

IRSN

INSTITUT
DE RADIOPROTECTION
ET DE SÛRETÉ NUCLÉAIRE

Etude radioécologique de l'environnement du site de Malvési (société COMURHEX)

DIRECTION DE L'ENVIRONNEMENT ET DE
L'INTERVENTION

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



Demandeur	AREVA-NC (Commande n° 40018412 du 01/06/2007)
N° projet/processus de rattachement	Projet 3.1.2.13 - R5

**Etude radioécologique de l'environnement du site
 de Malvézi (société COMURHEX)**

Laurent Pourcelot, Gaël Le Roux

Laboratoire d'Etudes Radioécologiques Continentales et Marines

DEI/SESURE/2008-20

	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	P. RENAUD	J-M. PERES	D. CHAMPION	J. REPUSSARD
Dates	23/10/2008	28/10/2008	28/10/08	28/10/08	
Signatures					

DIFFUSION : Libre Interne Limitée

Denis BOULAUD

Adjoint au Directeur de l'Environnement et de l'Intervention

LISTE DES PARTICIPANTS

Nom	Organisme
B. Boulet	IRSN/DEI/STEME/LMRE
X. Cagnat	IRSN/DEI/STEME/LMRE
C. Cossonnet	IRSN/DEI/STEME/LMRE
J. Guillevic	IRSN/DEI/SARG/BRN
R. Gurriaran	IRSN/DEI/STEME/LMRE
C. Le Corre	IRSN/DEI/STEME/LMRE
G. Le Roux	IRSN/DEI/SESURE/LERCM
J-M Métivier	IRSN/DEI/SECRE/LME
D. Mourier	IRSN/DEI/SESURE/LERCM
L. Pourcelot	IRSN/DEI/SESURE/LERCM

RESUME

Ce rapport présente les résultats de l'étude radioécologique du site COMURHEX de Malvési (Aude) menée par l'IRSN à la demande d'AREVA. Les prélèvements et les mesures montrent que l'impact des rejets de cette installation est visible en champ proche en milieu terrestre (sols et végétaux) et en milieu aquatique (eaux, sédiments et végétaux).

En milieu terrestre, les données confirment une contamination de l'atmosphère par les rejets chroniques en uranium liés à l'exploitation de l'installation (cheminées des fours) et les rejets diffus, certainement plus ponctuels, induits par des mises en suspension de poussières issus des bassins de décantation de l'installation. L'uranium rejeté est visible dans les fruits (figues, raisin, tomates et prunes) et les céréales (blé). Les activités significatives en $^{239+240}\text{Pu}$ et ^{241}Am qui ont été observées, témoignent d'une source contamination ancienne en relation avec l'exploitation passée de l'installation.

En milieu aquatique, des marquages en relation avec l'exploitation du site sont détectés en aval éloigné du site (aval du canal de la Robine)

ABSTRACT

MOTS-CLES

Malvési, uranium, plutonium, rejets

SOMMAIRE

1 INTRODUCTION	6
2 PRESENTATION DE L'USINE COMURHEX DE MALVESI	7
2.1 GENERALITES.....	7
2.2 PROCEDE DE FABRICATION DU TETRAFLUORURE D'URANIUM	7
2.3 LES BASSINS DE DECANTATION, D'EVAPORATION ET LE BASSIN DE REGULATION	9
2.4 LES REJETS DANS L'ENVIRONNEMENT.....	11
2.4.1 Rejets atmosphériques.....	11
2.4.2 Rejets aquatiques.....	12
2.5 AIRES D'ENTREPOSAGE	13
2.6 INCIDENTS RECENTS	14
2.7 LES DIFFERENTES ETUDES DANS L'ENVIRONNEMENT DU SITE DE MALVESI.....	14
3 PRINCIPALES CARACTERISTIQUES DE L'ENVIRONNEMENT DU SITE DE MALVESI .	15
3.1 ENVIRONNEMENT TERRESTRE	15
3.2 ENVIRONNEMENT AQUATIQUE.....	16
4 STRATEGIE DE PRELEVEMENT	18
4.1 MILIEU TERRESTRE	18
4.2 MILIEU AQUATIQUE.....	20
5 METHODES DE PRELEVEMENT, DE TRAITEMENT ET D'ANALYSE DES ECHANTILLONS	23
5.1 METHODES DE PRELEVEMENT ET DE TRAITEMENT	23
5.2 METHODES D'ANALYSES	23
6 PRESENTATION DES RESULTATS.....	25
6.1 MILIEU TERRESTRE	25
6.1.1 Les sols.....	25
6.1.2 Les bioindicateurs terrestres.....	30
6.1.3 Les fruits.....	33
6.2 MILIEU AQUATIQUE.....	37
6.2.1 Les sédiments.....	37
6.2.2 Les eaux de surface.....	42
6.2.3 Les végétaux aquatiques.....	44
6.2.4 Les poissons	47
6.2.5 Les eaux souterraines	48
7 INTERPRETATION DES RESULTATS	49
7.1 MILIEU TERRESTRE	49
7.1.1 Les sols.....	49
7.1.2 Les végétaux	52
7.2 MILIEU AQUATIQUE.....	55
7.3 LES TRANSURANIENS	56
8 SYNTHESE ET RECOMMANDATIONS	60
9 BIBLIOGRAPHIE	62
10 ANNEXES	64

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 Malvés (Aude), l'IRSN a effectué en 2007 une étude de l'environnement de ce site, basée sur des mesures d'échantillons prélevés en milieu aquatique et en milieu terrestre. Le présent rapport, qui constitue le résultat de ce travail, expose :

- les activités industrielles actuelles et passées, ainsi que la description de l'environnement terrestre et aquatique du site (chapitres 2 et 3),
- la stratégie de prélèvement en milieu terrestre et en milieu aquatique ainsi que les méthodes de prélèvement, de traitement et de métrologie de l'uranium et de ses descendants (chapitres 4 et 5),
- l'essentiel des résultats de mesure, leur interprétation et des recommandations en termes de mesures complémentaires (chapitres 6 à 8).

Cette étude complète, conformément aux modalités de déroulement du contrat, un premier rapport de synthèse des mesures réalisées antérieurement concernant l'impact sur l'environnement de ce site (rapport IRSN/DEI/SESURE 2007-61).

2 PRESENTATION DE L'USINE COMURHEX DE MALVESI

2.1 Généralités

Installée sur l'emplacement actuel depuis 1959, l'usine COMURHEX de Malvési est spécialisée dans la production de fluorure d'uranium (UF_4). La superficie totale du site est de 100 ha. Une double enceinte enclot les 22 ha du site industriel proprement dit. La surface construite couvre 2,2 ha. Les bassins de décantation et d'évaporation des eaux représentent une surface totale de 18,35 ha. Sur la partie Nord du site est située une aire de stockage des concentrés d'uranium d'une capacité de 25 000 tonnes, pouvant être portée à 40 000 tonnes. Il s'agit d'une des plus importantes usines de conversion de l'uranium au monde. Dans les années 60, la production annuelle était de l'ordre d'un millier de tonnes d'uranium par an. Elle a augmenté progressivement au cours de la décennie suivante, atteignant environ 10 000 tonnes par an à partir de 1978, pour être aujourd'hui de 14 000 tonnes d' UF_4 , soit le quart de la production mondiale (Figure 1).

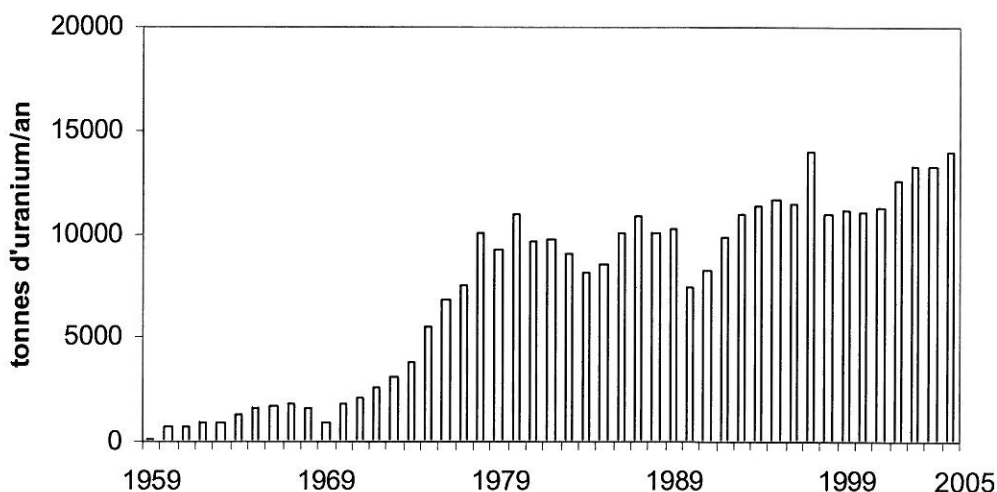


Figure 1 : Evolution de la production d'uranium de l'usine COMURHEX de Malvési entre 1959 et 2005 (en tonnes d'uranium par an) (d'après COMURHEX, 2006)

Par ailleurs, l'usine de Malvési a reçu en provenance de Marcoule de l'uranium de retraitement (URT), sous forme de nitrate d'uranyle, entre 1960 et 1983. On montrera que la purification de ce combustible retraité a occasionné des rejets en transuraniens dans l'environnement du site de Malvési.

2.2 Procédé de fabrication du tétrafluorure d'uranium

Après réception, les concentrés miniers ou « yellow cake » sont mis en solution dans de l'acide nitrique pour obtenir du nitrate d'uranyle (Figure 2). Cette solution est ensuite

purifiée dans des colonnes où s'effectue un échange entre la solution de nitrate d'uranyle et du tributyl-phosphate (TBP). A ce stade, l'uranium répond aux exigences de pureté définies pour une utilisation dans les réacteurs nucléaires.

La solution obtenue est ensuite concentrée. Par injection d'ammoniac gazeux, on obtient le diuranate d'ammonium. Celui-ci est calciné à 500°C pour obtenir du trioxyde d'uranium. Ce dernier, par passage dans une batterie de fours verticaux, est d'abord réduit en dioxyde d'uranium (UO₂), puis transformé en tétrafluorure d'uranium (UF₄) par hydrofluoration dans un courant d'acide fluorhydrique gazeux.

Par la suite, le tétrafluorure d'uranium (UF₄) est envoyé dans les ateliers de l'usine de Pierrelatte (Drôme) où il est transformé en hexafluorure (UF₆) par addition de fluor gazeux.

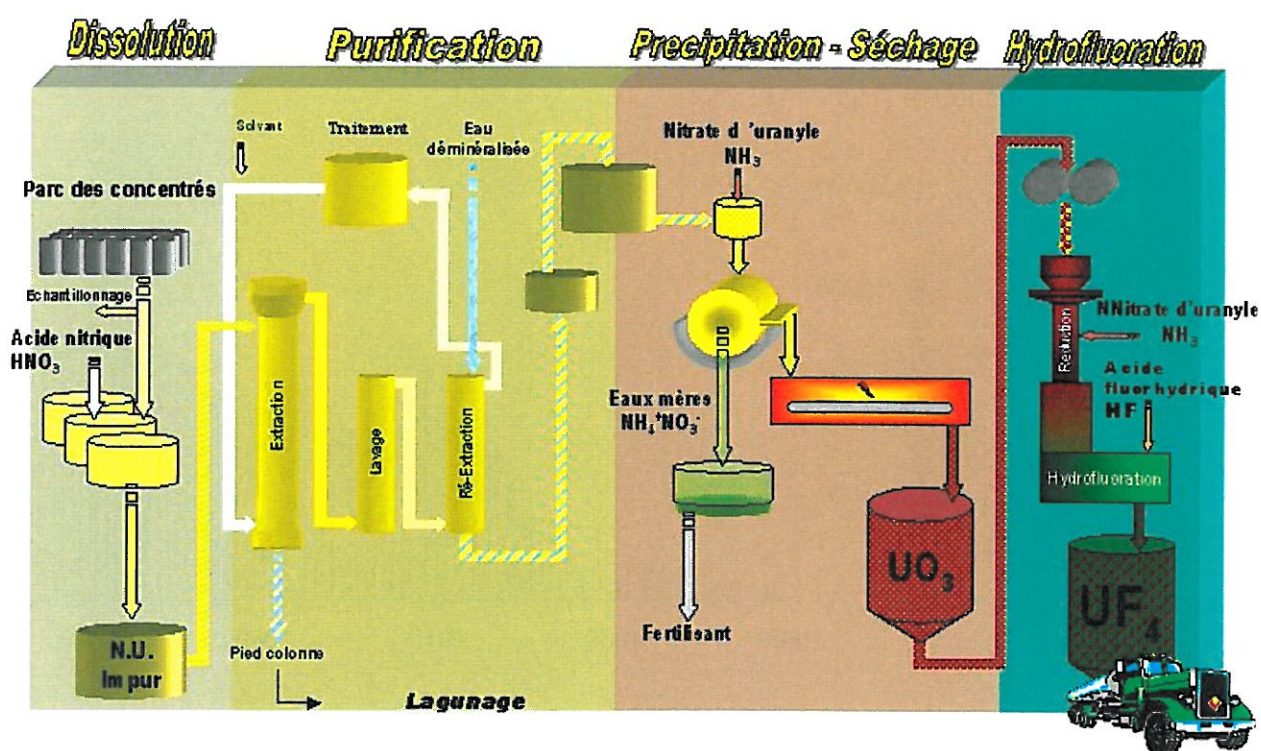


Figure 2 : Procédé de conversion de l'UF₄ (d'après COMURHEX, 2006)

Les principales installations composant l'établissement de Malvési sont :

- l'atelier de dissolution de l'uranium qui utilise l'acide nitrique ;
- l'atelier de purification qui comporte une importante colonne de purification agitée, permettant d'obtenir la pureté souhaitée. Le but est d'extraire l'uranium par un solvant organique à 40% de TBP (Tributylphosphate) et 60% d'ISOPAR, qui fixe le nitrate d'uranyle sous forme d'un complexe. C'est au sommet de la colonne que sort l'uranium dans sa phase

organique. Au bas de la colonne sort la solution aqueuse contenant les impuretés et le peu d'uranium non extrait ;

- l'atelier de précipitation où les solutions de nitrate d'uranyle purifiées sont précipitées sous forme de diuranate d'ammonium insoluble par injection d'ammoniac gazeux, puis séparées. Les étapes suivantes sont le séchage (300-350°C), puis la calcination (450°C). On obtient ainsi du trioxyde d'uranium solide (UO₃) de couleur orangée ;

- l'atelier de réduction-hydrofluoruration dans lequel s'opère la réduction en dioxyde (UO₂), puis la fluoruration du dioxyde d'uranium en tétrafluorure dans des fours (500°C) ;

- l'atelier de récupération de l'uranium contenu dans les déchets. L'uranium récupéré dans cet atelier se présente sous forme de solution nitrique réinjectée au stade de la purification. Les produits liquides ou solides, chargés d'impuretés, sont envoyés dans les bassins de décantation et d'évaporation, après neutralisation à la chaux.

2.3 Les bassins de décantation, d'évaporation et le Bassin de Régulation

Les bassins de décantation et d'évaporation constituent les exutoires des effluents de l'usine (Figure 3). On distingue :

- les bassins de décantation et d'évaporation (B1-B2, B3, B5 et B6) qui ont été établis sur un massif de stériles provenant d'une ancienne mine de soufre à ciel ouvert (actuel Bassin de Régulation), d'une douzaine de mètres de haut. La capacité de rétention des bassins B1-B2-B3 est de 308 000 m³ et celle des bassins B5-B6 est de 95 000 m³. Après la rupture de la digue des bassins B1-B2 en 2004 (cf. paragraphe 2.6), les effluents ont été envoyés dans les bassins B5-B6 ;

- Les bassins d'évaporation (B7, B8, B9, B10 et B11) ont été établis en contrebas des précédents, entre 1980 et 2004. Le bassin B10 a été créé en 2004, suite à la rupture de digue de mars 2004. Un nouveau bassin est actuellement en cours d'aménagement (B11). La capacité de rétention s'établit à 210 000 m³ pour les bassins B7, B8, B9, à 120 000 m³ pour B10 et à 70 000 m³ pour B11.

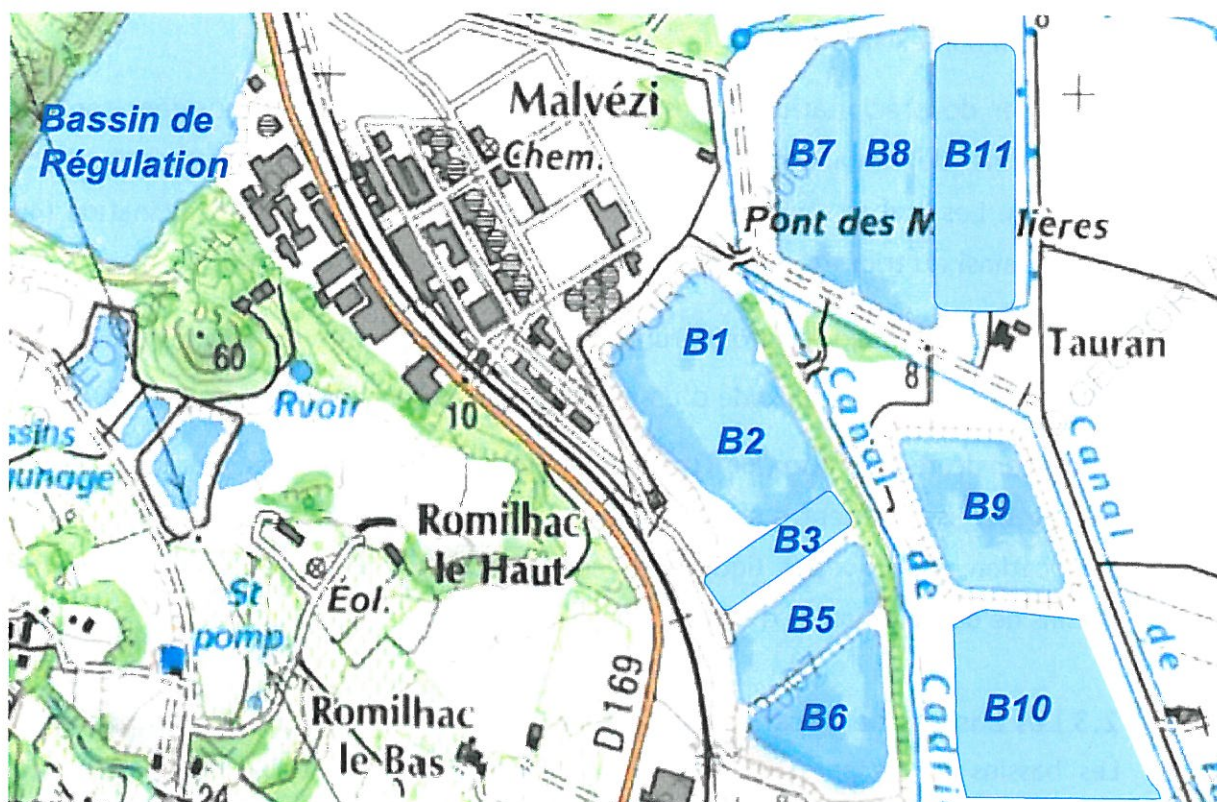


Figure 3 : Localisation des bassins de décantation et d'évaporation et du Bassin de Régulation

Les bassins de décantation et d'évaporation sont destinés à recevoir les effluents essentiellement issus des pieds de colonnes de l'atelier de purification, après passage par l'atelier de récupération. Les effluents sont neutralisés à la chaux, traitement qui fixe les isotopes de l'uranium et leurs descendants (^{230}Th , ^{234}Th et ^{234}Pa , principalement) et les autres métaux sous forme de sels hydroxydes insolubles. Les boues, dont les sels d'uranium, se déposent au fond des bassins par décantation. A ce titre, les boues sont considérées comme déchets radioactifs dans l'inventaire ANDRA de l'observatoire des déchets (fiche LAR n° 5) (Tableau 1). Selon COMURHEX, les solutions nitratées (contenant les radioéléments solubles, principalement : ^{99}Tc , ^{226}Ra , ^{214}Bi , ^{210}Pb) constituant le surnageant sont transférées vers les bassins d'évaporation. D'autre part, le traitement de matières issues de la filière de l'uranium de retraitement (URT) en provenance de Marcoule (1960-1983) entraîne la présence de transuraniens (isotopes du plutonium, américium) et technétium dans les boues des bassins.

Le Bassin de Régulation est à l'emplacement de l'ancienne mine de soufre à ciel ouvert exploitée entre 1935 et 1950. Actuellement utilisé pour la collecte des rejets des usines de COMURHEX, il couvre une superficie de 77 000 m² environ pour un volume de 1,3 millions de m³ d'eau. Ce bassin artificiel présente une profondeur maximale de 40 m vers le sud. Le

Bassin de Régulation a été utilisé dès l'origine comme bassin tampon pour le rejet des eaux usées de l'usine de COMURHEX. Les boues sédimentées contiennent 7,9 tonnes d'uranium naturel (Tableau 1). A l'heure actuelle, ce bassin recueille les eaux de refroidissement, les eaux de purge, les eaux pluviales et les eaux de vannes de l'installation. Selon COMURHEX, le Bassin de Régulation cessera d'être utilisé dès la mise en place d'une boucle de refroidissement fermée (en cours de réalisation) et la réfection des réseaux de collecte et de traitement des eaux, à compter du 1-12-2007.

Bassin	Nature des déchets	Activité U
B1, B2	Dépôts nitrates (322 t d'U)	46,7 TBq
B1, B2	Terre inerte (< 1 t d'U)	75 GBq
B3, B5, B6	Dépôts nitrates	0,2 GBq
B7, B8, B9, B10	Dépôts nitrates	0,43 TBq
Bassin de Régulation	Boues sédimentées (7,9 t d'U)	0,4 TBq

Tableau 1 : Inventaire des bassins de décantation, d'évaporation et du Bassin de Régulation (d'après l'Inventaire National des Déchets radioactifs, ANDRA Fiche LAR5, mise à jour juin 2005)

2.4 Les rejets dans l'environnement

2.4.1 Rejets atmosphériques

Le tableau 2 présente le détail des émissions en uranium par émissaire entre 2000 et 2005. Les rejets atmosphériques d'uranium sous forme de poussières proviennent essentiellement des ateliers de précipitation et surtout de fluoruration (environ 87 % du total émis dans l'atmosphère).

		2000	2001	2002	2003	2004	2005
Dissolution	D2202	0,1	1,6	0,9	< 0,4	1,4	1,4(4)
	Vidange concentrés	0,3	0,3	- (2)	2,1	0,4	0,1
Récupération	C204	0,8	0,1	0,9	21,4	1,3	11,1
Précipitation	S3001	*	*	*	*	*	
	F3023	79,7	65,3	45	33		
	F3063	125,5	23	48	14,2		
	Cheminée unique				18,2	48,2	3,1
	Filtre S3090	**	0,01	0,002	0,07	0,4	0,01
Fluoruration	Tour KOH	0,4	0,006	0,11	0,18	0,3	0,3
	Four LC (1)	40	***	87	776	66,5	58,7
		50	6,6 ***	***	261	69	37,2
		60	76,8	107,6	325	69	75,6
		70	60,9	0,03 ***	726	71,6	5,5
		80	28,5	133,5	***	69	59,9
	Filtre (AAF) S3490	44,0	2,0	20	0,07	5,1	0,05
Source d'échantillonnage		0,3	0,03	1,8	0,04	0,4	0,06
Chaudières	1	0,7	0,03	0,51	9,0	1,1	
	2	0,4	0,08	2,68	4,3	0,43	
Incinérateur		0,4	0	0,22 0,23 (3)	0,1	0,2	0,5
Décontamination			0,08	1,1	2,3	NR	0,02
Laboratoire	Rejet		Est (voie ferré)	5,0	0,14	1,3	4,6
			Ouest (côté route)	0,6	0,10	1,9	1,3
Total		425,4	426,3	2210	454	302	132,7

* pas de prélèvement à cause d'un problème de sécurité

** Suppression du silo 90

*** Fours à l'arrêt ou fours en phase d'arrêt

(1) Le débit des cheminées des fours LC (40, 60, 70, 80) a été estimé à $100 \text{ Nm}^3 \cdot \text{h}^{-1}$, celui du four 50 à $150 \text{ Nm}^3 \cdot \text{h}^{-1}$

(2) Incident : Filtre absolu percé lors des mesures

(3) Mesure AINF de septembre 2002

(4) Pas d'analyse valeurs de 2004

(5) Résultats correspondant à la moyenne des concentrations sur les autres fours

Les valeurs sont des évaluations faites à partir d'une campagne de mesure annuelle (AINF juin 2002).

Tableau 2 : Rejets atmosphériques en uranium entre 2000 et 2005 (en $\text{kg} \cdot \text{an}^{-1}$), campagne de mesure annuelle (AINF) (d'après Montfort et Destacamp, 2006).

