marcoule (Duffa, 2001).

	prof. (cm)	<sup>137</sup> Cs	<sup>40</sup> K	<sup>228</sup> Ac	<sup>235</sup> U	<sup>227</sup> Th	<sup>234</sup> Th	<sup>234</sup> Pa	<sup>234</sup> U	<sup>230</sup> Th	<sup>226</sup> Ra	<sup>214</sup> Pb	<sup>214</sup> Bi	<sup>210</sup> Pb	<sup>241</sup> Am
<b>97-1</b>	0-10	3,4 ±0,5	470 ±50	38 ±5	1,9 ±1,1	1,9 ±0,7	32 ±4	36 ±17	<500	43 ±19	42 ±17	36 ±4	34 ±4	40 ±5	< 0,5
<b>97-2</b>	10-20	3,9 ±0,5	480 ±60	40 ±5	< 5	2,2 ±0,8	35 ±4	39 ±17	<400	28 ±18	< 80	35 ±4	31 ±4	35 ±5	< 0,7
<b>97-3</b>	20-30	3,3 ±0,5	460 ±60	39 ±5	2,5 ±1,4	< 2,4	38 ±5	35 ±18	<600	< 180	34 ±19	33 ±4	33 ±4	35 ±5	< 0,6
<b>97-4</b>	30-40	2,6 ±0,4	460 ±50	37 ±5	1,5 ±1,1	< 4	35 ±5	< 100	<500	29 ±18	48 ±15	33 ±4	30 ±4	30 ±4	< 0,6
<b>99-1</b>	0-10	2,6 ±0,3	460 ±50	38 ±5	< 2,6	2,2 ±0,8	32 ±4	49 ±16	<400	52 ±18	39 ±27	33 ±4	32 ±4	34 ±4	< 0,6
<b>99-2</b>	10-20	2,3 ±0,3	460 ±50	35 ±5	< 1,4	1,4 ±0,7	32 ±4	49 ±16	<400	43 ±17	58 ±10	33 ±4	31 ±4	32 ±4	< 0,5
<b>99-3</b>	20-30	2,2 ±0,3	450 ±50	38 ±5	2,2 ±1,7	1,2 ±0,7	32 ±4	< 40	<500	33 ±18	40 ±25	35 ±4	33 ±4	36 ±5	< 0,5
<b>99-4</b>	30-40	2,1 ±0,3	440 ±40	37 ±5	1,2 ±0,8	2,2 ±0,7	31 ±4	49 ±17	<500	46 ±20	55 ±13	40 ±4	37 ±5	34 ±4	< 0,6
<b>101</b>	0-10	4,2 ±0,5	450 ±50	37 ±5	-	< 6	31 ±4	< 50	<400	< 50	67 ±8	36 ±4	34 ±4	40 ±5	< 0,5

Tableau 4 : Activités en <sup>137</sup>Cs, <sup>241</sup>Am, <sup>40</sup>K, en certains descendants de <sup>232</sup>Th, <sup>235</sup>U et <sup>238</sup>U mesurées par spectrométrie  $\gamma$  dans des sols (en Bq.kg<sup>-1</sup> sec) prélevés en 2008 dans une zone non influencée par les rejets de Malvési.

	prof. (cm)	<sup>241</sup> Am	<sup>239+240</sup> Pu	<sup>240</sup> Pu/ <sup>239</sup> Pu*	<sup>241</sup> Am/ <sup>239+240</sup> Pu**
<b>97-1</b>	0-10	0,042 ±0,007	0,111 ±0,009	0,18 ±0,02	0,38 ±0,07
<b>97-2</b>	10-20	0,051 ±0,008	0,127 ±0,009	0,19 ±0,02	0,40 ±0,07
<b>97-3</b>	20-30	0,043 ±0,009	0,108 ±0,007	0,19 ±0,02	0,40 ±0,08
<b>97-4</b>	30-40	0,035 ±0,007	0,080 ±0,008	0,19 ±0,03	0,43 ±0,10
<b>99-1</b>	0-10	0,029 ±0,008	0,077 ±0,003	0,19 ±0,01	0,38 ±0,10
<b>99-2</b>	10-20	0,028 ±0,008	0,077 ±0,008	0,19 ±0,03	0,36 ±0,11
<b>99-3</b>	20-30	0,025 ±0,007	0,077 ±0,006	0,19 ±0,02	0,32 ±0,09
<b>99-4</b>	30-40	0,030 ±0,006	0,071 ±0,004	0,18 ±0,01	0,42 ±0,08

\* Rapport massique

\*\* Rapport d'activité

Tableau 5 : Activités (en Bq.kg<sup>-1</sup> sec) et rapports des transuraniens mesurés par spectrométrie  $\alpha$  et ICP-MS dans des sols prélevés en 2008 dans une zone non influencée par les rejets de Malvési.

### 6.1.2 LES VÉGÉTAUX

Les activités des descendants de l'uranium sont très faibles dans le blé et les feuilles de cyprès prélevés dans la zone non influencée (tableau 6). Ainsi, l'activité en  $^{234}\text{Th}$  est inférieure à la limite de détection ( $< 0,7 \text{ Bq.kg}^{-1}$ ) dans le blé et très faible dans les feuilles de cyprès ( $0,5 \pm 0,1 \text{ Bq.kg}^{-1}$ ). Les activités des autres descendants de l'uranium, tels  $^{230}\text{Th}$  et  $^{226}\text{Ra}$  sont inférieures aux limites de détection. Les activités en  $^{214}\text{Pb}$  et  $^{214}\text{Bi}$ , descendants du  $^{226}\text{Ra}$ , sont de 0,3 et 0,5  $\text{Bq.kg}^{-1}$  dans le blé et les feuilles de cyprès, respectivement. En comparaison à ces deux radionucléides, on observe un excès de l'activité en  $^{210}\text{Pb}$  (6,0 et 25  $\text{Bq.kg}^{-1}$  dans le blé et les feuilles de cyprès, respectivement), provenant des dépôts atmosphériques.

Les mesures réalisées par ICP-MS confirment les faibles activités en uranium dans le blé échantillonné dans la zone non influencée ( $^{238}\text{U}$  :  $0,10 \pm 0,01 \text{ Bq.kg}^{-1}$ ) (tableau 7). Le rapport  $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$  ( $0,73 \pm 0,04 \%$ ) est comparable au rapport de l'uranium naturel (0,72 %).

nature	<sup>137</sup> Cs	<sup>241</sup> Am	<sup>40</sup> K	<sup>7</sup> Be	<sup>228</sup> Ac	<sup>235</sup> U	<sup>227</sup> Th	<sup>234</sup> Th	<sup>234</sup> Pa	<sup>234</sup> U	<sup>230</sup> Th	<sup>226</sup> Ra	<sup>214</sup> Pb	<sup>214</sup> Bi	<sup>210</sup> Pb
<b>98</b> blé	0,06 ±0,02	< 0,07	161 ±18	39 ±4	0,5 ±0,1	< 0,14	< 0,7	< 0,7	< 7,9	< 25	< 6	< 2,1	0,3 ±0,08	0,3 ±0,1	6,0 ±0,8
<b>100</b> cyprès	0,06 ±0,02	< 0,04	93 ±9	45 ±4	0,5 ±0,1	< 0,09	< 0,2	0,5 ±0,1	< 3,9	< 12	< 3	< 1,4	0,5 ±0,1	0,5 ±0,1	25 ±2,6

Tableau 6 : Activités en <sup>137</sup>Cs, <sup>241</sup>Am, <sup>40</sup>K, en certains descendants de <sup>232</sup>Th, <sup>235</sup>U et <sup>238</sup>U mesurées par spectrométrie  $\gamma$  dans des végétaux (en Bq.kg<sup>-1</sup> sec) prélevés en 2008 dans une zone non influencée par les rejets de Malvési.

n°	nature	<sup>234</sup> U	<sup>235</sup> U	<sup>238</sup> U	<sup>235</sup> U/ <sup>238</sup> U*	<sup>234</sup> U/ <sup>238</sup> U**
<b>98</b>	blé	0,10 ±0,06	0,005 ±0,0006	0,10 ±0,01	0,73 ±0,04	1,05 ±0,59

\* Rapport massique, exprimé en %

\*\* Rapport d'activité

Tableau 7 : Activités (en Bq.kg<sup>-1</sup> sec) et rapports des isotopes de l'uranium mesurés par ICP-MS dans un échantillon de blé prélevé en 2008 dans une zone non influencée par les rejets de Malvési.

### 6.1.3 LES SEDIMENTS

Les activités en  $^{234}\text{Th}$  et en  $^{238}\text{U}$  des sédiments prélevés dans le Canal de la Robine, en amont hydraulique du rejet de Malvés, sont de 31 et 27  $\text{Bq.kg}^{-1}$ , respectivement (tableaux 8 et 9). Comme pour les sols, on observe un excès de l'activité en  $^{210}\text{Pb}$  ( $67 \text{ Bq.kg}^{-1}$ ) par rapport aux précurseurs, en équilibre séculaire. Le rapport  $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$  ( $0,76 \pm 0,03 \%$ ) de cet échantillon de sédiments est comparable au rapport de l'uranium naturel ( $0,72 \%$ ) (tableau 9). Enfin, les activités et les rapports des transuraniens sont très proches de ceux mesurés dans les sols non influencés par l'installation (paragraphe 6.1.1) (tableau 10).

