

**IRSN**INSTITUT  
DE RADIOPROTECTION  
ET DE SÛRETÉ NUCLÉAIRE*Faire avancer la sûreté nucléaire*

# Constat radiologique *Vallée du Rhône* - Étude complémentaire du milieu atmosphérique

## Présentation des résultats

PRP-ENV/SESURE/2014-38

Pôle radioprotection, environnement,  
déchets et crise

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

---

---

**LISTE DES PARTICIPANTS**

Nom	Organisme
Installation, maintenance : V. Boullier, L. Saey	IRSN/PRP-ENV/SESURE/LERCM
Métrologie : Laboratoire de Mesure de la Radioactivité dans l'environnement	IRSN/PRP-ENV/STEME/LMRE

---

---

## RESUME

Le constat radiologique Vallée du Rhône, débuté en 2009, a pour objectif d'établir un référentiel actualisé des niveaux de radioactivité dans l'environnement. Il comporte deux volets principaux : un premier volet relatif au milieu terrestre et un second sur le milieu aquatique continental. Le troisième volet, objet du présent rapport, est axé sur les niveaux d'activités mesurés sur les aérosols atmosphériques au voisinage du site du Tricastin de janvier 2012 à août 2013. L'IRSN dispose, depuis plusieurs années, d'une base de données très complète des niveaux de radioactivité dans les aérosols atmosphériques collectés dans l'environnement hors influence des installations nucléaires. Afin de disposer de niveaux comparables sous influence d'un site nucléaire rhodanien une station de collecte d'aérosols à très grand débit a été installée à proximité du site du Tricastin sous les vents dominants. Elle permet, avec une métrologie également plus performante, de mesurer la radioactivité de l'air à des niveaux plus bas que ceux atteints par les dispositifs de surveillance de routine.

Ce rapport présente les résultats des mesures par spectrométrie gamma réalisées sur l'ensemble des filtres collectés ainsi que les résultats de mesure des isotopes de l'uranium et du plutonium sur certains filtres. Outre les radionucléides d'origine naturelle ( $^7\text{Be}$ ,  $^{40}\text{K}$ ,  $^{22}\text{Na}$ ...) et le  $^{137}\text{Cs}$  rémanent des retombées anciennes (provenant des essais nucléaires atmosphériques et de l'accident de Tchernobyl), les données acquises font apparaître, à des niveaux proches des limites de détection, d'autres radionucléides artificiels rarement mesurés en routine dans l'environnement, principalement du cobalt 58 et 60, de l'argent 110 métastable et du manganèse 54. Ces activités résultent du fonctionnement normal du site et notamment de la centrale électronucléaire d'EdF. Les résultats d'analyses par ICP-MS des isotopes de l'uranium sur plusieurs filtres ont également permis de mettre en évidence une influence des installations d'AREVA sur la teneur en uranium de l'air

---

---

## MOTS-CLES

Surveillance - Vallée du Rhône - milieu atmosphérique - radionucléides - CNPE- Tricastin

## SOMMAIRE

<b>INTRODUCTION</b>	<b>7</b>
<b>1 CONTEXTE DE L'ÉTUDE</b>	<b>8</b>
1.1 L'OBSERVATOIRE PERMANENT DE LA RADIOACTIVITÉ DANS L'AIR « OPERA-AIR » EN VALLEE DU RHÔNE	8
1.2 CONTEXTE INDUSTRIEL DE PIERRELATTE-TRICASTIN	9
1.3 CARACTERISTIQUES DE L'ÉTUDE	10
1.3.1 localisation géographique	10
1.3.2 stratégie d'échantillonnage et de mesure	11
<b>2 RÉSULTATS DES MESURES PAR SPECTROMETRIE GAMMA</b>	<b>13</b>
2.1 RADIONUCLEIDES D'ORIGINE NATURELLE	13
2.2 RADIONUCLEIDES D'ORIGINE ARTIFICIELLE	14
2.2.1 Activités mesurées à Tricastin	15
2.2.2 Le Césium 137	17
<b>3 RESULTATS DES MESURES DES ISOTOPES DE L'URANIUM ET DU PLUTONIUM</b>	<b>18</b>
3.1 ISOTOPES DE L'URANIUM	18
3.2 ISOTOPES DU PLUTONIUM	21
<b>4 CONCLUSION</b>	<b>22</b>
<b>5 REFERENCES ET DOCUMENTS-SUPPORT</b>	<b>23</b>
<b>6 ANNEXE</b>	<b>24</b>

## TABLEAUX

Tableau 1. Radionucléides recherchés en spectrométrie gamma sur les filtres collectés par la station TDG du Tricastin de janvier 2012 à Août 2013 et dont les résultats de mesures sont ici inférieurs aux limites de détection (en $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$ ).	14
Tableau 2. Moyennes des activités, écart type, valeur minimale et maximale des isotopes de l'uranium mesurés par ICP-MS en $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$ .	18
Tableau 3. Résultats de mesure des isotopes du plutonium par ICP-MS et spectrométrie alpha en $\text{nBq}/\text{m}^3$ .	21
Tableau 4 : Catégories d'empoussièrement basées sur les niveaux de $\text{PM}_{10}$ en France (valeurs moyennes annuelles de 2007, d'après Malherbe et al., 2008)	24
Tableau 5. Radionucléides d'origine naturelle détectés par spectrométrie gamma en 2012 (a) et 2013 (b).	25
Tableau 6. Radionucléides d'origine artificielle détectés par spectrométrie gamma en 2012 (a) et 2013 (b).	27
Tableau 7. Résultats de mesure des isotopes de l'uranium par ICP-MS en $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$ .	29

## FIGURES

Figure 1. Localisation des stations du réseau OPERA-Air de prélèvement des aérosols dans le Sud-Est de la France métropolitaine.	8
Figure 2. Plan des installations du site AREVA Tricastin (AREVA, 2011).	9
Figure 3. Localisation de la station TGD sur le site du CNPE du Tricastin.	10
Figure 4. Filtre de la station de collecte d'aérosols à $300 \text{ m}^3/\text{h}$ .	11
Figure 5. Comparaison des activités mesurées en radionucléides d'origine naturelle, sur les filtres de la station TGD de Tricastin et de celles du réseau OPERA air (en $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$ ) durant l'étude.	13
Figure 6. Relation entre le taux d'empoussièrement et les activités en $^{40}\text{K}$ et en $^{228}\text{Ac}$ mesurées sur les filtres de la station TGD du complexe Pierrelatte-Tricastin de janvier 2012 à août 2013.	14
Figure 7. Activités mesurées en radionucléides d'origine artificielle, sur les filtres de la station TGD du Tricastin de janvier 2012 à août 2013 (en $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$ ).	15
Figure 8. Evolution des activités des radionucléides d'origine artificielle mesurées sur les filtres de la station TGD du complexe de Pierrelatte-Tricastin de janvier 2012 à août 2013.	16
Figure 9. Comparaison des activités mesurées en césium 137, sur les filtres de la station TGD du Tricastin et de celles du réseau OPERA air de janvier 2012 à août 2013.	17
Figure 10. Variations du rapport de masse $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ en (%) en fonction de l'activité en $^{238}\text{U}$ en $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$ .	19
Figure 11. Variations du rapport de masse $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ en (%) en fonction du rapport d'activité $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ .	19
Figure 12. Variations du rapport de masse $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ en (%) en fonction de l'activité en $^{238}\text{U}$ en $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$ .	19
Figure 13. Comparaison entre les activités mesurées en $^{234}\text{Th}$ par spectrométrie gamma et les activités en $^{238}\text{U}$ mesurées par ICP-MS sur les mêmes filtres.	20
Figure 14. Comparaison de l'évolution des taux d'empoussièrement sur les filtres de la station TGD du complexe Pierrelatte-Tricastin et des stations d'Air Rhône Alpes les plus proches, de janvier 2012 à août 2013.	24

## **INTRODUCTION**

La réalisation de constats radiologiques régionaux a pour objectif d'établir, sur un territoire étendu comportant plusieurs installations nucléaires, un référentiel actualisé des niveaux de radioactivité dans certains compartiments de l'environnement. Le constat radiologique Vallée du Rhône, débuté en 2009, a déjà fait l'objet de plusieurs rapports et publications concernant la stratégie générale (Roussel-Debet et Antonelli, 2010), le milieu terrestre (Roussel-Debet et Saey, 2011 et Roussel-Debet, 2012) et le milieu aquatique (Saey et Roussel-Debet, 2011).

En ce qui concerne le milieu atmosphérique, l'IRSN dispose d'une base de données très complète des niveaux de radioactivité dans les aérosols collectés dans l'environnement hors influence des installations nucléaires. Afin de disposer de valeurs de comparaison acquises sous influence potentielle d'un site nucléaire, une station de collecte d'aérosols à très grand débit qui permet, avec une métrologie performante, de mesurer la radioactivité de l'air à des niveaux plus bas que ceux atteints par les dispositifs de surveillance de routine, a été installée de janvier 2012 à août 2013, à proximité du complexe nucléaire de Tricastin-Pierrelatte.

Ce rapport présente la stratégie générale de l'étude, les résultats des mesures réalisées par spectrométrie gamma sur l'ensemble des filtres et les résultats de mesure des isotopes de l'uranium et du plutonium sur certains filtres.

# 1 CONTEXTE DE L'ÉTUDE

## 1.1 L'OBSERVATOIRE PERMANENT DE LA RADIOACTIVITÉ DANS L'AIR « OPERA-AIR » EN VALLEE DU RHÔNE

La surveillance de la radioactivité des aérosols atmosphériques effectuée par l'IRSN est assurée sur l'ensemble du territoire par deux types de stations complémentaires constituant l'Observatoire permanent de la radioactivité dans l'air (OPERA-Air). L'analyse des filtres des stations du réseau « moyen débit » permet d'obtenir une information de la radioactivité des aérosols sous et hors influence des installations nucléaires avec une couverture géographique assurée par une quarantaine de stations. Pour compléter ce dispositif qui ne permet pas de mesurer les radionucléides présents à l'état de trace<sup>1</sup>, huit stations à Très Grand Débit (TGD) (de 300 m<sup>3</sup>/h à 700 m<sup>3</sup>/h) sont installées depuis 1959 (Bouisset et al. 2004) sur le territoire hors de l'influence directe de toute installation nucléaire. Cette collecte hebdomadaire à grand débit sur des filtres de grandes dimensions, associée à une métrologie gamma germanium bas bruit de fond, permet de quantifier des activités dans l'air beaucoup plus faibles. Ainsi, le césium-137 (<sup>137</sup>Cs) hérité des retombées des essais atmosphériques d'armes nucléaires effectués entre 1945 et 1980 et de l'accident de Tchernobyl (1986) est mesuré à un niveau moyen métropolitain d'environ 0,25 µBq/m<sup>3</sup> (IRSN 2011).

Les résultats de mesure de cette surveillance sont disponibles sur le site internet de l'environnement :

<http://www.mesure-radioactivite.fr/public/>

La Figure 1 illustre la répartition de ce dispositif de surveillance dans le Sud-Est de la France métropolitaine.



Figure 1. Localisation des stations du réseau OPERA-Air de prélèvement des aérosols dans le Sud-Est de la France métropolitaine.

<sup>1</sup> Sur la période de l'étude, l'activité en <sup>137</sup>Cs, au point AS1 du C.N.P.E de Tricastin, est restée inférieure aux limites de détection des appareils de mesure, limites de détection comprises entre 0,02 et 0,22 mBq/m<sup>3</sup>.

## 1.2 CONTEXTE INDUSTRIEL DE PIERRELATTE-TRICASTIN

Le complexe industriel de Pierrelatte-Tricastin regroupe principalement trois industriels du nucléaire, AREVA, EDF et le CEA (Figure 2).

Le CEA n'a pas d'activité industrielle mais seulement des activités de recherche.

AREVA Tricastin est composé de six entreprises spécialisées dans la conversion et l'enrichissement de l'uranium :

AREVA NC (INBS et INB 155 : TU5 et W); COMURHEX Pierrelatte (INB 105 et ICPE); EURODIF Production Georges Besse I (INB 93 Installation arrêtée mi-2012 en démantèlement jusqu'en 2025 environ); FBFC-CERCA (Franco-Belge de Fabrication du Combustible - La Compagnie pour l'Etude et la Réalisation de Combustibles Atomiques); SET (Société d'Enrichissement du Tricastin): Georges Besse II, INB 168.; SOCATRI (Société Auxiliaire du Tricastin) INB 138 et une installation d'Assainissement et de Récupération d'Uranium ARU. Le fonctionnement normal des différentes installations de la plateforme industrielle d'AREVA Tricastin génère des effluents liquides et gazeux qui conduisent à des rejets autorisés par les autorités publiques. Les rejets atmosphériques radioactifs de l'ensemble des industriels d'AREVA Tricastin sont composés d'isotopes de l'uranium, de transuraniens, de produits de fission et d'activation, de tritium et de carbone 14.