Des rejets atmosphériques particulièrement importants ont été quantifiés à partir des mesures réalisées en 2002 (2210 kg d'uranium rejetés). En 2005, le rejet atmosphérique d'uranium est de 133 kg. Le CEA/DAM a procédé à une reconstitution de l'historique des rejets à partir de mesures d'uranium dans l'air. A défaut de mesures, les rejets ont été extrapolés en supposant une proportionnalité entre le rejet annuel et la production annuelle (Guétat et Montfort, 2003).

2.4.2 Rejets aquatiques

Les rejets aqueux canalisés sont constitués par des effluents, des eaux de vannes, des eaux pluviales et des eaux industrielles provenant essentiellement des échangeurs de

refroidissement. A l'heure actuelle, ces rejets sont dirigés vers le canal de Tauran et le Bassin de Régulation. Les eaux de ruissellement d'origine pluviale sont collectées, canalisées et rejetées dans le Bassin de Régulation. Les effluents liquides diffus, issus des infiltrations au niveau des bassins de décantation et d'évaporation, sont dirigés vers le canal de Tauran. Avant 1999, ces rejets aqueux s'effectuaient dans le canal de Cadariège (voir paragraphe 3.2).

Les quantités annuelles d'uranium rejetées en milieu aquatique sont estimées par l'exploitant à l'aide des mesures des concentrations en uranium réalisées dans les effluents et des débits moyens annuels des canaux de Tauran et de Cadariège (environ 1500 m³.h⁻¹), considérés comme enveloppe (COMURHEX, 2006). En l'absence de mesures antérieures à 1977, les flux d'uranium ont été calculés par extrapolation, en faisant l'hypothèse que les rejets étaient proportionnels à la production annuelle (Figure 4). Pour la période récente (1999-2005), le rejet annuel aqueux est de l'ordre de 200 kg.an⁻¹ d'uranium (COMURHEX, 2006).

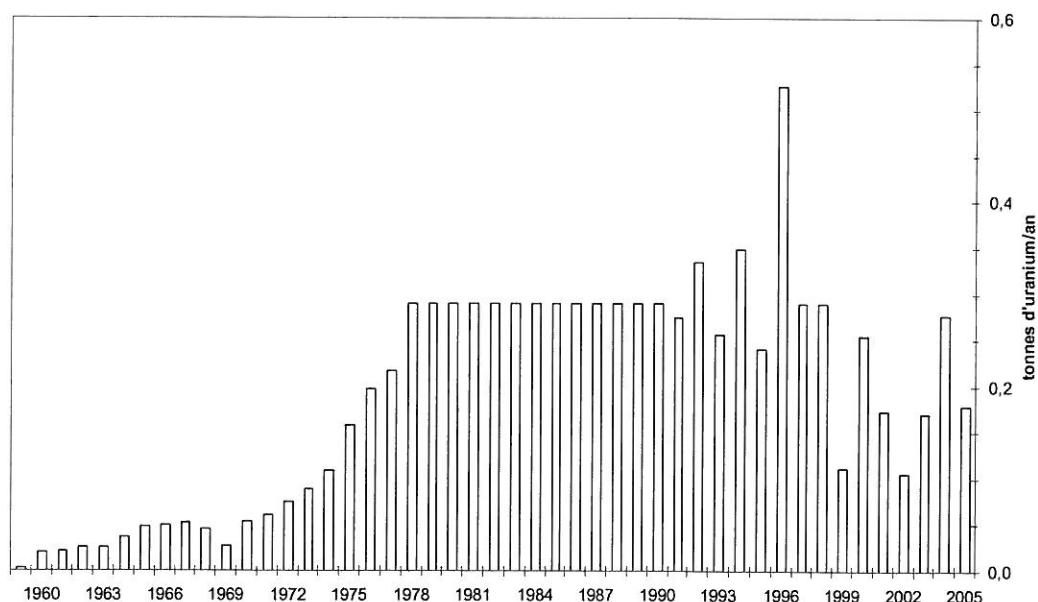


Figure 4 : Bilan des rejets annuels en uranium dans le milieu aquatique (d'après COMURHEX, 2006)

2.5 Aires d'entreposage

L'usine de Malvésy comporte des aires d'entreposage accueillant des concentrés uranifères, des matières uranifères recyclables sous diverses formes, des fûts vides avant ou après traitement et des déchets avant incinération ou évacuation. A l'extérieur, environ 35 000 t d'uranium peuvent être entreposées. Le hangar 41 peut entreposer sous couvert jusqu'à 2500 t d'uranium.

2.6 Incidents récents

Récemment, des incidents sont survenus dans l'installation, occasionnant des rejets de boues d'effluents :

- le 20 mars 2004, une digue du bassin de décantation B1-B2 a cédé. Des boues et des solutions nitratées, d'un volume total évalué à 15 000 m³ et issues de la purification de l'uranium, se sont réparties en contrebas de la digue, dans l'enceinte du site ;
- les fortes pluies des 28 et 29 janvier 2006 ont occasionné des inondations et l'arrêt de la production. Une surverse des eaux périphériques s'est opérée vers le canal de Tauran, sans débordement des cellules de boue et des bassins de lagunage. Par la suite, le très fort coup de vent du 5 mars 2006 a induit un débordement des bassins de lagunage vers les eaux périphériques, puis un débordement des eaux périphériques vers le canal de Tauran.
- en juin 2006, une fuite dans une conduite de transfert a occasionné un rejet de 350 m³ d'effluent dans l'environnement, entraînant la contamination de deux zones : l'une située à l'intérieur du périmètre COMURHEX, l'autre en limite extérieure du site, au niveau de deux voies ferrées (IRSN, 2006).

La CRIIRAD a effectué au moins deux missions de mesure de rayonnement gamma et de prélèvement à proximité du site, en mai 2003 et en septembre 2006, suite aux incidents (CRIIRAD, 2006). L'IRSN/DEI/SIAR est également intervenu en juillet 2006, à la demande de la DSNR de Marseille (IRSN, 2006).

2.7 Les différentes études dans l'environnement du site de Malvési

L'environnement terrestre et aquatique du site Comurhex de Malvési a fait l'objet d'études radioécologiques dans les années 80 et jusqu'en 1993, menées par l'IPSN, puis par le CEA/DAM en 2003. Les principaux résultats de ces études sont synthétisés dans un rapport récent réalisé par l'IRSN à la demande d'AREVA (rapport IRSN/DEI/SESURE 2007-61). De plus une étude de risques sanitaires a été réalisée par l'INERIS pour l'uranium à partir d'analyses dans le milieu naturel menées par URS (COMURHEX, 2006).

3 PRINCIPALES CARACTERISTIQUES DE L'ENVIRONNEMENT DU SITE DE MALVESI

3.1 Environnement terrestre

La plaine de l'Aude, où est localisée l'usine COMURHEX de Malvési, bénéficie d'un climat de type méditerranéen sec, chaud et venté. Ainsi, entre 1986 et 2005, les précipitations moyennes annuelles atteignent 651 mm.an^{-1} avec une forte variabilité du régime des pluies d'une année à l'autre (min. = 281 mm.an^{-1} / max. = 1175 mm.an^{-1}) (relevés Météo-France, station de Narbonne). Les directions prédominantes des vents apparaissent être les vents venant du secteur 280 à 300° , c'est-à-dire ouest-nord-ouest (Figure 5).

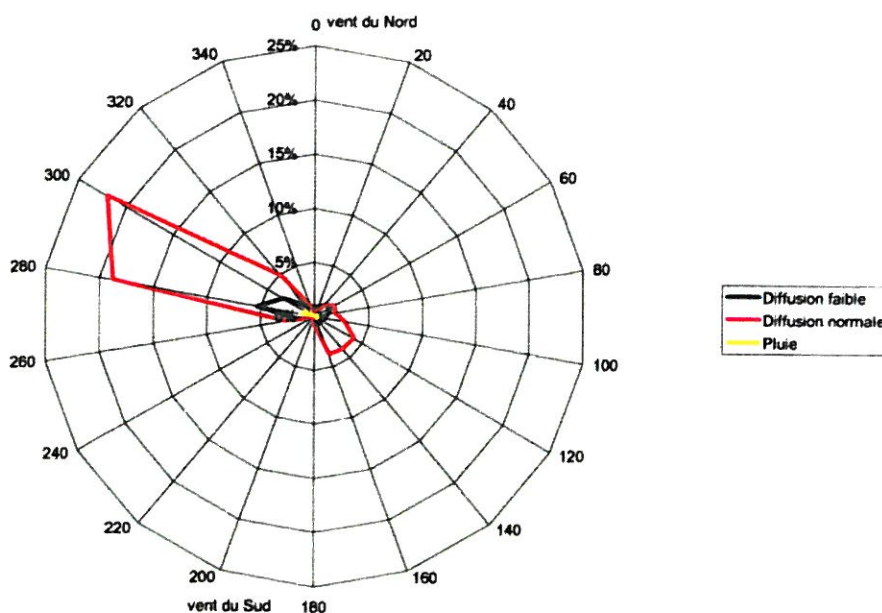


Figure 5 : Rose des vents moyenne pour les années 1995 à 2001, toutes vitesses de vents confondues, en fonction des classes de diffusion (d'après Guétat et Montfort, 2003).

Les environs immédiats de l'usine de Malvési sont peu peuplés, bien que ce site nucléaire soit situé à 3 km de la ville de Narbonne (46 000 habitants). Il s'agit pour l'essentiel d'habitats campagnards disséminés dans la plaine (« campagnes »). Ainsi, selon COMURHEX, environ huit personnes vivent dans un rayon de 500 m du site (lieu dit Romillac). Dans un rayon plus large (1 km), la population atteint environ 85 personnes, essentiellement au sud et au nord (Montlaurès).

L'omniprésence des petits canaux et de ruisseaux temporaires dans la plaine de la Livière permet l'installation d'une végétation de type ripisylve (saules, peupliers, aulnes, etc.), alors que l'environnement collinaire à l'ouest du site et à Montlaurès est davantage marqué par la présence de pins et d'oliviers. L'usine de Malvési est située au sud de la plaine

agricole de l'Aude. Les principales cultures agricoles dans l'environnement du site sont des vignes au nord et au nord-est (superficie de 160 ha, environ) et des cultures annuelles de céréales (blé, sorgo, etc.), de tournesol et de luzerne dans la Livière basse (superficie d'environ 250 ha). La quasi-totalité des « campagnes » de la plaine de la Livière comporte des jardins potagers réservés à une consommation familiale.

3.2 Environnement aquatique

En milieu aquatique, le rejet de l'usine de Malvésí s'effectue dans des canaux artificiels de la plaine alluviale de l'Aude (Figure 6). En mai 2000, le canal de Cadariège, dans lequel s'effectuait le rejet, a été comblé et il n'en subsiste aujourd'hui plus qu'un bras mort. Actuellement, le rejet a lieu en bordure Est du site, dans le Canal de Tauran. En amont, ce canal est alimenté par une résurgence : la Source de l'Oeillal.

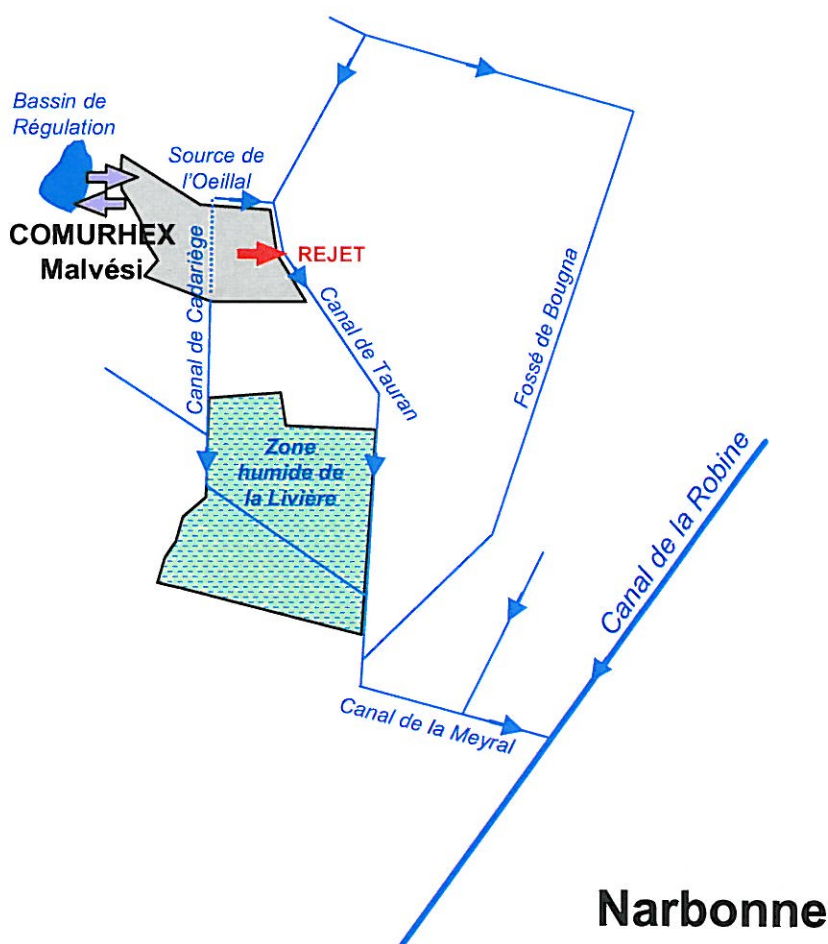


Figure 6 : Schéma des écoulements de surface dans l'environnement du site COMURHEX de Malvésí.

Les canaux de Tauran et de Cadariège traversent la petite zone humide de la Livière (50 ha environ) (Figure 7). Cette zone marécageuse, très riche d'un point de vue floristique et faunistique, a été conçue pour améliorer la vidange des eaux de crue de la plaine de l'Aude et permettre de diminuer les concentrations d'azote, de phosphate et de métaux lourds des

eaux des canaux. Cette zone humide fonctionne comme une zone tampon entre les apports d'eau de la plaine d'origine agricole, ceux de l'installation de COMURHEX et des eaux naturelles (source de l'Oeillal et canal de la Robine) (COMURHEX, 2006).



Figure 7 : Zone humide de la Livière, au bord du Canal de Tauran, situation normale (à gauche, juin 2007) et période d'assèchement (à droite, juillet 2007).

A l'aval du rejet, l'eau des canaux est ponctuellement utilisée pour l'irrigation des jardins familiaux (quartier Hortes Neuves). Le Canal de la Mayral, exutoire des eaux des canaux de Cadariège et de Tauran, rejoint le Canal de la Robine dans la ville de Narbonne, 500 m à l'aval de l'écluse du Gua. A 7 km de la sortie de la ville de Narbonne, une partie des eaux de la Robine se jette dans l'étang de Bages, en empruntant le Canélou, alors qu'une autre partie des eaux s'écoule en direction de Port-La-Nouvelle, jusqu'à la mer.

L'étang de Bages s'étend sur environ 15 km de longueur et 1 à 5 km de largeur, pour une profondeur maximale de trois mètres. La pêche à l'anguille et la conchyliculture en sont les principales ressources.

4 STRATEGIE DE PRELEVEMENT

4.1 Milieu terrestre

Dans le milieu terrestre, les prélèvements de sols ont été effectués essentiellement à l'est de l'installation, sous les vents dominants, à des distances comprises entre 50 et 800 m de la clôture de l'installation (Tableau 3, Figure 8). Deux prélèvements de sols ont également été réalisés au nord (Montlaures) et au nord-est de l'installation (Domaine de Pardeilhan), à approximativement 500 et 1200 m environ de la clôture, respectivement. Ces sols sont *a priori* moins influencés par les rejets et peuvent servir de référence pour évaluer les niveaux d'activité du bruit de fond. Dans tous les cas, il s'agit de sols cultivés. Les prélèvements de sols ont été réalisés à l'aide d'un carottier en acier d'un diamètre de 80 mm. Cette méthode permet de réaliser des prélèvements à différentes profondeurs (jusqu'à 40 cm), dans le but d'observer la répartition verticale de l'uranium et de ses descendants dans le profil de sol.

Trois échantillons de feuilles de cyprès ont été prélevés à l'est de l'installation, sous les vents dominants, à Tauran-sud (20 m de la clôture), à Livière-Haute (400 m) et au Domaine de Lamotte (900 m). Comme pour les sols, des prélèvements de feuilles de cyprès ont également été réalisés au Domaine de Pardeilhan, zone supposée moins influencée par le rejet atmosphérique. Le but de ces prélèvements est d'évaluer dans quelle mesure les feuilles de cyprès peuvent constituer des bioindicateurs dont les feuilles intègrent au fil des saisons les rejets atmosphériques provenant de Malvésí.

Des prunes, des figues, du raisin, des tomates et du blé ont été prélevés à maturité dans l'environnement du site étudié, dans le but d'évaluer le marquage de productions agricoles sous l'influence potentielle du rejet atmosphérique. Des fruits ont également été cueillis dans un jardin irrigué avec l'eau du Canal de la Mayral (quartier de Hortes-Neuves, situé à environ 2 km au sud de Malvésí).

N°	Nature	LAT	LONG	Situation
16	sol	43,2145	2,9884	E de Malvési
17	sol	43,2141	2,9906	E de Malvési
18	sol	43,2127	2,9884	E de Malvési
19	blé	43,2127	2,9884	E de Malvési
20	sol	43,2124	2,9904	E de Malvési
24	sol	43,2110	2,9893	ESE de Malvési
25	sol	43,2108	2,9911	ESE de Malvési
26	sol	43,2087	2,9911	SE de Malvési
27	sol	43,2094	2,9932	SE de Malvési
28	sol	43,2142	2,9982	E de Malvési
29	sol	43,2142	2,9982	E de Malvési
30	sol	43,2043	2,9985	ESE de Malvési
32	sol	43,2213	2,9774	N de Malvési
33	sol	43,2260	2,9955	NE de Malvési
34	prunes	43,1971	2,9941	Bascoul
36	prunes	43,2052	2,9986	Domaine La Prade
37	prunes	43,2086	2,9987	Mas Livière
38	prunes	43,2170	2,9841	Montlaures
39	feuilles cyprès	43,2154	2,9986	Lamotte
40	feuilles cyprès	43,2139	2,9925	Livière Haute
41	feuilles cyprès	43,2088	2,9903	Tauran-sud
42	feuilles cyprès	43,2267	2,9930	Domaine Pardeilhan
51	figes	43,2089	2,9900	Tauran-sud
52	figes	43,2134	2,9924	Mas Livière
53	figes	43,2169	2,9836	Montlaures
54	raisin	43,2191	2,9874	Montlaures
55	raisin	43,2256	2,9920	Pardeilhan
56	raisin	43,2152	2,9983	Domaine de Lamotte
57	figes	43,2013	2,9979	Petit St Domingue
58	figes	43,2176	2,9977	Bougna
59	raisin	43,2119	3,0019	Jardin
60	tomates	43,2120	3,0019	Jardin
61	tomates	43,2088	3,0124	Gourgasse
62	oignons	43,2088	3,0124	Gourgasse
63	raisin	43,1898	2,9887	Hortes-Neuves
64	prunes	43,1898	2,9887	Hortes-Neuves
65	tomates	43,1898	2,9887	Hortes-Neuves
66	figes	43,2085	2,9792	Jardin
67	tomates	43,2085	2,9792	Jardin
68	tomates	43,2060	3,0185	Petit Condom

Tableau 3 : Bilan des échantillons prélevés en milieu terrestre dans l'environnement du site COMURHEX de Malvési par l'IRSN (2007).

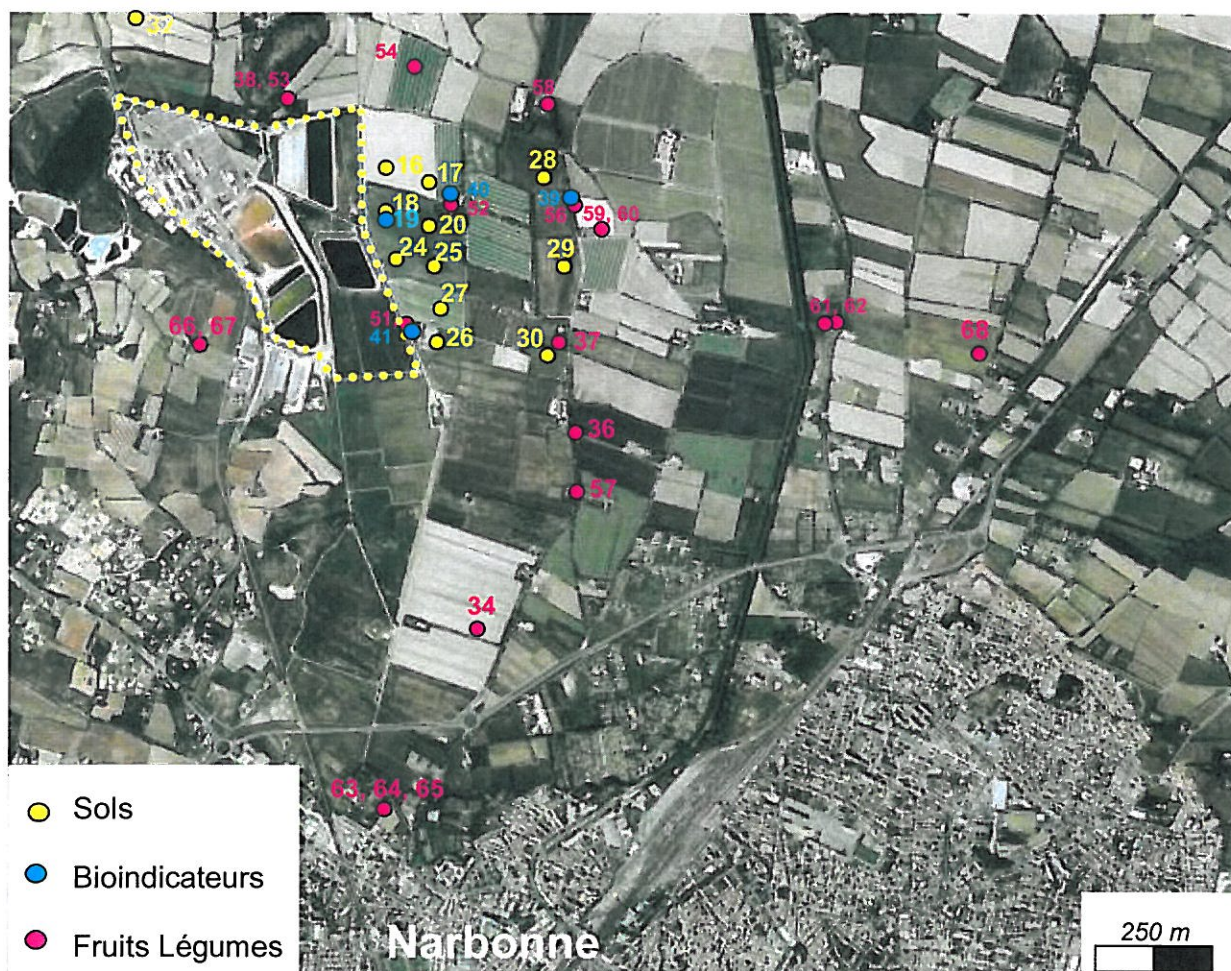


Figure 8 : Localisation des échantillons prélevés en milieu terrestre, dans l'environnement du site COMURHEX de Malvésí par l'IRSN (2007).

4.2 Milieu aquatique

En milieu aquatique, des prélèvements des principales matrices (eaux, sédiments, végétaux et poissons) ont été réalisés dans les cours d'eau potentiellement marqués par les rejets actuels et autorisés de l'installation. Il s'agit du Canal de Tauran, du Canal de Cadariège, du Canal de la Mayral et du Canal de la Robine (Tableau 4). Dans la discussion, les données provenant de ces canaux sont comparées aux données provenant de l'amont du rejet (Tauran amont et Robine amont). Dans la mesure du possible, les mêmes espèces végétales et animales ont été prélevées, afin de comparer le marquage des espèces entre l'amont et l'aval du rejet. Des prélèvements ont également été effectués dans le Bassin de Régulation qui a recueilli une partie des rejets aqueux de l'installation (eaux, sédiments, végétaux). En complément, deux carottages de sédiments d'une trentaine de centimètres (carottages n°21 et 22) ont été réalisés dans les bassins de la Livière, à l'aval du Canal de Cadariège et à l'aval du Canal de Tauran, respectivement (surface des bassins : environ 30 ha). Un prélèvement des sédiments de surface d'une épaisseur de deux centimètres a également

été effectué dans l'un de ces bassins (échantillon 23). Il s'agit de quantifier des accumulations d'uranium des rejets associées aux dépôts sédimentaires dans ces bassins. Des prélèvements ont également été réalisés dans le Canal de Cadariège et le Bassin de Régulation qui ont reçu des rejets aqueux par le passé. Enfin, des prélèvements de 30 litres d'eau souterraine ont également été effectués dans les piézomètres de la ceinture proche du site (échantillons n°72 et 73), ainsi que dans les puits privés (échantillons n°69 et 70). A titre de comparaison, un échantillon d'eau prélevé par COMURHEX dans l'un des piézomètres situé dans l'enceinte du site (piézomètre n°40), a été analysé.