$n^\circ$	$^{137}\text{Cs}$	$^{40}\text{K}$	$^{228}\text{Ac}$	$^{235}\text{U}$	$^{227}\text{Th}$	$^{234}\text{Th}$	$^{234}\text{Pa}$	$^{234}\text{U}$
102	$3,3 \pm 0,5$	$480 \pm 50$	$35 \pm 5$	$1,3 \pm 0,7$	<4	$31 \pm 4$	<160	<240

$n^\circ$	$^{230}\text{Th}$	$^{226}\text{Ra}$	$^{214}\text{Pb}$	$^{214}\text{Bi}$	$^{210}\text{Pb}$	$^{241}\text{Am}$
102	$38 \pm 17$	$51 \pm 12$	$31 \pm 3$	$29 \pm 4$	$67 \pm 7$	<0,7

Tableau 8 : Activités en  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{40}\text{K}$ , en certains descendants de  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{235}\text{U}$  et  $^{238}\text{U}$  mesurées par spectrométrie  $\gamma$  dans un échantillon de sédiments (en  $\text{Bq.kg}^{-1} \text{ sec}$ ) prélevé en 2008 dans le Canal de la Robine, en amont hydraulique des rejets de Malvés.

$n^\circ$	$^{234}\text{U}$	$^{235}\text{U}$	$^{238}\text{U}$	$^{235}\text{U}/^{238}\text{U}^*$	$^{234}\text{U}/^{238}\text{U}^{**}$
102	$27 \pm 7,3$	$1,3 \pm 0,2$	$27 \pm 3,0$	$0,76 \pm 0,03$	$0,99 \pm 0,29$

\* Rapport massique, exprimé en %

\*\* Rapport d'activité

Tableau 9 : Activités (en  $\text{Bq.kg}^{-1} \text{ sec}$ ) et rapports des isotopes de l'uranium mesurés par ICP-MS dans un échantillon de sédiments prélevé en 2008 dans le Canal de la Robine, en amont hydraulique des rejets de Malvés.

$n^\circ$	$^{241}\text{Am}$	$^{239}\text{Pu}$	$^{240}\text{Pu}$	$^{239+240}\text{Pu}$	$^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}^*$	$^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}^{**}$
102	$0,053 \pm 0,01$	$0,062 \pm 0,005$	$0,043 \pm 0,006$	$0,105 \pm 0,011$	$0,19 \pm 0,03$	$0,51 \pm 0,11$

\* Rapport massique

\*\* Rapport d'activité

Tableau 10 : Activités (en  $\text{Bq.kg}^{-1} \text{ sec}$ ) et rapports des transuraniens mesurés par spectrométrie  $\alpha$  et ICP-MS dans un échantillon de sédiments prélevé en 2008 dans le Canal de la Robine, en amont hydraulique des rejets de Malvés.

## 6.2 ZONES POTENTIELLEMENT INFLUENCEES PAR LES REJETS

### 6.2.1 LES SOLS

Les trois échantillons de sols prélevés au NW de Malvési (n° 92, 93 et 94) présentent des activités en  $^{234}\text{Th}$  faibles et homogènes (24 à 31  $\text{Bq.kg}^{-1}$  entre 0 et 10 cm de profondeur), inférieures aux activités des sols provenant de la zone non influencée (32 à 38  $\text{Bq.kg}^{-1}$ ) (paragraphe 6.1.1). Les activités des descendants de  $^{232}\text{Th}$  ( $^{228}\text{Ac}$ ) mesurées dans ces échantillons (25 à 30  $\text{Bq.kg}^{-1}$ ), sont également légèrement inférieures à celles mesurées dans les sols échantillonnés dans la zone non influencée (38 à 40  $\text{Bq.kg}^{-1}$ ). Enfin, la teneur en potassium-40 de ces sols obéit à la même logique spatiale que l'Uranium et le Thorium, qui est à mettre en relation avec l'origine des sols. A savoir les activités sont généralement plus importantes dans les sols constitués de dépôts fluviaux que dans ceux représentés par des sédiments colluviaux.

L'influence du substrat géologique pourrait expliquer la faible radioactivité naturelle dont témoignent les sols du NW qui se développent sur des colluvions limoneuses (voir figure 1), en comparaison avec les sols non influencés dont les radioéléments naturels dérivent de formations fluviales déposées par l'Aude.

En complément de cette analyse, dans les couches de surface des sols (0-10 cm) prélevées au NW de Malvési, on observe, comme attendu, des excès des activités en  $^{210}\text{Pb}$  (30 à 35  $\text{Bq.kg}^{-1}$ ) par rapport au  $^{234}\text{Th}$ , provenant du dépôt atmosphérique du  $^{210}\text{Pb}$ . Ainsi, l'influence des rejets de Malvési est probablement négligeable dans cette portion de l'environnement du site, au vu des prélèvements et des mesures de sols de cette étude.

	prof. (cm)	<sup>137</sup> Cs	<sup>40</sup> K	<sup>228</sup> Ac	<sup>235</sup> U	<sup>227</sup> Th	<sup>234</sup> Th	<sup>234</sup> Pa	<sup>234</sup> U	<sup>230</sup> Th	<sup>226</sup> Ra	<sup>214</sup> Pb	<sup>214</sup> Bi	<sup>210</sup> Pb	<sup>241</sup> Am
<b>92-1</b>	0-10	1,0 ±0,2	301 ±30	30 ±4	-	1,8 ±0,6	31 ±4	27 ±13	<400	28 ±17	37 ±29	29 ±3	27 ±3	35 ±4	< 0,5
<b>93-1</b>	0-10	2,5 ±0,3	330 ±40	25 ±3	1,3 ±0,6	< 1,8	25 ±3	< 80	<310	24 ±15	27 ±8	22 ±2	22 ±3	29 ±4	< 0,4
<b>94-1</b>	0-10	1,7 ±0,3	293 ±30	25 ±3	1,7 ±0,9	1,5 ±0,6	24 ±3	< 120	<400	< 50	23 ±12	24 ±3	22 ±3	30 ±4	< 0,6
<b>94-2</b>	10-20	1,9 ±0,2	292 ±29	27 ±3	< 2,4	< 2,9	25 ±3	29 ±12	<330	29 ±14	31 ±17	27 ±3	26 ±3	31 ±4	< 0,6
<b>94-3</b>	20-30	1,8 ±0,2	293 ±30	27 ±4	1,3 ±0,7	1,1 ±0,6	27 ±3	< 90	<400	< 90	37 ±10	26 ±3	23 ±3	26 ±3	< 0,6
<b>90-1</b>	0-10	7,0 ±0,8	530 ±60	37 ±5	< 3,1	< 8	48 ±6	< 120	<600	69 ±22	66 ±22	42 ±5	39 ±4	54 ±6	< 0,7
<b>90-2</b>	10-20	5,3 ±0,6	520 ±60	40 ±5	1,6 ±0,9	< 7	36 ±5	< 50	<500	45 ±20	69 ±16	41 ±5	37 ±5	37 ±5	< 0,6
<b>90-3</b>	20-30	1,2 ±0,2	490 ±60	39 ±5	2,4 ±0,9	< 8	29 ±4	39 ±18	<600	< 60	43 ±10	45 ±5	43 ±5	30 ±4	< 0,6
<b>90-4</b>	30-40	0,5 ±0,2	500 ±50	40 ±6	1,9 ±1	< 2,4	30 ±4	< 150	<400	< 60	50 ±14	41 ±5	40 ±5	34 ±4	< 0,6
<b>106-1</b>	0-10	3,1 ±0,4	470 ±50	36 ±5	3,8 ±1,2	< 7	69 ±7	69 ±22	<400	40 ±18	64 ±19	43 ±5	41 ±5	51 ±6	< 1,2
<b>106-2</b>	10-20	3,9 ±0,5	520 ±60	38 ±5	1,7 ±1,1	< 11	45 ±5	< 150	<600	< 60	78 ±19	56 ±6	53 ±6	48 ±6	< 0,6

Tableau 11 : Activités en <sup>137</sup>Cs, <sup>241</sup>Am, <sup>40</sup>K, en certains descendants de <sup>232</sup>Th, <sup>235</sup>U et <sup>238</sup>U mesurées par spectrométrie  $\gamma$  dans des sols (en Bq.kg<sup>-1</sup>.sec) prélevés dans des zones potentiellement influencées par les rejets de Malvési.