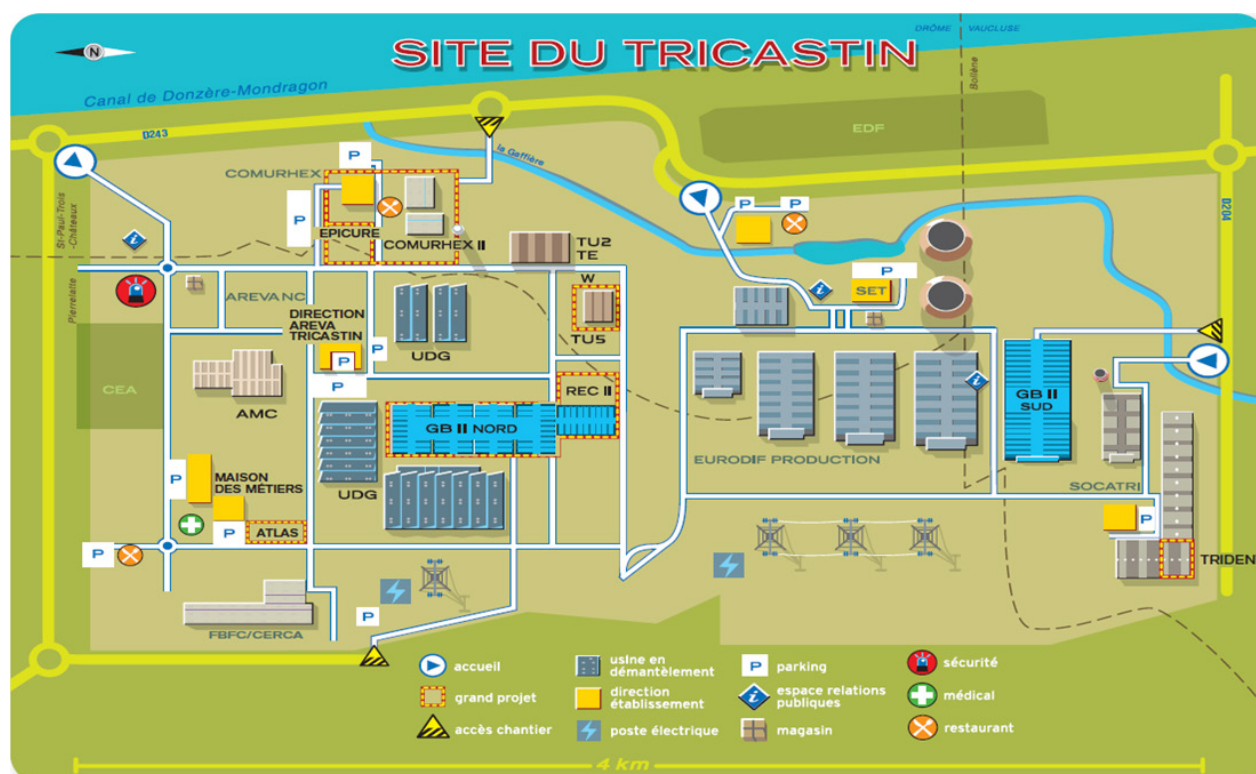


Figure 2. Plan des installations du site AREVA Tricastin (AREVA, 2011).

Le centre nucléaire de production électrique (CNPE) d'EDF regroupe quatre unités de production d'électricité de la filière à eau sous pression (REP) en fonctionnement qui produisent une puissance totale de 3685 MW (EDF 2012) avec deux réacteurs de 915 mégawatts chacun (Tricastin 1 et 2, INB n°87), mis en service en 1980 et deux réacteurs d'une puissance de 940 et 915 mégawatts (Tricastin 3 et 4, INB n°88), mis en service en 1981.

Enfin, EDF et SOCATRI exploitent la Base Chaude Opérationnelle du Tricastin (BCOT) pour l'entretien et l'entreposage des matériels et outillages provenant des centrales nucléaires EDF (INB n°157).



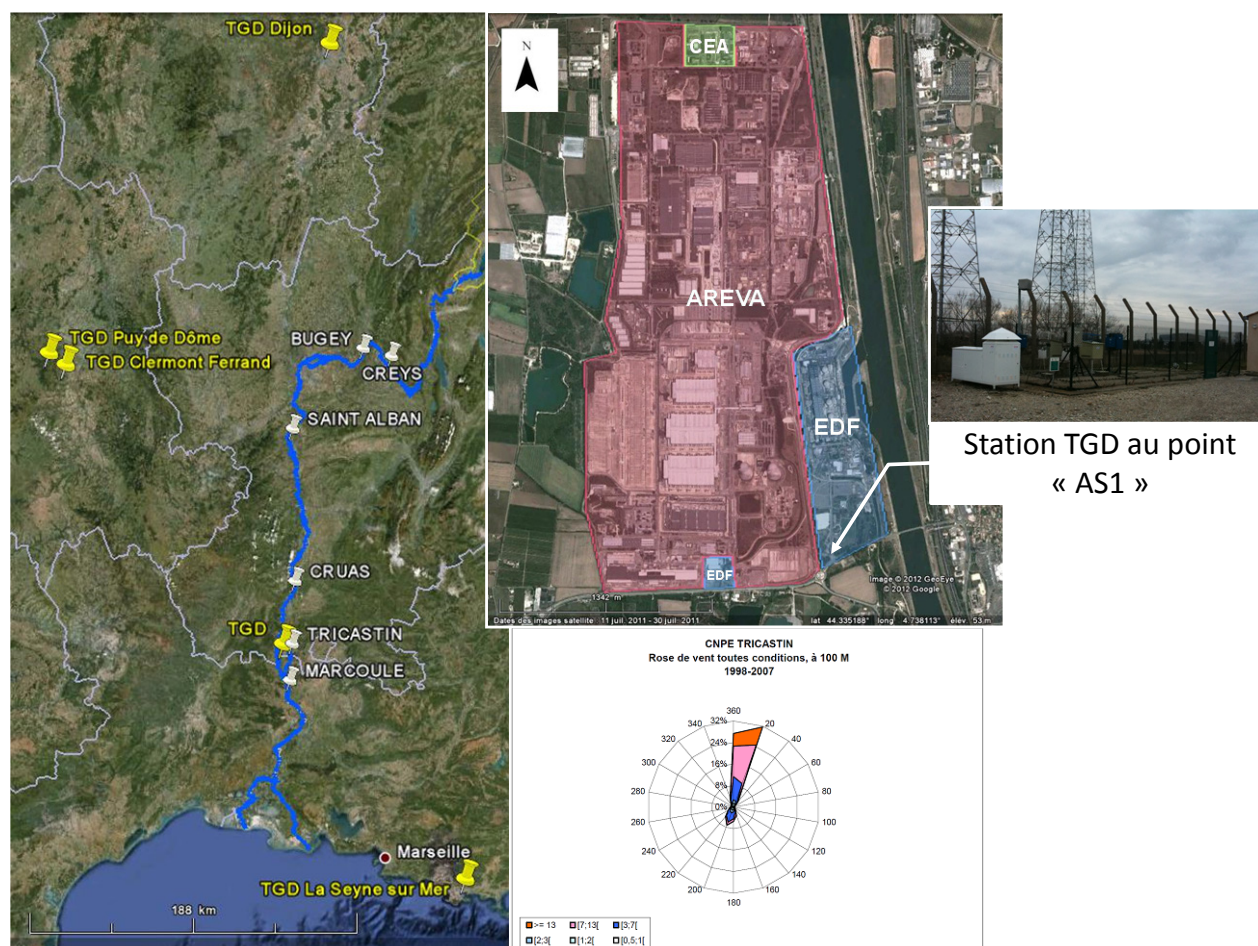
Les autorisations de rejets atmosphériques d'éléments radioactifs du CNPE comprennent principalement:

- des gaz rares ( $^{133}\text{Xe}$ ,  $^{135}\text{Xe}$ ,  $^{41}\text{Ar}$ ,  $^{85}\text{Kr}$ ), de tritium ( $^3\text{H}$ ) et de carbone 14 ( $^{14}\text{C}$ ). Ces radionucléides gazeux ne peuvent être prélevés sur les filtres des stations TGD ;
- des iodes : l'iode 131, 133, 132 et 135, difficilement mesurables sur les filtres de collecte des aérosols par spectrométrie gamma compte-tenu de la durée de prélèvement et des courtes périodes radioactives de ces radionucléides (8 jours pour l' $^{131}\text{I}$ , de 2 à 21 heures pour les autres) ;
- des produits d'activation et de fission :  $^{58}\text{Co}$ ,  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ .... .

## 1.3 CARACTERISTIQUES DE L'ÉTUDE

### 1.3.1 LOCALISATION GEOGRAPHIQUE

La station de collecte d'aérosols à très grand débit, a été installée de janvier 2012 à août 2013, à proximité du complexe nucléaire de Tricastin-Pierrelatte, sur le parc d'instruments « AS1 », sous les vents dominants, au Sud du CNPE du Tricastin, (Figure 3).



### 1.3.2 STRATEGIE D'ECHANTILLONNAGE ET DE MESURE

Dans une station de collecte d'aérosols à très grand débit ( $300\text{m}^3/\text{h}$ ), celui-ci est régulé pour compenser la perte de charge liée à l'accumulation progressive de particules sur le filtre au cours du prélèvement. Le volume et le débit sont également normalisés en température et en pression pour permettre les comparaisons. La filtration de l'air s'effectue à l'aide d'un filtre composé de 4 couches de fibres en polypropylène (figure 4) caractérisé par une très haute efficacité de collecte de 99 % pour des aérosols de  $0,15\ \mu\text{m}$ .



Figure 4. Filtre de la station de collecte d'aérosols à  $300\text{m}^3/\text{h}$ .

La fréquence de changement de filtre est hebdomadaire (du lundi au lundi). Le volume collecté est de l'ordre de  $50\ 000\ \text{m}^3$ .

Afin de mesurer des niveaux de radioactivité à l'état de trace, comparables à ceux acquis en routine par les stations TGD implantées hors influence directe d'installations nucléaires, les analyses ont toutes été réalisées par le Laboratoire de Mesure de la Radioactivité de l'Environnement (LMRE) de l'IRSN à Orsay.

Une mesure par spectrométrie gamma a été réalisée sur chaque filtre. Ont été recherchés principalement :  $^7\text{Be}$ ,  $^{40}\text{K}$ ,  $^{228}\text{Ac}$ ,  $^{22}\text{Na}^2$ ,  $^{234}\text{Th}$ ,  $^{210}\text{Pb}$  en ce qui concerne les radionucléides d'origine naturelle et  $^{110\text{m}}\text{Ag}$ ,  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{58}\text{Co}$ ,  $^{57}\text{Co}$ ,  $^{131}\text{I}$ ,  $^{154}\text{Eu}$ ,  $^{54}\text{Mn}$ ,  $^{106}\text{Rh}$ ,  $^{124}\text{Sb}$ ,  $^{125}\text{Sb}$ , pour les radionucléides d'origine artificielle rejetés par le CNPE. Cette analyse permet également de rechercher le thorium 234, descendant direct de l'uranium 238, ainsi que l'actinium 228 descendant direct du radium 228 et du thorium 232. Un délai de 30 jours entre la collecte et la mesure assure la mise à l'équilibre de ces deux radionucléides dont les activités peuvent ainsi être considérées comme représentatives de celles de leur ascendant respectif.

Compte-tenu de sa courte période l'iode 131, également recherché, nécessite une analyse rapide. Deux analyses par spectrométrie gamma ont donc été effectuées sur chaque filtre sur la période du 02/04 au 30/07/2012 : une mesure rapide pour l' $^{131}\text{I}$  et une après décroissance des radionucléides naturels. Malgré cette analyse rapide pour obtenir des mesures significatives, les activités en  $^{131}\text{I}$  sont toujours restées inférieures aux limites de détection des appareils de mesure. Au vu de ces résultats et étant donné la difficulté technique et organisationnelle du double comptage, il a été décidé de le stopper et de ne garder que la mesure à 30 jours pour la mise à l'équilibre de la chaîne de l' $^{238}\text{U}$ .

En complément des analyses par spectrométrie gamma, 23 analyses des isotopes de l'uranium par ICP-MS, ainsi que 5 analyses isotopiques des isotopes du plutonium par spectrométrie alpha et ICP-MS ont été réalisées afin de rechercher une influence potentielle des rejets des installations d'AREVA.

<sup>2</sup> Le  $^{22}\text{Na}$  peut également avoir une origine artificielle.

Parmi les 23 échantillons analysés par ICP-MS pour mesurer les isotopes de l'uranium, figurent 5 filtres et 4 groupes de filtres sur lesquels la spectrométrie gamma n'a pas permis de quantifier l'activité en  $^{234}\text{Th}$ , et 14 filtres présentant des activités significatives en  $^{234}\text{Th}$ .