N°	Nature	LAT	LONG	Situation
1	eau	43,3166	2,9881	Tauran amont
2	sédiments	43,3166	2,9881	Tauran amont
3	cératophylles	43,3166	2,9881	Tauran amont
4	eau	43,2123	2,9883	Tauran aval
5	sédiments	43,2123	2,9883	Tauran aval
6	myriophylles	43,2123	2,9883	Tauran aval
7	eau	43,2063	2,9866	Cadariège Tour ruinée
8	sédiments	43,2063	2,9866	Cadariège Tour ruinée
9	jussie	43,1957	2,9889	Mayral, nord de la RN
10	eau	43,1957	2,9889	Mayral, nord de la RN
11	sédiments	43,1957	2,9889	Mayral, nord de la RN
12	sédiments	43,2276	3,0047	Robine amont, Ecluse de Raonel
13	sédiments	43,1906	3,0004	Robine amont, Moulin du Gua
14	cératophylles	43,1906	3,0004	Robine amont, Moulin du Gua
15	sédiments	43,1798	3,0138	Robine aval, Pont de l'Avenir
21	sédiments	43,2022	2,9907	Bassin Livière, aval Tauran
22	sédiments	43,2013	2,9872	Bassin Livière, aval Cadariège
23	sédiments	43,2013	2,9872	Bassin Livière, aval Cadariège
31	myriophylles	43,1906	3,0004	Robine amont, Moulin du Gua
35	myriophylles	43,1932	2,9803	Mayral, sud de la RN
43	sédiments	43,2159	2,9757	Bassin de Régulation
44	potamots	43,2159	2,9757	Bassin de Régulation
45	myriophylles	43,2159	2,9757	Bassin de Régulation
46	eau	43,2159	2,9757	Bassin de Régulation
47	mousses	43,1906	3,0004	Robine amont, Moulin du Gua
48	mousses	43,1840	3,0019	Passerelle entre deux rives
49	potamots	43,1840	3,0019	Passerelle entre deux rives
69	eau	43,2169	2,9964	Puits domaine de Bougna
70	eau	43,2123	2,9999	Puits
71	chevennes	43,1940	2,9884	Mayral, N. de la RN
72	eau	43,2102	2,9931	Piezo n°50
73	eau	43,2119	2,9933	Piezo n°51
74	anguilles	43,2086	2,9904	Tauran aval
75	eau	-	-	Piezo n°40 (Malvés)
76	anguilles	43,1920	3,0030	Robine amont, Moulin du Gua
78	carassins	43,1788	3,0157	Robine aval, pont de l'Avenir

Tableau 4 : Bilan des échantillons prélevés en milieu aquatique, dans l'environnement du site COMURHEX de Malvés par l'IRSN (2007).



Figure 9 : Localisation des échantillons prélevés en milieu aquatique dans l'environnement du site COMURHEX de Malvési par l'IRSN (2007).

5 METHODES DE PRELEVEMENT, DE TRAITEMENT ET D'ANALYSE DES ECHANTILLONS

5.1 Méthodes de prélèvement et de traitement

Les prélèvements ont été réalisés par des techniciens du Laboratoire d'Etudes 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 ou des modes opératoires IRSN en l'absence de celles-ci.

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 (eau, 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 Méthodes 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 γ fournit une estimation de l'activité de l'uranium par le biais du ^{234}Th , son descendant radioactif direct quand l'équilibre séculaire est atteint, ainsi que de l'activité de certains de ses descendants radioactifs (^{234}Pa , ^{230}Th , ^{226}Ra , ^{214}Pb , ^{214}Bi , ^{210}Pb). Cette méthode de mesure permet de quantifier l'excès d'uranium provenant 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 les activités en uranium dans les eaux de surface, les sols, les sédiments ainsi que dans les fruits. Des mesures de l'activité des transuraniens (isotopes du plutonium et de l'américium) par spectrométrie α ont également été effectuées dans des sols, du blé et des sédiments.

Des analyses de la granulométrie et des teneurs en matière organique des sols et des sédiments ont été réalisées. Il s'agit de vérifier s'il existe un lien entre la composition

physico-chimique élémentaire de ces matrices (teneur en argile, en matière organique, par exemple) et les concentrations en uranium.

Enfin, Sylvestre, la base de données du LERCM, recueille l'ensemble des informations concernant les échantillons prélevés, 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, physiques et chimiques.

6 PRESENTATION DES RESULTATS

6.1 Milieu terrestre

6.1.1 Les sols

6.1.1.1 Les émetteurs γ

Les données discutées sont issues de l'analyse de la surface des profils de sol (0-10 cm de profondeur). On n'observe pas de variations importantes des activités massiques en ^{40}K (430 à 520 Bq.kg^{-1}) et en ^{228}Ac (34 à 42 Bq.kg^{-1}), élément de la chaîne de décroissance de ^{232}Th (Tableau 5). L'activité massique en ^{137}Cs , produit de fission provenant des retombées atmosphériques des tirs d'armes nucléaires et de celles de Tchernobyl, est très faible (2,0 à 4,0 Bq.kg^{-1}). Dans l'ensemble des échantillons de sol, l'activité en ^{241}Am est inférieure à la limite de détection de la spectrométrie γ (de l'ordre de 0,7 Bq.kg^{-1}).

Les variations des activités massiques en ^{235}U et en ^{227}Th (élément de la chaîne de décroissance de ^{235}U), de 2,1 à 3,5 Bq.kg^{-1} et de 1,5 à 2,5 Bq.kg^{-1} respectivement, ne sont pas significatives au regard des incertitudes de mesure (30 à 50 %, environ).

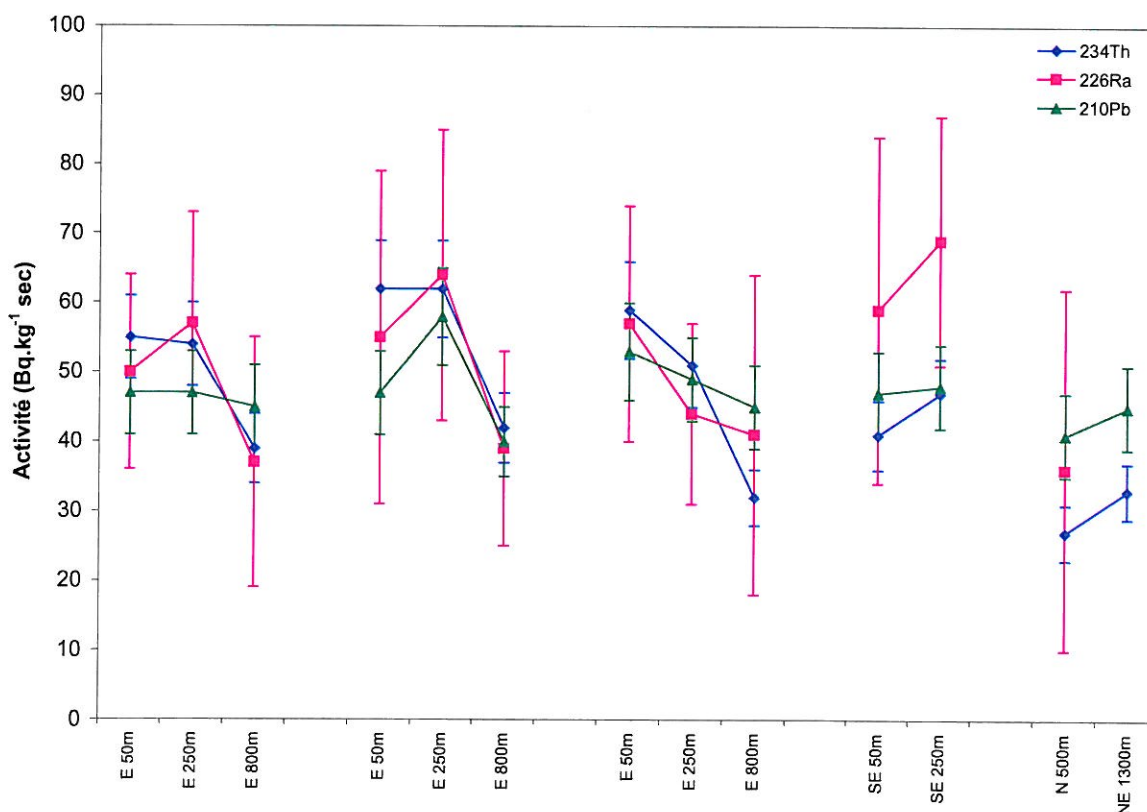


Figure 10 : Variabilité de l'activité massique en ^{234}Th , en ^{226}Ra et en ^{210}Pb dans les sols de l'environnement du site COMURHEX de Malvési (en Bq.kg^{-1} sec), exprimée par rapport à la direction et à la distance au site.

Parmi les radioéléments de la chaîne de décroissance de ^{238}U , des variations significatives de l'activité en ^{234}Th sont observables (27 à 62 Bq.kg⁻¹). Les sols prélevés dans les zones les moins influencées par les rejets témoignent des activités les plus faibles (27 et 33 Bq.kg⁻¹ au Nord de Malvés, à Pardeilhan et Montlaurès). A l'opposé, les échantillons de sols prélevés à l'est de l'installation témoignent des activités massiques en ^{234}Th les plus importantes (32 à 62 Bq.kg⁻¹), qui augmentent en se rapprochant du site. Dans cette zone, l'activité massique en ^{234}Th dans les sols augmente d'est en ouest, passant de 32-42 Bq.kg⁻¹ (échantillons 28, 29 et 30) à 55-62 Bq.kg⁻¹, en bordure de site (échantillons 16, 18 et 24) (Figure 10).

Bien que comparables aux variations de l'activité massique en ^{234}Th , celles de ^{226}Ra et ^{230}Th (36 à 69 et 43 à 58 Bq.kg⁻¹, respectivement) ne sont pas significatives compte tenu de la précision des mesures (de l'ordre de 30 à 50 %).

En comparaison du ^{234}Th , certains radioéléments de la fin de la chaîne de ^{238}U , tels que ^{214}Pb et ^{214}Bi , présentent des variations très faibles, de l'ordre de 10 à 15 %. Elles sont probablement représentatives du bruit de fond géochimique des descendants de l'uranium à l'équilibre dans les sols.

Les activités massiques en ^{210}Pb des sols sont comprises entre 41±6 et 53±7 Bq.kg⁻¹. En règle générale, les dix premiers centimètres de sols sont caractérisés par un excès en ^{210}Pb provenant du dépôt de ce radioélément, issu de la décroissance du radon (^{222}Rn) dans l'atmosphère. Ainsi, dans le profil de sol n° 32 (prélèvement réalisé à 500 m au N de Malvés, hors influence des rejets atmosphériques), on observe en surface un enrichissement en ^{210}Pb (41±6 Bq.kg⁻¹) par rapport aux isotopes de la chaîne de ^{238}U en équilibre : ^{214}Pb et à ^{234}Th (34±3 et 27±4 Bq.kg⁻¹, respectivement) (Figure 11 et Tableau 27, en annexe). Dans le reste du profil, c'est-à-dire sous la couche superficielle, la concentration des radioéléments est très homogène et les radioéléments sont en l'équilibre (33 Bq.kg⁻¹). La variabilité verticale telle qu'elle est observée dans ce profil est représentative de la variabilité du fond géochimique, avec un excès en ^{210}Pb (provenant des apports atmosphériques) dans la couche supérieure du sol et l'équilibre entre les descendants de ^{238}U dans le reste du profil. La précision des mesures de ^{226}Ra (30 à 50 %) ne permet pas de discuter la répartition verticale de ce radioélément.

Dans les profils de sol 17, 18, 20 et 24 prélevés à proximité de Malvés, des excès en ^{234}Th (jusqu'à 60 Bq.kg⁻¹) par rapport à ^{214}Pb et ^{210}Pb (environ 40 Bq.kg⁻¹) se manifestent en surface (0-10 cm), mais également entre 10 et 20 cm, puis entre 20 et 30 cm (Figure 4). Entre 30 et 40 cm, les radioéléments sont à l'équilibre. Ainsi, les profils de sol montrent que les excès de ^{234}Th sont relativement homogènes dans les sols cultivés de l'environnement du site, jusqu'à une profondeur de l'ordre de 30 cm, probablement.

	¹³⁷ Cs	⁴⁰ K	²²⁸ Ac	²³⁵ U	²²⁷ Th	²³⁴ Th	²³⁴ Pa	²³⁴ U	²³⁰ Th	²²⁶ Ra	²¹⁴ Pb	²¹⁴ Bi	²¹⁰ Pb
16-1	3,5 ±0,5	480 ±50	36 ±5	3,1 ±0,8	1,8 ±0,7	55 ±6	58 ±20	<500	53 ±19	50 ±14	49 ±5	48 ±6	47 ±6
17-1	3,7 ±0,5	510 ±50	40 ±5	2,7 ±0,9	1,6 ±0,8	54 ±6	49 ±18	<500	56 ±21	57 ±16	50 ±5	49 ±6	47 ±6
28-1	3,1 ±0,4	430 ±40	34 ±5	2,4 ±1,3	1,8 ±0,8	39 ±5	40 ±17	<400	<150	37 ±18	33 ±3	32 ±4	45 ±6
18-1	3,1 ±0,4	510 ±50	40 ±5	3,5 ±1,8	2,4 ±0,8	62 ±7	50 ±17	<600	<140	55 ±24	40 ±4	39 ±5	47 ±6
20-1	3,7 ±0,5	500 ±50	42 ±5	2,4 ±1,3	2,2 ±0,8	62 ±7	45 ±20	<500	51 ±23	64 ±21	48 ±5	49 ±6	58 ±7
29-1	3,2 ±0,4	390 ±40	36 ±5	2,6 ±1,2	1,5 ±0,8	42 ±5	<150	<330	56 ±19	39 ±14	33 ±3	33 ±4	40 ±5
24-1	2,9 ±0,4	520 ±50	38 ±5	3,6 ±1,4	2,3 ±0,9	59 ±7	<160	<600	55 ±21	57 ±17	52 ±6	53 ±6	53 ±7
25-1	3,6 ±0,5	510 ±50	39 ±5	3,4 ±0,8	1,9 ±0,7	51 ±6	57 ±20	<500	45 ±18	44 ±13	43 ±4	41 ±5	49 ±6
30-1	2,0 ±0,3	500 ±50	41 ±5	2,4 ±1,6	1,7 ±0,7	32 ±4	<120	<600	43 ±18	41 ±23	45 ±5	43 ±5	45 ±6
26-1	3,1 ±0,4	500 ±50	39 ±5	<4	<4	41 ±5	<100	<320	57 ±21	59 ±25	44 ±5	43 ±5	47 ±6
27-1	3,8 ±0,5	510 ±50	39 ±5	2,1 ±0,9	1,6 ±0,8	47 ±5	61 ±18	<400	58 ±21	69 ±18	44 ±5	45 ±5	48 ±6
32-1	4,0 ±0,5	400 ±40	35 ±5	<4	1,3 ±0,7	27 ±4	<100	<500	<140	36 ±26	34 ±3	33 ±4	41 ±6
33-1	2,8 ±0,4	490 ±50	39 ±5	2,6 ±1,3	<4	33 ±4	38 ±17	<300	<150	<80	43 ±5	42 ±5	45 ±6

Tableau 5 : Activités massiques en ¹³⁷Cs, en ⁴⁰K, en certains descendants de ²³²Th, ²³⁵U et ²³⁸U mesurées par spectrométrie γ dans les sols prélevés dans l'environnement de Malvési (épaisseur de sol prélevé : 0 à 10 cm) (en Bq.kg⁻¹ sec).

profondeur (cm)		²³⁸ U
16-1	0-10	53 ±5
16-2	10-20	56 ±6
18-1	0-10	65 ±6
18-2	10-20	62 ±6
24-1	0-10	58 ±6
24-2	10-20	55 ±6

Tableau 6 : Activités massiques en ²³⁸U mesurées par ICP-MS dans les sols prélevés dans l'environnement de Malvési (en Bq.kg⁻¹ sec).

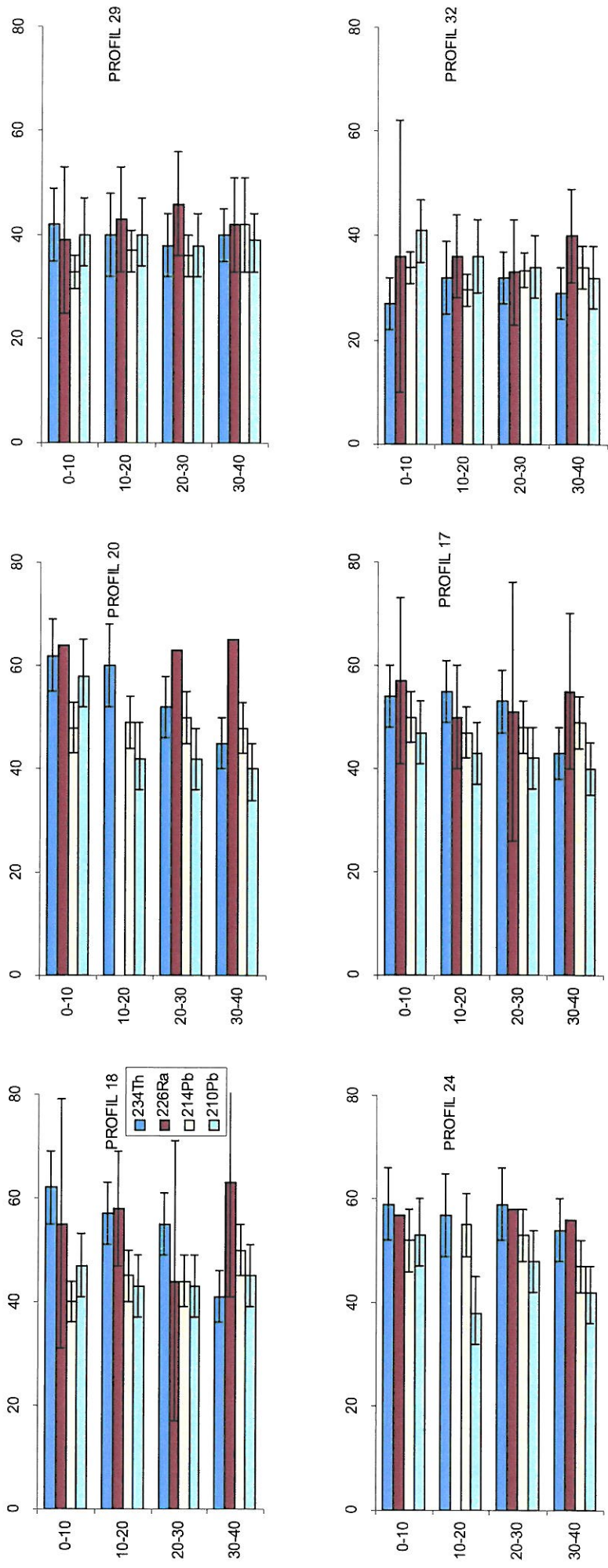


Figure 11 : Profils verticaux (en cm) de répartition verticale de descendants de ²³⁸U (²³⁴Th, ²²⁶Ra, ²¹⁴Pb et ²¹⁰Pb) dans les sols de l'environnement de Malvési (en Bq.kg⁻¹ sec).

6.1.1.2 L'uranium

Dans les sols, les activités massiques en ^{238}U , comprises entre 53 et 65 Bq.kg^{-1} (Tableau 6), sont proches de celles du ^{234}Th , discutées précédemment. L'examen détaillé des données de chaque échantillon montre que, dans les sols, ^{238}U est en équilibre avec son descendant, ^{234}Th (Figure 12).

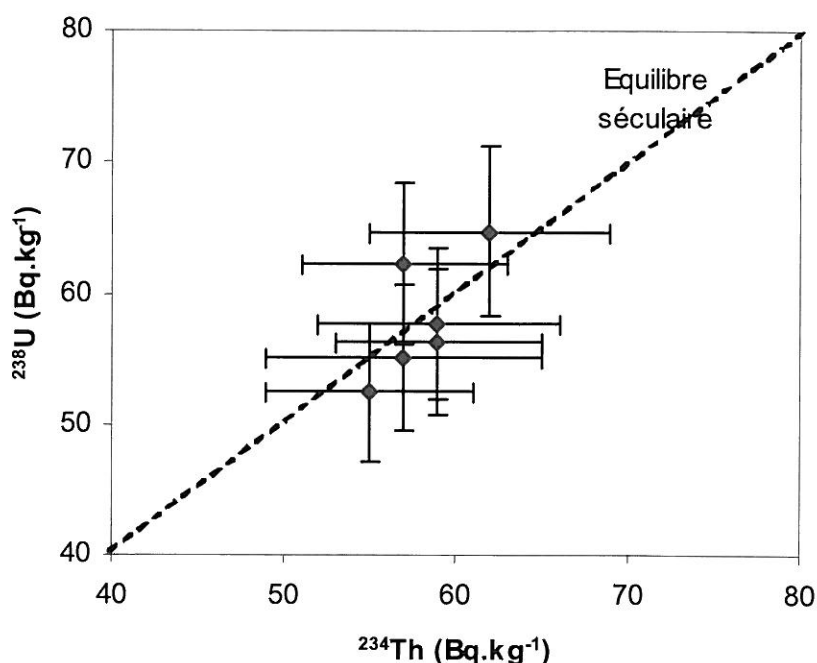


Figure 12 : Activités massiques en ^{238}U en fonction des activités massiques en ^{234}Th dans les sols prélevés dans l'environnement de Malvés.

6.1.1.3 Les transuraniens

Les activités massiques en $^{239+240}\text{Pu}$, ^{238}Pu et ^{241}Am des sols échantillonnés à l'est du site étudié et à 50 m environ de la clôture (échantillons 16, 18 et 24) sont comprises entre 0,315 et 0,483 Bq.kg^{-1} , entre 0,006 et 0,012 Bq.kg^{-1} et entre 0,044 et 0,083 Bq.kg^{-1} , respectivement (Tableau 7). En comparaison, les activités massiques en $^{239+240}\text{Pu}$ des sols de la basse-vallée du Rhône, représentatives des retombées atmosphériques globales (tirs atmosphériques d'armes nucléaires), sont en moyenne de $0,111 \pm 0,035 \text{ Bq.kg}^{-1}$ et, sur le territoire national, les activités massiques les plus fortes ($> 0,5 \text{ Bq.kg}^{-1}$) sont observables dans les zones d'altitude (Duffa, 2001 ; Pourcelot et al., 2007 ; Le Roux et al., 2008).

Le rapport $^{241}\text{Am} / ^{239+240}\text{Pu}$ des sols (0,159, en moyenne) diffère notablement des rapports d'activités généralement observés dans les sols en France (de l'ordre de 0,4, selon Duffa, 2001). Ainsi, les valeurs relativement basses du rapport $^{241}\text{Am} / ^{239+240}\text{Pu}$ pourraient témoigner d'un enrichissement en $^{239+240}\text{Pu}$ des sols prélevés à l'est de Malvés.

	$^{239+240}\text{Pu}$	^{238}Pu	^{241}Am	$^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$	$^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$
16-1	0,417 ±0,014	0,0081 ±0,0012	0,066 ±0,013	0,019 ±0,003	0,16 ±0,03
16-2	0,445 ±0,014	0,0087 ±0,0013	0,066 ±0,0087	0,020 ±0,003	0,15 ±0,02
18-1	0,396 ±0,013	0,0080 ±0,0011	0,063 ±0,0094	0,020 ±0,003	0,16 ±0,02
18-2	0,315 ±0,011	0,0059 ±0,0011	0,044 ±0,0086	0,019 ±0,003	0,14 ±0,03
24-1	0,483 ±0,016	0,012 ±0,0015	0,083 ±0,012	0,025 ±0,003	0,17 ±0,03
24-2	0,375 ±0,013	0,0074 ±0,0012	0,066 ±0,011	0,020 ±0,003	0,18 ±0,03

Tableau 7 : Activités massiques des isotopes du plutonium (^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$) et de l'américium (^{241}Am) mesurées par spectrométrie α (en $\text{Bq.kg}^{-1}\text{ sec}$) et rapports d'activités $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ et $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ dans les sols de l'environnement de Malvésí.

En complément, les rapports massiques des isotopes du plutonium mesurés par ICP-MS $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ sont très faibles (0,050 à 0,055 et 0,0005 à 0,0009 pour $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ et $^{241}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$, respectivement) (Tableau 8). Rappelons que le rapport isotopique $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ des retombées des tirs nucléaires dans l'atmosphère est voisin de 0,18.