Les échantillons de sols provenant du S et du SW de l'installation témoignent d'activités en  $^{234}\text{Th}$  plus importantes (48 à 69  $\text{Bq.kg}^{-1}$  entre 0 et 10 cm de profondeur) que celles mesurées dans les sols provenant de la zone non influencée (32 à 38  $\text{Bq.kg}^{-1}$ ) (paragraphe 6.1.1). Dans l'échantillon 106-1, en particulier, l'activité en  $^{234}\text{Th}$  (69  $\text{Bq.kg}^{-1}$ ) dépasse l'activité en  $^{210}\text{Pb}$  (51  $\text{Bq.kg}^{-1}$ ). Par ailleurs, les sols de cette zone sont caractérisés par des activités en  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{214}\text{Pb}$  et  $^{214}\text{Bi}$  supérieures à celles mesurées dans les sols de la zone non influencée. Le long du profil de répartition verticale des descendants de l'uranium, on distingue deux zones :

- entre la surface et 20 cm de profondeur, on observe les plus fortes activités en  $^{234}\text{Th}$  (48 à 36  $\text{Bq.kg}^{-1}$ ) et en  $^{210}\text{Pb}$  (37 à 54  $\text{Bq.kg}^{-1}$ ) (figure 4). C'est dans cette couche superficielle du sol que s'accumulent les dépôts atmosphériques, à savoir l'uranium provenant des rejets de Malvési et le  $^{210}\text{Pb}$  d'origine naturelle. Bien que l'activité en  $^{230}\text{Th}$  soit plus importante que celles des autres radionucléides, il est difficile de conclure à un excès de  $^{230}\text{Th}$ , au regard de l'incertitude métrologique (30 %).
- Entre 20 et 40 cm de profondeur,  $^{234}\text{Th}$  et  $^{210}\text{Pb}$  présentent des activités plus faibles et sont en équilibre séculaire ( $^{234}\text{Th}$  : 29 à 30  $\text{Bq.kg}^{-1}$  et  $^{210}\text{Pb}$  : 30 à 34  $\text{Bq.kg}^{-1}$ ).

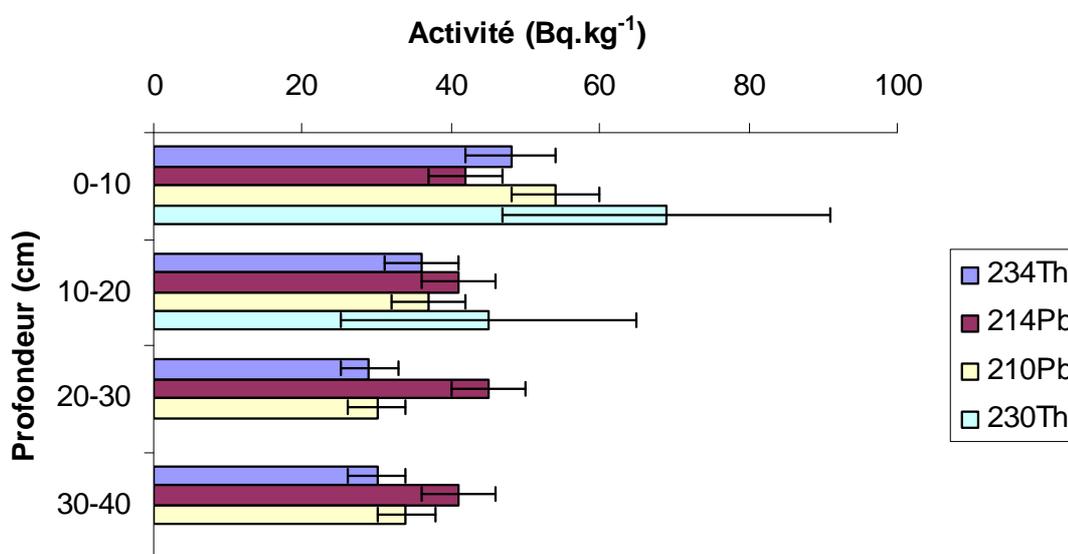


Figure 4 : Profil de répartition verticale des descendants de  $^{238}\text{U}$  ( $^{234}\text{Th}$ ,  $^{230}\text{Th}$ ,  $^{214}\text{Pb}$  et  $^{210}\text{Pb}$ ) dans un sol supposé peu remanié (n°90), prélevé dans une zone influencée par les rejets de Malvési.

Enfin, dans les échantillons de sols prélevés au NW et au Sud de Malvési, les activités en  $^{241}\text{Am}$  sont inférieures à la limite de détection de la spectrométrie  $\gamma$  (1  $\text{Bq.kg}^{-1}$ ).

## 6.2.2 LES VÉGÉTAUX

Les activités en  $^{238}\text{U}$  du blé vont de 0,3 à 6,8 Bq.kg<sup>-1</sup> sec (tableau 13). Parmi les échantillons prélevés en bordure Est du site (50 m environ de la clôture), c'est l'échantillon n°88, prélevé dans l'axe du rejet atmosphérique, qui présente la plus forte activité (figure 5). A cet endroit, le prélèvement de 2007 avait fourni une activité en uranium très proche quoique supérieure (10 Bq.kg<sup>-1</sup>). Les échantillons prélevés plus au sud présentent des activités plus faibles (n°87 et 89 : 1,2 et 0,3 Bq.kg<sup>-1</sup> sec, respectivement). L'influence du rejet atmosphérique est également atténuée dans le blé prélevé dans l'axe du rejet à 900 m de la clôture (n°91 : 1,5 Bq.kg<sup>-1</sup> sec). Rappelons que dans le blé prélevé en zone non influencée par les rejets de Malvési, l'activité en  $^{238}\text{U}$  est de 0,1 Bq.kg<sup>-1</sup> (paragraphe 6.1.2). Des variations comparables des activités en  $^{234}\text{Th}$  sont observées (0,7 à 5,7 Bq.kg<sup>-1</sup>) (tableau 12).

Dans les légumes feuilles, les activités en uranium vont de 0,03 à 0,1 Bq.kg<sup>-1</sup> frais (tableau 13). Elles sont donc plus faibles que celles du blé malgré une sensibilité théorique plus forte en raison d'une plus grande surface d'interception foliaire (rappelons que l'uranium transloque peu dans la plante et que la contamination du blé observée provient principalement d'une interception directe des poussières par les grains). Cette moindre contamination des salades par rapport au blé résulte certainement de points de prélèvements plus éloignés. Dans les salades, les activités en  $^{234}\text{Th}$  sont inférieures à la limite de détection, à l'exception de l'échantillon n°95 qui présente une activité de 0,1 Bq.kg<sup>-1</sup> (tableau 12).

		$^{137}\text{Cs}$	$^{241}\text{Am}$	$^{40}\text{K}$	$^7\text{Be}$	$^{228}\text{Ac}$	$^{235}\text{U}$	$^{227}\text{Th}$	
<b>87</b>	blé	0,05 ±0,02	< 0,04	180 ±19	33 ±3	1,9 ±0,10	< 0,10	< 0,3	
<b>88</b>	blé	0,18 ±0,04	< 0,08	172 ±20	52 ±5	0,5 ±0,20	0,19 ±0,09	< 2,0	
<b>89</b>	blé	0,05 ±0,02	< 0,05	182 ±18	36 ±4	0,2 ±0,09	< 0,10	< 0,3	
<b>91</b>	blé	< 0,17	< 0,07	190 ±21	36 ±3	0,4 ±0,17	< 0,17	< 0,3	
<b>95</b>	blette	0,02 ±0,01	< 0,02	128 ±12	8 ±1	0,2 ±0,04	< 0,04	< 0,1	
<b>103</b>	salade	< 0,03	< 0,01	88 ±9	3 ±0,3	0,04 ±0,02	< 0,02	< 0,05	
<b>105</b>	blette	0,05 ±0,02	< 0,04	219 ±22	23 ±2	0,2 ±0,07	< 0,08	< 0,2	
<b>96</b>	salade	< 0,07	< 0,05	179 ±17	1 ±0,2	< 0,3	< 0,16	< 0,3	
<b>104</b>	salade	0,02 ±0,01	< 0,05	104 ±11	1,0 ±0,2	< 0,40	< 0,09	< 0,6	

		$^{234}\text{Th}$	$^{234}\text{Pa}$	$^{234}\text{U}$	$^{230}\text{Th}$	$^{226}\text{Ra}$	$^{214}\text{Pb}$	$^{214}\text{Bi}$	$^{210}\text{Pb}$
<b>87</b>	blé	1,4 ±0,2	< 6,8	< 14	< 4	< 1,4	0,4 ±0,06	0,3 ±0,1	5,0 ±0,5
<b>88</b>	blé	5,7 ±0,7	< 9,2	< 60	< 10	2 1,6	1,6 ±0,2	1,5 ±0,2	8,2 ±0,9
<b>89</b>	blé	0,7 ±0,2	< 6,4	< 18	< 5	< 1,5	0,2 ±0,05	0,2 ±0,1	5,3 ±0,6
<b>91</b>	blé	1,8 ±0,4	< 21	< 24	< 6	< 2,4	0,2 ±0,07	0,3 ±0,1	5,8 ±0,7
<b>95</b>	blette	0,1 ±0,1	< 2,6	< 7	< 2	< 0,7	0,1 ±0,02	0,1 ±0,02	1,2 ±0,2
<b>103</b>	salade	< 0,1	< 1,8	< 4	< 1	< 0,4	0,04 ±0,01	0,03 ±0,01	0,3 ±0,1
<b>105</b>	blette	< 1,0	< 4,7	< 16	< 4	< 1,3	0,3 ±0,04	0,3 ±0,1	3,6 ±0,4
<b>96</b>	salade	< 0,5	< 9,2	< 16	< 5	< 2,5	< 0,33	< 0,50	0,4 ±0,2
<b>104</b>	salade	< 0,4	< 4,5	< 25	< 7	< 0,7	< 0,11	< 0,25	0,5 ±0,3

Tableau 12 : Activités en  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{40}\text{K}$ , en certains descendants de  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{235}\text{U}$  et  $^{238}\text{U}$  mesurées par spectrométrie  $\gamma$  dans le blé (en Bq.kg<sup>-1</sup> sec) et les légumes feuilles (en Bq.kg<sup>-1</sup> frais) prélevés dans des zones potentiellement influencées par les rejets de Malvési.