Sur les 5 échantillons analysés par ICP-MS et spectrométrie alpha pour mesurer les isotopes du plutonium, figurent les 4 regroupements de filtres où l'activité en  $^{234}\text{Th}$ , mesurée par spectrométrie gamma, est toujours restée inférieure à la limite de détection ainsi que le filtre présentant la plus forte activité en  $^{234}\text{Th}$ .

Chaque filtre a été pesé vierge et sec à  $80^{\circ}\text{C}$  avant la mise en place puis pesé sec à  $80^{\circ}\text{C}$  après le prélèvement et avant la mesure pour déterminer la charge en particules. Les résultats peuvent ainsi être exprimés en  $\text{Bq}/\text{m}^3$  ou en  $\text{Bq}/\text{g}$ . Cette valeur permet également d'évaluer les niveaux d'empoussièrement. L'analyse des données d'empoussièrement, sur la durée de l'étude, sur les filtres collectés par la station TGD de Tricastin fait apparaître une moyenne de  $30,7 \mu\text{g}/\text{m}^3$  (de  $8,5$  à  $89,2 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ). A titre de comparaison sur la même période, l'empoussièrement moyen calculé pour les stations TGD à la Seyne-sur-Mer, Clermont-Ferrand et Dijon sont respectivement de  $36,4 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ,  $18,9 \mu\text{g}/\text{m}^3$  et  $17 \mu\text{g}/\text{m}^3$  (cf. annexe).

## 2 RÉSULTATS DES MESURES PAR SPECTROMÉTRIE GAMMA

### 2.1 RADIONUCLÉIDES D'ORIGINE NATURELLE

Le tableau 5, en annexe, présente l'ensemble des résultats de mesure des principaux radionucléides d'origine naturelle recherchés par spectrométrie gamma :  $^7\text{Be}$ ,  $^{210}\text{Pb}$ ,  $^{40}\text{K}$ ,  $^{22}\text{Na}$ ,  $^{228}\text{Ac}$  et  $^{234}\text{Th}$ . La figure 5 compare les activités et les fréquences de détection des radionucléides d'origine naturelle mesurés, durant l'étude, sur les filtres collectés par la station TGD de Tricastin et ceux des stations du réseau OPERA-Air les plus proches.

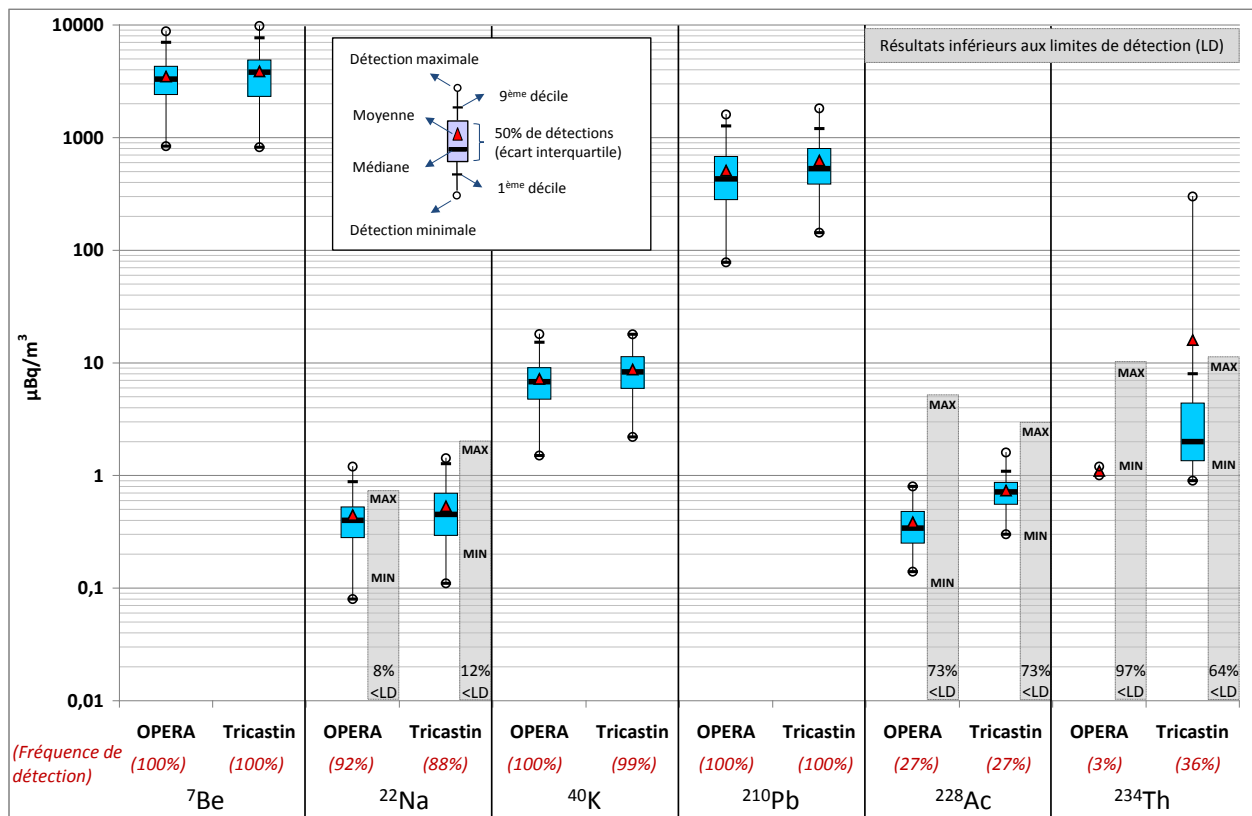


Figure 5. Comparaison des activités mesurées en radionucléides d'origine naturelle, sur les filtres de la station TGD de Tricastin et du réseau OPERA air (en  $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$ ) durant l'étude.

Les moyennes des activités et la variabilité des activités mesurées en  $^7\text{Be}$ ,  $^{22}\text{Na}$ ,  $^{40}\text{K}$  et  $^{210}\text{Pb}$  sur les filtres de Tricastin sont comparables aux activités mesurées sur les filtres des stations TGD hors influence.

La moyenne des activités mesurées en  $^{228}\text{Ac}$  sur les filtres de la station de Tricastin est deux fois supérieure à celle des stations TGD hors influence du réseau de surveillance, malgré une fréquence de détection équivalente.

La figure 6 représente la relation entre les niveaux d'empoussièrement et les activités mesurées en  $^{40}\text{K}$  et  $^{228}\text{Ac}$ . Elles montrent que les activités de ces radionucléides sont directement liées aux taux d'empoussièrement (remise en suspension).

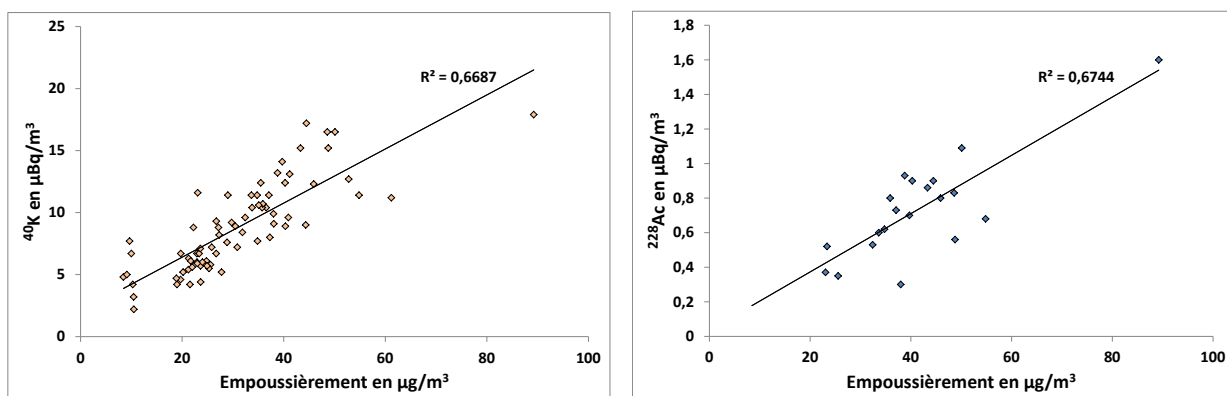


Figure 6. Relation entre le taux d'empoussièrément et les activités en  $^{40}\text{K}$  et en  $^{228}\text{Ac}$  mesurées sur les filtres de la station TGD du complexe Pierrelatte-Tricastin de janvier 2012 à août 2013.

Le  $^{234}\text{Th}$  n'est quantifié seulement que deux fois, avec des valeurs proches de la limite de détection ( $1,2 \pm 0,6$  et  $1,1 \pm 0,7 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$ ), sur la période d'étude à la station TGD de la Seyne-sur-Mer. Il présente, sur la même période, une activité moyenne dix fois supérieures sur les filtres collectés à Tricastin avec une fréquence de détection proche de 40% et une forte variabilité des activités mesurées comprises entre  $0,9 \pm 0,5$  et  $300 \pm 28 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$ . Néanmoins 90% des activités mesurées sont comprises entre 0,9 et  $8 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$ . La fréquence de détection du  $^{234}\text{Th}$ , et les activités mesurées sur les filtres de la station du Tricastin, pourraient témoigner d'un possible excès en  $^{238}\text{U}$  (en équilibre avec le  $^{234}\text{Th}$  dans l'environnement terrestre hors influence) ou d'un déséquilibre  $^{234}\text{Th}/^{238}\text{U}$  consécutif à un procédé industriel, témoin potentiel de l'influence des activités du centre AREVA Tricastin.

## 2.2 RADIONUCLÉIDES D'ORIGINE ARTIFICIELLE

Le tableau 6 en annexe présente l'ensemble des résultats de mesure par spectrométrie gamma, des radionucléides d'origine artificielle ayant eu au moins une activité significative durant l'étude. Le tableau 1 présente les radionucléides habituellement recherchés par spectrométrie gamma dont les résultats de mesures sont restés inférieurs aux limites de détection (LD) sur l'ensemble de la période étudiée, associés aux valeurs hautes et basses des limites de détection. Les limites de détection, exprimées en  $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$ , dépendent notamment des quantités prélevées, de la durée de comptage et de l'efficacité du détecteur.

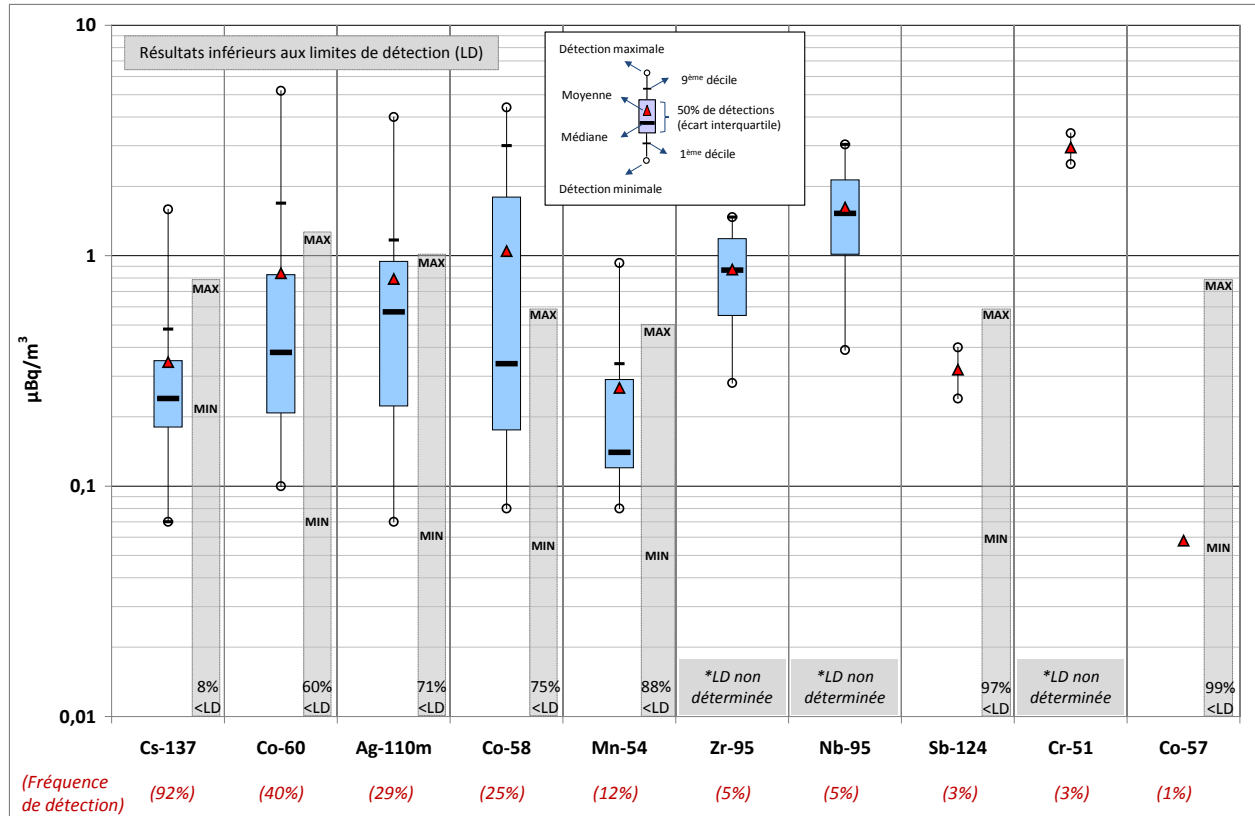
Tableau 1. Radionucléides recherchés en spectrométrie gamma sur les filtres collectés par la station TDG du Tricastin de janvier 2012 à Août 2013 et dont les résultats de mesures sont ici inférieurs aux limites de détection (en  $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$ ).