	$^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$	$^{241}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$
16-1	0,0541 ±0,0025	0,00073 ±0,00012
16-2	0,0527 ±0,0029	0,00051 ±0,00006
18-1	0,0537 ±0,0038	0,00066 ±0,00007
18-2	0,0553 ±0,0031	0,00073 ±0,00002
24-1	0,0507 ±0,0029	0,00087 ±0,00007
24-2	0,0557 ±0,0059	0,00148 ±0,00008

Tableau 8 : Rapports isotopiques atomiques $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ et $^{241}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ mesurés par ICP-MS dans les sols de l'environnement de Malvésí.

6.1.2 Les bioindicateurs terrestres

Les fortes activités massiques en ^7Be (radioélément naturel d'origine cosmogénique) et en ^{210}Pb (radioélément naturel provenant de la décroissance de ^{222}Rn dans l'atmosphère) dans les feuilles de cyprès (48 à 148 et 23 à 60 $\text{Bq.kg}^{-1}\text{ sec}$, respectivement) montrent que cette matrice accumule les dépôts atmosphériques (Tableau 9).

Les feuilles de cyprès échantillonnées à proximité du site (20 et 400 m de la clôture de Malvésí) témoignent des plus fortes activités en ^{235}U et des descendants radioactifs de ^{238}U (Figure 13). Ainsi, dans les échantillons 40 et 41 (Mas Livière-Haute et Tauran-sud), les activités en ^{234}Th atteignent 228 ± 20 et 180 ± 17 $\text{Bq.kg}^{-1}\text{ sec}$. L'activité des feuilles de cyprès est un peu plus faible au Domaine de Lamotte (900 m environ de la clôture) : $83\pm 7,4$ $\text{Bq.kg}^{-1}\text{ sec}$. En zone non-influencée, on mesure $0,95\pm 0,32$ $\text{Bq.kg}^{-1}\text{ sec}$ dans cette matrice.

Un enrichissement en ^{230}Th est observable dans les feuilles de cyprès prélevées à Tauran-sud (échantillon 41) (Figure 13). En effet, l'activité en ^{230}Th de cet échantillon (142 ± 22 $\text{Bq.kg}^{-1}\text{ sec}$) est supérieure d'un ordre de grandeur à celle des feuilles de cyprès échantillonnées au Mas Livière-Haute ($13\pm 4,7$ $\text{Bq.kg}^{-1}\text{ sec}$), pour des activités en ^{234}Th comparables dans les deux

échantillons. A ce stade de l'étude, il n'est pas possible de préciser si la radioactivité mesurée est déposée à la surface des feuilles ou si elle a été absorbée par le végétal après le dépôt.

Par rapport aux descendants de ^{238}U , les descendants de ^{232}Th présentent des activités massiques très faibles et très homogènes dans les feuilles de cyprès. Les activités en ^{228}Ac , par exemple, sont comprises entre 0,3 et 1,0 Bq.kg⁻¹ sec.

		^{137}Cs	^{241}Am	^{40}K	^7Be	^{228}Ac	^{235}U	^{227}Th		
19	blé	< 0,04	0,10 ±0,02	119 ±11	21 ±2	0,31 ±0,09	0,57 ±0,18	1,1 ±0,14		
41	cyprès	0,21 ±0,04	0,52 ±0,08	168 ±16	148 ±13	0,89 ±0,19	3,1 ±0,72	7,3 ±0,79		
40	cyprès	0,17 ±0,04	< 0,09	183 ±17	105 ±9	0,93 ±0,18	11 ±2,2	1,3 ±0,20		
39	cyprès	0,17 ±0,04	< 0,23	145 ±13	120 ±11	1,0 ±0,20	4,1 ±0,91	0,36 ±0,12		
42	cyprès	0,10 ±0,02	< 0,07	178 ±17	48 ±5	0,77 ±0,17	< 0,19	< 0,32		

		^{238}U	^{234}Th	^{234}Pa	^{234}U	^{230}Th	^{226}Ra	^{214}Pb	^{214}Bi	^{210}Pb
19	blé	nd	11 ±1,1	10 ±2,5	< 50	19 ±4	< 1,8	1,1 ±0,14	0,8 ±0,1	4,3 ±0,5
41	cyprès	nd	180 ±17	156 ±16	< 187	142 ±22	12 ±5,8	10 ±1,0	10 ±1,2	60 ±6,5
40	cyprès	173 ±71	228 ±20	201 ±55	181 ±55	13 ±4,7	< 5,5	4,1 ±0,5	3,5 ±0,5	52 ±5,5
39	cyprès	nd	83 ±7,4	75 ±10	91 ±16	6,6 ±3,3	< 4,1	1,5 ±0,2	1,5 ±0,2	59 ±6,6
42	cyprès	nd	0,95 0,32	< 17	< 22	< 6,3	< 1,3	0,7 ±0,1	0,7 ±0,1	23 ±2,5

Tableau 9 : Activités massiques en ^{137}Cs , en ^{241}Am , en ^{40}K , en certains descendants de ^{232}Th , ^{235}U et ^{238}U mesurées par spectrométrie γ dans les végétaux prélevés en 2007 dans l'environnement terrestre de Malvésí (en Bq.kg⁻¹ sec).

Enfin, l'américium (^{241}Am) est mesuré dans les feuilles de cyprès de l'échantillon 41 (0,52±0,08 Bq.kg⁻¹ sec) situé en bordure immédiate du site, ce qui suggère la présence d'autres transuraniens tels que les isotopes du plutonium dans ce bioindicateur, mais qui reste une hypothèse à vérifier.

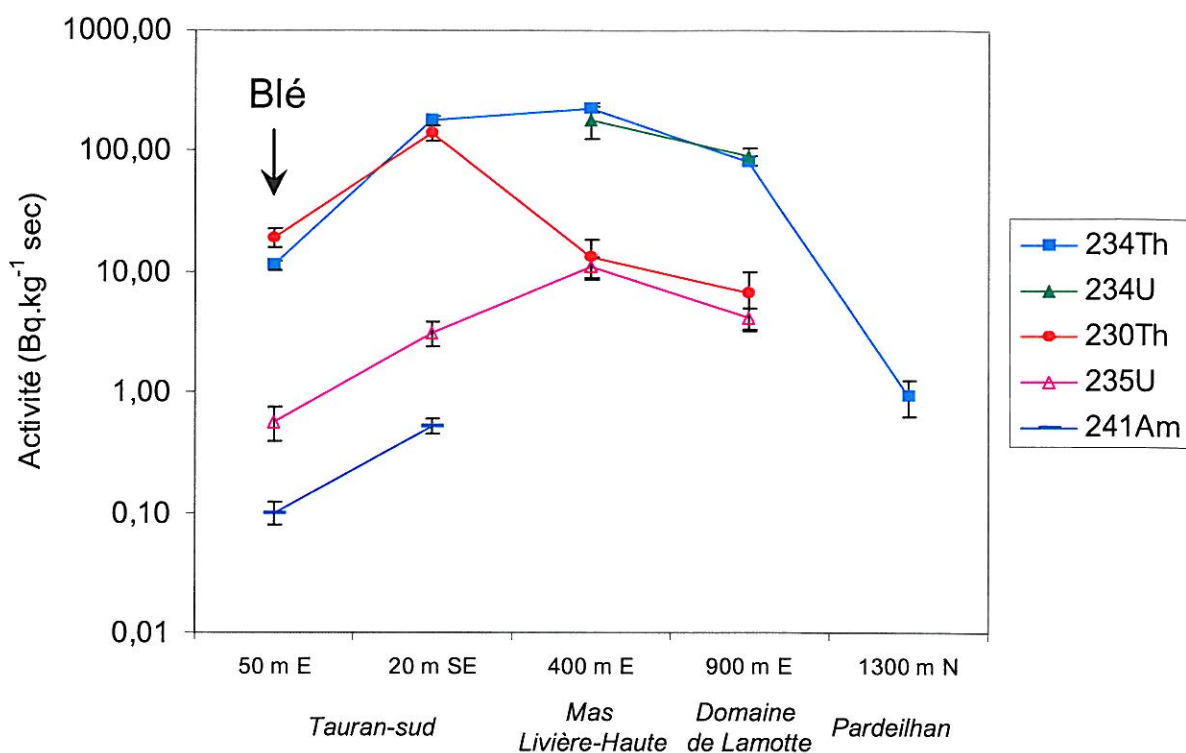


Figure 13 : Variabilité de l'activité massique en ^{235}U et des principaux descendants de ^{238}U dans les feuilles de cyprès et un échantillon de blé prélevés en 2007 dans l'environnement du site COMURHEX de Malvési, en fonction de la distance à la clôture du site (en m).

Dans le blé prélevé à 50 mètres environ à l'est de l'installation, l'activité en ^{234}Th ($11 \pm 1,1$ Bq.kg⁻¹ sec) est plus faible que dans les feuilles de cyprès (Figure 13). L'analyse ICP-MS de cet échantillon de blé donne une activité massique en ^{238}U de $10 \pm 1,1$ Bq.kg⁻¹ sec, comparable à celle de ^{234}Th . Parmi les autres descendants de ^{238}U , ^{234}Pa ($10 \pm 2,5$ Bq.kg⁻¹ sec) a une activité comparable à la tête de chaîne, mais ^{230}Th , a une activité supérieure d'un facteur deux (19 ± 4 Bq.kg⁻¹ sec) par rapport à la tête de chaîne, comme dans certains cyprès. Le marquage en ^7Be et ^{210}Pb de l'échantillon de blé (21 ± 2 et $4,3 \pm 0,2$ Bq.kg⁻¹ sec, respectivement) implique que le transfert au blé par voie aérienne est probablement prépondérant.

Enfin, les analyses par spectrométrie γ du blé prélevé en 2007 témoignent d'un marquage en ^{241}Am ($0,1 \pm 0,02$ Bq.kg⁻¹ sec). Des analyses complémentaires des activités des isotopes du plutonium (^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$) et de ^{241}Am ont été effectuées par spectrométrie α dans cet échantillon de blé (Tableau 10). La mesure de ^{241}Am par cette technique ($0,089 \pm 0,006$ Bq.kg⁻¹ sec) confirme l'activité mesurée par spectrométrie γ .

	$^{239+240}\text{Pu}$	^{238}Pu	^{241}Am	$^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$	$^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$
19 Blé	0,445 ±0,018	0,017 ±0,001	0,089 ±0,006	0,037 ±0,002	0,201 ±0,015

Tableau 10 : Activités massiques des isotopes du plutonium (^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$) et de l'américium (^{241}Am) mesurées par spectrométrie α (en $\text{Bq.kg}^{-1}\text{ sec}$) et rapports d'activités $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ et $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ dans un échantillon de blé prélevé en 2007 dans l'environnement de Malvésí.

Des activités massiques importantes en plutonium sont également observées dans le blé ($^{239+240}\text{Pu} = 0,445 \pm 0,018$ et $^{238}\text{Pu} = 0,017 \pm 0,001 \text{ Bq.kg}^{-1}\text{ sec}$) prélevé en 2007, comparables aux activités mesurées dans les sols (0,315 à 0,483 Bq.kg^{-1} et 0,006 à 0,012 Bq.kg^{-1} , respectivement). Les rapports d'activités des transuraniens dans le blé ($^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu} = 0,037 \pm 0,002$ et $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu} = 0,201 \pm 0,015$) sont également proches de ceux des sols (en moyenne 0,020 et 0,16, respectivement).

	^{137}Cs	^{241}Am	^{40}K	^7Be	^{228}Ac	^{235}U	^{227}Th
85 Blé sauvage	< 0,15	< 0,1	347 ±36	45 ±5	< 2,0	0,41 ±0,07	< 0,8
86 Blé en herbe	< 0,16	< 0,2	822 ±78	80 ±8	< 0,8	< 0,3	< 0,7

	^{234}Th	^{234}Pa	^{234}U	^{230}Th	^{226}Ra	^{214}Pb	^{214}Bi	^{210}Pb
85 Blé sauvage	7,5 ±1,0	< 51	< 41	< 11	< 6	0,4 ±0,1	< 1,0	5,2 ±0,8
86 Blé en herbe	11,3 ±1,3	< 22	< 61	< 16	< 5	3,0 ±0,3	2,9 ±0,4	5,5 ±1,0

Tableau 11 : Activités massiques en ^{241}Am , en ^{40}K , en certains descendants de ^{232}Th , ^{235}U et ^{238}U mesurées par spectrométrie γ dans les échantillons de blé prélevés en 2008 dans l'environnement terrestre de Malvésí (en $\text{Bq.kg}^{-1}\text{ sec}$).

Les échantillons de blé prélevés au printemps 2008 témoignent d'activités massiques en ^{230}Th et en ^{241}Am inférieures aux limites de détection (<11 Bq.kg^{-1} et <0,1 Bq.kg^{-1} , respectivement) (Tableau 11). Ces limites de détection sont cependant proches des activités mesurées dans l'échantillon de 2007. Par ailleurs, les échantillons prélevés en 2008 témoignent d'activités massiques en ^{234}Th (7,5 et 11 Bq.kg^{-1}) similaires à celles de 2007.

6.1.3 Les fruits

Les variations des activités massiques en ^{40}K observées dans les fruits sont probablement fonction des espèces échantillonnées. Ainsi, les plus faibles activités sont observées dans les prunes (48 à 69 Bq.kg^{-1} frais), alors que les plus fortes activités sont mesurées dans les figes (60 à 111 Bq.kg^{-1} frais) (Tableau 12). Contrairement aux feuilles de cyprès et au blé, les fruits témoignent d'activités en ^7Be très faibles (activité maximale = 1,7 Bq.kg^{-1} frais), voire inférieures à la limite de détection, comme pour les tomates (< 0,3 Bq.kg^{-1} frais).

frais). Ainsi, le dépôt atmosphérique n'est probablement pas le mode de transfert prépondérant aux fruits.

Quelques activités massiques significatives, mais très faibles, sont observées pour certains descendants de ^{238}U . Il s'agit des figues et de raisins échantillonnés :

- Au Nord et Nord-Est de Malvés, à Montlaurès (^{214}Pb : 0,05 à 0,07 Bq.kg⁻¹ frais)
- Dans la direction des vents dominants (E et SE), à Tauran (^{234}Th =0,25±0,08 Bq.kg⁻¹ frais et ^{214}Pb =0,1±0,03 Bq.kg⁻¹ frais), dans les Domaines de Lamotte et Bougna (^{234}Th =0,09±0,05 Bq.kg⁻¹ frais et ^{214}Pb =0,015±0,007 Bq.kg⁻¹ frais, respectivement), ainsi que dans un jardin (^{214}Pb =0,036±0,011 Bq.kg⁻¹ frais).

Dans tous les échantillons, les activités massiques en ^{230}Th et en ^{226}Ra sont inférieures aux limites de détection de ces radioéléments (environ 2 et 0,6 Bq.kg⁻¹ frais, respectivement).

Les analyses effectuées par ICP-MS ont permis de quantifier avec précision les concentrations en uranium (Tableau 13). De fortes variations de la concentration en uranium sont visibles à l'est de l'installation, en fonction de la distance qui sépare chaque prélèvement du rejet atmosphérique (Figure 14). Ainsi, les plus fortes concentrations sont mesurées dans des figues prélevées à 20 m (Tauran) et 400 m de la clôture (Mas Livière-Haute) (12 et 11 µg.kg⁻¹ frais, respectivement). Pour des distances comprises entre 1000 et 2000 m, les concentrations sont plus faibles, comprises entre 4,6 µg.kg⁻¹ frais (raisin) et 0,4 µg.kg⁻¹ frais (tomates). Enfin, les concentrations en uranium dans les tomates et les figues sont inférieures à 0,3 µg.kg⁻¹ frais à plus de 2 kilomètre de l'usine.

En comparaison, les concentrations en uranium dans les fruits prélevés au nord de l'installation (Montlaures) sont plus faibles (0,5 à 0,8 µg.kg⁻¹ frais, dans les figues et le raisin), en dépit de la proximité de l'installation (50 à 100 m seulement).

Enfin, en direction du sud, dans un jardin localisé à environ 300 m de la clôture, les concentrations dans les tomates et les figues atteignent 0,4 et 1,6 µg.kg⁻¹ frais (échantillons 67 et 66, respectivement). A titre de comparaison, des concentrations un peu plus faibles de 0,1 et 0,5 µg.kg⁻¹ frais sont mesurées dans les tomates et le raisin prélevés dans la même direction, à 2 kilomètres (Hortes-Neuves).

	Situation	^7Be	^{40}K	^{234}Th	^{230}Th
51	figues Tauran	0,7 ±0,1	100 ±10	0,25 ±0,08	< 2,0
52	figues Mas Livière	0,4 ±0,1	86 ±8	< 0,68	< 1,9
53	figues Montlaures	0,1 ±0,1	110 ±10	< 0,16	< 1,4
54	raisin Montlaures	0,5 ±0,2	65 ±6	< 0,25	< 2,5
55	raisin Pardeilhan	1,7 ±0,2	65 ±6	< 0,51	< 1,6
56	raisin Lamotte	0,4 ±0,1	56 ±5	0,09 ±0,05	< 1,2
57	figues Petit St Domingue	0,2 ±0,1	91 ±8	< 0,20	< 1,9
58	figues Bougna	0,4 ±0,1	60 ±5	< 0,12	< 1,2
59	raisin Jardin	0,4 ±0,1	61 ±6	< 0,15	< 1,5
60	tomates Jardin	< 0,3	83 ±7	< 0,54	< 1,9
61	tomates Gourgasse	< 0,2	72 ±6	< 0,14	< 1,4
62	oignons Gourgasse	< 0,2	38 ±4	< 0,10	< 1,0
63	raisin Hortes-Neuves	0,4 ±0,1	80 ±7	< 0,28	< 2,8
64	prunes Hortes-Neuves	< 0,4	69 ±7	< 0,28	< 2,8
65	tomates Hortes-Neuves	< 0,4	73 ±8	< 0,76	< 2,4
66	figues Jardin	< 0,3	111 ±10	< 0,20	< 1,9
67	tomates Jardin	< 0,3	82 ±8	< 0,22	< 2,2
68	tomates Petit Condom	< 0,2	77 ±8	< 0,14	< 1,4
34	prunes Bascoul	0,7 ±0,1	61 ±6	< 0,10	< 1,0
36	prunes La Prade	0,6 ±0,1	61 ±5	< 0,37	< 2,0
37	prunes Mas Livière	0,4 ±0,1	64 ±7	< 0,41	< 1,9
38	prunes Montlaures	0,4 ±0,1	48 ±5	< 0,21	< 1,0

	Situation	^{226}Ra	^{214}Pb	^{214}Bi	^{210}Pb
51	figues Tauran	< 0,8	0,12 ±0,02	0,1 ±0,03	< 40
52	figues Mas Livière	< 0,7	< 0,11	< 0,14	< 24
53	figues Montlaures	< 0,6	0,07 ±0,01	0,1 ±0,01	< 13
54	raisin Montlaures	< 1,1	0,05 ±0,02	< 0,20	< 26
55	raisin Pardeilhan	< 0,8	< 0,11	< 0,13	< 23
56	raisin Lamotte	< 0,5	< 0,07	< 0,12	< 18
57	figues Petit St Domingue	< 0,2	< 0,09	< 0,13	< 50
58	figues Bougna	< 0,1	0,01 ±0,007	0,02 ±0,01	< 25
59	raisin Jardin	< 0,2	0,04 ±0,01	0,03 ±0,02	< 40
60	tomates Jardin	< 0,8	< 0,12	< 0,16	< 29
61	tomates Gourgasse	< 0,6	< 0,08	< 0,12	< 2
62	oignons Gourgasse	< 0,2	< 0,05	< 0,07	< 100
63	raisin Hortes-Neuves	< 0,4	< 0,05	< 0,19	< 19
64	prunes Hortes-Neuves	< 0,4	< 0,15	< 0,09	< 23
65	tomates Hortes-Neuves	< 1,4	< 0,15	< 0,21	< 19
66	figues Jardin	< 0,9	< 0,11	< 0,16	< 19
67	tomates Jardin	< 0,3	< 0,20	< 0,17	< 22
68	tomates Petit Condom	< 0,2	< 0,02	< 0,09	< 12
34	prunes Bascoul	< 0,1	< 0,04	< 0,06	0,14 ±0,05
36	prunes La Prade	< 0,5	< 0,05	< 0,07	< 24
37	prunes Mas Livière	< 0,5	< 0,04	< 0,09	< 21
38	prunes Montlaures	< 0,2	< 0,03	< 0,04	< 40

Tableau 12 : Activités massiques en ^7Be , ^{40}K et des principaux descendants de ^{238}U mesurées par spectrométrie γ dans les fruits prélevés dans l'environnement de Malvés (en Bq.kg^{-1} frais).

	Situation	^{238}U (Bq.kg^{-1})	^{238}U ($\mu\text{g.kg}^{-1}$)
51	figues Tauran	0,148 ±0,017	12,0 ±1,3
52	figues Mas Livièrè	0,136 ±0,016	11,0 ±1,3
53	figues Montlaures	0,010 ±0,001	0,8 ±0,1
54	raisin Montlaures	0,006 ±0,001	0,5 ±0,05
55	raisin Pardeilhàn	0,006 ±0,001	0,5 ±0,1
56	raisin Lamotte	0,054 ±0,006	4,3 ±0,5
57	figues Petit St Domingue	0,004 ±0,0005	0,4 ±0,04
58	figues Bougna	0,009 ±0,001	0,7 ±0,1
59	raisin Jardin	0,057 ±0,006	4,6 ±0,5
60	tomates Jardin	0,005 ±0,001	0,4 ±0,04
61	tomates Gourgasse	0,002 ±0,000	0,2 ±0,02
63	raisin Hortes-Neuves	0,006 ±0,001	0,5 ±0,1
64	prunes Hortes-Neuves	0,006 ±0,001	0,5 ±0,1
65	tomates Hortes-Neuves	0,002 ±0,0002	0,1 ±0,02
66	figues Jardin	0,020 ±0,002	1,6 ±0,2
67	tomates Jardin	0,005 ±0,0006	0,4 ±0,05
68	tomates Petit Condom	0,001 ±0,0001	0,1 ±0,01

Tableau 13 : Activités massiques et concentrations en ^{238}U mesurées par ICP-MS dans les fruits prélevés dans l'environnement de Malvési (en Bq.kg^{-1} et en $\mu\text{g.kg}^{-1}$ frais).

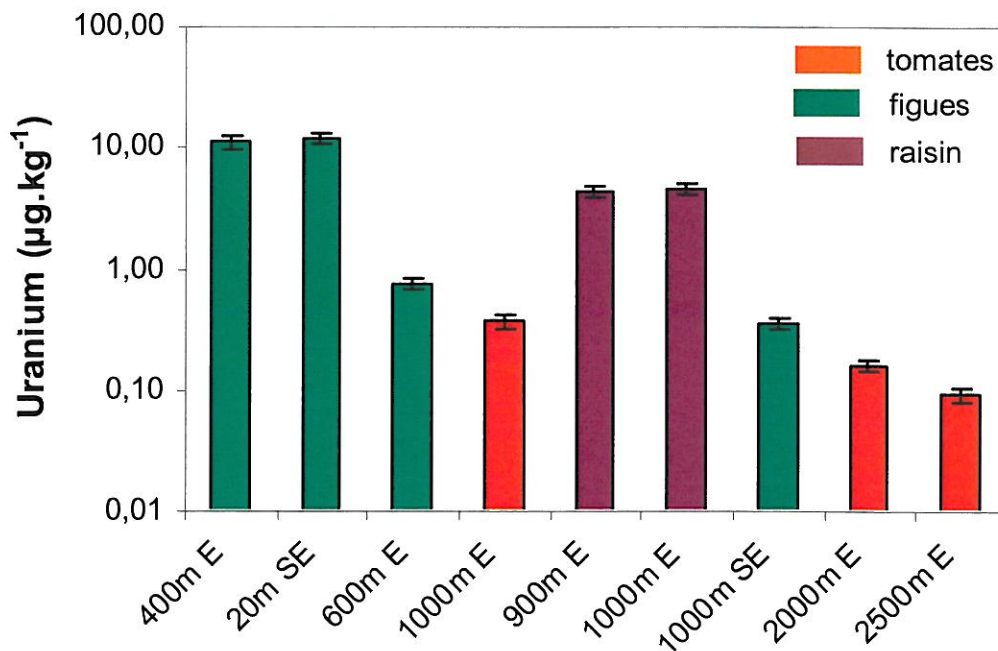


Figure 14 : Variabilité de la concentration en uranium dans les fruits prélevés à l'Est et au Sud-Est de Malvési, en fonction de la distance à la clôture de l'installation (en $\mu\text{g.kg}^{-1}$ frais).

6.2 Milieu aquatique

6.2.1 Les sédiments

6.2.1.1 Les émetteurs γ

Les activités massiques en ^{137}Cs (produit de fission provenant des retombées atmosphériques des tirs d'armes nucléaires), en ^{40}K (radioélément naturel) et en ^{228}Ac (radioélément naturel, descendant de ^{232}Th) mesurées dans les sédiments présentent une faible variabilité (moins d'un facteur deux) (Tableau 14).