	$^{234}\text{U}$	$^{235}\text{U}$	$^{238}\text{U}$	$^{235}\text{U}/^{238}\text{U}^*$	$^{234}\text{U}/^{238}\text{U}^{**}$
87 blé	0,5 ±0,1	0,03 ±0,004	1,2 ±0,1	0,40 ±0,01	0,43 ±0,14
88 blé	3,0 ±1,1	0,2 ±0,02	6,8 ±0,8	0,40 ±0,02	0,44 ±0,17
89 blé	0,22 ±0,07	0,01 ±0,001	0,3 ±0,04	0,48 ±0,02	0,64 ±0,23
91 blé	0,6 ±0,2	0,04 ±0,005	1,5 ±0,2	0,39 ±0,02	0,42 ±0,14
95 blette	0,09 ±0,01	0,004 ±0,0005	0,1 ±0,01	0,58 ±0,02	0,79 ±0,15
103 salade	0,03 ±0,01	0,001 ±0,0002	0,03 ±0,004	0,67 ±0,03	0,87 ±0,32
105 blette	0,2 ±0,05	0,007 ±0,0009	0,2 ±0,02	0,70 ±0,03	0,99 ±0,31
96 salade	0,07 ±0,07	0,004 ±0,0004	0,1 ±0,01	0,54 ±0,02	0,64 ±0,65
104 salade	0,05 ±0,03	0,002 ±0,0003	0,04 ±0,005	0,71 ±0,04	1,04 ±0,72

\* Rapport massique, exprimé en %

\*\* Rapport d'activité

Tableau 13 : Activités et rapports des isotopes de l'uranium mesurés par ICP-MS dans le blé (en  $\text{Bq.kg}^{-1}\text{ sec}$ ) et les légumes feuilles (en  $\text{Bq.kg}^{-1}\text{ frais}$ ) prélevés dans des zones potentiellement influencées par les rejets de Malvési.

Pour le blé comme pour les légumes feuilles, les activités en  $^{230}\text{Th}$  des végétaux prélevés en 2008 sont inférieures à la limite de détection. Cependant, dans un échantillon de blé (n° 88), la limite de détection est très proche de l'activité de ce radionucléide mesurée dans cette matrice en 2007 ( $<10\text{ Bq.kg}^{-1}$ ). Rappelons que des observations similaires avaient été réalisées dans le blé en herbe et le blé sauvage prélevés au printemps 2008 (rapport IRSN/DEI/SESURE 2008-20).

Comme pour l'uranium, on observe des variations importantes des activités en  $^{214}\text{Pb}$  et  $^{214}\text{Bi}$  dans le blé (0,1 à  $1,6\text{ Bq.kg}^{-1}\text{ sec}$ ) et dans une moindre mesure dans les salades (0,04 à  $0,1\text{ Bq.kg}^{-1}\text{ frais}$ ), en dépit de deux valeurs inférieures à la limite de détection (n° 96 et 104).

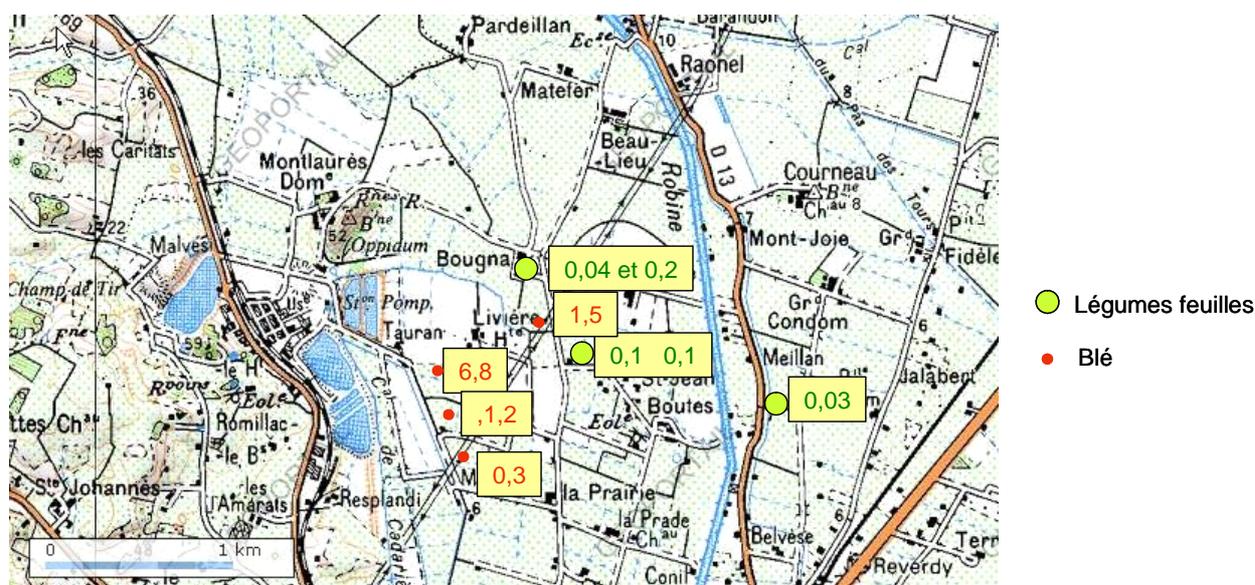


Figure 5 : Variabilité spatiale des activités en  $^{238}\text{U}$  dans le blé (en  $\text{Bq.kg}^{-1}\text{ sec}$ ) et les légumes feuilles (en  $\text{Bq.kg}^{-1}\text{ frais}$ ) prélevés dans des zones potentiellement influencées par les rejets de Malvési.

Le rapport  $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$  pour les échantillons de blé prélevés dans la zone influencée, compris entre 0,39 et 0,48 % (tableau 13), est plus faible que celui obtenu dans la zone non influencée ( $0,73 \pm 0,04$  %), correspondant à de l'uranium naturel (cf. paragraphe 6.1.2). Dans les salades, les rapports  $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$  varient entre 0,54 et 0,71 % (figure 6).

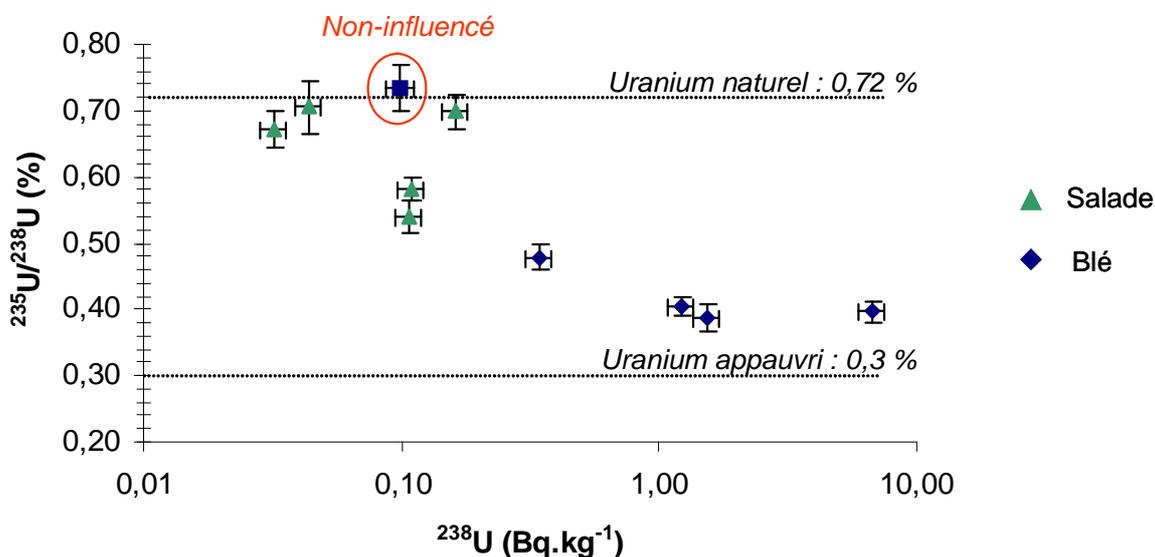


Figure 6 : Variabilité du rapport  $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$  en fonction de l'activité en  $^{238}\text{U}$  dans le blé et les salades prélevés dans la zone non influencée et dans la zone influencée par les rejets de Malvésí.