	$^{241}\text{Am}$	$^{134}\text{Cs}$	$^{154}\text{Eu}$	$^{131}\text{I}$	$^{103}\text{Rh}$	$^{125}\text{Sb}$
LD moyenne	0,26	0,16	0,33	1,9	1,49	0,72
LD min	0,11	0,06	0,13	0,11	0,50	0,28
LD max	0,7	0,4	0,9	23	4	2,1

Compte-tenu de son origine et de sa période radiologique relativement courte (8 j) l' $^{131}\text{I}$  est très rarement mesuré dans l'environnement hors influence directe d'une installation. Dans le cadre de cette étude, les activités en  $^{131}\text{I}$  sont toujours restées inférieures aux limites de détection. Sur cette même période, sur les filtres de la station de Clermont-Ferrand (filtres du 08, 15 et 29/02/2012), les concentrations mesurées en iode de  $0,4 \pm 0,1$  à  $1 \pm 0,3 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$  témoignent d'un passage de masses d'air marquées par les rejets d'iode d'une installation étrangère (IRSN 2012).

## 2.2.1 ACTIVITES MESUREES AU TRICASTIN

La figure 7 présente les activités mesurées par spectrométrie gamma des radionucléides d'origine artificielle, ainsi que la fréquence de détection, sur les filtres de la station TGD du Tricastin de janvier 2012 à août 2013.



\* Ces radionucléides ne sont pas dans la liste des principaux radionucléides recherchés par spectrométrie gamma

Figure 7. Activités mesurées en radionucléides d'origine artificielle, sur les filtres de la station TGD du Tricastin de janvier 2012 à août 2013 (en  $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$ ).

La figure 8 présente l'évolution des activités des radionucléides d'origine artificielle mesurées sur les filtres de la station TGD du complexe Pierrelatte-Tricastin de janvier 2012 à août 2013.

Hormis le  $^{137}\text{Cs}$ , les résultats de mesures des filtres collectés à proximité du CNPE du Tricastin font apparaître des activités de radionucléides d'origine artificielle jamais mesurées par les autres stations TGD du réseau de surveillance OPERA-Air. Ces radionucléides, liés à l'activité normale du C.N.P.E, sont par ordre de fréquence de détection :  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{110\text{m}}\text{Ag}$ ,  $^{58}\text{Co}$ ,  $^{54}\text{Mn}$ ,  $^{95}\text{Zr}$ ,  $^{95}\text{Nb}$ ,  $^{124}\text{Sb}$ ,  $^{51}\text{Cr}$  et  $^{57}\text{Co}$ . Les cobalts 60 et 58 ainsi que l'argent 110m qui sont les plus fréquemment mesurés, présentent également les activités les plus élevées, de l'ordre de  $1 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$  en moyenne. Ces radionucléides sont mesurés aussi bien durant les opérations de maintenance (arrêts de tranche) que durant la production, même si les niveaux semblent plus élevés durant ces opérations. Le manganèse 54 n'a été mesuré que lors des arrêts de tranche à des activités plus faibles. Le zirconium 95 et le niobium 95, moins fréquemment mesurés et détectés essentiellement lors d'arrêtes de tranche, présentent également des activités moyennes de l'ordre de  $1 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$ . Enfin, l'antimoine 124 et le chrome 51 n'ont été mesurés que 2 fois, sur les deux mêmes filtres prélevés lors de de l'arrêt de tranche du réacteur 3. Sur ces deux échantillons, le chrome 51 présente des activités du même niveau que celles des cobalts et de l'argent.

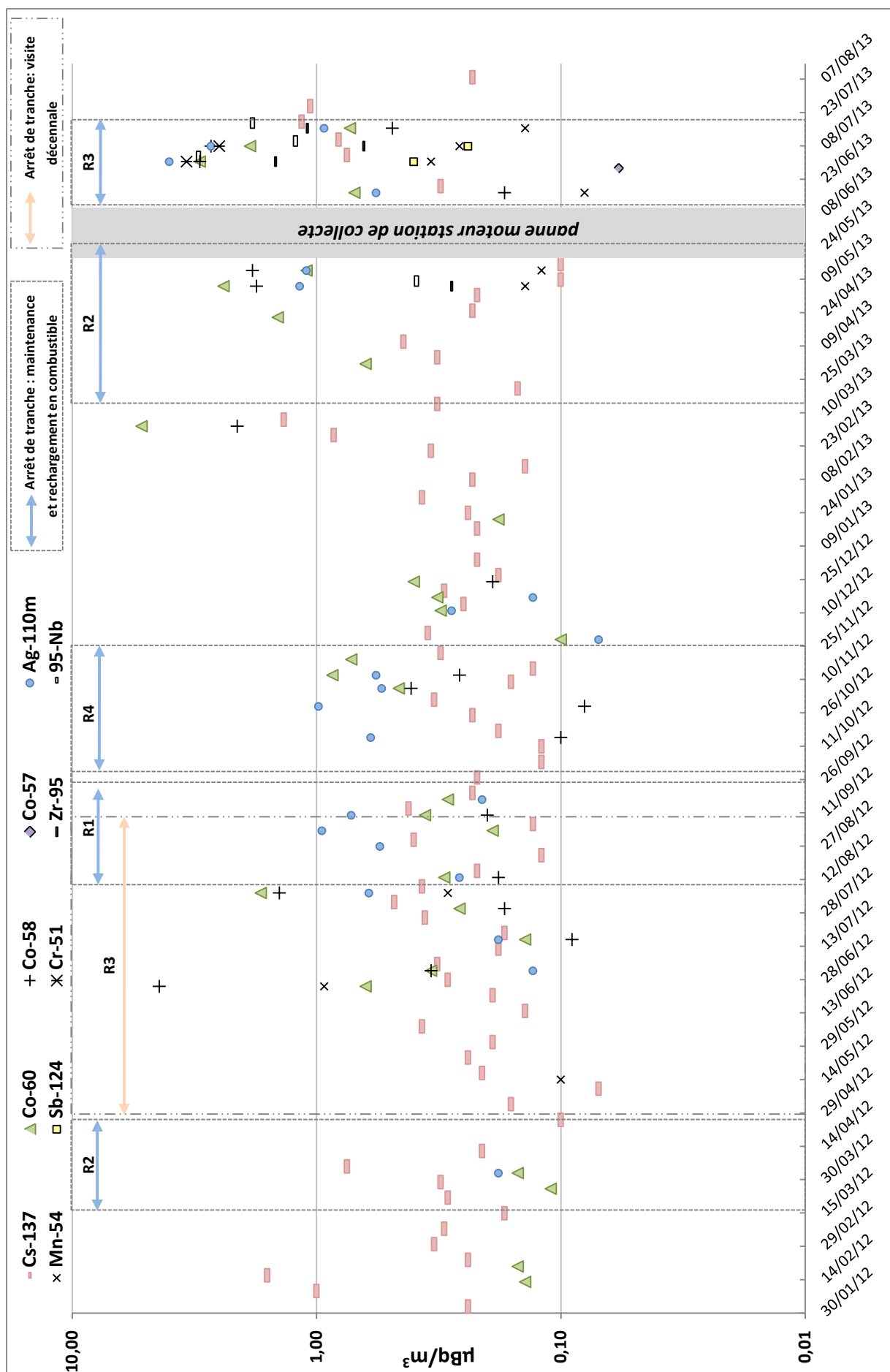


Figure 8. Evolution des activités des radionucléides d'origine artificielle mesurées sur les filtres de la station TGD du complexe de Pierrelatte-Tricastin de janvier 2012 à août 2013.

## 2.2.2 LE CESIUM 137

Le  $^{137}\text{Cs}$  est le seul radionucléide d'origine artificielle mesuré sur les filtres collectés durant la période étudiée par les stations grand débit du réseau OPERA-Air de la Seyne-sur-Mer, Dijon et Clermont-Ferrand qui sont les plus proches du Tricastin. Il a pour origine la rémanence des retombées des essais nucléaires et de l'accident de Tchernobyl, ces stations étant trop éloignées des sites nucléaires pour déceler l'influence éventuelle de leurs rejets. Sur la figure 9 sont représentées les activités mesurées, ainsi que la fréquence de détection, du césium 137 au Tricastin ainsi que les trois autres stations TGD mentionnées.

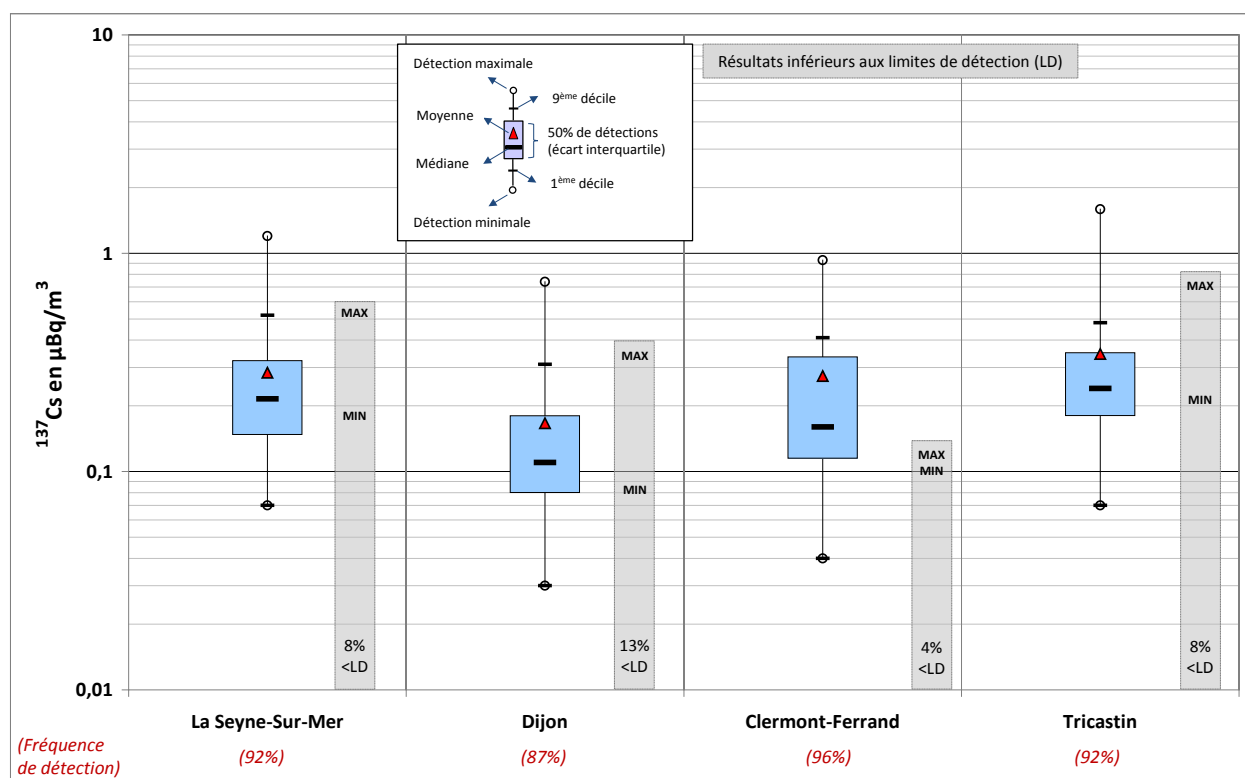


Figure 9. Comparaison des activités mesurées en césium 137, sur les filtres de la station TGD du Tricastin et de celles du réseau OPERA air de janvier 2012 à août 2013.

Le  $^{137}\text{Cs}$  est quasi systématiquement mesuré (92%) sur les filtres de la station TGD du Tricastin, à des niveaux comparables à ceux mesurés pour la même période par les plus proches stations du réseau de surveillance OPERA-Air. L'activité moyenne est légèrement supérieure à celles des autres sites.



## 3 RESULTATS DES MESURES DES ISOTOPES DE L'URANIUM ET DU PLUTONIUM

### 3.1 ISOTOPES DE L'URANIUM

Le tableau 7 en annexe regroupe l'ensemble des résultats de mesure des isotopes de l'uranium par ICP-MS. Le tableau 2 présente les moyennes des activités des isotopes de l'uranium mesurées par ICP-MS.