En revanche, l'activité massique en ^{235}U et en ^{234}Th (descendant de ^{238}U) présentent de fortes variabilités dans les sédiments (Figure 15). Le prélèvement réalisé en amont du rejet actuel, dans le Canal de Tauran, donne un référentiel des activités massiques de ces isotopes dans les sédiments de la Plaine de la Livière ($^{235}\text{U} = 1,5 \pm 0,9 \text{ Bq.kg}^{-1} \text{ sec}$; $^{234}\text{Th} = 23 \pm 3 \text{ Bq.kg}^{-1} \text{ sec}$). En comparaison, on observe un marquage en ^{235}U et en ^{234}Th dans les sédiments prélevés à l'aval du rejet actuel, dans les canaux de Tauran ($4,1 \pm 1,3$ et $97 \pm 10 \text{ Bq.kg}^{-1} \text{ sec}$, respectivement), de la Mayral ($2,6 \pm 1,5$ et $57 \pm 7 \text{ Bq.kg}^{-1} \text{ sec}$, respectivement) et les bassins de la Livière ($5,5 \pm 1,2$ et $93 \pm 10 \text{ Bq.kg}^{-1} \text{ sec}$, respectivement). Les variations des activités en ^{210}Pb , ^{226}Ra (reportées sur la Figure 15) et ^{214}Pb ne sont pas corrélées avec la variabilité des activités en ^{235}U et en ^{234}Th précédemment décrites. Elles sont probablement représentatives du bruit de fond géochimique des descendants de l'uranium à l'équilibre dans les sédiments.

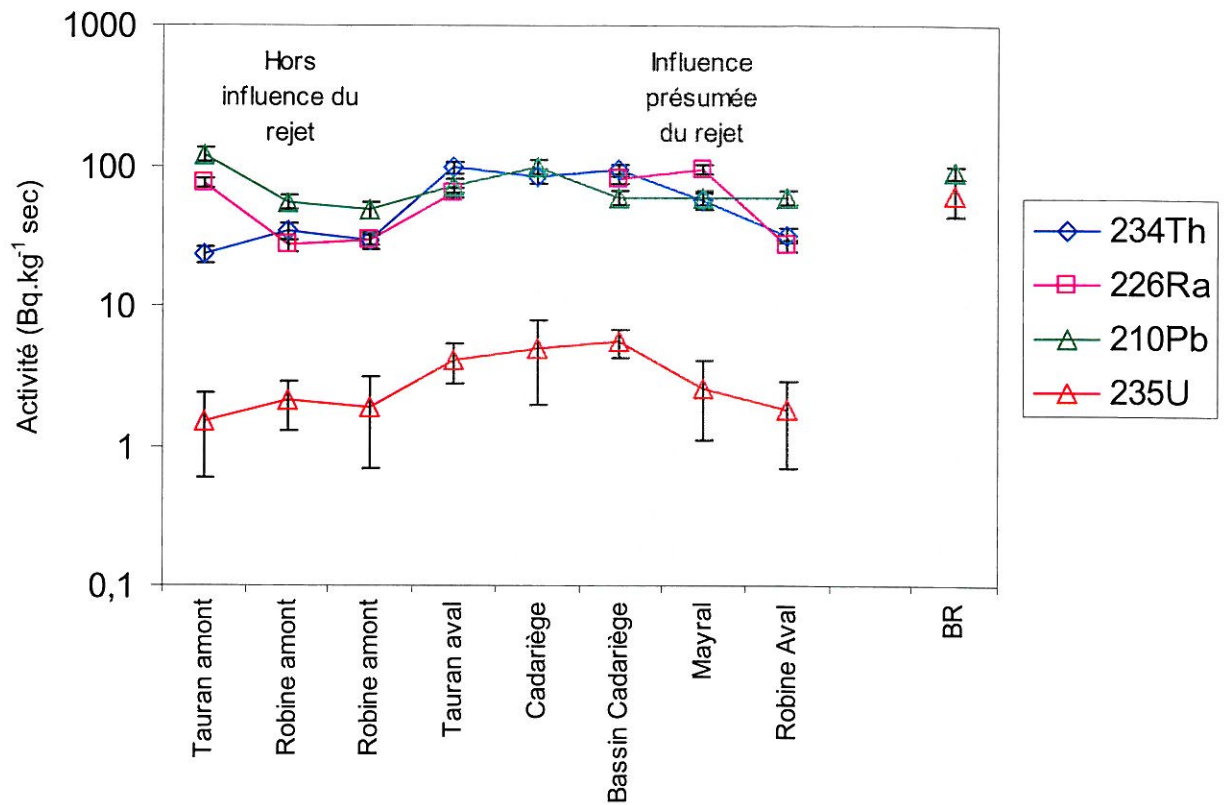


Figure 15 : Variabilité de l'activité massique en ^{235}U , ^{234}Th , ^{226}Ra et en ^{210}Pb dans les sédiments prélevés dans l'environnement du site COMURHEX de Malvési.

Situation	^{137}Cs	^{40}K	^{228}Ac	^{235}U	^{227}Th	^{234}Th
2 Tauran amont	1,8 ±0,3	335 ±33	39 ±5	1,5 ±0,9	2,5 ±0,9	23 ±3
12 Robine amont	1,7 ±0,3	351 ±33	30 ±4	2,1 ±0,8	1,8 ±0,8	34 ±5
13 Robine amont	1,8 ±0,3	370 ±40	27 ±3	1,9 ±1,2	2,0 ±0,8	29 ±4
5 Tauran aval	2,0 ±0,3	302 ±29	33 ±4	4,1 ±1,3	1,8 ±0,8	97 ±10
8 Cadariège	2,4 ±0,4	470 ±50	37 ±5	4,9 ±2,9	5,1 ±1,2	84 ±9
23 Bassin Livière	1,8 ±0,3	360 ±40	42 ±5	5,5 ±1,2	2,0 ±0,9	93 ±10
11 Mayral	1,5 ±0,3	400 ±40	45 ±6	2,6 ±1,5	2,0 ±0,9	56 ±7
15 Robine Aval	1,4 ±0,2	400 ±40	24 ±3	1,8 ±1,1	1,7 ±0,6	32 ±4
43 B. Régulation	1,4 ±0,3	251 ±24	21 ±3	62 ±18	5,4 ±1,1	1160 ±110

	^{234}Pa	^{234}U	^{230}Th	^{226}Ra	^{214}Pb	^{214}Bi	^{210}Pb
2	<130	<500	52 ±21	76 ±6	55 ±6	54 ±6	121 ±13
12	<140	<500	<140	27 ±3	29 ±3	30 ±4	55 ±7
13	<50	<500	<60	30 ±3	24 ±2	25 ±3	48 ±6
5	89 ±24	<310	<150	64 ±5	52 ±5	50 ±6	73 ±9
8	84 ±23	<400	<160	<50	47 ±5	56 ±7	99 ±11
23	82 ±24	<600	61 ±23	80 ±6	57 ±6	57 ±7	60 ±7
11	<190	<500	51 ±23	95 ±7	70 ±7	74 ±8	59 ±7
15	53 ±18	<280	28 ±15	27 ±3	25 ±2	25 ±3	59 ±7
43	1110 ±120	1140 ±170	230 ±50	<90	37 ±4	35 ±4	90 ±10

Tableau 14 : Activités massique en ^{137}Cs , en ^{40}K , en certains descendants de ^{232}Th , ^{235}U et ^{238}U mesurées par spectrométrie γ dans les sédiments prélevés dans l'environnement de Malvési (en $\text{Bq.kg}^{-1}\text{sec}$). En grisé figurent les prélèvements sous l'influence potentielle des rejets aquatiques.

Les échantillons prélevés dans le Canal de Tauran, en amont du rejet ainsi que les échantillons provenant du Canal de la Robine, en amont du Canal de la Mayral témoignent d'excès en ^{210}Pb ($121\pm 13 \text{ Bq.kg}^{-1} \text{ sec}$, dans les sédiments de Tauran) par rapport au ^{234}Th ($23\pm 3,3 \text{ Bq.kg}^{-1} \text{ sec}$, dans les sédiments de Tauran), comme il est communément observé dans les sédiments des rivières de France. Au contraire, à l'aval immédiat du rejet, ^{234}Th et ^{210}Pb présentent des activités comparables dans les sédiments, confirmant l'enrichissement en ^{234}Th (Figure 15). Enfin, la spectrométrie γ a donné peu de mesures significatives des activités massiques en ^{230}Th et en ^{234}U dans les sédiments.

Dans le Canal de la Robine, on n'observe pas de différences significatives des activités massiques en ^{235}U et en ^{234}Th entre les sédiments prélevés à l'amont ($1,9\text{-}2,1$ et $29\text{-}34 \text{ Bq.kg}^{-1} \text{ sec}$, respectivement) et les sédiments prélevés à l'aval ($1,8\pm 1,1$ et $32\pm 4 \text{ Bq.kg}^{-1} \text{ sec}$, respectivement).

Dans les sédiments du Canal de Cadariège et du Bassin de Régulation, anciens sites de rejet de Malvési, on observe de fortes activités massiques en ^{234}Th (84 ± 9 et $1160\pm 110 \text{ Bq.kg}^{-1} \text{ sec}$, respectivement).

Deux carottages de sédiments (n° 21 et 22) ont été effectués dans les bassins situés à l'aval des canaux de Tauran et de Cadariège, suite aux activités élevées mesurées dans les sédiments du bassin situé à l'aval du Canal de Cadariège (n° 23 : $^{234}\text{Th}=93\pm 10 \text{ Bq.kg}^{-1}$). Les données sont présentées en annexe de ce rapport (Tableau 28). Dans ces deux carottes, on observe des variabilités relativement importantes des activités en ^{234}Th avec des activités fortes en surface de l'ordre de 100 Bq.kg^{-1} dans les cinq premiers centimètres (Figure 16). L'activité massique en ^{234}Th décroît en fonction de la profondeur, de façon plus marquée dans les sédiments du bassin à l'aval du Canal de Tauran ($^{234}\text{Th} = 58$ à 34 Bq.kg^{-1}), en comparaison de l'aval du Canal de Cadariège ($^{234}\text{Th} = 73$ à 77 Bq.kg^{-1}).

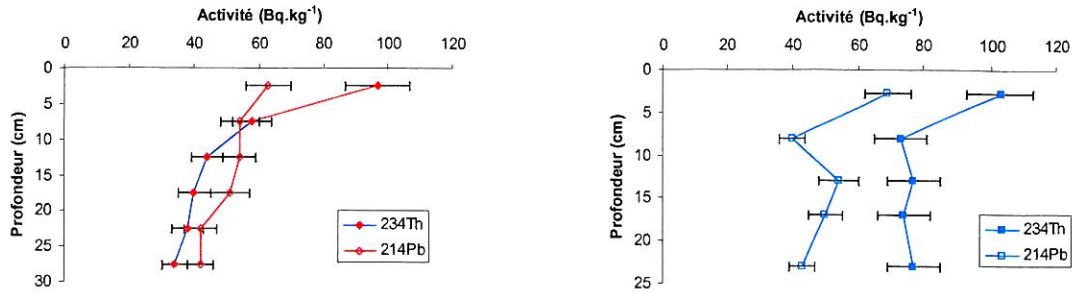


Figure 16 : Variabilité des activités massiques en ^{234}Th et en ^{214}Pb dans deux carottages de sédiments (n°21, à gauche et 22, à droite) effectués dans les bassins situés à l'aval des canaux de Tauran et de Cadariège.

Dans les deux profils sédimentaires, les activités massiques en ^{214}Pb , représentatives des isotopes de la chaîne de ^{238}U en équilibre, sont plus faibles et plus homogènes (42 à 63 Bq.kg^{-1} et 43 à 69 Bq.kg^{-1} dans les carottes n°21 et 22, respectivement). Les importantes activités en ^{234}Th observées à l'aval du rejet aquatique de Malvés dans les sédiments des bassins en comparaison des sédiments des canaux ne sont pas liées aux taux de matière organique des bassins. Au contraire, les sédiments des bassins témoignent de teneurs en matière organique globalement faibles (6-9 %) en comparaison des sédiments des canaux (9-13 %). Les importantes activités en ^{234}Th dans les bassins sont probablement davantage liées à l'accumulation des sédiments qu'à la précipitation de l'uranium à la faveur d'un milieu réducteur, riche en matière organique.

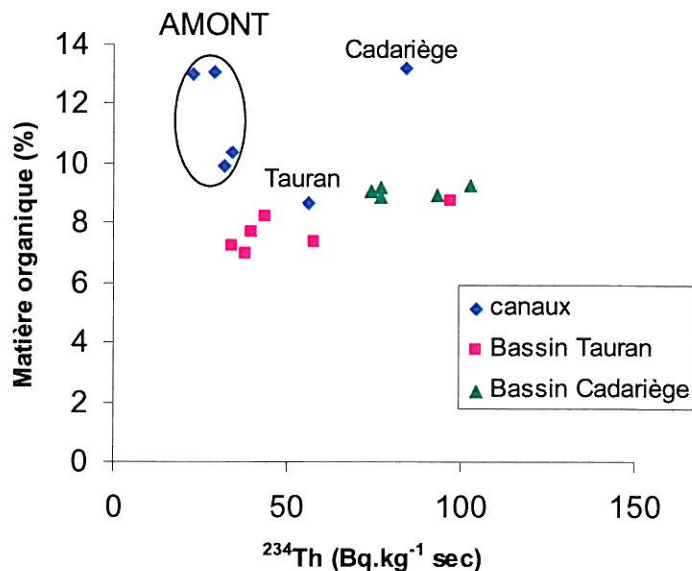


Figure 17 : Variabilité du taux de matière organique et de l'activité en ^{234}Th des sédiments dans l'environnement de site de Malvés.

6.2.1.2 L'uranium

Les activités massique en ^{238}U dans les sédiments (hors Bassin de Régulation), comprises entre 10 et 80 Bq.kg^{-1} (Tableau 15), sont globalement comparables aux activités massiques en ^{234}Th discutées et confirment le marquage à l'aval immédiat du rejet. Dans le détail, on observe dans quelques échantillons de légers enrichissements en ^{234}Th par rapport à ^{238}U (Figure 18).

<i>Situation</i>		^{238}U
2	Tauran amont	20 \pm 2,3
12	Robine amont	10 \pm 1,1
5	Tauran aval	80 \pm 8,6
8	Cadariège	70 \pm 7,4
15	Robine aval	28 \pm 3,2

Tableau 15 : Activités massiques en ^{238}U mesurées par ICP-MS dans les sédiments prélevés dans l'environnement de Malvés (en Bq.kg^{-1} sec). En grisé, figurent les prélèvements sous l'influence potentielle des rejets aquatiques.

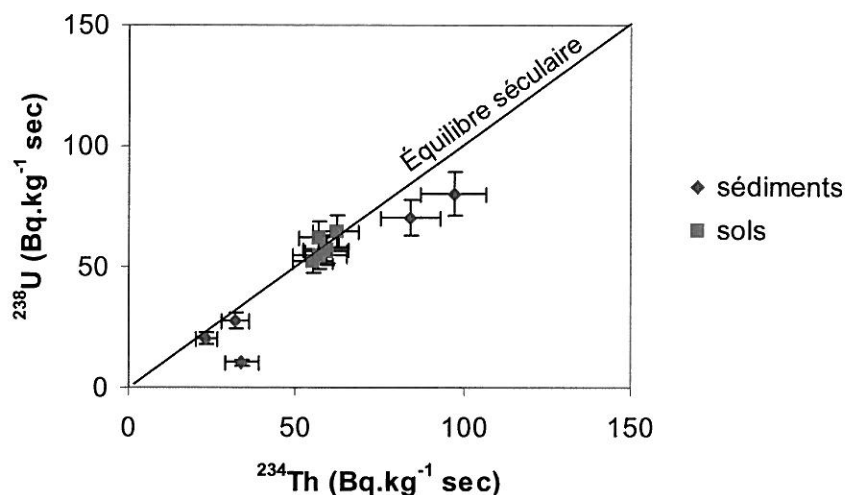


Figure 18 : Activités massiques en ^{238}U en fonction des activités en ^{234}Th dans les sédiments et les sols prélevés dans l'environnement de Malvés.

On note dans les sédiments du Canal de la Robine des activités en ^{238}U environ deux fois plus importantes à l'aval de la confluence avec la Mayral ($28 \pm 3,2 \text{ Bq.kg}^{-1}$ sec), en comparaison de l'amont ($10 \pm 1,1 \text{ Bq.kg}^{-1}$ sec).

6.2.1.3 Les transuraniens

On observe un marquage significatif en transuraniens dans les sédiments prélevés à l'aval immédiat du rejet, dans le canal de Tauran ($^{239+240}\text{Pu} = 0,583 \pm 0,026 \text{ Bq.kg}^{-1}$ sec) ainsi que dans le canal de Cadariège ($^{239+240}\text{Pu} = 1,487 \pm 0,062 \text{ Bq.kg}^{-1}$ sec), en comparaison des sédiments provenant de l'amont du canal de Tauran ($^{239+240}\text{Pu} = 0,108 \pm 0,005 \text{ Bq.kg}^{-1}$ sec) (Tableau 16). Dans le Canal de la Robine, les activités massiques en plutonium observées dans les sédiments prélevés à l'aval de la confluence avec la Mayral ($^{239+240}\text{Pu} = 0,177 \pm 0,008 \text{ Bq.kg}^{-1}$ sec) sont supérieures à celles des sédiments provenant de l'amont ($^{239+240}\text{Pu} =$

0,044±0,002 Bq.kg⁻¹ sec), mais ils sont inférieurs aux activités massiques observées en amont du Canal de Tauran (²³⁹⁺²⁴⁰Pu = 0,108 Bq.kg⁻¹). En moyenne, les rapports d'activités ²³⁸Pu/²³⁹⁺²⁴⁰Pu et ²⁴¹Am/²³⁹⁺²⁴⁰Pu des sédiments sont égaux à 0,033 et 0,2, respectivement.

		²³⁹⁺²⁴⁰ Pu	²³⁸ Pu	²⁴¹ Am	²³⁸ Pu/ ²³⁹⁺²⁴⁰ Pu	²⁴¹ Am/ ²³⁹⁺²⁴⁰ Pu
2	Tauran amont	0,108 ±0,005	0,003 ±0,001	0,031 ±0,005	0,032 ±0,006	0,29 ±0,04
5	Tauran aval	0,583 ±0,026	0,020 ±0,002	0,115 ±0,013	0,034 ±0,004	0,20 ±0,02
8	Cadariège	1,487 ±0,062	0,041 ±0,003	0,183 ±0,020	0,028 ±0,002	0,12 ±0,01
12	Robine amont	0,044 ±0,002	0,002 ±0,0003	0,014 ±0,002	0,036 ±0,008	0,32 ±0,05
15	Robine aval	0,177 ±0,008	0,005 ±0,001	0,041 ±0,006	0,035 ±0,009	0,30 ±0,05

Tableau 16 : Activités massiques des isotopes du plutonium (²³⁸Pu et ²³⁹⁺²⁴⁰Pu) et de l'américium (²⁴¹Am), mesurées par spectrométrie α (en Bq.kg⁻¹ sec) et rapports d'activités ²³⁸Pu/²³⁹⁺²⁴⁰Pu et ²⁴¹Am/²³⁹⁺²⁴⁰Pu dans les sédiments de l'environnement de Malvés. En grisé, figurent les prélèvements sous l'influence potentielle des rejets aquatiques.

C'est dans les sédiments sous l'influence potentielle du rejet qu'on note les rapports des isotopes du plutonium mesurés par ICP-MS les plus faibles (0,033 à 0,069 et 0,00075 à 0,00083 pour ²⁴⁰Pu/²³⁹Pu et ²⁴¹Pu/²³⁹Pu, respectivement) (Tableau 17). Hors influence du rejet aquatique, ces rapports isotopiques sont plus élevés (0,091 et 0,112 et 0,00230 à 0,00081 pour ²⁴⁰Pu/²³⁹Pu et ²⁴¹Pu/²³⁹Pu, respectivement).

	²⁴⁰ Pu/ ²³⁹ Pu	²⁴¹ Pu/ ²³⁹ Pu
2	0,091 ±0,014	0,00230 ±0,0026
5	0,043 ±0,0034	0,00078 ±0,00044
8	0,033 ±0,0019	0,00075 ±0,00033
12	0,112 ±0,0067	0,00081 ±0,00084
15	0,069 ±0,0061	0,00083 ±0,00085

Tableau 17 : Rapports isotopiques atomiques ²⁴⁰Pu/²³⁹Pu et ²⁴¹Pu/²³⁹Pu mesurés par ICP-MS dans les sédiments de l'environnement de Malvés. En grisé, figurent les prélèvements sous l'influence potentielle des rejets aquatiques.

6.2.2 Les eaux de surface

Les activités volumiques en ²¹⁴Pb et ²¹⁴Bi (descendants de ²³⁸U) sont comparables dans l'ensemble des eaux analysées, comprises entre 0,01 et 0,02 Bq.l⁻¹ (Tableau 18). L'activité volumique en ²²⁸Ac dans les eaux témoigne également d'une faible variabilité (0,01 Bq.l⁻¹). La spectrométrie γ donne peu de mesures significatives des activités en ²³⁰Th et ²³⁴U des eaux de surface.

Les plus fortes variations sont observées pour ²³⁵U ainsi que pour les descendants directs de ²³⁸U, à savoir ²³⁴Th et ²³⁴Pa. Parmi les eaux de surface étudiées, on distingue trois groupes en fonction des niveaux d'activités de ces actinides. En premier lieu, l'échantillon prélevé en

amont du rejet, dans le Canal de Tauran, témoigne des plus faibles activités massiques. En effet, les activités volumiques en ^{235}U et en ^{234}Pa sont inférieures à la limite de détection et l'activité volumique en ^{234}Th est de $0,02 \pm 0,001 \text{ Bq.l}^{-1}$. D'autre part, dans les échantillons prélevés dans les canaux en aval du rejet (Tauran, Cadariège et Mayral), on mesure des activités plus élevées en ^{235}U ($0,01 \text{ Bq.l}^{-1}$), en ^{234}Pa ($0,11\text{-}0,18 \text{ Bq.l}^{-1}$) et en ^{234}Th ($0,10\text{-}0,18 \text{ Bq.l}^{-1}$). Enfin, dans les eaux du Bassin de Régulation, les activités massiques en ces radioéléments sont les plus fortes, atteignant $0,05 \pm 0,004 \text{ Bq.l}^{-1}$ en ^{235}U , $0,64 \pm 0,04 \text{ Bq.l}^{-1}$ en ^{234}Th et $0,71 \pm 0,09 \text{ Bq.l}^{-1}$ en ^{234}Pa .

Les activités volumiques en ^{238}U mesurées à l'ICP-MS dans les eaux, comprises entre $0,02$ et $1,09 \text{ Bq.l}^{-1}$ (Tableau 19), sont globalement comparables aux activités en ^{234}Th , discutées précédemment. Ainsi, le marquage à l'aval immédiat du rejet est confirmé par les mesures en uranium dans les eaux. Dans le détail, on observe dans les échantillons d'eaux de surface, à la différence des sédiments, des activités plus importantes en ^{238}U en comparaison de ^{234}Th (Figure 19).

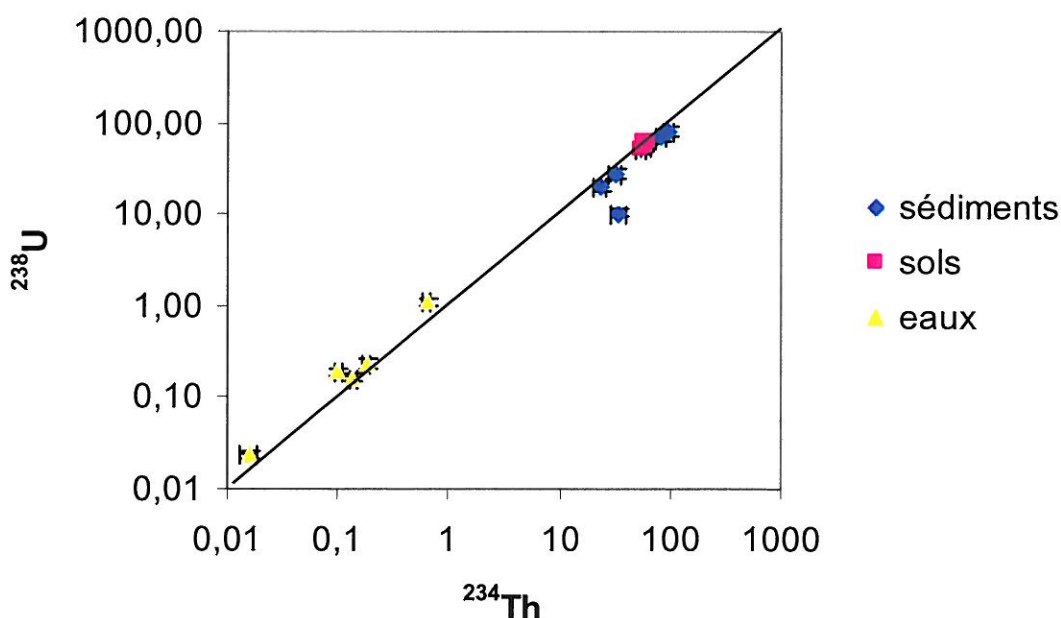


Figure 19 : Activités en ^{238}U en fonction des activités en ^{234}Th dans les eaux (en Bq.l^{-1}), les sédiments et les sols (en $\text{Bq.kg}^{-1} \text{ sec}$) prélevés dans l'environnement de Malvésí.

