

Commission de Recherche et d'Information Indépendantes sur la Radioactivité

# Rapport CRIIRAD Nº07-114 Etude radioécologique 2003-2007 / Romans

## Evaluation de la radioactivité dans l'environnement de la ville de Romans-sur-Isère

## Mesure de l'exposition externe

Caractérisation radiologique du milieu (sols, boues de STEP, plantes et sédiments de l'Isère, bioindicateurs terrestres)

Etude réalisée par le laboratoire de la CRIIRAD à la demande de la ville de Romans-sur-Isère

Edition du 23 novembre 2007

Responsable d'étude : Bruno CHAREYRON (ingénieur en physique nucléaire)

Missions de terrain : avril 2003, novembre 2005, septembre-octobre 2006 et novembre 2007 effectuées par Christian COURBON, technicien spécialisé et Thierry CONSTANTIN-BLANC, ingénieur environnement (septembre-octobre 2006)

Préparation des échantillons : Jocelyne RIBOUET, préparatrice

Analyses par spectrométrie gamma : Stéphane PATRIGEON, technicien métrologue

#### LABORATOIRE DE LA CRIIRAD

471, Avenue Victor Hugo, 26000 Valence laboratoire@criirad.org

## **SOMMAIRE**

1. SYNTHESE	3
2. CONTEXTE OBJECTIFS ET METHODOLOGIE	<u> 7</u>
2.1. Introduction	7
2.1. INTRODUCTION	
2.2. ORGANISATION DES MISSIONS DE TERRAIN  2.3. ANALYSES AU LABORATOIRE CRIIRAD	
2.3. ANALYSES AU LABURATUIRE CRITKAD	12
3. ANALYSES DE SOLS SUPERFICIELS	14
3.1. METHODOLOGIE	11
3.2. RESULTATS DES ANALYSES DE SOL	
3.2.1. RADIONUCLEIDES ARTIFICIELS	
3.2.2. RADIONUCLEIDES « NATURELS »	1/
4. MESURES RADIAMETRIQUES	20
4.1. METHODOLOGIE	20
4.1. METHODOLOGIE  4.2. RESULTATS DES MESURES RADIAMETRIQUES	
4.2. RESULTATS DES MESURES RADIAMETRIQUES	
5. ANALYSES DE BIOINDICATEURS TERRESTRES	24
5.1. METHODOLOGIE	24
5.2. RESULTATS DES ANALYSES DE BIOINDICATEURS TERRESTRES	
5.2.1. RADIONUCLEIDES ARTIFICIELS	
5.2.2. RADIONUCLEIDES « NATURELS »	
5.2.2. KADIONOCLEIDES « NATURELS »	20
6. ANALYSE DU GATEAU DE LA STEP	<u>29</u>
6.1. METHODOLOGIE	29
6.2. RESULTATS DES ANALYSES DE GATEAU	
6.2.1. RADIONUCLEIDES ARTIFICIELS.	
6.2.2. RADIONUCLEIDES « NATURELS »	
O.Z.Z. Id Dio No CEEDED William of the Ceede	
7. ANALYSES DE SEDIMENTS DE L'ISERE	<u>33</u>
7.1. METHODOLOGIE	33
7.2. RESULTATS DES ANALYSES DE SEDIMENTS	
7.2.1. RADIONUCLEIDES ARTIFICIELS	
7.2.2. RADIONUCLEIDES « NATURELS »	
	-
	4.0
8. ANALYSES DE VEGETAUX DE L'ISERE	<u>40</u>
8.1. METHODOLOGIE	.40
8.1. METHODOLOGIE	
8.1. METHODOLOGIE	42

8.2.2. RADIONUCLEIDES « NATURELS »		4
I BIO. O CELIDED WITH ONDED //	 	

COUDAD NOOT 444 Bodie

## 1. SYNTHESE

## **Objectifs**

La municipalité de Romans-sur-Isère a demandé au laboratoire de la CRIIRAD de conduire une étude radioécologique permettant de dresser un état des lieux global de la radioactivité sur la commune (radioactivité naturelle et artificielle) tout en tenant compte plus spécifiquement de l'impact éventuel de l'usine de fabrication de combustible nucléaire (FBFC-CERCA, groupe AREVA).

Cette étude a pour objet de constituer un état de référence qui pourra servir de point de comparaison ultérieurement, en particulier en cas d'incidents radiologiques.