**Tableau 2. Moyennes des activités, écart type, valeur minimale et maximale des isotopes de l'uranium mesurés par ICP-MS en  $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$ .**

ICP-MS	Activité moyenne en $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$				$^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ (%)
	$^{234}\text{U}$	$^{235}\text{U}$	$^{236}\text{U}$	$^{238}\text{U}$	
Sur les 23 échantillons analysés	<b>0,931<math>\pm</math>0,46</b> (de 0,254 à 2,04)	<b>0,0420<math>\pm</math>0,021</b> (de 0,0115 à 0,935)	<b>0,0060<math>\pm</math>0,011</b> (de 0,0005 à 0,049)	<b>0,931<math>\pm</math>0,528</b> (de 0,225 à 2,35)	<b>0,721<math>\pm</math>0,05</b> (de 0,596 à 0,835)
Sur les 14 filtres ( $^{234}\text{Th} > \text{LD}$ par sp. $\gamma$ )	<b>1,135<math>\pm</math>0,46</b> (de 0,537 à 2,04)	<b>0,0513<math>\pm</math>0,02</b> (de 0,0241 à 0,0935)	<b>0,0084<math>\pm</math>0,014</b> (de 0,0008 à 0,049)	<b>1,155<math>\pm</math>0,55</b> (de 0,521 à 2,35)	<b>0,705<math>\pm</math>0,05</b> (de 0,596 à 0,769)
Sur les 5 filtres ( $^{234}\text{Th} < \text{LD}$ par sp. $\gamma$ )	<b>0,488<math>\pm</math>0,21</b> (de 0,254 à 0,739)	<b>0,0218<math>\pm</math>0,009</b> (de 0,0115 à 0,0333)	<b>0,0014<math>\pm</math>0,0006</b> (de 0,0005 à 0,002)	<b>0,449<math>\pm</math>0,19</b> (de 0,225 à 0,718)	<b>0,760<math>\pm</math>0,05</b> (de 0,721 à 0,835)
Sur les 4 regroupements ( $^{234}\text{Th} < \text{LD}$ par sp. $\gamma$ )	<b>0,770<math>\pm</math>0,19</b> (de 0,511 à 0,97)	<b>0,0350<math>\pm</math>0,009</b> (de 0,023 à 0,044)	<b>0,0034<math>\pm</math>0,0008</b> (de 0,0028 à 0,0047)	<b>0,749<math>\pm</math>0,19</b> (de 0,49 à 0,94)	<b>0,726<math>\pm</math>0,02</b> (de 0,703 à 0,744)

Sur les 23 analyses, l'activité moyenne en  $^{238}\text{U}$  est de l'ordre de  $1 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$  avec un rapport d'activité  $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$  qui reste proche de 1. Le rapport de masse  $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$  exprimé en % varie entre  $0,596\pm 0,016$  et  $0,835\pm 0,028$  avec une moyenne proche de l'uranium naturel à 0,72%. L' $^{236}\text{U}$  est mesuré sur chaque échantillon et son activité varie entre  $0,0005\pm 0,0002$  et  $0,05\pm 0,015 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$ .

Les plus fortes activités mesurées, pour l'ensemble des isotopes de l'uranium, concernent le filtre couvrant la période du 7 au 14 janvier 2013. Les activités en  $^{238}\text{U}$  et  $^{234}\text{U}$  sont de  $2,35\pm 0,25$  et  $2,04\pm 0,26 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$  respectivement, l'activité en  $^{235}\text{U}$  est de  $0,935\pm 0,0097 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$  et celle de l' $^{236}\text{U}$  de  $0,049\pm 0,015 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$ . Le rapport de masse  $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$  pour cette période est l'un des plus bas mesuré avec  $0,62\pm 0,02$  %.

La figure 10, la figure 11 et la figure 12 représentent, respectivement, les variations du rapport de masse  $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$  (en %) en fonction de l'activité en  $^{238}\text{U}$  en  $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$ , les variations du rapport de masse  $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$  en (%) en fonction du rapport d'activité  $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ , et les variations du rapport de masse  $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$  en (%) en fonction de l'activité en  $^{238}\text{U}$  en  $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$ .

On peut distinguer sur ces figures trois sources distinctes d'uranium :

- Un uranium appauvri en  $^{235}\text{U}$  lorsque les activités mesurées en  $^{238}\text{U}$  sont les plus fortes,
- Un uranium enrichi en  $^{235}\text{U}$  lorsque les activités mesurées en  $^{238}\text{U}$  sont les plus faibles,
- Un uranium avec un rapport de masse  $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$  proche 0,72% lorsque les activités en  $^{238}\text{U}$  sont proches de l'activité moyenne.

Il est probable que les filtres qui ont une activité en  $^{238}\text{U}$  comprise entre 0,5 et  $1,5 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$  et un rapport de masse  $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$  proche de 0,72% regroupent les trois sources d'uranium.

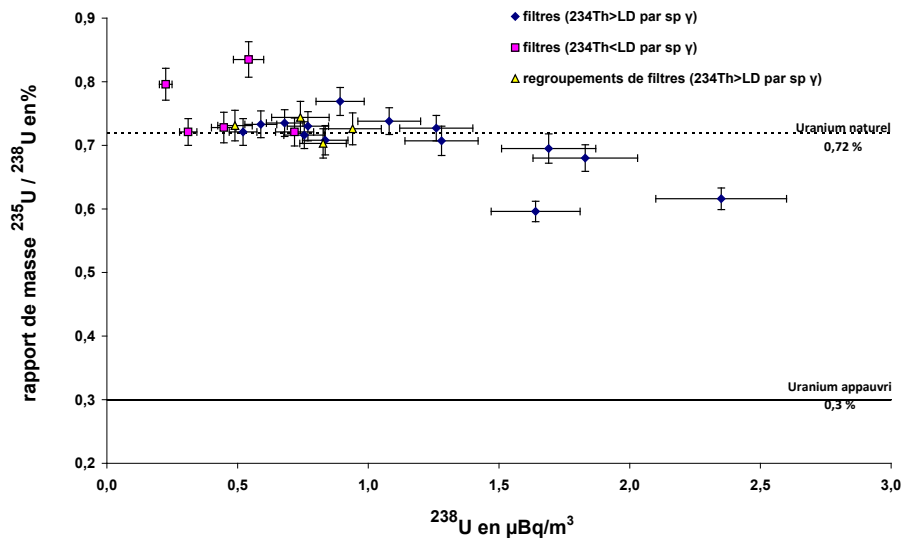


Figure 10. Variations du rapport de masse  $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$  en (%) en fonction de l'activité en  $^{238}\text{U}$  en  $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$ .

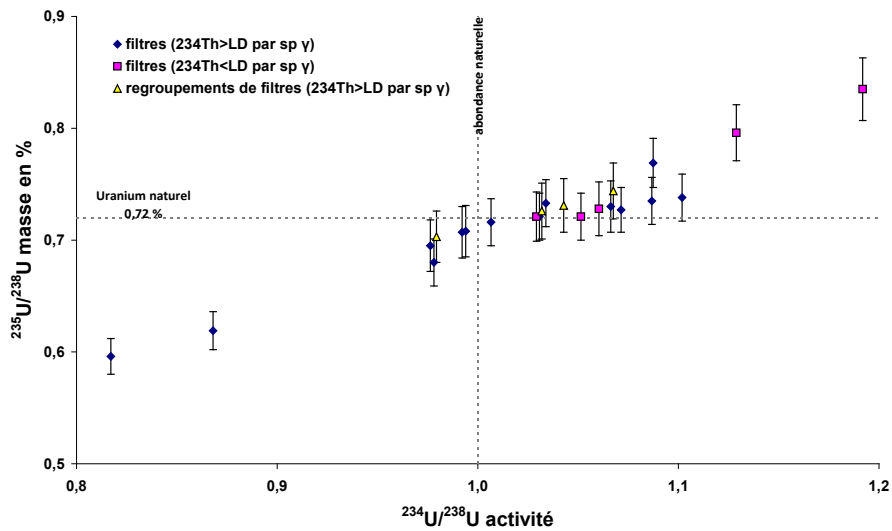


Figure 11. Variations du rapport de masse  $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$  en (%) en fonction du rapport d'activité  $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ .

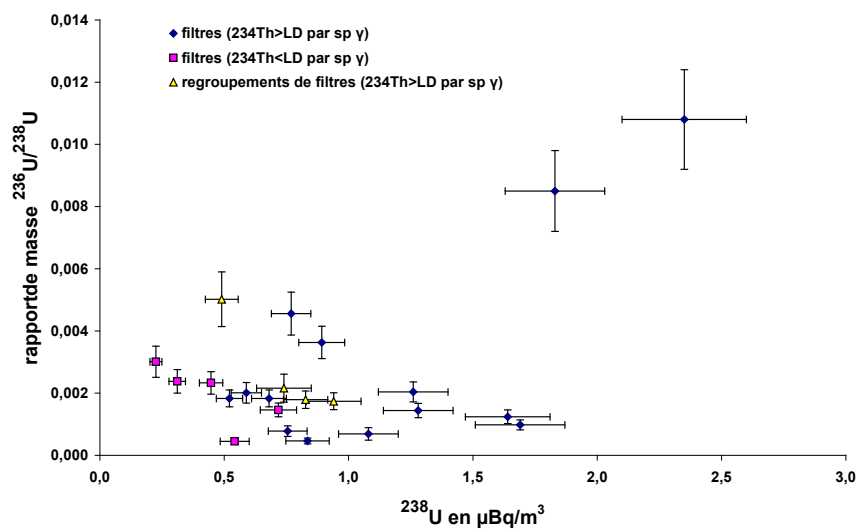


Figure 12. Variations du rapport de masse  $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$  en (%) en fonction de l'activité en  $^{238}\text{U}$  en  $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$ .

Deux études comparables à celle-ci ont été effectuées récemment, l'une réalisée pour le compte de l'Andra dans l'environnement de l'Observatoire Pérenne de l'Environnement (OPE) du centre de Meuse/Haute-Marne et l'autre à proximité des installations Comurhex de Malvési (Masson 2013). L'activité moyenne calculée en  $^{238}\text{U}$  de  $0,93 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$  (de  $0,23$  à  $2,35$ ) lors de cette étude au Tricastin est plus élevée que la valeur moyenne calculée sur l'OPE du centre de Meuse/Haute-Marne de  $0,23 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$  (de  $0,09$  à  $0,4$ ), et plus faible que celle calculée à proximité des installations Comurhex de Malvési de  $33,7 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$  (de  $7$  à  $92$ ).

La figure 13 représente la corrélation entre les activités en  $^{234}\text{Th}$  mesurées par spectrométrie gamma sur les filtres de la station du Tricastin et les activités en  $^{238}\text{U}$  mesurées par ICP-MS sur les mêmes filtres.

Dans l'environnement terrestre hors influence potentielle d'une installation, le  $^{234}\text{Th}$  et l' $^{238}\text{U}$  sont à l'équilibre dans les sols. Il apparaît sur cette figure un excès des activités mesurées en  $^{234}\text{Th}$  par rapport aux activités en  $^{238}\text{U}$ , cet excès est vraisemblablement lié aux activités du centre d'AREVA Tricastin.

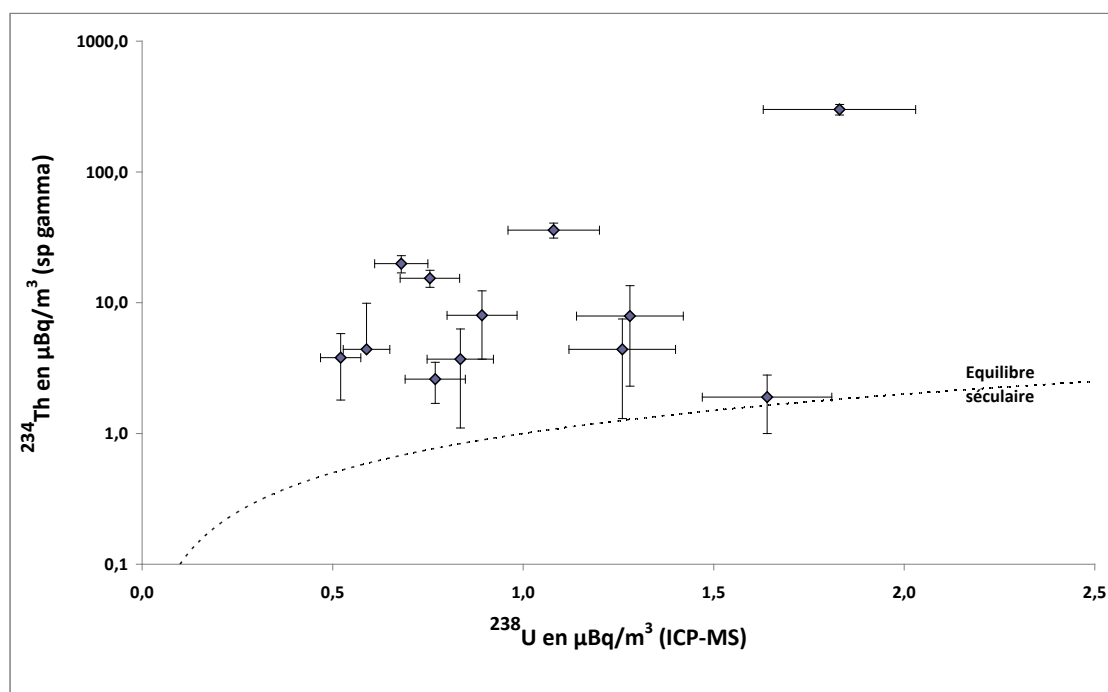


Figure 13. Comparaison entre les activités mesurées en  $^{234}\text{Th}$  par spectrométrie gamma et les activités en  $^{238}\text{U}$  mesurées par ICP-MS sur les mêmes filtres.