	^{40}K	^{228}Ac	^{235}U	^{234}Th	^{234}Pa
1 Tauran-amont	0,16 ±0,02	0,01 ±0,002	< 0,002	0,02 ±0,001	< 0,15
4 Tauran-aval	0,12 ±0,01	0,01 ±0,002	0,01 ±0,005	0,10 ±0,01	0,11 ±0,03
7 Cadariège	0,23 ±0,02	0,01 ±0,002	0,01 ±0,003	0,18 ±0,01	0,18 ±0,03
10 Mayral	0,16 ±0,01	0,01 ±0,002	0,01 ±0,002	0,14 ±0,01	0,14 ±0,03
46 B. Régulation	0,13 ±0,01	0,01 ±0,002	0,05 ±0,004	0,64 ±0,04	0,71 ±0,09

	^{234}U	^{230}Th	^{226}Ra	^{214}Pb	^{214}Bi	^{210}Pb
1	< 0,37	<0,04	0,03 ±0,02	0,02 ±0,003	0,02 ±0,003	0,01 ±0,002
4	< 0,52	<0,05	< 0,03	0,01 ±0,002	0,01 ±0,002	< 0,01
7	< 0,78	<0,06	0,04 ±0,03	0,02 ±0,003	0,02 ±0,003	< 0,01
10	< 0,52	<0,07	< 0,03	0,02 ±0,002	0,02 ±0,002	0,01 ±0,003
46	1,07 ±0,15	<0,07	< 0,05	0,01 ±0,002	0,01 ±0,002	< 0,02

Tableau 18 : Activités volumiques en ^{40}K , en certains descendants de ^{232}Th , ^{235}U et ^{238}U mesurées par spectrométrie γ dans les eaux de surface prélevées dans l'environnement de Malvési (en Bq.l⁻¹). En grisé figurent les prélèvements sous l'influence potentielle des rejets aquatiques.

	^{238}U
1 Tauran-amont	0,02 ±0,003
4 Tauran-aval	0,19 ±0,02
7 Cadariège	0,23 ±0,03
10 Mayral	0,16 ±0,02
46 B. Régulation	1,09 ±0,11

Tableau 19 : Activités volumiques en ^{238}U mesurées par ICP-MS dans les eaux de surface prélevées dans l'environnement de Malvési (en Bq.l⁻¹). En grisé, figurent les prélèvements sous l'influence potentielle des rejets de Malvési.

6.2.3 Les végétaux aquatiques

La présentation des résultats obtenus pour les végétaux aquatiques doit prendre en compte, en plus de la localisation (amont ou aval du rejet), la variabilité des espèces (Tableau 20, Figure 20). Dans les canaux de Tauran et de la Mayral, les myriophylles et les cératophylles prélevés à l'amont et à l'aval du rejet permettent d'évaluer l'impact du rejet à proximité du site. Ainsi, on note un marquage en ^{234}Th des myriophylles prélevés à l'aval du rejet (55 à 105 Bq.kg⁻¹ sec), par rapport aux cératophylles prélevés à l'amont (12±2 Bq.kg⁻¹ sec) ou aux myriophylles provenant de l'amont du Canal de la Robine (29±9 Bq.kg⁻¹ sec). A titre de comparaison, les activités massiques les plus élevées en ^{234}Th (759±70 et 514±49 Bq.kg⁻¹ sec, respectivement) sont mesurées dans les myriophylles et les potamots prélevés dans le Bassin de Régulation. Dans les canaux de Tauran et de la Mayral, les variabilités des activités massiques en ^{226}Ra et en ^{214}Pb ne sont pas significatives, au regard de la précision des mesures.

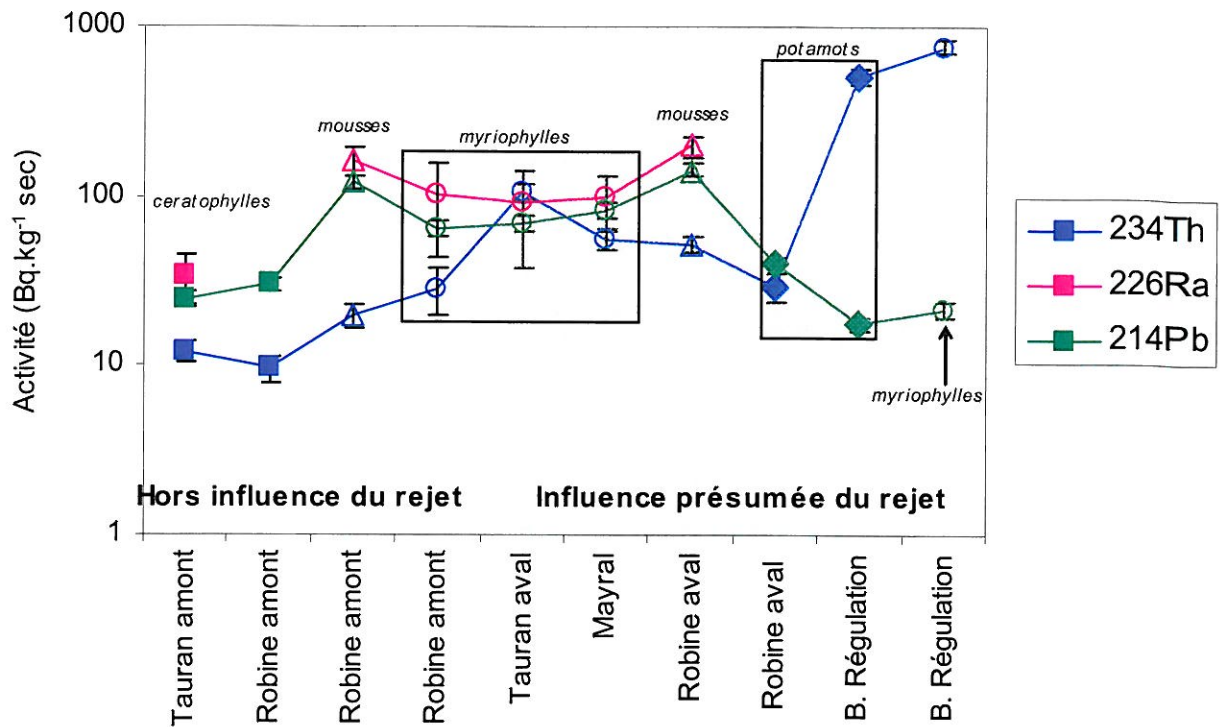


Figure 20 : Variabilité des activités massiques des végétaux aquatiques prélevés dans l'environnement du site COMURHEX de Malvés.

Pour les mousses prélevées dans le canal de la Robine, on observe une activité massique en ²³⁴Th un peu plus importante à l'aval (52 ± 5 Bq.kg⁻¹ sec) en comparaison de l'amont (20 ± 3 Bq.kg⁻¹ sec) de la confluence avec le Canal de la Mayral. Dans ces échantillons, les activités massiques des autres descendants de ²³⁸U sont homogènes (²²⁶Ra : 164-199 Bq.kg⁻¹ sec, ²¹⁴Pb : 121-143 Bq.kg⁻¹ sec).

	¹³⁷ Cs	⁴⁰ K	²²⁸ Ac	²³⁵ U	²³⁴ Th	²³⁴ Pa	²³⁴ U	²³⁰ Th	²²⁶ Ra	²¹⁴ Pb	²¹⁴ Bi	²¹⁰ Pb			
3	Tauran amont	cératophylle	0,2 ±0,1	500 ±46	14 ±2	< 0,7	12 ±2	105 ±11	86 ±29	< 314	< 29	34 ±11	25 ±3	25 ±3	44 ±5
14	Robine amont	cératophylle	0,8 ±0,2	1566 ±142	32 ±4	< 3	10 ±2	55 ±7	< 9	< 249	< 36	< 50	30 ±3	29 ±3	49 ±6
47	Robine amont	mousses	1,7 ±0,3	349 ±34	151 ±17	< 13	20 ±3	52 ±5	73 ±17	< 431	< 52	164 ±30	121 ±11	120 ±13	93 ±10
31	Robine amont	myriophylles	2,6 ±0,4	1065 ±101	69 ±9	< 7,2	29 ±9	29 ±5	< 5	< 504	< 216	101 ±58	65 ±6	65 ±8	74 ±10
6	Tauran aval	myriophylles	0,8 ±0,2	670 ±62	34 ±4	4,7 ±1,4	105 ±11	52 ±5	27 ±5	< 526	< 77	91 ±53	70 ±7	72 ±8	33 ±5
35	Mayral	myriophylle	0,9 ±0,2	372 ±38	45 ±5	< 9	55 ±7	52 ±5	< 115	< 492	< 137	98 ±33	83 ±8	84 ±9	39 ±6
48	Robine aval	mousses	1,2 ±0,2	297 ±28	133 ±17	2,8 ±1	52 ±5	29 ±5	73 ±17	< 490	< 49	199 ±28	143 ±14	143 ±17	95 ±10
49	Robine aval	potamots	2,1 ±0,3	1276 ±114	37 ±4	< 5	29 ±5	29 ±5	< 135	< 486	< 114	< 86	40 ±4	39 ±4	53 ±7
44	B. Régulation	potamots	< 0,6	551 ±54	9 ±1	27 ±5	514 ±49	514 ±49	459 ±54	508 ±168	< 43	< 70	18 ±2	19 ±2	3 ±2
45	B. Régulation	myriophylles	< 0,9	540 ±48	14 ±2	25 ±5	759 ±70	759 ±70	733 ±75	620 ±112	< 155	< 155	21 ±2	21 ±3	6 ±3
9	Mayral	jussie	0,5 ±0,2	370 ±37	119 ±14	8 ±2	118 ±12	118 ±12	132 ±29	< 576	< 86	321 ±53	251 ±25	255 ±29	15 ±4

Tableau 20 : Activités massiques en ¹³⁷Cs, en ⁴⁰K, en certains descendants de ²³²Th, ²³⁵U et ²³⁸U mesurées par spectrométrie γ dans les végétaux aquatiques prélevés dans l'environnement de Malvési (en Bq.kg⁻¹.sec). En grisé figurent les prélèvements sous l'influence potentielle des rejets aquatiques.

6.2.4 Les poissons

Dans les poissons prélevés hors influence ou sous influence potentielle du rejet aquatique du site de Malvési (Tableau 21), on ne relève aucune différence significative des concentrations des descendants de ^{238}U mesurés par spectrométrie gamma. La mobilité des individus peut masquer toute influence du rejet. Les différences de concentration observées doivent être pondérées par la variabilité des espèces prélevées (chevesnes, anguilles et carassins) et leur mobilité entre l'amont et l'aval du rejet, qui influencent le marquage des poissons.

Espèces	Situation	^{137}Cs	^{40}K	^{228}Ac	^{235}U	^{227}Th	^{214}Bi
71 chevesnes	Mayral	< 0,2	106 ±10	< 1	< 0,2	< 0,3	< 0,4
74 anguilles	Tauran	0,02 ±0,01	78 ±7	< 0,10	< 0,01	< 0,08	< 0,14
76 anguilles	Robine amont	< 0,3	77 ±8	< 0,4	< 0,1	< 0,4	< 0,6
78 carassins	Robine aval	< 0,2	102 ±11	< 0,4	< 0,1	< 0,4	< 0,6

	^{234}Th	^{234}Pa	^{234}U	^{230}Th	^{226}Ra	^{214}Pb	^{210}Pb
71	< 1,4	< 22	< 16	< 4,4	< 2,8	< 0,3	< 1,0
74	< 0,21	< 2,6	< 8,3	< 2,0	< 0,24	< 0,1	0,31 ±0,1
76	< 0,7	< 10	< 23	< 6,5	< 1,3	< 0,5	< 2,6
78	< 2	< 11	< 24	< 7,1	< 1,3	< 0,5	< 0,9

Tableau 21 : Activités massiques en ^{137}Cs , en ^{40}K , en certains descendants de ^{232}Th , ^{235}U et ^{238}U mesurées par spectrométrie γ dans les poissons pêchés dans l'environnement de Malvési (en Bq.kg^{-1} frais). En grisé figurent les prélèvements sous l'influence potentielle des rejets aquatiques.

Les concentrations en uranium indiquées dans le tableau 22 mettent en évidence un marquage dans les anguilles provenant du Canal de Tauran ($^{238}\text{U} = 2,3 \pm 0,3 \mu\text{g.kg}^{-1}$), en comparaison des poissons provenant du Canal de la Robine. Dans ce cours d'eau, la concentration en uranium dans les poissons pêchés à l'aval du rejet ($^{238}\text{U} = 0,4 \pm 0,1 \mu\text{g.kg}^{-1}$) est supérieure d'un facteur deux par rapport à l'amont ($^{238}\text{U} = 0,9 \pm 0,1 \mu\text{g.kg}^{-1}$).

Espèces	Situation	^{238}U (Bq.kg^{-1})	^{238}U ($\mu\text{g.kg}^{-1}$)
74 anguilles	Tauran	0,029 ±0,004	2,3 ±0,3
76 anguilles	Robine amont	0,005 ±0,001	0,4 ±0,1
78 carassins	Robine aval	0,011 ±0,002	0,9 ±0,1

Tableau 22 : Activités massiques et concentrations en ^{238}U mesurées par ICP-MS dans les poissons pêchés dans l'environnement de Malvési (en Bq.kg^{-1} frais et en $\mu\text{g.kg}^{-1}$ frais). En grisé figurent les prélèvements sous l'influence potentielle des rejets aquatiques.

6.2.5 Les eaux souterraines

Situation	^{40}K	^{228}Ac	^{235}U	^{227}Th	^{226}Ra
69 Puits Bougna	2,17 ±0,12	< 0,01	< 0,002	< 0,005	< 0,04
70 Puits	0,07 ±0,01	< 0,01	< 0,002	< 0,004	< 0,04
72 Piezo 50	0,29 ±0,02	0,01 ±0,002	< 0,002	< 0,004	0,02 ±0,01
73 Piezo 51	0,24 ±0,02	0,04 ±0,004	< 0,003	< 0,005	0,1 ±0,03
75 Piezo 40 Malvési	0,38 ±0,02	0,05 ±0,01	0,02 ±0,006	< 0,008	< 0,65

	^{234}Th	^{234}Pa	^{234}U	^{230}Th	^{214}Pb	^{214}Bi	^{210}Pb
69	0,02 ±0,004	< 0,3	< 0,9	< 0,1	0,01 ±0,001	0,01 ±0,002	0,1 ±0,01
70	0,01 ±0,003	< 0,2	< 0,2	< 0,1	0,003 ±0,001	0,003 ±0,001	0,03 ±0,005
72	0,02 ±0,003	< 0,2	< 0,8	< 0,1	0,01 ±0,001	0,01 ±0,002	0,01 ±0,003
73	0,02 ±0,004	< 0,3	< 0,8	< 0,1	0,04 ±0,002	0,04 ±0,003	0,01 ±0,004
75	0,5 ±0,03	0,4 ±0,1	< 1,5	< 0,1	0,05 ±0,003	0,04 ±0,004	< 0,03

Tableau 23 : Activités volumiques en ^{40}K , en certains descendants de ^{232}Th , ^{235}U et ^{238}U mesurées par spectrométrie γ dans les eaux souterraines de l'environnement et du site de Malvési (en Bq.l⁻¹).

Les activités volumiques en ^{234}Th sont environ dix fois plus faibles dans les eaux souterraines échantillonnées en périphérie du site dans les piézomètres et dans les puits ($^{234}\text{Th} = 0,02 \pm 0,003$ Bq.l⁻¹), que dans l'eau souterraine prélevée sur le site de Malvési ($^{234}\text{Th} = 0,5 \pm 0,03$ Bq.l⁻¹) (Tableau 23).

7 INTERPRETATION DES RESULTATS

7.1 Milieu terrestre

7.1.1 Les sols

Les prélèvements et les mesures de sols réalisés dans le cadre de cette étude confirment les observations du rapport de synthèse précédent (rapport IRSN/DEI/SESURE 2007-61). Ainsi, les sols échantillonnés à proximité de l'installation (50 m de la clôture et sous les vents dominants) témoignent d'un excès d'uranium par rapport aux sols localisés à plus de 1 Km de la clôture et aux sols non-influencés par les rejets atmosphériques. Cette interprétation de la variabilité des concentrations en uranium découle des activités mesurées en ^{234}Th par spectrométrie γ qui ont été confirmées par quelques mesures des concentrations en ^{238}U par ICP-MS. Selon ces mesures, l'activité massique en uranium des sols (dans les premiers 10 cm d'épaisseur) peut atteindre $60 \text{ Bq.kg}^{-1} \text{ sec}$ (soit $4,8 \text{ mg.kg}^{-1}$), pour un bruit de fond géochimique des sols de l'ordre de 30 Bq.kg^{-1} (soit $2,4 \text{ mg.kg}^{-1}$). Certaines mesures de sol réalisées en 2003 par le CEA/DAM donnent des concentrations ponctuellement plus importantes (9 et 19 mg.kg^{-1}), mais il est possible que les prélèvements aient été réalisés en des points qui se trouvent aujourd'hui dans l'enceinte du site.

L'ensemble des mesures des sols réalisées dans le cadre des différentes études (IPSN, 1993 ; IPSN, 1995 ; CEA/DAM, 2003 ; COMURHEX, 2006) a été compilé dans un SIG (système d'information géographique) pour restituer la répartition des concentrations en uranium autour du site. Le positionnement de l'ensemble des mesures confirme que les sols les plus marqués par l'uranium (concentrations supérieures à 4 mg.kg^{-1}) sont localisés à proximité immédiate et à l'est du site (Figure 21). Dans cette direction et jusqu'à 800 m de la clôture, les concentrations en uranium sont comprises entre 3 et 4 mg.kg^{-1} . A plus de 2 km de la clôture, les concentrations en uranium dans les sols sont plus homogènes et plus faibles ($2\text{-}3 \text{ mg.kg}^{-1}$).

Ces observations ont conduits à proposer une cartographie des concentrations en uranium des sols à l'est de l'installation, zone dans laquelle les mesures de sols sont les plus nombreuses. L'interpolation des mesures par la méthode de l'inverse du carré de la distance fait apparaître les différentes zones d'influence des rejets en uranium de l'usine ainsi que le bruit de fond géochimique qui se manifeste à partir de 1 km environ de la clôture (Figure 22). Par ailleurs, les cartographies font apparaître un manque de données concernant la zone située à l'ouest de l'installation. En conséquence, des prélèvements seront réalisés dans cette zone en 2008, qui permettront de lever l'incertitude de la cartographie des concentrations en uranium qui entache cette zone.

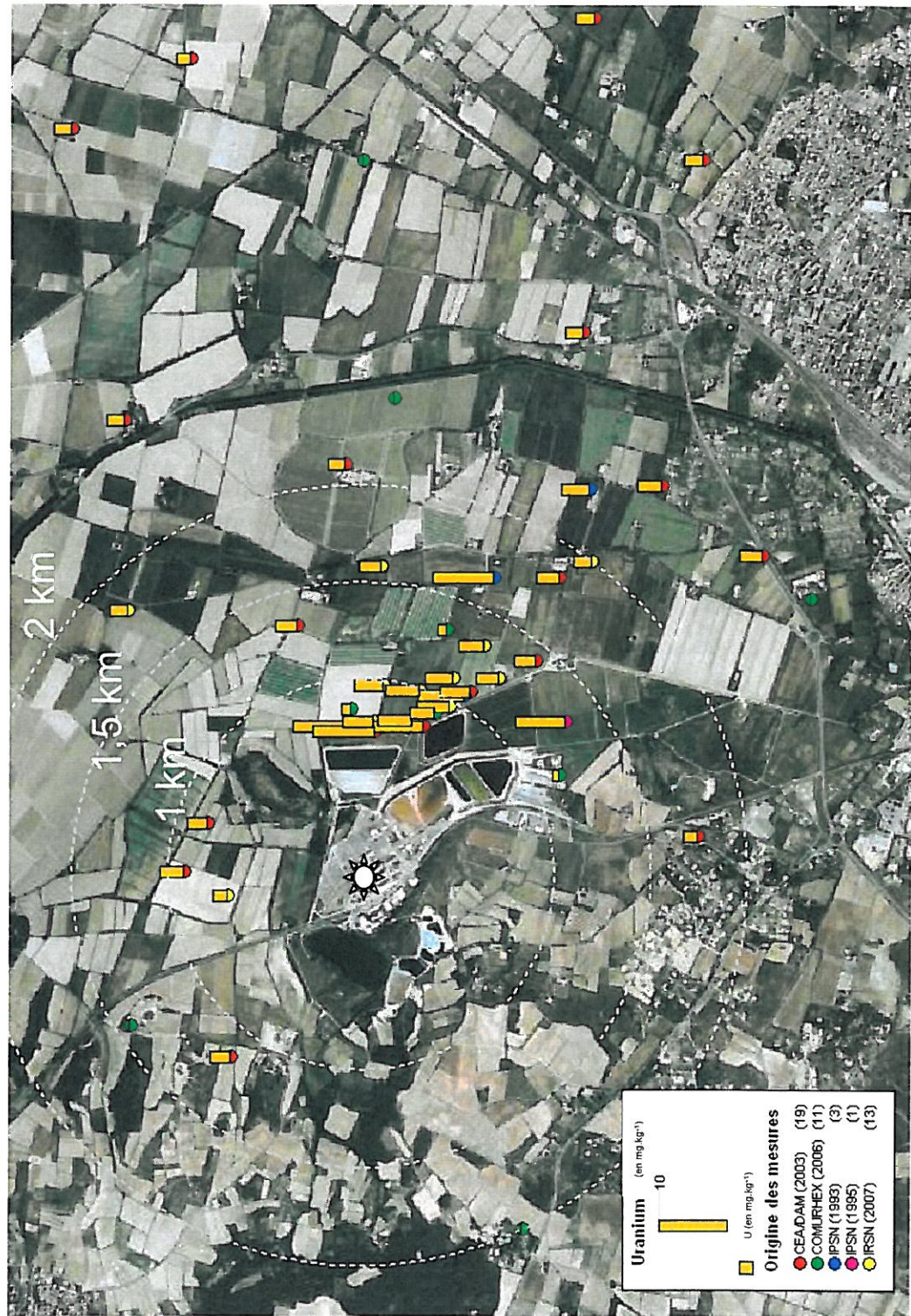


Figure 21 : Variabilité des concentrations en uranium mesurées dans les sols lors des différentes études menées autour du site de Malvézi, en fonction de la distance au point d'émission.