La covariation de l'activité en  $^{238}\text{U}$  et du rapport  $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$  des végétaux suggère la contribution de deux sources d'uranium :

- l'uranium naturel ( $^{235}\text{U}/^{238}\text{U} = 0,72$  %), qui est bien visible dans le blé prélevé dans la zone non influencée ( $0,1 \text{ Bq.kg}^{-1}$  sec en  $^{238}\text{U}$ ) et semble prépondérant dans les échantillons de salade dont les activités sont inférieures à  $0,1 \text{ Bq.kg}^{-1}$  frais  $^{238}\text{U}$  ;
- l'uranium appauvri ( $^{235}\text{U}/^{238}\text{U} = 0,3$  %), qui est présent dans tous échantillons de blé en proportion variable, en fonction de l'activité en  $^{238}\text{U}$ .

L'uranium appauvri rejeté dans le milieu terrestre se caractérise par des rapports d'activité  $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$  inférieurs à 1 (0,42 à 0,64 dans le blé), qui sont corrélés avec les rapports  $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$  ( $r^2 = 0,99$ ).

Aucune trace de  $^{236}\text{U}$  n'a été détectée dans les végétaux annuels prélevés en 2008 (blé, salades), ce qui confirme que l'influence des rejets diffus de l'Uranium de retraitement provenant des bassins (qui contiennent  $^{236}\text{U}$ ) est négligeable pour une remise en suspension normale (due à une action du vent uniquement) de particules provenant de ces bassins, *a contrario* du prélèvement de blé réalisé en 2007, dans lequel  $^{236}\text{U}$  avait été détecté ( $^{236}\text{U}/^{238}\text{U} = 10^{-5}$ ) en probable relation avec une remise en suspension renforcée par les travaux de terrassement effectués cette année-là (rapport IRSN/DEI/SESURE 2009-03).

Les activités en  $^{239+240}\text{Pu}$  des quatre échantillons de blé prélevés en 2008 varient entre  $10^{-3}$  et  $10^{-2} \text{ Bq.kg}^{-1}$  sec, diminuant rapidement avec la distance entre le lieu de prélèvement et

l'installation (tableau 14). L'activité la plus élevée est 40 fois plus faible que celle de l'échantillon de blé prélevé en 2007 au même endroit (tableau 15). De même, pour le  $^{230}\text{Th}$ , dont l'activité mesurée était de  $19 \text{ Bq.kg}^{-1}$  dans l'échantillon prélevé en 2007, l'activité est inférieure à la limite de détection ( $< 10 \text{ Bq.kg}^{-1}$ ) pour les échantillons de 2008.

		$^{239+240}\text{Pu}$	$^{241}\text{Am}$
87	blé	0,0016 ±0,0002	0,0005 ±0,0001
88	blé	0,010 ±0,001	0,0028 ±0,0005
89	blé	0,0010 ±0,0002	0,0005 ±0,0002
91	blé	0,0013 ±0,0003	0,0006 ±0,0002
95	blette	0,00003 ±0,00001	0,00001 ±0,000003
103	salade	0,000006 ±0,000001	0,000002 ±0,000001
105	blette	0,0002 ±0,00002	0,0001 ±0,00003

Tableau 14 : Activités en transuraniens mesurées par spectrométrie  $\alpha$  dans le blé (en  $\text{Bq.kg}^{-1}$  sec) et les légumes feuilles (en  $\text{Bq.kg}^{-1}$  frais) prélevés dans des zones potentiellement influencées par les rejets de Malvés.

Ceci tend à conforter l'hypothèse que la contamination plus élevée mesurée en 2007 était liée à une remise en suspension renforcée par des travaux de terrassement. Toutefois, l'activité en plutonium de l'échantillon prélevé en 2008 reste plus de 10 fois supérieure à celles habituellement rencontrées dans l'environnement français. En revanche, les échantillons prélevés plus au Sud rentrent dans la gamme du bruit de fond en plutonium mesuré sur le territoire français. On observe des variations de même nature en fonction de l'éloignement, dans les échantillons de légumes feuilles dont les activités en  $^{239+240}\text{Pu}$  varient entre  $6 \cdot 10^{-6}$  et  $2 \cdot 10^{-4} \text{ Bq.kg}^{-1}$  frais (tableau 14). Les activités en  $^{241}\text{Am}$  sont également corrélées avec celles du plutonium ( $r^2 = 0,99$ ).

	$^{238}\text{U}$	$^{234}\text{Th}$	$^{230}\text{Th}$	$^{214}\text{Pb}$	$^{241}\text{Am}$	$^{239+240}\text{Pu}$
19 (juin 2007)	$10 \pm 1,1$	$11 \pm 1,1$	$19 \pm 4$	$4,3 \pm 0,5$	$0,089 \pm 0,006$	$0,445 \pm 0,018$
88 (juin 2008)	$6,8 \pm 0,8$	$5,7 \pm 0,7$	$< 10$	$1,6 \pm 0,2$	$0,003 \pm 0,0005$	$0,010 \pm 0,001$

Tableau 15 : Activités en  $^{238}\text{U}$ , en ses principaux descendants et en transuraniens mesurées dans les échantillons de blé prélevés en juin 2007 et en juin 2008 dans la même parcelle (en  $\text{Bq.kg}^{-1}$  sec).

### 6.3 ACTIVITES EN $^{99}\text{Tc}$ DES SEDIMENTS ET DES VEGETAUX

<i>n°</i>		<i>situation</i>	$^{99}\text{Tc}$
5	sédiments	Canal de Tauran	13±1,2
8	sédiments	Canal de Cadariège	81±6,3
23	sédiments	Bassin de la Livière	35±3,1
43	sédiments	Bassin de Régulation	271±20
79	baldingères	Canal de Cadariège	31±2,8
83	baldingères	Canal de Tauran	< 10
82	cyprès	Ferme Tauran	< 10
84	cyprès	Livière haute	13±1,5

Tableau 16 : Activités en  $^{99}\text{Tc}$  dans les matrices prélevées dans l'environnement aquatique et terrestre du site COMURHEX de Malvési (en  $\text{Bq.kg}^{-1}\text{ sec}$ ).

$^{99}\text{Tc}$  est bien visible au niveau des anciens émissaires des rejets aqueux, c'est-à-dire dans les sédiments du Canal de Cadariège et du Bassin de régulation, dans lesquels l'activité est supérieure à  $50 \text{ Bq.kg}^{-1}$  (tableau 16). Dans le Canal de Tauran, émissaire le plus récent des rejets, l'activité des sédiments est plus faible ( $13 \text{ Bq.kg}^{-1}$ ). Des observations similaires sont réalisées dans les végétaux aquatiques avec des activités significativement supérieures au niveau des émissaires anciens (Canal de Cadariège :  $31 \text{ Bq.kg}^{-1}$ ) en comparaison du Canal de Tauran, point de rejet le plus récent, où l'activité est inférieure à la limite de détection ( $10 \text{ Bq.kg}^{-1}$ ). Les activités en ce radionucléide artificiel sont comparables à celles des sédiments et des végétaux du Canal de Cadariège en 1992 ( $141$  et  $42 \text{ Bq.kg}^{-1}$ , respectivement) (Baudin-Jaulent, 1993).

En milieu terrestre, des activités significatives ( $13 \text{ Bq.kg}^{-1}$ ), mais très proches de la limite de détection ( $10 \text{ Bq.kg}^{-1}$ ), sont mesurées dans les feuilles de cyprès. C'est probablement l'envol des embruns des bassins d'entreposage qui explique la diffusion de ce radionucléide dans le compartiment atmosphérique et le marquage des feuilles de cyprès.