### 3.2 ISOTOPES DU PLUTONIUM

Les isotopes du plutonium ont été recherchés par ICP-MS et par spectrométrie alpha sur les quatre regroupements de filtres présentant des activités en  $^{234}\text{Th}$  inférieures aux limites de détection ainsi que le filtre présentant la plus forte activité en  $^{234}\text{Th}$  à la mesure par spectrométrie gamma, les résultats de mesure sont présentés dans le tableau 3.

Les activités en  $^{239+240}\text{Pu}$  sont comprises entre 1,8 et 6,6 nBq/m<sup>3</sup>. L'activité la plus élevée est mesurée sur le filtre unique. Les activités en  $^{240}\text{Pu}$  et  $^{241}\text{Pu}$  sont restées inférieures aux limites de détection. Compte tenu des niveaux d'activité de l'ordre du nBq/m<sup>3</sup>, de l'erreur sur la mesure et du nombre de mesures inférieures aux limites de détection les calculs des rapports isotopique, qui permettent de tracer l'origine du plutonium mesuré sont difficilement réalisables.

**Tableau 3. Résultats de mesure des isotopes du plutonium par ICP-MS et spectrométrie alpha en nBq/m<sup>3</sup>.**

Période de prélèvement	Quantité (m <sup>3</sup> )	nBq/m <sup>3</sup>				
		Spectrométrie alpha		ICP-MS		
		$^{239+240}\text{Pu}$	$^{238}\text{Pu}$	$^{239}\text{Pu}$	$^{240}\text{Pu}$	$^{241}\text{Pu}$
21/05/2012 au 02/07/2012 (6 filtres)	303524	2,7±0,5	0,2±0,13	1,9±1,1	<3,2	<1600
30/07/2012 au 03/09/2012 (5 filtres)	251493	4,4±0,7	0,51±0,25	2,7±1,3	<4,1	<2100
25/02/2013 au 01/04/2013 (5 filtres)	206037	1,8±0,6	<0,1	<1,2	<4,3	<2100
01/04/2013 au 29/04/2013 (4 filtres)	79479	3,1±1,1	<0,56	<3,7	<14	<6500
23/07/2013 (1 filtre)	45061	6,6±1,5	<1	3,5±2,7	<8	<3800

Des analyses des isotopes du plutonium ont également été réalisées dans l'environnement de l'OPE du centre de Meuse/Haute-Marne et à proximité des installations Comurhex de Malvési. L'activité moyenne en  $^{239+240}\text{Pu}$  calculée lors de cette étude au Tricastin est plus élevée que l'activité moyenne de l'OPE de 1,3 nBq/m<sup>3</sup> (de 0,36 à 2,83) et plus faible que celle de l'environnement proche de Malvési de 11,38 nBq/m<sup>3</sup> (4,8 à 19,7).

## **4 CONCLUSION**

Les résultats de mesure par spectrométrie gamma des filtres de la station de collecte des aérosols à très grand débit, installée de janvier 2012 à août 2013, avec la collaboration d'EdF, à proximité du complexe nucléaire de Pierrelatte-Tricastin, permettent de déceler, en plus du césium 137, habituellement mesuré hors influence directe d'installation, des radionucléides artificiels non mesurés par les stations à très grand débit du réseau de surveillance hors influence. Ces radionucléides sont, par ordre décroissant de fréquence de détection, le  $^{60}\text{Co}$ , l' $^{110\text{m}}\text{Ag}$ , le  $^{58}\text{Co}$ , le  $^{54}\text{Mn}$ , le  $^{95}\text{Zn}$ , le  $^{95}\text{Nb}$ , le  $^{124}\text{Sb}$ , le  $^{51}\text{Cr}$ , et le  $^{57}\text{Co}$ . Ils résultent du fonctionnement normal des installations du site et notamment du centre de production nucléaire d'EdF. Les activités de ces radionucléides qui restent extrêmement faibles, sont comprises entre 0,07 et  $5\ \mu\text{Bq}/\text{m}^3$ , elles n'ont pu être décelées que grâce aux performances des moyens de prélèvement et métrologiques mis en œuvre pour cette étude.

Les activités mesurées et la fréquence de détection du  $^{137}\text{Cs}$  sur les filtres de la station TGD du Tricastin, sont comparables aux filtres mesurés pour la même période par les plus proches stations à très grand débit du réseau de surveillance OPERA-Air.

Les résultats de mesures des isotopes de l'uranium mettent par ailleurs en évidence l'influence des rejets d'AREVA Tricastin. Sur les analyses réalisées, l'activité moyenne en  $^{238}\text{U}$  est de l'ordre de  $1\ \mu\text{Bq}/\text{m}^3$ , le rapport de masse  $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$  varie entre  $0,596\pm 0,016\ \%$  et  $0,835\pm 0,028\ \%$ . L' $^{236}\text{U}$  est mesuré sur chaque échantillon analysé et son activité varie entre  $0,0005\pm 0,0002$  et  $0,05\pm 0,015\ \mu\text{Bq}/\text{m}^3$ .

Les activités mesurées des isotopes du plutonium sont de l'ordre du  $\text{nBq}/\text{m}^3$  elles sont comprises entre 1,8 et  $6,6\ \text{nBq}/\text{m}^3$  pour le  $^{239+240}\text{Pu}$ .

## **5 REFERENCES ET DOCUMENTS-SUPPORT**

AREVA (2011). Données chiffrées et informations sur la sûreté nucléaire et la radioprotection du site AREVA Tricastin. Édition 2011.

Bouisset P. et al. (2004). Concentration de  $^{137}\text{Cs}$  et de  $^7\text{Be}$  dans les aérosols en France métropolitaine et à Tahiti de 1959 à 2002. Radioprotection, 39 (3) : 367- ?.

EDF (2011). Nucléaire et environnement. Bilan 2011 des CNPE en exploitation. Rejets radioactifs et chimiques, déchets radioactifs.

EDF (2012). Rapport sur la sûreté nucléaire et la radioprotection des installations nucléaires du CNPE EDF du Tricastin - 2011.

IRSN (2011). Bilan de l'état radiologique de l'environnement français en 2009.

IRSN (2012). Détection en France de très légères traces d'iode 131 dans l'air imputables à des rejets radioactifs venant d'un pays étranger. Note IRSN 21/02/2012.

Malherbe L., Bessagnet B. (2009). Bilan des deux premières années de mesure des  $\text{PM}_{10}$  ajustées en France et évaluation des outils de modélisation. Laboratoire Central de Surveillance de la Qualité de l'Air.

Masson O. (2013). Étude des niveaux d'activité dans l'air à proximité des installations Comurhex de Malvési. Rapport IRSN/PRP-ENV/SESURE/2013-10

Roussel-Debet S (2012). Constat radiologique Vallée du Rhône. Rapport final relatif au milieu terrestre. Rapport IRSN/PRP-ENV/SESURE/2012-06.

Roussel-Debet S., Saey L. (2011). Constat radiologique régional « Vallée du Rhône ». État d'avancement et résultats acquis fin 2010. Rapport IRSN/DEI/SESURE/2011-01.

Saey L, Roussel-Debet S (2011). Constat radiologique régional « Vallée du Rhône ». État d'avancement du volet aquatique. Rapport IRSN/DEI/SESURE/2011-34.

Roussel-Debet S, Antonelli C (2010). Constat radiologique régional - Objectifs et Méthode - Application à la Vallée du Rhône. Rapport IRSN/DEI/SESURE/2010-01.

<http://www.mesure-radioactivite.fr/public/>

<http://www.ladrome.fr/fr/l-economie/nucleaire-les-cli/la-cligeet>

<http://www.irsn.fr>

## 6 ANNEXE

### NIVEAUX D'EMPOUSSIÈREMENT :

Le niveau d'empoussièrment total hebdomadaire (TSP: Total Suspended Particles) est déterminé à partir de la masse de particules collectée sur les filtres pour chaque période de collecte. La moyenne annuelle est de  $31 \mu\text{g}/\text{m}^3$ , les valeurs varient entre 8 et  $89 \mu\text{g}/\text{m}^3$ . D'après la classification établie par Malherbe et al. (2008) et en considérant un ratio Particules solides ou liquides en suspension dans l'air dont le diamètre aérodynamique moyen est  $< 10 \mu\text{m}$  (PM10) / TSP de 50 %, les mesures obtenues, sur le site du Tricastin, reflètent un type d'environnement rural (Tableau 4).

Tableau 4 : Catégories d'empoussièrment basées sur les niveaux de PM<sub>10</sub> en France (valeurs moyennes annuelles de 2007, d'après Malherbe et al., 2008)

Type d'environnement	Niveaux en PM <sub>10</sub> ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )	
	moyenne basse	moyenne haute
Rural	16,2	23,2
Urbain	19,1	25,8
Industriel	21,3	28,0
Trafic	25,5	33,0

Comparaison avec les données d'Air Rhône Alpes :

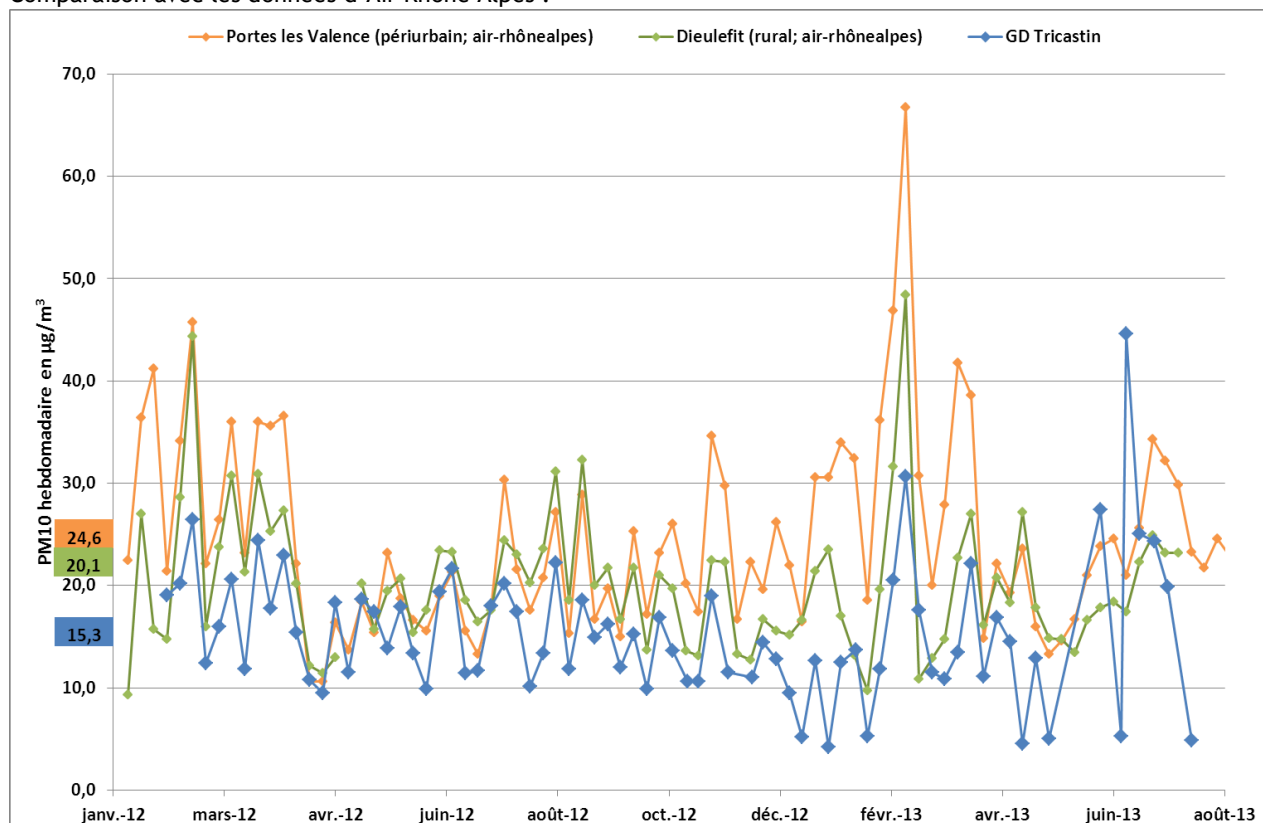


Figure 14. Comparaison de l'évolution des taux d'empoussièrment sur les filtres de la station TGD du complexe Pierrelatte-Tricastin et des stations d'Air Rhône Alpes les plus proches, de janvier 2012 à août 2013.