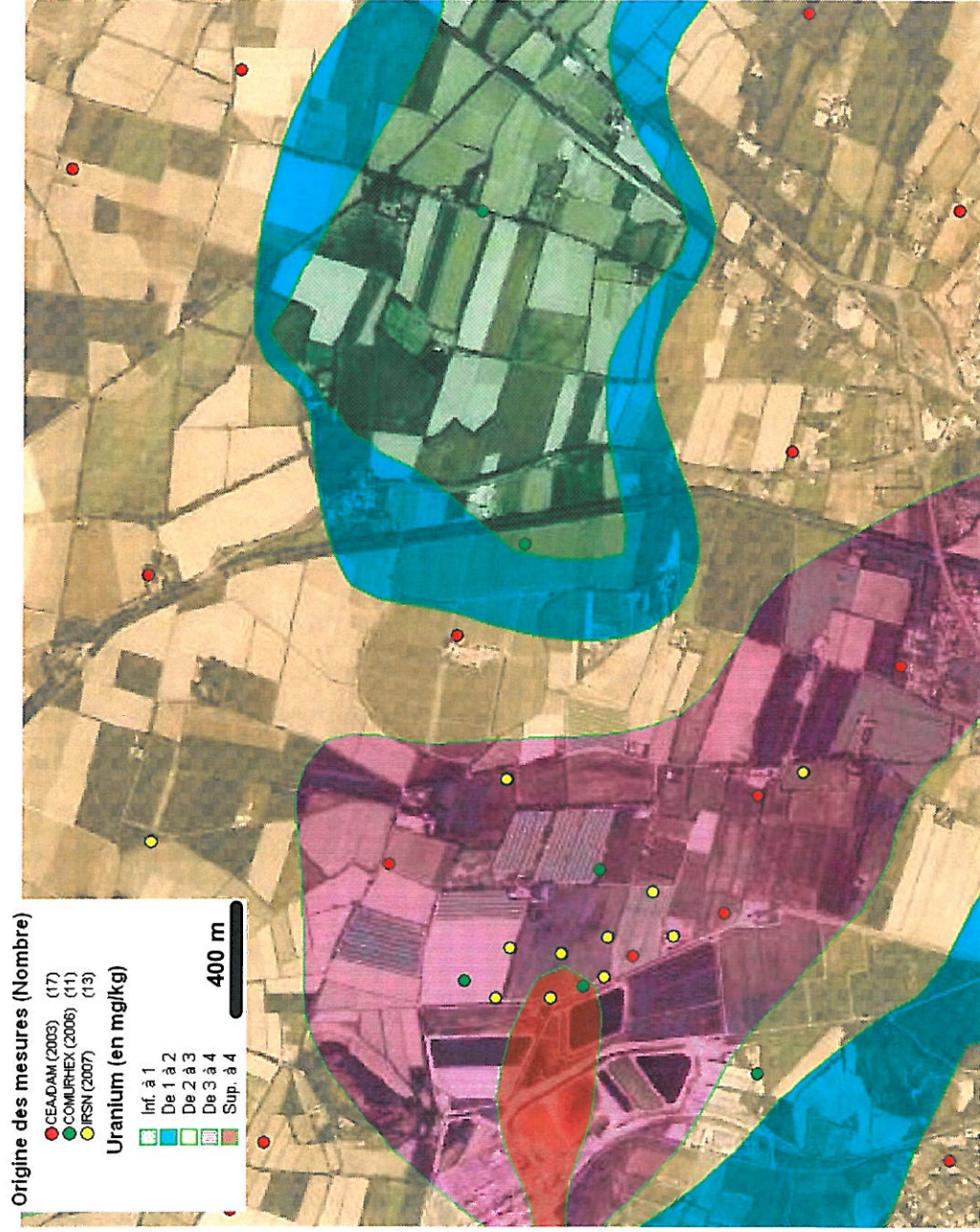


Figure 22 : Interpolation des concentrations en uranium dans les sols à l'est du site de Malvési.

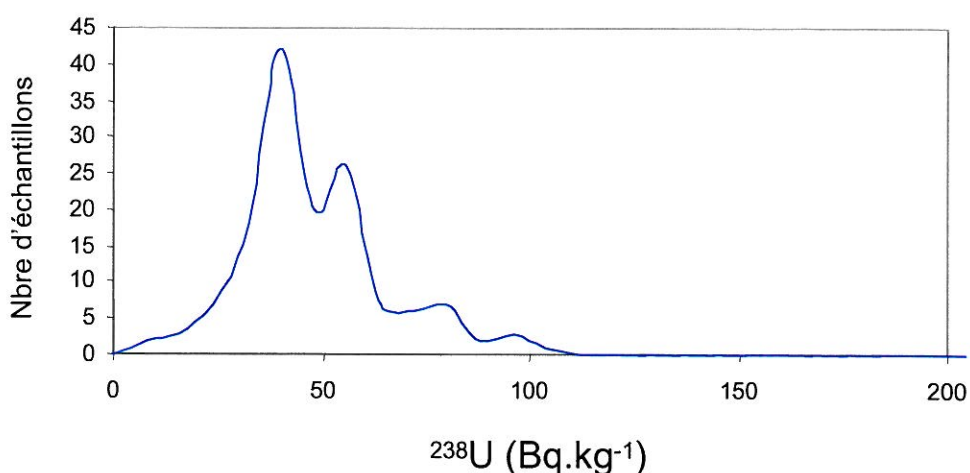


Figure 23 : Distribution statistique de l'activité massique de l'uranium dans les sols de surface en France (d'après Le Roux, 2007).

Les concentrations en uranium observées dans les sols de Malvésy vont de moins de 2 à plus de 4 mg.kg⁻¹, soit moins de 30 à plus de 60 Bq.kg⁻¹ (figure 22). Ces activités témoignent d'un net marquage de l'environnement par le site par rapport au bruit de fond local. Toutefois, la figure 23 montre qu'elles sont dans la moyenne des concentrations en uranium observées dans les sols français.

7.1.2 Les végétaux

Les fortes activités en uranium, en ses descendants et en transuraniens mesurées sur les feuilles de cyprès témoignent d'une contamination atmosphérique suffisante pour marquer de manière significative l'environnement. Ce bioindicateur permet d'enregistrer des activités massiques significatives à 900 m à l'Est de la clôture (²³⁴Th = 83±7,4 Bq.kg⁻¹ sec), c'est-à-dire à la station de prélèvement la plus éloignée du site (Domaine de Lamotte). A la différence des sols, pour lesquels l'impact des rejets en uranium est moins visible au delà de 1 km de la clôture, Les données acquises dans le cadre de cette étude ne permettent pas de borner la zone d'influence des rejets atmosphériques de Malvésy sur la végétation.

Différentes sources de radioactivité expliquent probablement une part de la variabilité du marquage des aiguilles de cyprès :

- les rejets atmosphériques autorisés à la cheminée (source primaire), effectués dans le cadre de l'exploitation actuelle de l'installation, expliquent très probablement en grande partie les activités massiques élevées des feuilles de cyprès en ²³⁴Th (jusqu'à 228±20 Bq.kg⁻¹ sec dans les échantillons prélevés à 20 m de la clôture);
- la mise en suspension dans l'air des éléments les plus fins composant les boues des bassins de décantation, explique probablement l'excès en ²³⁰Th observé en bordure du site (Figure 24), qui ne peut provenir que des bassins. En effet, cet élément résultant du

fonctionnement actuel de l'installation est essentiellement rejeté dans les effluents liquides. En complément d'une remise en suspension naturelle (vent), les travaux de terrassement entrepris au niveau des bassins ont pu favoriser cette remise en suspension. La contamination en transuraniens (^{241}Am visible dans les feuilles de cyprès et en particulier dans le blé, en bordure de site) ne peut provenir que de cette même source secondaire, puisque les rejets de ces radioéléments artificiels se sont déroulés entre 1960 et 1983, période pendant laquelle l'usine de Malvési a retraité l'URT en provenance de Marcoule ;

- enfin, une contribution de la contamination des végétaux à partir des sols de l'environnement du site (remise en suspension de particules, voire transfert racinaire), ne peut être écartée, car les sols témoignent d'une contamination en transuraniens provenant des rejets anciens de l'usine (voir paragraphe 7.3).

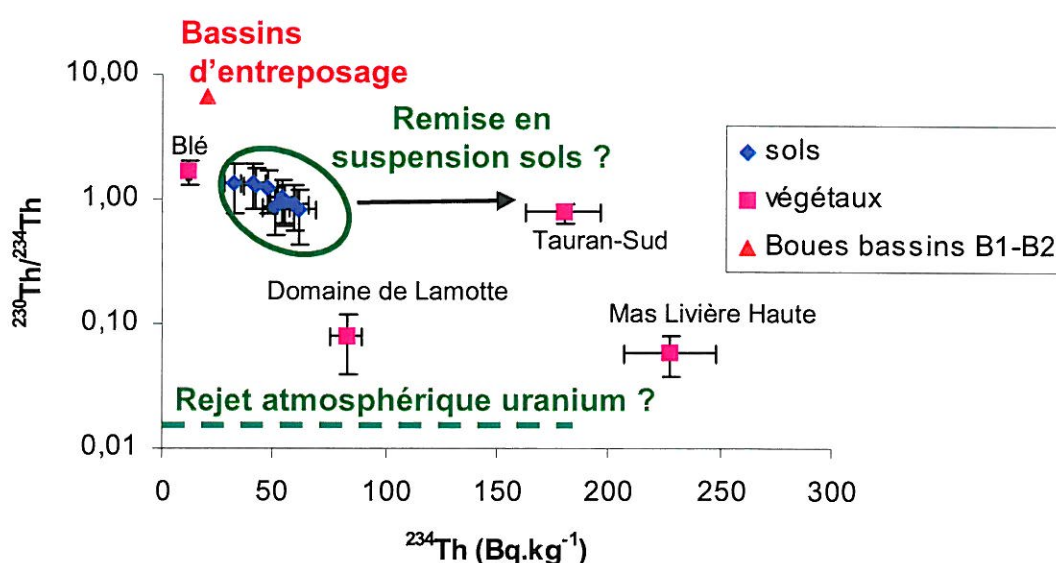


Figure 24 : Variabilité du rapport $^{230}\text{Th}/^{234}\text{Th}$ des feuilles de cyprès et du blé et des sources potentielles d'actinides dans l'environnement de Malvési : rejets atmosphériques d'uranium, bassins de stockage (données AREVA), mise en suspension de particules à partir du sol.

Les activités élevées des principaux actinides mesurés dans l'échantillon de blé prélevé en 2007 ($^{230}\text{Th} = 19 \pm 4 \text{ Bq.kg}^{-1}$; $^{239+240}\text{Pu} = 0,445 \pm 0,018 \text{ Bq.kg}^{-1}$; $^{241}\text{Am} = 0,089 \pm 0,006 \text{ Bq.kg}^{-1}$) sont supérieures de deux à quatre ordres de grandeur aux activités attendues dans cette matrice, en tenant compte des activités des actinides mesurées dans les sols et des facteurs de transfert sols/céréales (Figure 25). Les activités en $^{239+240}\text{Pu}$ communément mesurées dans le blé et le maïs en France sont de l'ordre de $0,017 \cdot 10^{-3}$ à $0,8 \cdot 10^{-3} \text{ Bq.kg}^{-1}$. A titre de comparaison, dans le riz de Camargue, influencé par les rejets liquides de Marcoule et sur les sols contaminés en Pu par les inondations, les activités variaient entre $2 \cdot 10^{-4}$ et $7 \cdot 10^{-2} \text{ Bq.kg}^{-1}$ (moyenne de 12 échantillons entre 1994 et 1998 : $10^{-2} \text{ Bq.kg}^{-1}$).

Pour expliquer les activités massives élevées de ces trois radionucléides mesurées dans le blé, prélevé au voisinage de l'installation, il faut certainement invoquer, comme pour les

feuilles de cyprès, un mode de transfert par voie aérienne, résultant de la remise en suspension de particules issues des bassins de décantation. Les travaux de terrassement et de restauration des digues des bassins B1-B2 effectués en 2007 ont pu contribuer à augmenter cette remise en suspension.

Néanmoins, les analyses de blé en herbe et de blé sauvage réalisées sur les prélèvements du printemps 2008 révèlent des activités massiques en ^{238}U (^{234}Th : 7,5 à 11,5 Bq.kg^{-1}) qui sont proches de celles mesurées en 2007. Par ailleurs, les activités en ^{241}Am et ^{230}Th mesurées par spectrométrie gamma en 2008 sont inférieures aux limites de détection, elles mêmes proches des valeurs mesurées en 2007. Il en résulte qu'il n'est pas actuellement possible de conclure sur une diminution de la contamination en ^{230}Th et en transuraniens du blé entre 2007 et 2008, et donc de relier directement la contamination constatée en 2007, aux travaux de terrassement effectués cette année là. D'autres analyses d'échantillons de blé prélevés au cours de l'été 2008 devraient permettre de se prononcer sur le caractère ponctuel de cette contamination par remise en suspension.

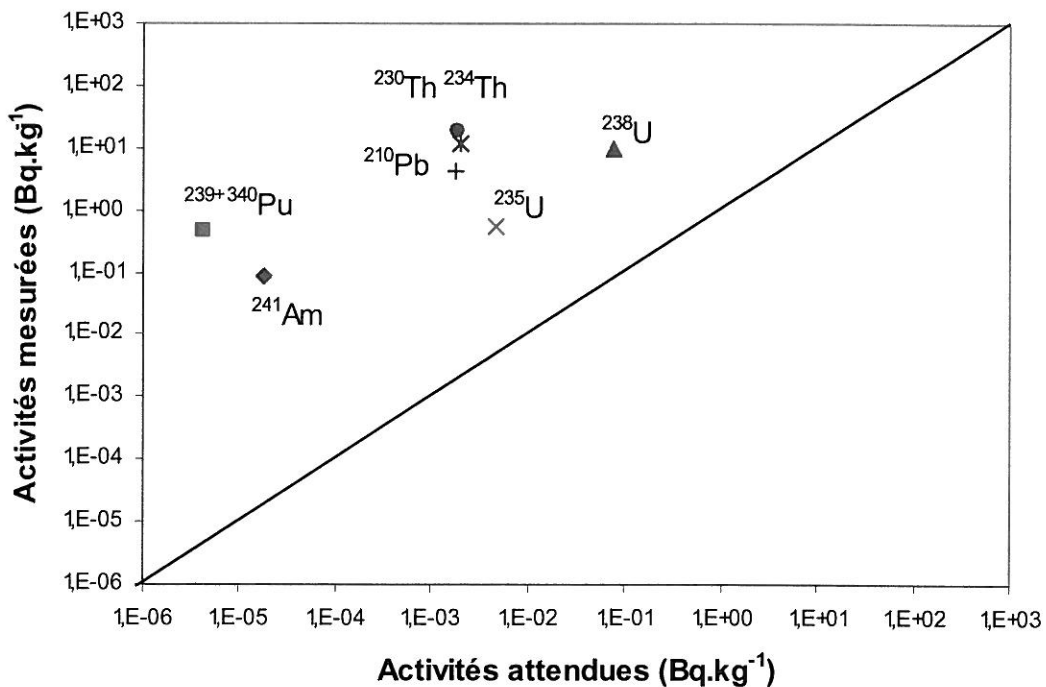


Figure 25 : Comparaison entre les activités massiques mesurées et les activités attendues des principaux actinides naturels et artificiels dans le blé, compte tenu des facteurs de transferts aux céréales et des activités des sols de Malvésí.

En ce qui concerne les fruits prélevés sur la zone étudiée (prunes, figues, raisin et tomates), les analyses par spectrométrie γ révèlent des contaminations très faibles par les descendants de l'uranium. Il est à noter, par exemple, que ^{230}Th n'a pas été détecté dans les fruits. Les concentrations en uranium dans les fruits varient fortement entre 0,1 et 12 $\mu\text{g.kg}^{-1}$ frais. Les concentrations les plus significatives (1,6 à 12 $\mu\text{g.kg}^{-1}$ frais), observées à

l'est et au sud, à moins de 1 km environ de l'installation, sont vraisemblablement imputables aux rejets liés au fonctionnement actuel du site.

7.2 Milieu aquatique

Les mesures réalisées en champs proche confirment le marquage par les rejets dans les canaux et les bassins situés à l'aval immédiat du rejet. En effet, les plus fortes concentrations en uranium sont mesurées dans les sédiments des Canaux de Cadariège (ancien canal de rejet) et de Tauran (actuel canal de rejet) ($80 \pm 8,6$ et $70 \pm 7,4$ Bq.kg⁻¹ sec, respectivement) et également dans les bassins qui sont situés à l'aval de ces canaux (jusqu'à 100 Bq.kg⁻¹ en ²³⁴Th). De par leur surface (environ 40 ha), ces bassins constituent probablement d'importantes zones d'accumulation de l'uranium rejeté par le site de Malvésí.

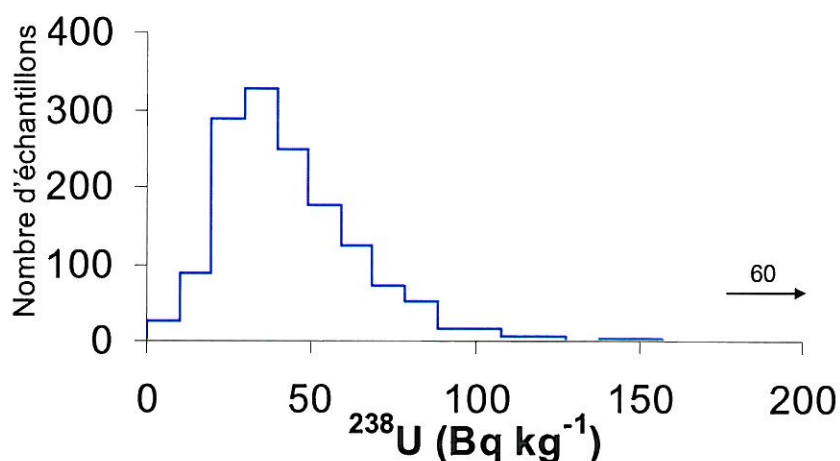


Figure 26 : Distribution statistique de l'activité massique de l'uranium dans les sédiments des fleuves en France (d'après Le Roux, 2007).

Les concentrations en uranium observées dans les sédiments de l'environnement de Malvésí (de 30 à 100 Bq.kg⁻¹) se situent dans les valeurs les plus élevées observées dans les sédiments des fleuves français (de 30 et 50 Bq.kg⁻¹) (Figure 26).

Dans les eaux et les végétaux prélevés de l'ancien et de l'actuel canal de rejet, on mesure également des excès d'uranium provenant du rejet aquatique du site de Malvésí (jusqu'à $0,2 \pm 0,02$ Bq.l⁻¹ en ²³⁸U dans le Canal de Tauran). Rappelons que l'activité massique en uranium dans les systèmes aquatiques continentaux en France est comprise entre 10^{-2} et 10^{-5} Bq.l⁻¹.

Le marquage en uranium par le rejet est également visible dans les poissons pêchés à l'aval immédiat du rejet (²³⁸U = $2 \pm 0,3$ µg.kg⁻¹). Les activités massiques en ²³⁸U des sédiments, des mousses et des poissons du Canal de la Robine, ainsi que celles en ²³⁴Th des mousses de ce même canal, environ deux fois plus importantes à l'aval de la confluence avec la Mayral en comparaison de l'amont, montrent que les conséquences du rejet liquide en uranium, bien

que faible, sont encore décelables dans le Canal de la Robine. Les activités massiques en ^{234}Th des sédiments et des poissons ne font pas apparaître de différence amont/aval.

Enfin, les activités volumiques en ^{234}Th des eaux souterraines prélevées en périphérie du site et dans les puits privés sont relativement homogènes ($^{234}\text{Th} = 0,02 \pm 0,003 \text{ Bq.l}^{-1}$) et ne permettent pas de mettre en évidence un marquage du site.

7.3 Les transuraniens

Les résultats des mesures en transuraniens dans les sols et les sédiments réalisés dans le cadre de cette étude confirment la variabilité des activités massiques et des rapports d'activité des transuraniens des études antérieures, synthétisées dans le rapport précédent (rapport IRSN/DEI/SESURE 2007-61). La figure 27 illustre, pour les échantillons de sols et de sédiments prélevés dans le champ proche de l'installation, le marquage par les actinides artificiels provenant de rejets anciens de Malvési (conversion de l'URT en provenance de Marcoule, entre 1960 et 1983), qui se superpose au bruit de fond du plutonium provenant des dépôts atmosphériques consécutifs aux tests des armes nucléaires (données IPSN de la Basse-Vallée du Rhône).

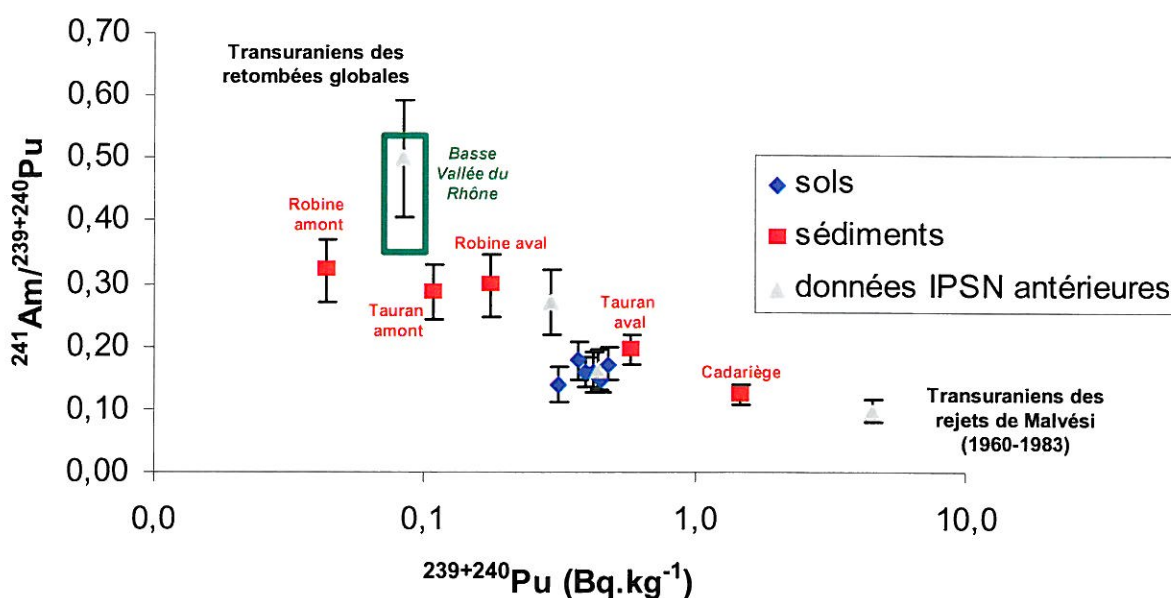


Figure 27 : Variabilité du rapport d'activité $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ en fonction de l'activité en plutonium des sols et des sédiments prélevés par l'IRSN en 2007 dans l'environnement de l'installation de Malvési par rapport aux mesures des études antérieures.

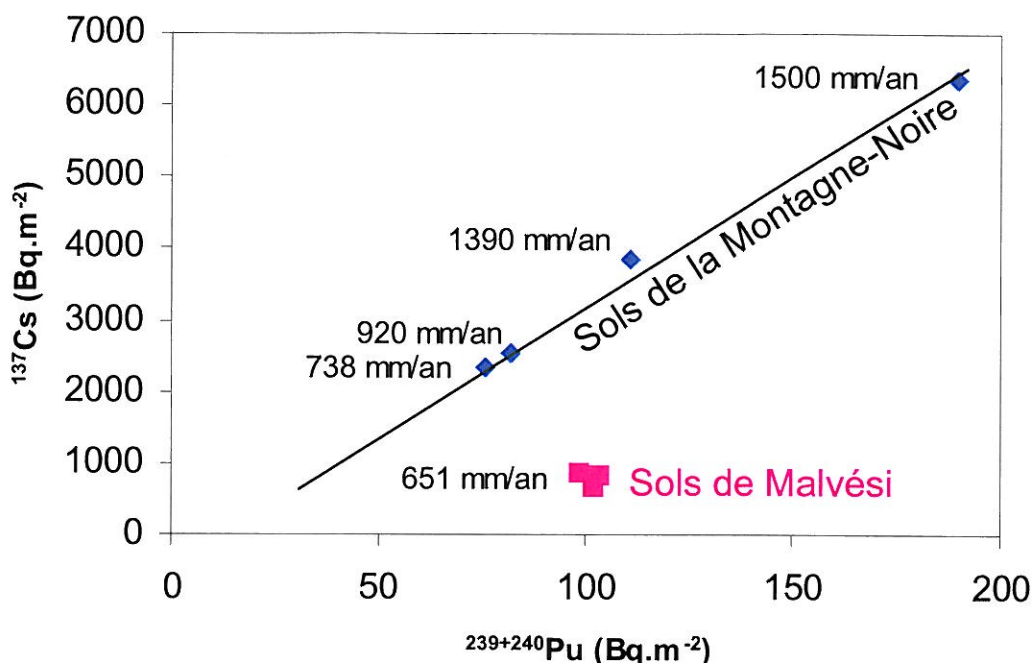


Figure 28 : Variabilité des inventaires en ^{137}Cs et en plutonium des sols de Malvési en comparaison des sols de la Montagne-Noire.

L'excès de plutonium est également visible si l'on compare les inventaires des sols de Malvési (plutonium et radiocésium) aux inventaires provenant des retombées des tirs atmosphériques. En effet, les sols de la Montagne-Noire témoignent d'une bonne corrélation des inventaires en ^{137}Cs et en plutonium des retombées atmosphériques, qui augmentent dans des proportions comparables en fonction de l'intensité des précipitations moyennes annuelles (Figure 28). La corrélation observée entre les deux radioéléments suggère que pour les sols de Malvési, dont l'activité surfacique en ^{137}Cs est de 700 à 900 Bq.m⁻², l'inventaire en plutonium devrait être de l'ordre de 40-50 Bq.m⁻², alors qu'il est au niveau de 100 Bq.m⁻², ce qui témoigne d'un enrichissement.

On peut souligner que des activités massiques en $^{239+240}\text{Pu}$ similaires à celles mesurées dans les sols de Malvési sont observables sur les sites français présentant une pluviométrie de l'ordre de 1000 mm.an⁻¹.