## 7 SYNTHÈSE DES DONNÉES

### 7.1 ÉVOLUTION DU MARQUAGE AVEC LA DISTANCE A L'INSTALLATION

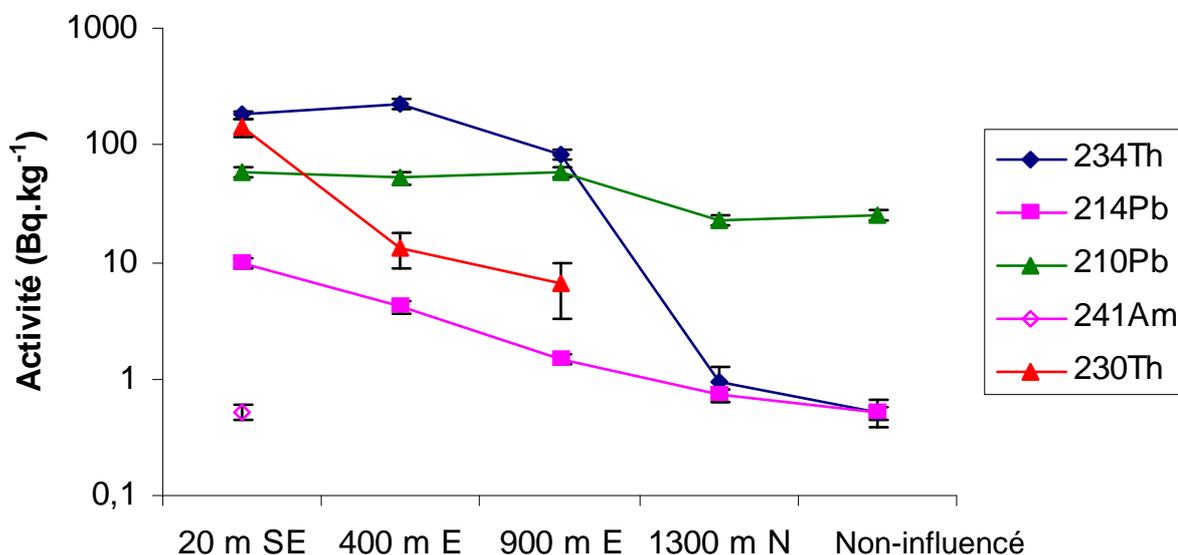


Figure 7 : Variabilité de l'activité des principaux descendants de  $^{238}\text{U}$  dans les feuilles de cyprès prélevées dans la zone influencée et dans la zone non influencée par les rejets du site COMURHEX de Malvési, en fonction de la distance à la clôture du site (en m).

Les activités des végétaux en uranium et en ses descendants diminuent très rapidement avec l'éloignement de la direction des vents dominants et avec la distance à l'installation, formant un cône d'influence maintenant bien délimité grâce aux prélèvements effectués en 2008.

Ainsi, la comparaison entre les activités mesurées dans les feuilles de cyprès échantillonnées dans une zone non influencée et celles échantillonnées dans la zone influencée permet de borner l'influence des rejets de Malvési dans le compartiment atmosphérique (figure 7). On voit qu'à partir de 1300 m, les activités en  $^{234}\text{Th}$  (descendant de  $^{238}\text{U}$ ) et en  $^{214}\text{Pb}$  (descendant de  $^{226}\text{Ra}$ ) sont proches de celles du bruit de fond. Par ailleurs, on ne mesure plus d'activités significatives en  $^{241}\text{Am}$  et  $^{230}\text{Th}$  par spectrométrie  $\gamma$ . Enfin, parmi les radionucléides mesurés, seule la concentration en  $^{210}\text{Pb}$  est relativement homogène quel que soit le point de prélèvement (25-60 Bq.kg<sup>-1</sup>), ce qui démontre que la source naturelle de ce radionucléide est le dépôt consécutif à la décroissance du radon dans l'atmosphère ( $^{222}\text{Rn}$ ).

Comme les aiguilles de cyprès, le marquage du blé et des légumes feuilles échantillonnés dans la zone influencée par les rejets atmosphériques (Est de l'installation) est fonction de la distance à la clôture. De plus, bien que le facteur d'interception des dépôts par les légumes feuilles soit généralement supérieur à celui des céréales, c'est probablement la distance au point de rejet qui explique le marquage des échantillons de blé prélevés à 50 m de la clôture (de l'ordre de 10 Bq.kg<sup>-1</sup> en  $^{238}\text{U}$ ) par rapport aux légumes feuilles prélevés à 900-1000 m de la clôture (0,01 à 0,1 Bq.kg<sup>-1</sup>). Enfin, comme dans les cyprès, on note dans le blé et les salades

des activités en  $^{214}\text{Pb}$  (descendant de  $^{226}\text{Ra}$ ), diminuant en fonction de la distance (1 à 0,01 Bq.kg<sup>-1</sup>), ce qui indiquerait la présence de radium provenant du site de Malvési dans son environnement proche.

## 7.2 LES SOURCES DE LA RADIOACTIVITE NATURELLE ET ARTIFICIELLE

### 7.2.1 LES SOURCES DE L'URANIUM DES SOLS

L'ensemble des données sur les sols acquises en 2007 et 2008 montre qu'au moins deux sources expliquent la variabilité des activités en uranium des sols dans l'environnement de Malvési. En premier lieu, les rejets de l'installation sont à l'origine d'augmentations significatives de l'activité en uranium dans les sols au sud, mais surtout à l'est de l'installation (entre 30 et 70 Bq.kg<sup>-1</sup>), en comparaison de sols non influencés (environ 30 Bq.kg<sup>-1</sup>). De plus, les données acquises en 2008 montrent, qu'en plus de l'influence des rejets, les critères géologiques expliquent une part de la variabilité de l'uranium des sols de l'environnement de Malvési, comme en témoignent les activités des sols sur des dépôts fluviaux (environ 30 Bq.kg<sup>-1</sup>), en comparaison des activités sensiblement plus faibles mesurées dans les sols dérivés de substrats colluviaux (entre 20 et 30 Bq.kg<sup>-1</sup>).

### 7.2.2 LES SOURCES DE RADIOACTIVITE MESURÉES DANS LA VEGETATION

Les rejets par les cheminées de Malvési constituent une des sources de la radioactivité des végétaux étudiés (cyprès, blé, salade). Le marquage du blé par l'uranium appauvri rejeté ponctuellement par l'installation en 2008 montre que c'est bien la voie atmosphérique qui est à l'origine du marquage des végétaux et non le transfert racinaire provenant du sol, car, dans ce compartiment, l'uranium a une signature naturelle ( $^{235}\text{U}/^{238}\text{U} = 0,72 \%$ ) (Rapport IRSN/DEI/SESURE 2008-20).

Par ailleurs, les bassins d'entreposage du site constituent l'autre source de marquage des végétaux, comme en témoignent par exemple les mesures du  $^{230}\text{Th}$  et des transuraniens réalisées en 2007 dans le blé et les cyprès. Un marquage par  $^{226}\text{Ra}$  est également visible dans les aiguilles de cyprès. Ces radionucléides proviendraient des bassins d'entreposage et des travaux de terrassement réalisés en 2007, à l'origine d'émission de poussières contaminées. En 2008, on n'a pas mis en évidence de marquage par le  $^{230}\text{Th}$  dans le blé, les concentrations étant inférieures à la limite de détection de ce radionucléide (voir paragraphe 7.1). De plus, les activités en transuraniens dans cette matrice sont plus faibles qu'en 2007 (voir paragraphe 7.1). Ces comparaisons permettent de conclure à une diminution des émissions de poussières contaminées provenant des bassins d'entreposage en 2008.

### 7.2.3 LES SOURCES DES TRANSURANIENS MESURÉES DANS LES SOLS ET LES SÉDIMENTS

Les mesures des transuraniens dans les sols et les sédiments prélevés en 2008 dans des zones non influencées par les rejets de Malvési permettent de préciser la source de transuraniens constituée par les retombées atmosphériques des tirs d'armes nucléaires (figure 8).

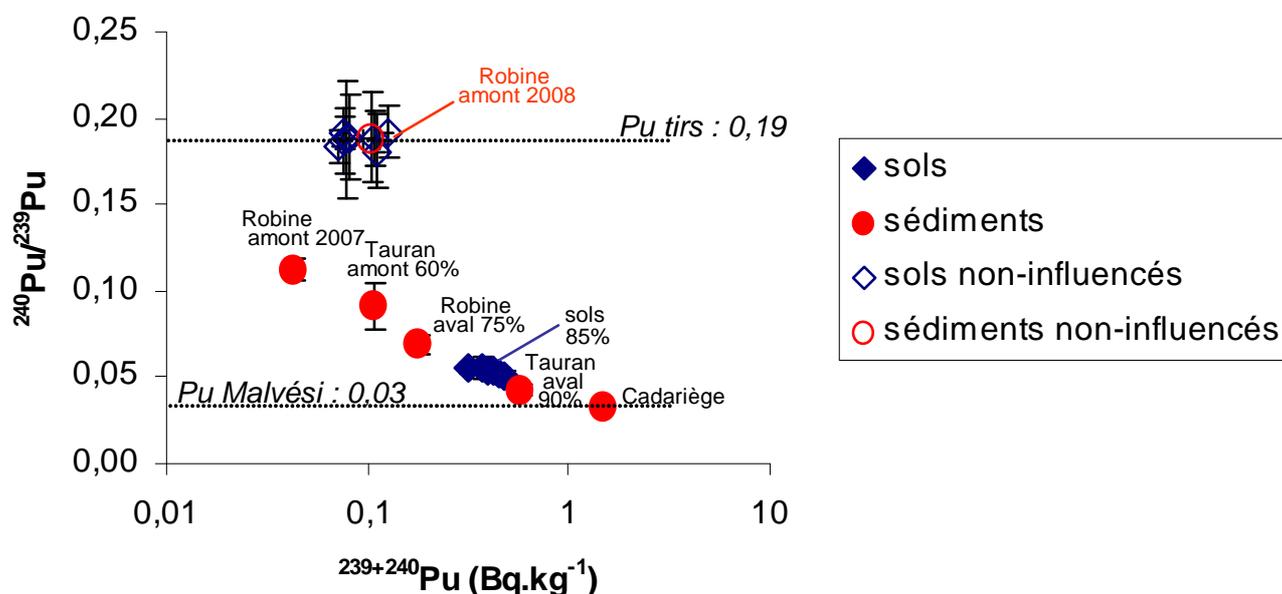


Figure 8 : Rapport isotopique  $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  en fonction de l'activité (en  $\text{Bq.kg}^{-1}$ ) en plutonium des sols et des sédiments dans l'environnement de Malvési et part du plutonium provenant de Malvési (en %).