Tableau 5. Radionucléides d'origine naturelle détectés par spectrométrie gamma en 2012 (a) et 2013 (b).

a) Tricastin 2012	Quantité (m <sup>3</sup> )	Masse (g)	<sup>7</sup> Be	±	<sup>40</sup> K	±	<sup>22</sup> Na	±	<sup>210</sup> Pb	±	<sup>228</sup> Ac	±	<sup>234</sup> Th	±
30/01/2012	29698	1,13	3554	332	9,1	2,2	0,42	0,17	440	50	<0,9		<2,6	
06/02/2012	55773	2,25	3919	365	8,9	1,5	0,36	0,10	1050	100	<0,5		<1,7	
13/02/2012	49999	2,64	4799	448	12,7	1,9	0,37	0,10	1820	170	<0,5		<2,1	
20/02/2012	55651	1,38	2640	249	6,1	1,1	0,24	0,06	297	28	<0,6		1,4	0,5
27/02/2012	54595	1,74	3354	316	8,4	1,5	0,36	0,10	390	40	<2,9		1,1	0,6
05/03/2012	52935	2,18	3720	349	13,1	1,9	0,46	0,11	800	80	<1,4		<6	
12/03/2012	54575	1,29	2989	282	5,7	1,1	0,30	0,08	257	24	<0,4		<2,9	
19/03/2012	53496	2,61	4666	432	15,2	2,1	0,57	0,11	860	80	0,56	0,23	1,4	0,6
26/03/2012	53270	1,89	6808	664	12,4	2,0	1,00	0,19	800	80	<0,6		35,9	4,7
02/04/2012	51838	2,38	6900	700	12,3	2,2	1,00	0,21	860	80	0,80	0,29	1,8	0,7
09/04/2012	51518	1,59	5400	500	7,2	1,5	0,79	0,17	650	60	<0,6		1,1	0,6
16/04/2012	52436	1,13	2820	260	4,2	1,5	0,51	0,17	208	20	<1		<4	
23/04/2012	53177	1,01	3150	290	4,2	1,7	0,42	0,13	193	18	<0,9		2,0	0,6
30/04/2012	53891	1,97	4400	500	10,4	1,5	0,69	0,13	347	32	<0,5		<1,8	
07/05/2012	53206	1,22	3290	300	6,0	1,1	0,60	0,11	229	22	<0,29		<4	
14/05/2012	51774	1,93	4200	400	8,0	1,7	0,61	0,13	430	40	<1,6		<2,1	
21/05/2012	51379	1,79	7700	700	7,7	2,4	1,27	0,26	410	40	<2,6		19,9	3,0
28/05/2012	50799	1,41	3540	320	5,2	1,5	0,30	0,11	770	80	<0,5		<2,7	
04/06/2012	50047	1,79	6700	700	10,4	2,0	1,15	0,23	850	80	<0,7		<11	
11/06/2012	51275	1,37	5700	600	6,7	1,6	0,98	0,19	430	40	<0,7		<2,7	
18/06/2012	51309	1,01	4900	500	4,6	1,9	0,77	0,17	355	33	<1		<2,7	
25/06/2012	49765	1,93	9000	900	13,2	2,1	1,37	0,23	740	70	0,93	0,28	<4	
02/07/2012	50329	2,18	4100	400	15,2	2,3	0,46	0,13	600	60	0,86	0,27	<3,1	
09/07/2012	51504	1,18	4900	500	6,7	1,6	0,77	0,19	450	50	<0,7		<3,1	
16/07/2012	50922	1,19	4800	500	6,7	1,2	0,63	0,12	410	40	0,52	0,18	2,6	0,9
23/07/2012	50694	1,82	5600	600	10,7	1,7	0,72	0,14	420	40	0,80	0,23	4,4	3,1
30/07/2012	49896	2,01	4400	500	12,4	2,3	0,79	0,20	920	90	0,90	0,33	<3,3	
06/08/2012	51758	1,8	5900	600	11,4	2,1	0,70	0,18	760	70	0,62	0,30	<3	
13/08/2012	46555	0,94	5500	600	5,2	1,6	0,83	0,21	590	60	<0,8		<4	
20/08/2012	51989	1,39	6700	700	9,3	1,9	0,96	0,21	780	80	<0,8		<4	
27/08/2012	49908	2,22	6300	600	17,2	2,5	0,70	0,16	1480	140	0,90	0,28	<3,1	
03/09/2012	51283	1,21	4400	500	7,1	1,7	0,41	0,15	510	50	<0,7		<3	
10/09/2012	51501	1,91	5700	600	11,4	2,1	0,36	0,15	1540	150	0,73	0,29	<4	
17/09/2012	52112	1,55	4800	500	9,2	1,7	0,36	0,12	1010	100	<0,6		<2,7	
24/09/2012	50580	1,64	5100	500	9,6	2,0	0,49	0,16	910	90	0,53	0,20	1,2	0,7
01/10/2012	51237	1,23	2400	230	6,0	1,4	0,39	0,12	450	50	<0,6		3,7	2,6
08/10/2012	50833	1,55	2560	240	8,9	1,5	0,29	0,09	1150	110	<0,5		1,3	0,7
15/10/2012	51693	1,02	1630	160	6,7	1,4	0,31	0,10	440	50	<1,5		1,3	0,6
22/10/2012	50235	1,69	2210	210	11,4	1,7	0,44	0,11	640	60	0,60	0,20	2,1	0,6
29/10/2012	51525	1,4	1340	130	8,8	1,5	0,18	0,08	1080	100	<0,6		7,9	5,6
06/11/2012	60743	1,29	1140	110	5,4	1,2	0,17	0,08	480	50	<0,5		1,2	0,5
12/11/2012	46044	0,98	820	80	6,3	1,3	<0,6		380	40	<0,5		<4	
19/11/2012	52107	1,98	1800	170	9,9	1,5	0,29	0,08	1200	110	0,30	0,15	4,4	5,5
28/11/2012	62000	1,43	1730	160	11,6	1,6	0,29	0,07	1140	110	0,37	0,13	8,0	4,3
11/12/2012	94550	2,08	980	100	5,6	1,0	0,11	0,06	308	29	<0,31		<2	
17/12/2012	41238	1,19	1340	130	7,6	1,6	0,26	0,10	490	50	<0,6		<6	
24/12/2012	51987	1,33	980	90	5,8	1,3	<0,19		430	40	0,35	0,18	<5	
31/12/2012	54024	1,02	1450	140	4,7	1,2	0,20	0,09	390	40	<0,5		<1,6	



<b>b) Tricastin 2013</b>	Quantité (m <sup>3</sup> )	Masse (g)	<sup>7</sup> Be	±	<sup>40</sup> K	±	<sup>22</sup> Na	±	<sup>210</sup> Pb	±	<sup>228</sup> Ac	±	<sup>234</sup> Th	±
07/01/2013	54445	0,56	2314	224	4,2	1,1	0,14	0,08	278	26	<0,5		<5	
14/01/2013	54949	1,39	2856	266	5,5	1,3	0,28	0,10	540	50	<0,6		1,8	0,7
21/01/2013	54457	0,46	1882	190	4,8	1,1	<0,6		530	50	<0,5		<1,3	
28/01/2013	53370	1,33	3105	299	5,7	1,2	0,23	0,08	590	60	<0,5		<5	
05/02/2013	61167	1,67	2859	272	8,2	1,3	0,27	0,08	267	25	<1,2		0,9	0,5
11/02/2013	45873	0,48	1677	160	3,2	1,2	<0,7		143	14	<0,7		<1,6	
18/02/2013	54127	1,28	1925	182	4,4	1,1	0,22	0,09	580	60	<0,5		15,4	2,3
25/02/2013	55713	2,28	2296	224	9,6	1,5	0,22	0,08	920	90	<0,5		3,8	2,0
04/03/2013	52449	3,21	2142	199	11,2	1,9	0,21	0,10	1540	150	<0,7		<1,8	
11/03/2013	51852	1,82	2979	284	10,6	1,7	0,38	0,11	600	60	<0,5		<1,7	
18/03/2013	52195	1,2	3520	330	5,9	1,2	0,36	0,11	282	26	<0,5		<1,6	
25/03/2013	27201	0,59	3800	400	6,1	2,4	<0,7		254	24	<1,3		<3,3	
01/04/2013	22340	0,6	2310	220	<14		<0,6		520	50	<1,6		<3,3	
08/04/2013	19175	0,85	4500	500	9,0	2,9	<1,7		890	90	<1,5		<4	
15/04/2013	19338	0,43	3800	400	8,8	2,9	0,53	0,24	331	31	<1,4		<4	
22/04/2013	21315	0,72	4400	400	10,4	2,7	0,41	0,17	430	40	<2,1		<4	
29/04/2013	19651	0,57	4300	400	11,4	2,6	0,51	0,17	620	60	<0,8		<3,1	
06/05/2013	39504	0,36	2190	200	5,0	1,6	0,25	0,12	273	26	<0,7		<2,1	
13/05/2013	19366	0,5	6300	600	7,2	1,8	0,65	0,16	610	60	<0,5		<2,8	
20/05/2013	18989	0,19	3900	400	6,7	2,6	<0,8		314	30	<1,4		<4	
17/06/2013	36105	1,98	4900	500	11,4	2,0	0,58	0,14	650	60	0,68	0,27	<3,1	
28/06/2013	44752	0,47	1010	100	2,2	1,0	<0,4		233	22	<1,2		<1,4	
01/07/2013	50435	4,5	4500	500	17,9	2,4	0,65	0,14	257	24	1,6	0,4	2,6	0,8
08/07/2013	48896	2,45	3900	400	16,5	2,3	0,63	0,14	530	50	1,09	0,29	1,7	0,8
16/07/2013	57619	2,8	6200	600	16,5	2,3	1,02	0,19	750	70	0,83	0,26	<2,9	
23/07/2013	45061	1,79	9800	900	14,1	2,2	1,42	0,25	1120	110	0,70	0,29	300	28
05/08/2013	50752	0,49	4500	500	7,7	1,5	0,51	0,14	640	60	<0,6		1,9	0,9

Tableau 6. Radionucléides d'origine artificielle détectés par spectrométrie gamma en 2012 (a) et 2013 (b).