La comparaison des rapports isotopiques du plutonium mesurés dans les sols de Malvési avec les rapports isotopiques de sources potentielles de plutonium (retombées atmosphériques, combustible civil, Pu de qualité militaire) montre que le plutonium mesuré est enrichi en ^{239}Pu à des niveaux comparables à celui du plutonium militaire (Tableau 24).

	$^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$	$^{241}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$
Sols Malvésis	0,050-0,055	0,0005-0,0009
Retombées atmosphériques des essais nucléaires*	0,18	0,002
Combustible civil (Tchernobyl)**	0,39	-
Pu qualité militaire***	0,05-0,06	0,005

* d'après Kelley et al. (1999)

** d'après Boulyga et Becker (2002)

*** d'après Mitchell et al. (1997) ; Lee et Clark (2005)

Tableau 24 : Signatures isotopiques du plutonium des sols de Malvésis et des sources potentielles de plutonium.

En comparaison des sols, les sédiments témoignent d'une forte variabilité des activités en plutonium et des rapports isotopiques ($^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$) (Figure 29). La variabilité observée témoigne avec précision des deux sources prépondérantes du plutonium dans l'environnement de Malvésis :

- les rejets de l'installation, dont le plutonium est fortement enrichi en ^{239}Pu , sont visibles en champ proche (sols, sédiments à l'aval de Tauran et de Cadariège) ;
- les dépôts atmosphériques des tirs nucléaires ($^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu} = 0,18$), qui sont probablement prépondérants dans les sédiments à l'amont de la Robine et à Tauran, mais les rapports isotopiques des sédiments (0,0112 et 0,091, respectivement) laissent supposer un marquage par les rejets de Malvésis. En effet, bien que localisés à l'amont du rejet en milieu aquatique, ces sites de prélèvement sont situés sous le vent dominant.

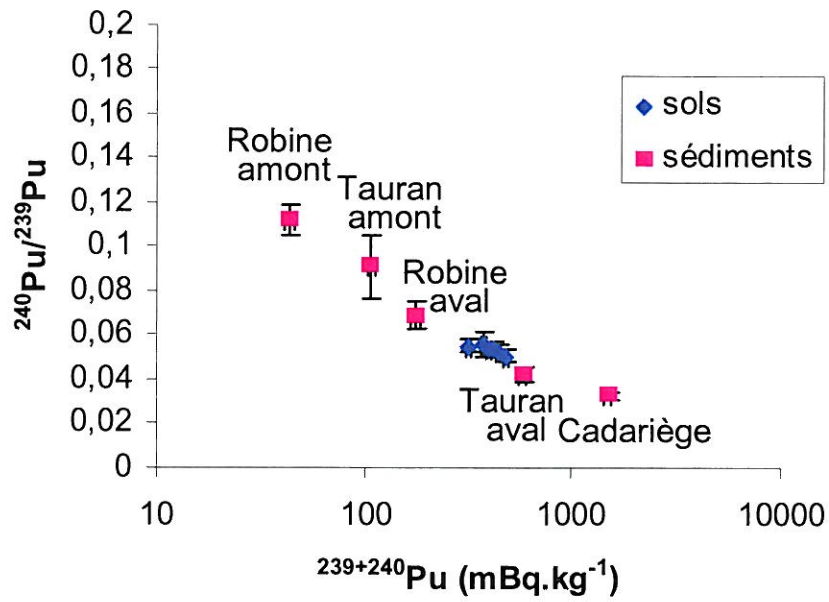


Figure 29 : Rapports isotopiques $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ en fonction des activités en plutonium des sols et des sédiments dans l'environnement de Malvési.

8 SYNTHÈSE ET RECOMMANDATIONS

A la demande d'AREVA-NC, l'IRSN a réalisé une étude radioécologique dans l'environnement du site COMURHEX de Malvés (Aude) (commande 40018412 du 01/06/2007). Cette usine est aujourd'hui spécialisée dans la purification de l'uranium naturel et la production de fluorure d'uranium (UF₄). Entre 1960 et 1983, le site de Malvés a retraité de l'uranium de retraitement (URT), ce qui occasionne depuis cette époque le stockage de boues comportant des transuraniens (Pu, Np et Am) dans les bassins d'entreposage du site.

Les résultats de cette étude montrent que le marquage de l'environnement par les rejets atmosphériques et liquides de cette installation est visible tant dans le milieu terrestre qu'aquatique.

Le marquage du milieu terrestre bien visible jusqu'à 1km dans la direction prédominante des vents, s'estompe au-delà, sans que la zone influencée soit précisément bordée.

Dans les sols, le marquage se caractérise par une augmentation d'environ un facteur 2 par rapport aux niveaux attendus en uranium naturel et en transuraniens (issus de la rémanence des retombées des essais d'armes nucléaires).

Les concentrations en uranium dans les fruits prélevés à vingt mètres environ de la clôture du site de Malvés (10 µg.kg⁻¹ frais) sont jusqu'à 20 fois supérieures au niveau mesuré à plus grande distance, probablement représentatif du bruit de fond régional. Le marquage des blés et d'un bioindicateur (feuilles de cyprès), est également prononcé en bordure de clôture. Il atteint dans les feuilles de cyprès des concentrations en uranium jusqu'à plus de 100 fois supérieures à celles observées en zones non influencées. Ce marquage a pour origine essentielle les rejets atmosphériques à la cheminée (source primaire), autorisés dans le cadre de l'exploitation actuelle de l'installation.

La détection dans le blé des isotopes du plutonium, de l'américium-241 et du thorium-230 démontre une contamination diffuse par la mise en suspension de particules provenant de bassins de décantation ou d'entreposage, qui peut conduire à des activités massiques en ²³⁹⁺²⁴⁰Pu 100 à 10 000 fois supérieures à celles observées en général sur le territoire français.

Au regard de ce constat, l'IRSN recommande :

- d'une part, des prélèvements complémentaires de sols et de végétaux afin de préciser l'extension de la zone influencée ;
- d'autre part, la mise en place de collecteurs d'aérosols afin d'analyser les niveaux d'activités dans l'air des principaux radioéléments, sur une période assez longue pour permettre d'intégrer les différentes conditions climatiques.

Le marquage du milieu aquatique s'étend au-delà des exutoires de rejets liquides anciens et actuels, jusqu'à l'aval du canal de la Robine. Les concentrations mesurées en uranium et ses descendants ainsi qu'en transuraniens dans les sédiments et la flore aquatique témoignent de ce marquage. Dans les eaux et la faune aquatique, le marquage est détecté uniquement aux abords proches du site, dans les canaux du Tauran et de Cadariège ainsi que dans le bassin de régulation (bassin tampon des rejets des eaux usées de l'installation). L'IRSN considère que la surveillance du milieu aquatique (eaux de surface, sédiments, végétaux) devrait prendre en compte non seulement les rejets liés au process actuel (Canal de Tauran et son aval hydraulique), mais également les marquages diffus liés aux contaminations anciennes (Bassin de Régulation et Canal de Cadariège). Enfin, il semble nécessaire de confirmer que l'extension du marquage se limite à l'aval du canal de la Robine, en explorant notamment des zones de sédimentations situées plus en aval.

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., Marchand, S. 1992. Suivi de la radioactivité γ de l'environnement du site de Malvési (COMURHEX), année 1992, rapport IPSN/SERE 92/054, 15 p.
- Baudin-Jaulent, Y. 1993. Etude radioécologique du site de Malvési (COMURHEX), année 1992, rapport IPSN/SERE 93/081, 40 p.
- Baudin-Jaulent, Y. 1994. Suivi radioécologique du site de Malvési (COMURHEX), année 1993, rapport IPSN/SERE 95/050, 29 p.
- Baudin-Jaulent, Y. 1995. Données radioécologiques du site de Malvési (COMURHEX), année 1994, rapport IPSN/SERE 95/030, 32 p.
- Boulyga, S.F., Becker, J.S 2002. Isotopic analysis of uranium and plutonium using ICP-MS and estimation of burn up of spent fuel in contaminated environmental samples, Journal of radioanalytical Atomic Spectrometry, 17, 1143-1147.
- COMURHEX, 2004. Evaluation des niveaux de radioactivité dans la plaine de la Livière (situation 2004)
- COMURHEX, 2006. Bilan des consommations et des rejets aqueux et atmosphériques de l'Établissement, Rapport 85 p.
- COMURHEX, 2006a. Analyses dans le milieu naturel pour déterminer le devenir et la persistance des substances émises par COMURHEX Malvési.
- COMURHEX, 2006b. Étude de la sensibilité du milieu naturel
- COMURHEX, 2006c. Evaluation des niveaux de radioactivité dans la plaine de la Livière (situation 2005)
- COMURHEX, 2007. Evaluation des niveaux de radioactivité dans la plaine de la Livière (situation 2006)
- CRIIRAD, 2006. Impact radiologique de l'usine COMURHEX (groupe AREVA) de Malvési (Aude), rapport 65 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.
Fiche radionucléide IRSN, Uranium naturel et environnement.
- Guétat, Ph., Monfort, M. 2003. Etude de l'impact radiologique de l'installation COMURHEX de Malvési sur l'environnement, rapport VAL INDSI RBC DET 03000516 A
- IRSN, 2005. Bilan de l'état radiologique de l'environnement français en 2005, rapport DEI/SESURE 2005-33, 227 p.
- IRSN, 2006. Intervention en périphérie extérieure du site de COMHUREX-Malvési suite à l'incident impliquant une contamination radioactive, rapport DEI/SIAR 2006-74, 14 p.
- IRSN, 2007. Synthèse des mesures des radioéléments naturels et artificiels dans l'environnement du site de Malvési, rapport DEI/SESURE 2007-61, 44 p.
- IRSN, 2007. Bilan de l'état radiologique de l'environnement français en 2005, rapport DEI/SESURE 2007-30, 225 p.
- Kelley, J.M., Bond, L.A., Beasley, T.M. 1999. Global distribution of Pu isotopes and ²³⁷Np. Science of the Total Environment, 237-238, 483-500.
- Lee, M. H, Clark, S. B. 2005. Activities of Pu and Am isotopes and Isotopic ratios in asoil contaminated by weapons-grade plutonium. Environment Science Technology, 39, 5512-5516.

- Le Roux, G. 2007. Radionucléides naturels en France, approche géochimique de la variabilité des radionucléides naturels d'origine tellurique (40K et chaînes U-Th) dans les sols et les sédiments, rapport DEI/SESURE 2007-21, 41 p.
- Le Roux, G., Pourcelot, L., Masson, O., Duffa, C., Vray, F., Renaud, P., 2008. Aerosol deposition and origin in French mountains estimated with soil inventories of ^{210}Pb and artificial radionuclides, *Atmospheric Environment*, 42, 1517-1524.
- Mitchell, P.I., León-Vintró, L., Dahlgaard, H., Gascó, C., Sánchez-Cabeza, J.A., 1997. Perturbation in the $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ global fallout ratio in local sediments following the nuclear accidents at Thule (Greenland) and Palomares (Spain). *Science of the Total Environment* 202, 147-153.
- Montfort, M., Destacamp, 2006. Etude de l'impact de l'installation de COMURHEX de Malvési sur l'environnement, CEA/DAM, rapport VAL.INDSI.RBC.DET06000287A.
- Pourcelot, L., Steinmann, Ph., Froidevaux, P., 2007. Lower variability of uplands dairy products compared to soils and vegetation: Implication for environmental Survey, *Chemosphere*, 66, 1571-1579.

10 ANNEXES

Profondeur (cm)	¹³⁷ Cs	⁴⁰ K	²²⁸ Ac	²³⁵ U	²²⁷ Th	²³⁴ Th	²³⁴ Pa	²³⁴ U	²³⁰ Th	²²⁶ Ra	²¹⁴ Pb	²¹⁴ Bi	²¹⁰ Pb
16-1 0-10	3,5 ±0,5	480 ±50	36 ±5	3,1 ±0,8	1,8 ±0,7	55 ±6	58 ±20	< 500	53 ±19	50 ±14	49 ±5	48 ±6	47 ±6
16-2 10-20	3,4 ±0,4	480 ±50	36 ±5	3,4 ±0,5	2,4 ±0,8	59 ±6	35 ±18	< 400	43 ±18	50 ±10	49 ±5	48 ±6	44 ±6
16-3 20-30	< 1,2	490 ±50	36 ±5	3,0 ±1,2	1,7 ±0,8	53 ±6	42 ±19	< 500	41 ±18	57 ±15	50 ±5	49 ±6	41 ±5
16-4 30-40	1,9 ±0,3	480 ±50	37 ±5	2,7 ±0,8	1,4 ±0,7	44 ±5	45 ±16	< 500	48 ±5	32 ±17	48 ±5	47 ±6	39 ±5
17-1 0-10	3,7 ±0,5	510 ±50	40 ±5	2,7 ±0,9	1,6 ±0,8	54 ±6	49 ±18	< 500	56 ±21	57 ±16	50 ±5	49 ±6	47 ±6
17-2 10-20	3,4 ±0,4	480 ±50	39 ±5	2,9 ±1,0	2,1 ±0,8	55 ±6	48 ±17	< 400	52 ±21	50 ±10	47 ±5	48 ±6	43 ±6
17-3 20-30	3,3 ±0,4	480 ±50	40 ±5	3,4 ±1,5	1,9 ±0,8	53 ±6	< 110	< 500	54 ±21	51 ±25	48 ±5	49 ±6	42 ±6
17-4 30-40	1,2 ±0,2	490 ±50	40 ±5	2,2 ±0,9	< 3,3	43 ±5	30 ±15	< 300	49 ±19	55 ±15	49 ±5	47 ±6	40 ±5
28-1 0-10	3,1 ±0,4	430 ±40	34 ±5	2,4 ±1,3	1,8 ±0,8	39 ±5	40 ±17	< 600	< 150	37 ±18	33 ±3	32 ±4	45 ±6
28-2 10-20	2,8 ±0,4	410 ±40	33 ±4	< 5	2,9 ±1	33 ±6	48 ±20	< 700	< 240	< 80	36 ±3	36 ±4	37 ±6
18-1 0-10	3,1 ±0,4	510 ±50	40 ±5	3,5 ±1,8	2,4 ±0,8	62 ±7	50 ±17	< 400	< 140	55 ±24	40 ±4	39 ±5	47 ±6
18-2 10-20	3,1 ±0,4	500 ±50	38 ±5	2,9 ±1,0	2,3 ±0,8	57 ±6	59 ±17	< 600	< 190	58 ±11	45 ±5	44 ±5	43 ±6
18-3 20-30	3,4 ±0,5	500 ±50	39 ±5	3,9 ±1,7	1,7 ±0,8	55 ±6	< 150	< 300	< 60	44 ±27	44 ±5	44 ±5	43 ±6
18-4 30-40	2,4 ±0,3	490 ±50	41 ±5	2,3 ±1,0	1,4 ±0,7	41 ±5	< 150	< 500	44 ±18	63 ±22	50 ±5	48 ±6	45 ±6
20-1 0-10	3,7 ±0,5	500 ±50	42 ±5	2,4 ±1,3	2,2 ±0,8	62 ±7	45 ±20	< 600	51 ±23	64 ±21	48 ±5	49 ±6	58 ±7
20-2 10-20	3,1 ±0,4	490 ±50	37 ±5	3,2 ±1,3	2,3 ±1,2	60 ±8	< 120	< 700	< 90	< 110	49 ±5	50 ±6	42 ±7
20-3 20-30	3,9 ±0,5	490 ±50	40 ±4	2,3 ±1,4	1,6 ±0,8	52 ±6	70 ±18	< 320	44 ±20	63 ±21	50 ±5	49 ±6	42 ±6
20-4 30-40	3,0 ±0,4	490 ±50	39 ±5	< 1,7	1,7 ±0,7	45 ±5	33 ±16	< 320	46 ±20	65 ±24	48 ±5	48 ±6	40 ±5
29-1 0-10	3,2 ±0,4	390 ±40	36 ±5	2,6 ±1,2	1,5 ±0,8	42 ±5	< 150	< 320	56 ±19	39 ±14	33 ±3	33 ±4	40 ±5
29-2 10-20	3,1 ±0,4	420 ±40	35 ±5	2,4 ±0,8	1,3 ±0,7	40 ±5	< 140	< 500	49 ±17	43 ±10	37 ±4	37 ±5	40 ±5
29-3 20-30	3,2 ±0,4	400 ±40	36 ±5	2,0 ±0,6	2,3 ±0,8	38 ±5	< 40	< 400	39 ±18	46 ±10	36 ±4	35 ±4	38 ±5
29-4 30-40	3,3 ±0,4	400 ±40	35 ±5	2,3 ±0,5	2,1 ±0,8	40 ±5	45 ±17	< 500	47 ±20	42 ±9	42 ±9	40 ±4	39 ±5
24-1 0-10	2,9 ±0,4	520 ±50	38 ±5	3,6 ±1,4	2,3 ±0,9	59 ±7	< 160	< 500	55 ±21	57 ±17	52 ±6	53 ±6	53 ±7
24-2 10-20	3,3 ±0,5	510 ±50	39 ±5	2,5 ±1,3	< 4	57 ±8	66 ±27	< 400	< 100	< 110	55 ±6	55 ±7	38 ±6
24-3 20-30	3,4 ±0,5	520 ±50	41 ±5	2,6 ±1,1	2 ±0,9	59 ±7	44 ±19	< 700	52 ±23	58 ±24	53 ±5	52 ±6	48 ±6
24-4 30-40	4,0 ±0,5	500 ±50	40 ±5	2,8 ±1,6	1,6 ±0,7	54 ±6	67 ±27	< 320	39 ±20	56 ±22	47 ±5	49 ±6	42 ±6

Profondeur (cm)	¹³⁷ Cs	⁴⁰ K	²²⁸ Ac	²³⁵ U	²²⁷ Th	²³⁴ Th	²³⁴ Pa	²³⁴ U	²³⁰ Th	²²⁶ Ra	²¹⁴ Pb	²¹⁴ Bi	²¹⁰ Pb
25-1 0-10	3,6 ±0,5	510 ±50	39 ±5	3,4 ±0,8	1,9 ±0,7	51 ±6	57 ±20	< 330	45 ±18	44 ±13	43 ±4	41 ±5	49 ±6
25-2 10-20	4,1 ±0,5	510 ±50	40 ±5	< 7	< 4	51 ±8	< 120	< 600	62 ±28	< 110	37 ±4	38 ±5	42 ±7
30-1 0-10	2,0 ±0,3	500 ±50	41 ±5	2,4 ±1,6	1,7 ±0,7	32 ±4	< 120	< 400	43 ±18	41 ±23	45 ±5	43 ±5	45 ±6
30-2 10-20	2,0 ±0,3	490 ±50	42 ±5	2 ±0,8	2,5 ±0,8	32 ±4	< 130	< 310	36 ±19	< ±90	36 ±4	35 ±4	39 ±5
26-1 0-10	3,1 ±0,4	500 ±50	39 ±5	< 4	< 4	41 ±5	< 100	< 600	57 ±21	59 ±25	44 ±5	43 ±5	47 ±6
26-2 10-20	2,9 ±0,4	500 ±50	41 ±5	< 6	< 4	44 ±7	56 ±21	< 800	61 ±28	< 90	48 ±5	47 ±6	46 ±7
26-3 20-30	3,2 ±0,5	500 ±50	40 ±5	2,3 ±0,9	1,7 ±0,8	38 ±5	< 190	< 500	45 ±21	45 ±15	41 ±4	42 ±5	42 ±6
26-4 30-40	3,6 ±0,5	500 ±50	42 ±5	1,5 ±0,8	2,2 ±0,8	37 ±5	42 ±20	< 400	49 ±19	64 ±16	48 ±5	46 ±5	43 ±6
27-1 0-10	3,8 ±0,5	510 ±50	39 ±5	2,1 ±0,9	1,6 ±0,8	47 ±5	61 ±18	< 500	58 ±21	69 ±18	44 ±5	45 ±5	48 ±6
27-2 10-20	4,3 ±0,5	490 ±50	41 ±5	2,1 ±0,6	2,5 ±0,9	47 ±6	74 ±26	< 600	57 ±21	49 ±9	41 ±5	40 ±5	42 ±6
32-1 0-10	4,0 ±0,5	400 ±40	35 ±5	< 4	1,3 ±0,7	27 ±4	< 100	< 500	< 140	36 ±26	33,9 ±3	33 ±4	41 ±6
32-2 10-20	4,0 ±0,5	400 ±40	35 ±4	2 ±0,7	2 ±0,8	32 ±4	38 ±14	< 500	51 ±19	36 ±8	29,6 ±3	28,9 ±3,3	36 ±5
32-3 20-30	4,4 ±0,5	390 ±40	37 ±5	1,8 ±0,6	1,6 ±0,8	32 ±4	< 140	< 500	40 ±20	33 ±10	33,4 ±3	33 ±4	34 ±5
32-4 30-40	2,7 ±0,3	380 ±40	36 ±5	1,5 ±0,7	1,3 ±0,6	29 ±4	39 ±14	< 250	47 ±17	40 ±9	34 ±4	34 ±4	32 ±4
33-1 0-10	2,8 ±0,4	490 ±50	39 ±5	2,6 ±1,3	<4	33 ±4	38 ±17	< 300	< 150	< 80	43 ±5	42 ±5	45 ±6
33-2 10-20	3,1 ±0,4	470 ±50	40 ±5	1,8 ±0,6	2,9 ±0,9	30 ±4	< 160	< 500	< 60	40 ±9	41 ±4	42 ±5	36 ±5

Tableau 25 : Activités en ¹³⁷Cs, en ⁴⁰K, en certains descendants de ²³²Th, ²³⁵U et ²³⁸U mesurées par spectrométrie γ dans des profils de sols prélevés dans l'environnement de Malvésí (en Bq.kg⁻¹ sec).

Profondeur (cm)	¹³⁷ Cs	⁴⁰ K	²²⁸ Ac	²³⁵ U	²²⁷ Th	²³⁴ Th	²³⁴ Pa	²³⁴ U	²³⁰ Th	²²⁶ Ra	²¹⁴ Pb	²¹⁴ Bi	²¹⁰ Pb
21-1	2,7 ± 0,5	380 ± 40	39 ± 5	4,1 ± 2,1	2 ± 1	97 ± 10	77 ± 27	< 700	66 ± 26	80 ± 40	63 ± 7	65 ± 8	62 ± 8
21-2	4,1 ± 0,5	520 ± 50	41 ± 5	3,0 ± 0,8	1,5 ± 0,6	58 ± 6	50 ± 14	< 400	49 ± 15	59 ± 17	54 ± 6	54 ± 6	51 ± 6
21-3	4,3 ± 0,5	500 ± 50	40 ± 5	2,7 ± 1,1	1,9 0,8	44 ± 5	< 140	< 500	53 ± 22	46 ± 23	54 ± 5	51 ± 6	48 ± 6
21-4	4 ± 0,5	510 ± 50	41 ± 5	2,5 ± 0,5	< 4	40 ± 5	56 ± 18	< 600	56 ± 22	57 ± 10	51 ± 6	51 ± 6	48 ± 6
21-5	0,52 ± 0,2	480 ± 50	38 ± 5	3,1 ± 1,7	< 3,3	38 ± 5	< 130	< 700	48 ± 21	47 ± 31	42 ± 5	44 ± 5	50 ± 7
21-6	< 0,8	500 ± 50	39 ± 5	1,7 ± 0,8	1,7 ± 0,7	34 ± 4	< 100	< 500	45 ± 18	63 ± 14	42 ± 4	41 ± 5	48 ± 6
22-1	1,84 ± 0,3	390 ± 40	39 ± 5	5,6 ± 1,4	2,2 ± 1	103 ± 10	100 ± 40	< 700	< 210	72 ± 33	69 ± 7	70 ± 8	59 ± 7
22-2	0,57 ± 0,2	470 ± 50	39 ± 5	4,3 ± 1,1	2,1 ± 0,8	73 ± 8	78 ± 21	< 500	< 60	54 ± 26	40 ± 4	39 ± 5	41 ± 6
22-3	< 0,9	500 ± 50	40 ± 5	4,4 ± 0,7	1,6 ± 0,8	77 ± 8	87 ± 21	< 600	< 180	57 ± 11	54 ± 6	53 ± 6	46 ± 6
22-4	< 0,5	510 ± 50	42 ± 6	4,9 ± 1,2	1,9 ± 0,9	74 ± 8	77 ± 23	< 700	< 150	53 ± 30	50 ± 5	50 ± 6	57 ± 7
22-5	< 0,8	510 ± 50	39 ± 5	4,5 ± 1,4	2,2 ± 0,7	77 ± 8	78 ± 20	< 500	< 170	62 ± 23	43 ± 4	43 ± 5	54 ± 7

Tableau 26 : Activités en ¹³⁷Cs, en ⁴⁰K, en certains descendants de ²³²Th, ²³⁵U et ²³⁸U mesurées par spectrométrie γ dans deux carottes de sédiments n° 21 (bassin aval Tauran) et n° 22 (bassin aval Cadariège) prélevées dans l'environnement de Malvési (en Bq.kg⁻¹ sec).