La référence que constituait le prélèvement de sédiments réalisé en 2007 dans la Robine, en amont hydraulique du rejet (écluse de Rahonel) ( $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu} = 0,11$ ), est probablement légèrement influencée par les rejets atmosphériques de Malvési. A contrario, la signature des sédiments prélevés plus en amont, à Moussoulens en 2008 ( $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu} = 0,19$ ) est comparable à celle des sols non influencés, elle-même étant très proche de celle des retombées globales de plutonium dans la basse-vallée du Rhône (Duffa, 2001).

Si la signature du bruit de fond a pu être déterminée avec précision, le rapport isotopique du rejet en plutonium correspondant à la purification de l'uranium de retraitement sur le site de Malvési entre 1960 et 1983 n'est malheureusement pas connu. Pour contourner cette difficulté, nous avons fait l'hypothèse que le rapport isotopique des sédiments de Cadariège, qui sont les plus contaminés en Pu ( $1,5 \text{ Bq.kg}^{-1}$ ), est probablement très proche de la signature du rejet. Nous avons estimé la part des transuraniens provenant des rejets, dans chaque échantillon grâce à une équation de mélange qui tient compte des signatures des deux sources (figure 8).

#### 7.2.4 LES SOURCES DE $^{99}\text{Tc}$

La source primaire de ce radioélément est les bassins d'entreposage du site. Ainsi, en milieu terrestre,  $^{99}\text{Tc}$ , qui diffuse sous forme d'embruns, est à l'origine du marquage des feuilles de cyprès prélevées à Livière haute.

Cependant, du fait des pratiques anciennes en termes de rejet en milieu aquatique, les anciens émissaires constituent à l'heure actuelle une source secondaire de ce radionucléide comme en témoignent les mesures des végétaux et des sédiments prélevés dans le Canal de Cadariège et le Bassin de Régulation, dont les activités sont comparables à celles observées par l'IPSN en 1992.

### 7.3 CALCUL DES DOSES UNITAIRES D'INGESTION

Les doses unitaires liées à l'ingestion d'un kilogramme de blé et de légumes feuilles analysés en 2008 ont été calculées en suivant des hypothèses identiques à celles retenues dans le rapport dans lequel l'IRSN évalue les doses d'ingestion du blé et des fruits échantillonnés en 2007 (rapport IRSN/DEI/SESURE 2009-02) (Tableau 17).

	<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>
87 blé	1,0.10 <sup>-05</sup>	95 blette	3,1.10 <sup>-06</sup>
88 blé	1,8.10 <sup>-05</sup>	103 salade	1,2.10 <sup>-06</sup>
89 blé	1,1.10 <sup>-05</sup>	105 blette	8,2.10 <sup>-06</sup>
91 blé	1,2.10 <sup>-05</sup>	96 salade	2,0.10 <sup>-06</sup>
98 blé	1,2.10 <sup>-05</sup>	104 salade	6,6.10 <sup>-07</sup>

Tableau 17 : Doses d'ingestion calculées dans le cas d'un d'adulte consommant un kilogramme de blé ou de légumes feuilles prélevés dans l'environnement de Malvési (en Sv.kg<sup>-1</sup> frais de denrée).

Les doses liées à l'ingestion d'un kilogramme de blé ou de légumes feuilles, échantillonnés en 2008, sont presque exclusivement liées à la radioactivité naturelle. Plus précisément, les contributions à ces doses du  $^{210}\text{Po}$  et du  $^{210}\text{Pb}$ , deux radionucléides descendants du radon atmosphérique, sont importantes comme l'atteste également la corrélation entre la dose par ingestion et l'activité en  $^{210}\text{Pb}$  observée (figure 9).

Par ailleurs, la dose estimée pour l'ingestion d'un kilogramme de blé provenant de la zone non influencée par les rejets de Malvési (n°98 : 12  $\mu\text{Sv.kg}^{-1}$  ingéré) se situe sur la même droite de corrélation établie à partir des autres échantillons.

Les doses liées à l'ingestion du blé (> 10  $\mu\text{Sv.kg}^{-1}$  ingéré) sont supérieures aux doses découlant de l'ingestion de légumes feuilles (0,6 à 8,2  $\mu\text{Sv.kg}^{-1}$  ingéré). Ceci s'explique par le fait que

les activités de ces deux radionucléides ( $^{210}\text{Po}$  et  $^{210}\text{Pb}$ ) sont toujours plus importantes dans le blé que dans les légumes feuilles en raison d'une durée de culture plus longue qui induit une durée d'exposition plus longue aux retombées atmosphériques.

La part de la dose provenant du marquage par la radioactivité provenant de Malvésí (isotopes de l'uranium,  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{239+240}\text{Pu}$  et  $^{230}\text{Th}$ ) est beaucoup plus faible pour le blé prélevé en 2008 (3,2 %) que pour celui prélevé en 2007 (34 %) (figure 10). Néanmoins, cette diminution significative entre 2007 et 2008 de la contribution des radionucléides provenant de l'usine de Malvésí dans la dose par ingestion du blé, ne se traduit pas par une diminution globale de cette dose, car elle est compensée par une augmentation des activités du  $^{210}\text{Pb}$  et du  $^{210}\text{Po}$ , d'origine exclusivement naturelle ; cette variation est tout à fait cohérente avec les fluctuations habituellement observées.

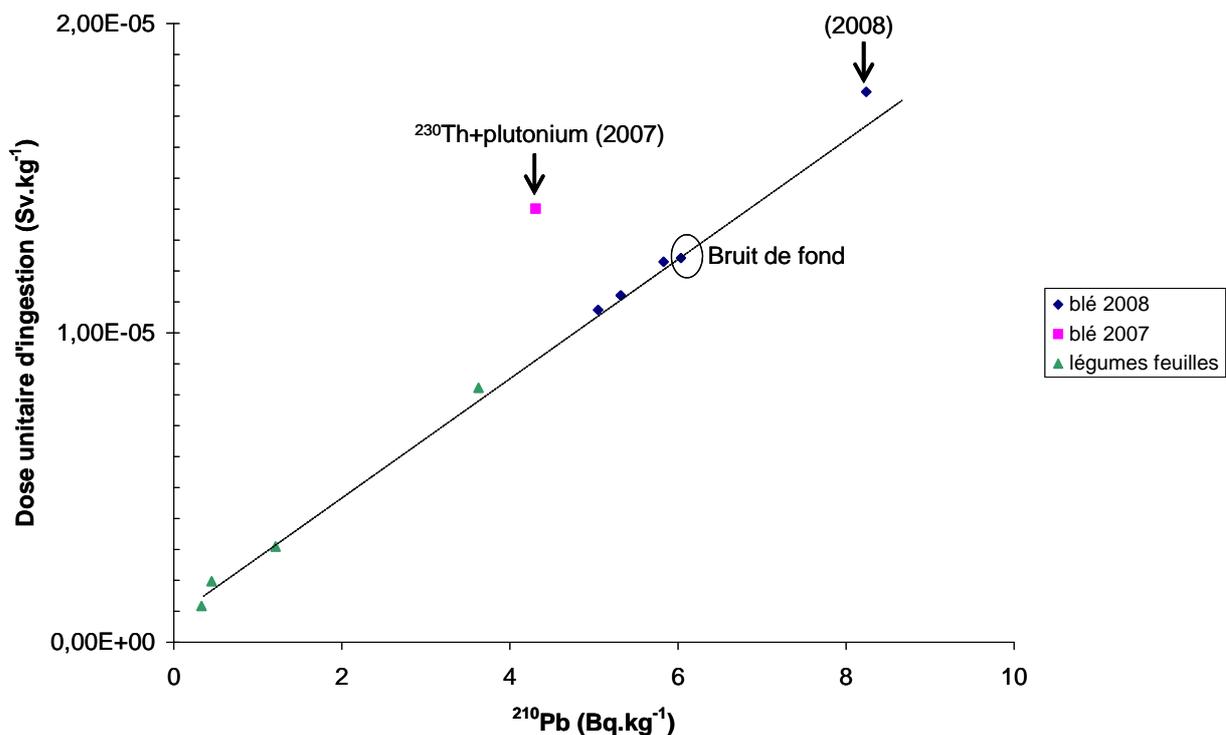


Figure 9 : Dose unitaire liée à l'ingestion du blé et des légumes feuilles dans l'environnement du site de Malvésí en fonction de l'activité en  $^{210}\text{Pb}$  dans ces denrées.