a) Tricastin 2012	Quantité m <sup>3</sup>	Masse (g)	<sup>137</sup> Cs	±	<sup>60</sup> Co	±	<sup>110m</sup> Ag	±	<sup>58</sup> Co	±	<sup>54</sup> Mn	±
30/01/12	29698	1,13	0,24	0,10	<0,29		<0,26		<0,22		<0,22	
06/02/12	55773	2,25	1,00	0,13	<0,15		<0,13		<0,11		<0,11	
13/02/12	49999	2,64	1,59	0,18	0,14	0,07	<0,14		<0,13		<0,12	
20/02/12	55651	1,38	0,24	0,05	0,15	0,05	<0,06		<0,05		<0,05	
27/02/12	54595	1,74	0,33	0,08	<0,16		<0,14		<0,1		<0,1	
05/03/12	52935	2,18	0,30	0,06	<0,14		<0,14		<0,11		<0,11	
12/03/12	54575	1,29	0,17	0,05	<0,14		<0,14		<0,1		<0,1	
19/03/12	53496	2,61	0,29	0,07	<0,15		<0,13		<0,11		<0,1	
26/03/12	53270	1,89	0,31	0,07	0,11	0,07	<0,17		<0,13		<0,14	
02/04/12	51838	2,38	0,75	0,14	0,15	0,06	0,18	0,08	<0,26		<0,14	
09/04/12	51518	1,59	0,21	0,07	<0,19		<0,18		<0,15		<0,13	
16/04/12	52436	1,13	<0,28		<0,29		<0,4		<0,25		<0,24	
23/04/12	53177	1,01	0,10	0,05	<0,19		<0,27		<0,16		<0,15	
30/04/12	53891	1,97	0,16	0,05	<0,13		<0,13		<0,11		<0,1	
07/05/12	53206	1,22	0,07	0,04	<0,07		<0,1		<0,08		<0,07	
14/05/12	51774	1,93	0,21	0,08	<0,16		<0,16		<0,14		0,10	0,05
21/05/12	51379	1,79	0,24	0,09	<0,27		<0,28		<0,22		<0,21	
28/05/12	50799	1,41	0,19	0,06	<0,17		<0,11		<0,11		<0,1	
04/06/12	50047	1,79	0,37	0,10	<0,19		<0,4		<0,14		<0,14	
11/06/12	51275	1,37	0,14	0,06	<0,6		<0,18		<0,14		<0,14	
18/06/12	51309	1,01	0,19	0,07	<0,23		<0,25		<0,17		<0,17	
25/06/12	49765	1,93	0,29	0,08	0,63	0,14	<0,21		4,4	0,6	0,93	0,14
02/07/12	50329	2,18	0,32	0,08	0,34	0,10	0,13	0,07	0,34	0,09	<0,31	
09/07/12	51504	1,18	0,18	0,08	<0,23		<0,31		<0,21		<0,33	
16/07/12	50922	1,19	0,17	0,05	0,14	<0,06	0,18	0,06	0,09	0,05	<0,1	
23/07/12	50694	1,82	0,36	0,07	<0,17		<0,15		<0,15		<0,12	
30/07/12	49896	2,01	0,48	0,11	0,26	0,11	<0,24		0,17	0,08	<0,18	
06/08/12	51758	1,8	0,37	0,10	1,69	0,29	0,61	0,14	1,42	0,24	0,29	0,09
13/08/12	46555	0,94	0,22	0,09	0,30	0,13	0,26	0,11	0,18	0,09	<0,18	
20/08/12	51989	1,39	0,12	0,07	<0,22		<0,23		<0,17		<0,17	
27/08/12	49908	2,22	0,40	0,09	<0,21		0,55	0,12	<0,16		<0,15	
03/09/12	51283	1,21	0,13	0,07	0,19	0,10	0,95	0,18	<0,4		<0,17	
10/09/12	51501	1,91	0,42	0,10	0,36	0,13	0,72	0,15	0,20	0,08	<0,18	
17/09/12	52112	1,55	0,23	0,07	0,29	0,10	0,21	0,08	<0,16		<0,14	
24/09/12	50580	1,64	0,22	0,09	<0,24		<0,26		<0,19		<0,18	
01/10/12	51237	1,23	0,12	0,06	<0,16		<0,16		<0,14		<0,13	
08/10/12	50833	1,55	0,12	0,05	<0,5		<0,17		<0,12		<0,12	
15/10/12	51693	1,02	0,18	0,06	<0,16		0,60	0,11	0,10	0,05	<0,12	
22/10/12	50235	1,69	0,23	0,06	<0,13		<0,13		<0,11		<0,11	
29/10/12	51525	1,4	0,33	0,07	<0,17		0,98	0,15	0,08	0,05	<0,11	
06/11/12	60743	1,29	0,16	0,06	0,46	0,11	0,54	0,11	0,41	0,09	<0,13	
12/11/12	46044	0,98	0,13	0,05	0,86	0,15	0,57	0,11	0,26	0,07	<0,12	
19/11/12	52107	1,98	0,31	0,06	0,72	0,13	<0,1		<0,09		<0,07	
28/11/12	62000	1,43	0,35	0,06	0,10	0,04	0,070	0,030	<0,06		<0,06	
11/12/12	94550	2,08	0,25	0,05	0,31	0,07	0,28	0,06	<0,08		<0,12	
17/12/12	41238	1,19	0,30	0,08	0,32	0,10	0,13	0,07	<0,15		<0,13	
24/12/12	51987	1,33	0,18	0,06	0,40	0,10	<0,15		0,19	0,06	<0,26	
31/12/12	54024	1,02	0,22	0,06	<0,16		<0,15		<0,13		<0,12	

<b>b) Tricastin 2013</b>	Quantité m <sup>3</sup>	Masse (g)	<sup>137</sup> Cs	±	<sup>60</sup> Co	±	<sup>110m</sup> Ag	±	<sup>58</sup> Co	±	<sup>54</sup> Mn	±	<sup>95</sup> Zn	±	<sup>95</sup> Nb	±	<sup>124</sup> Sb	±	<sup>51</sup> Cr	±	<sup>57</sup> Co	±
07/01/13	54445	0,56	<0,4		<0,17		<0,14		<0,11		<0,11		n.d		n.d		<0,11		n.d		<0,07	
14/01/13	54949	1,39	0,22	0,06	<0,16		<0,15		<0,13		<0,12		n.d		n.d		<0,13		n.d		<0,09	
21/01/13	54457	0,46	0,24	0,06	0,18	0,07	<0,14		<0,11		<0,11		n.d		n.d		<0,11		n.d		<0,07	
28/01/13	53370	1,33	0,37	0,07	<0,13		<0,13		<0,1		<0,09		n.d		n.d		<0,1		n.d		<0,08	
05/02/13	61167	1,67	0,23	0,05	<0,12		<0,11		<0,1		<0,09		n.d		n.d		<0,09		n.d		<0,07	
11/02/13	45873	0,48	0,14	0,07	<0,21		<0,17		<0,15		<0,14		n.d		n.d		<0,14		n.d		<0,08	
18/02/13	54127	1,28	0,34	0,07	<0,14		<0,14		<0,11		<0,11		n.d		n.d		<0,11		n.d		<0,07	
25/02/13	55713	2,28	0,85	0,11	<0,14		<0,13		<0,11		<0,1		n.d		n.d		<0,11		n.d		<0,07	
04/03/13	52449	3,21	1,36	0,17	5,2	0,7	<0,17		2,11	0,29	<0,15		n.d		n.d		<0,15		n.d		<0,09	
11/03/13	51852	1,82	0,32	0,07	<0,15		<0,13		<0,12		<0,11		n.d		n.d		<0,11		n.d		<0,08	
18/03/13	52195	1,2	0,15	0,05	<0,5		<0,23		<0,19		<0,11		n.d		n.d		<0,19		n.d		<0,09	
25/03/13	27201	0,59	<0,32		<0,5		<0,5		<0,5		<0,32		n.d		n.d		<0,5		n.d		<0,2	
01/04/13	22340	0,6	0,32	0,16	0,63	0,25	<0,5		<0,6		<0,5		n.d		n.d		<0,6		n.d		<0,2	
08/04/13	19175	0,85	0,44	0,16	<0,5		<0,5		<0,6		<0,4		n.d		n.d		<0,6		n.d		<0,22	
15/04/13	19338	0,43	<0,4		<1,3		<0,5		<0,6		<0,4		n.d		n.d		<0,6		n.d		<0,2	
22/04/13	21315	0,72	0,23	0,09	1,44	0,29	<0,5		<0,6		<0,18		n.d		n.d		<0,26		n.d		<0,2	
29/04/13	19651	0,57	0,22	0,09	<0,27		<0,19		<0,2		<0,14		n.d		n.d		<0,16		n.d		<0,18	
06/05/13	39504	0,36	0,10	0,06	2,4	0,4	1,17	0,22	1,76	0,32	0,14	0,07	0,28	0,14	0,39	0,10	<0,6		n.d		<0,12	
13/05/13	19366	0,5	0,10	0,06	1,10	0,21	1,10	0,18	1,83	0,28	0,12	0,06	n.d		n.d		<0,15		n.d		<0,18	
20/05/13	18989	0,19	<0,8		<0,6		<1		<0,5		<0,4		n.d		n.d		<0,5		n.d		<0,21	
17/06/13	36105	1,98	0,31	0,08	0,70	0,15	0,57	0,12	0,17	0,07	0,08	0,05	n.d		n.d		<0,15		n.d		<0,17	
28/06/13	44752	0,47	<0,21		<0,13		<0,12		<0,08		<0,08		n.d		n.d		<0,08		n.d		0,06	0,030
01/07/13	50435	4,5	0,75	0,11	3,0	0,4	4,0	0,5	3,0	0,4	0,34	0,09	1,47	0,2	3,04	0,27	0,40	0,09	3,4	1,0	<0,12	
08/07/13	48896	2,45	0,81	0,12	1,87	0,27	2,7	0,4	2,7	0,4	0,26	0,08	0,64	0,14	1,22	0,14	0,24	0,07	2,5	1,0	<0,12	
16/07/13	57619	2,8	1,15	0,15	0,73	0,15	0,93	0,15	0,49	0,10	0,14	0,06	1,09	0,18	1,83	0,22	<0,14		n.d		<0,15	
23/07/13	45061	1,79	1,06	0,16	<0,22		<0,23		<0,2		<0,18		n.d		n.d		<0,2		n.d		<0,21	
05/08/13	50752	0,49	0,23	0,07	<0,18		<0,18		<0,17		<0,15		n.d		n.d		<0,19		n.d		<0,13	

n.d : non déterminé

Tableau 7. Résultats de mesure des isotopes de l'uranium par ICP-MS en  $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$ .

Période de prélèvement du au	Nb. de filtre	Volume $\text{m}^3$	Masse g	$\mu\text{Bq}/\text{m}^3$								Activité		%	
				$^{234}\text{U}$	$\pm$	$^{235}\text{U}$	$\pm$	$^{236}\text{U}$	$\pm$	$^{238}\text{U}$	$\pm$	$^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$	$\pm$	$^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$	$\pm$
30/01/2006 06/02/2012	1	55773	1,13	0,474	0,063	0,0209	0,0023	0,0020	0,0006	0,447	0,047	1,06	0,18	0,728	0,024
05/03/2012 12/03/2012	1	54575	1,29	0,327	0,045	0,0144	0,0016	0,0014	0,0005	0,311	0,033	1,05	0,18	0,721	0,021
19/03/2012 26/03/2012	1	53270	1,89	1,190	0,190	0,0515	0,0054	0,0014	0,0006	1,080	0,120	1,10	0,21	0,738	0,021
30/04/2012 07/05/2012	1	53206	1,22	0,646	0,088	0,0291	0,0032	0,0005	0,0002	0,542	0,058	1,19	0,21	0,835	0,028
14/05/2012 21/05/2012	1	51379	1,79	0,739	0,095	0,0322	0,0034	0,0024	0,0007	0,680	0,070	1,09	0,18	0,735	0,021
21/05/2012 02/07/2012	6	303524	9,69	0,970	0,130	0,0440	0,0049	0,0032	0,0010	0,940	0,110	1,03	0,18	0,726	0,025
09/07/2012 16/07/2012	1	50922	1,19	0,820	0,110	0,0361	0,0038	0,0068	0,0021	0,769	0,079	1,07	0,18	0,730	0,023
16/07/2012 23/07/2012	1	50694	1,82	1,350	0,180	0,0590	0,0062	0,0049	0,0016	1,260	0,140	1,07	0,19	0,727	0,020
30/07/2012 03/09/2012	5	251493	7,56	0,810	0,110	0,0374	0,0041	0,0028	0,0009	0,827	0,089	0,98	0,17	0,703	0,023
10/09/2012 17/09/2012	1	52112	1,55	0,739	0,093	0,0333	0,0035	0,0020	0,0006	0,718	0,073	1,03	0,17	0,721	0,022
24/09/2012 01/10/2012	1	51237	1,23	0,830	0,110	0,0380	0,0041	0,0008	0,0003	0,835	0,087	0,99	0,17	0,708	0,023
01/10/2012 08/10/2012	1	50833	1,55	1,650	0,220	0,0757	0,0082	0,0032	0,0010	1,690	0,180	0,98	0,17	0,695	0,023
22/10/2012 29/10/2012	1	51525	1,4	1,270	0,170	0,0581	0,0062	0,0035	0,0011	1,280	0,140	0,99	0,17	0,707	0,023
12/11/2012 19/11/2012	1	52107	1,98	0,609	0,080	0,0278	0,0030	0,0023	0,0007	0,589	0,061	1,03	0,17	0,733	0,021
19/11/2012 28/11/2012	1	62000	1,43	0,970	0,130	0,0441	0,0047	0,0062	0,0020	0,892	0,092	1,09	0,18	0,769	0,022
24/12/2012 31/12/2012	1	54024	1,02	0,254	0,035	0,0115	0,0013	0,0013	0,0004	0,225	0,024	1,13	0,20	0,796	0,025
07/01/2013 14/01/2013	1	54949	1,39	2,040	0,260	0,0935	0,0097	0,0490	0,0150	2,350	0,250	0,87	0,14	0,616	0,017
11/02/2013 18/02/2013	1	54127	1,28	0,760	0,100	0,0348	0,0037	0,0011	0,0004	0,755	0,078	1,01	0,17	0,716	0,021
18/02/2013 25/02/2013	1	55713	2,28	0,537	0,069	0,0241	0,0025	0,0018	0,0006	0,521	0,053	1,03	0,17	0,721	0,021
25/02/2013 01/04/2013	5	206037	7,42	0,511	0,087	0,0230	0,0032	0,0047	0,0015	0,490	0,066	1,04	0,23	0,731	0,024
01/04/2013 29/04/2013	4	79479	2,57	0,790	0,150	0,0355	0,0053	0,0031	0,0010	0,740	0,110	1,07	0,26	0,744	0,025
16/07/2013 23/07/2013	1	45061	1,79	1,790	0,240	0,0799	0,0088	0,0298	0,0092	1,830	0,200	0,98	0,17	0,680	0,021
23/07/2013 05/08/2013	1	50752	0,49	1,340	0,180	0,0627	0,0066	0,0039	0,0013	1,640	0,170	0,82	0,14	0,596	0,016