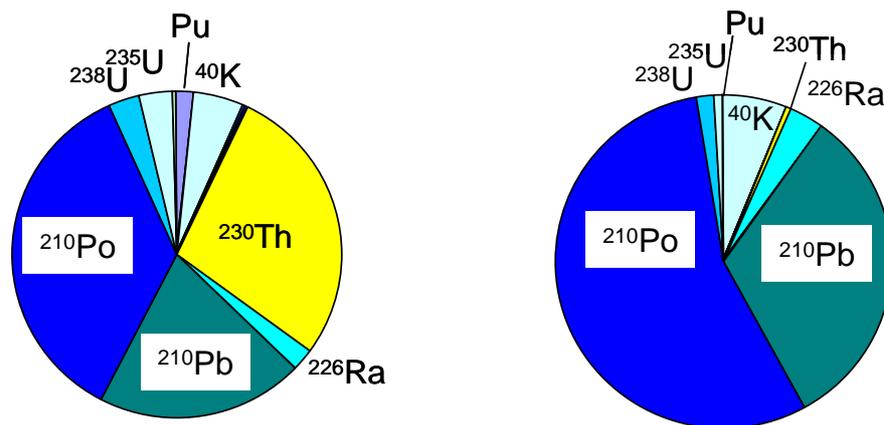


Figure 10 : Les principaux radionucléides qui contribuent à la dose due à l'ingestion pour un adulte du blé prélevé en 2007 (à gauche) puis en 2008 (à droite), à 50 m environ de la clôture Est de Malvés, dans la même parcelle (en %).

## 8 CONCLUSION SUR LES ÉTUDES MENEES EN 2007 ET 2008 PAR L'IRSN AUTOUR DU SITE DE MALVÉSI ET NOUVELLES RECOMMANDATIONS

L'étude radioécologique menée en 2008 à la demande d'AREVA-NC dans l'environnement du site COMURHEX de Malvési (Aude), objet du présent rapport, a permis de répondre aux questions et recommandations de l'IRSN faites à l'issue de la précédente étude de 2007 (rapport IRSN/DEI/SESURE 2008-20).

L'étude de 2007 a montré que l'influence des rejets de l'installation de Malvési sur son environnement proche est visible aussi bien dans le milieu terrestre (sols, blé, fruits et feuilles de cyprès prélevés sous les vents dominants jusqu'à 1 km à l'est de la clôture du site), que dans le milieu aquatique (eaux, sédiments, flore et faune aquatique dans les canaux du Tauran et de Cadariège et jusqu'à l'aval du canal de la Robine). Ce marquage de l'environnement se traduit par des activités en uranium et en ses descendants ainsi qu'en plutonium, plus élevées à proximité immédiate du site en comparaison de la zone non influencée. Ainsi ont été observées des activités en uranium 20 fois plus élevées dans les figues prélevées à 20 mètres de la clôture ( $10 \mu\text{g.kg}^{-1}$  frais) que dans celles prélevées à 1 km, et jusqu'à 100 fois plus élevées dans les feuilles de cyprès par rapport aux feuilles échantillonnées dans la zone non influencée.

Toutefois, parmi toutes les analyses effectuées en 2007, seules les activités élevées en plutonium et  $^{230}\text{Th}$ , mesurées dans un échantillon de blé prélevé à 50 mètres à l'Est de la clôture de site ( $0,4 \text{ Bq.kg}^{-1}$  en  $^{239+240}\text{Pu}$ , soit 1000 à 10 000 fois supérieures à celles mesurées habituellement en France), nécessitaient de préciser leurs conséquence, origine et rémanence. La dose résultant de l'ingestion du blé par un adulte a été évaluée ; elle serait de  $14 \mu\text{Sv}$  par kilogramme ingérée (rapport IRSN/DEI/SESURE 2009-02). 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 la radioactivité naturelle ( $^{210}\text{Pb}$  et  $^{210}\text{Po}$  notamment, issus de la désintégration du radon atmosphérique).

Cette contamination élevée du blé observée en 2007 n'a pas pour origine les rejets atmosphériques de l'usine COMURHEX mais la remise en suspension de particules provenant de bassins d'entreposage de déchets. L'hypothèse d'une remise en suspension renforcée par des travaux de terrassement effectués à cette période est confirmée par la teneur en plutonium de l'échantillon de blé (40 fois moindre), prélevé en 2008 au même endroit. Elle est également confirmée par la non-détection dans l'échantillon de blé de 2008 de l' $^{236}\text{U}$ ,

alors que ce radionucléide, ayant également pour origine les bassins d'entreposage, avait été observé dans l'échantillon de 2007 (Rapport IRSN/DEI/SESURE 2009-03).

Cette nette diminution entre 2007 et 2008 de la contamination du blé par des radionucléides provenant de l'installation, conduit à une diminution de leur contribution à la dose liée à l'ingestion, qui n'est plus que de 3,2 % en 2008 (contre 34% en 2007). Néanmoins, cette diminution de l'influence de l'installation ne se traduit pas par une diminution globale de la dose par ingestion de blé entre 2007 et 2008, car elle est compensée par une augmentation de l'activité du  $^{210}\text{Pb}$  et du  $^{210}\text{Po}$ , d'origine naturelle ; cette variation est tout à fait cohérente avec les fluctuations habituellement observées.

Les doses liées à l'ingestion d'un kilogramme des fruits échantillonnés en 2007 et des légumes feuilles échantillonnés en 2008, ont également été évaluées. Elles sont presque exclusivement dues à la radioactivité naturelle :  $^{40}\text{K}$  pour les fruits,  $^{210}\text{Po}$  et  $^{210}\text{Pb}$  pour les légumes feuilles.

Le second objectif de cette étude était de mieux délimiter la zone sur laquelle les différentes sources de radionucléides provenant de l'installation conduirait à un marquage visible de l'environnement. Cette étude montre que les activités des végétaux en uranium et ses descendants diminuent très vite dès lors que l'on s'écarte de la direction des vents dominants ou que l'on s'éloigne de l'installation. Ainsi, à plus de 1000 mètres de la clôture du site, l'influence de l'installation n'est plus visible comme en témoignent les feuilles de cyprès. De même, les trois échantillons de blé prélevés à l'est du site à une centaine de mètres de distance les uns des autres sur une ligne orientée globalement Nord-Sud et donc perpendiculaire aux vents dominants, présentent des activités en  $^{238}\text{U}$  qui diminuent rapidement : 6,8 Bq.kg<sup>-1</sup> frais, 1,2 Bq.kg<sup>-1</sup> frais et 0,3 Bq.kg<sup>-1</sup> frais, à comparer à un bruit de fond hors influence de l'ordre de 0,1 Bq.kg<sup>-1</sup> frais.

Enfin, cette étude radioécologique 2008 a permis de confirmer les différentes sources et voies de transfert des radionucléides provenant de l'installation identifiées en 2007, à savoir les rejets atmosphériques à la cheminée et la remise en suspension de particules provenant des bassins d'entreposage. Elle a aussi révélé une autre voie de transfert par la présence de  $^{99}\text{Tc}$  dans les feuilles de cyprès. Ce radionucléide, issu de l'uranium de retraitement converti à Malvési entre 1960 et 1983 et aujourd'hui présent dans les bassins, est très soluble dans l'eau en conditions oxydantes et probablement transféré au milieu terrestre *via* des embruns provenant des bassins.

Il faut toutefois souligner que ce bilan radioécologique a été focalisé sur les compartiments terrestre et aquatique. Il ne rend pas compte de l'état radiologique des nappes phréatiques pour lesquelles peu de données ont été acquises dans le cadre de l'étude de 2007 et qui

n'étaient pas, non plus, l'objet du présent rapport. Par ailleurs, ce bilan ne permet pas de connaître les activités dans l'air, notamment en uranium, plutonium et  $^{230}\text{Th}$ , à l'origine du marquage observé dans les végétaux. Cette lacune ne pourrait être comblée que par des mesures de très bas niveau d'activité des aérosols atmosphériques prélevés sous les vents dominants.

## 9 BIBLIOGRAPHIE

- AIEA, 1994. Handbook of parameter values for the prediction of the radionuclides transfer in temperate environments, IAEA Technical Report n° 364, Vienne.
- Baudin-Jaulent, Y. 1993. Etude radioécologique du site de Malvési (COMURHEX), année 1992, rapport IPSN/SERE 93/081, 40 p.
- Duffa, C., 2001. Répartition du plutonium et de l'Américium dans l'environnement terrestre de la Basse Vallée du Rhône, Thèse univ. Aix-Marseille III.
- IRSN/DEI/SESURE 2008-20, 2008. Etude radioécologique de l'environnement du site de Malvési (société COMURHEX), 67 p.
- IRSN/DEI/SESURE 2009-03, 2009. Contribution des rapports des isotopes de l'uranium à l'évaluation des rejets dans l'environnement, 29 p.
- IRSN/DEI/SESURE 2009-02, 2009. Évaluation de la dose d'ingestion unitaire de certaines denrées alimentaires provenant de l'environnement du site COMURHEX de Malvési, 14 p.