La réalisation de telles études indépendantes des industriels et des services de l'Etat est particulièrement utile en France compte tenu du fait que l'essentiel des contrôles de radioactivité est effectué par les exploitants (dans le cadre de l'auto-surveillance).

Cette étude, dont la première phase a été réalisée de 2003 à 2007, vient compléter le contrôle en temps réel de la radioactivité de l'air effectué par la CRIIRAD, pour la municipalité de Romans et le Conseil Général de la Drôme, au moyen d'une balise fixe située au niveau du Centre de Secours de Romans (voir : http://balisescriirad.free.fr).

## Méthodologie

Les contrôles 2003-2007 ont été organisés autour de 2 axes :

- Le milieu terrestre avec en particulier la mesure du rayonnement gamma ambiant, l'analyse de sols, mousses terrestres et feuillages de conifères.
- Le milieu aquatique de surface, contrôlé à partir de l'analyse du gâteau de la Station de Traitement des Eaux Usées (STEP) de Romans, et l'analyse de sédiments, mousses aquatiques et roseaux échantillonnés dans l'Isère.

#### Phase 1

En ce qui concerne le choix des éléments radioactifs à mesurer, le caractère généraliste de l'étude imposait le recours à la spectrométrie gamma qui permet de quantifier de nombreux radionucléides artificiels et naturels.

- On retiendra en particulier, parmi les radionucléides émetteurs gamma artificiels, des radionucléides présents dans les retombées des essais nucléaires atmosphériques, de la catastrophe de Tchernobyl, ou utilisés dans l'industrie nucléaire ou les activités médicales : iode 129, iode 131, américium 241, cérium 144, antimoine 125, césiums 134 et 137, cobalts 58 et 60, manganèse 54, zirconium 95, niobium 95, ruthénium 106, argent 110 m, technétium 99<sup>m</sup>, thallium 201, etc.
- S'agissant des radionucléides naturels, on retiendra les éléments émetteurs gamma de la chaîne de l'uranium 238 (thorium 234, radium 226, plomb 210), l'uranium 235, les descendants émetteurs gamma du thorium 232 (actinium 228, plomb 212, thallium 208), le potassium 40, le béryllium 7 (cosmogénique).

D'un autre côté, l'étude plus spécifique de l'impact des rejets de l'usine FBFC imposait de donner la priorité aux isotopes naturels et artificiels de l'uranium dont seulement 2 (uranium 238 et uranium 235) sont mesurables par spectrométrie gamma, avec des limites de détection relativement élevées.

Afin de concilier ces 2 problématiques, la CRIIRAD a proposé d'organiser l'étude en deux phases. La première (objet du présent rapport) ne porte que sur les dosages par spectrométrie gamma.

#### Phase 2

La seconde phase de l'étude portera sur des radionucléides spécifiques difficiles ou impossibles à mesurer par spectrométrie gamma et qui ne peuvent être omis compte tenu des activités de la FBFC (en particulier l'uranium 234 d'origine naturelle mais qui, du fait de l'utilisation d'uranium enrichi, est susceptible d'être présent en concentration anormalement élevée par rapport à l'uranium 238).

Compte tenu de l'utilisation d'uranium de retraitement par l'usine FBFC, il est également possible de retrouver dans les rejets de l'usine un certain nombre d'autres radionucléides qui ne peuvent être détectés par spectrométrie gamma dont :

- des isotopes artificiels de l'uranium (uranium 232 et 236),
- des isotopes du plutonium et autres transuraniens,
- du strontium 90 ainsi que du technétium 99,

La priorité sera donnée à la réalisation de dosages fins des différents isotopes naturels et artificiels de l'uranium, en particulier dans les sols, bioindicateurs terrestres, boues de la STEP, sédiments et bioindicateurs aquatiques.

Il sera souhaitable de procéder également au dosage spécifique des isotopes naturels et artificiels de l'uranium sur les filtres de la balise<sup>1</sup> de Romans et, pour comparaison, sur ceux de la balise de Montélimar ou de Valence, afin de déterminer s'il existe un impact mesurable des rejets chroniques de l'usine FBFC de Romans.

#### Principaux résultats de la phase 1

D'une manière générale, cette étude préliminaire permet de dresser un bilan plutôt satisfaisant de la situation radioécologique à Romans.

Les concentrations en radionucléides naturels dans les milieux terrestre et aquatique sont normales et souvent inférieures à la moyenne constatée sur le territoire français.

Compte tenu des faibles facteurs de transfert sol / végétaux cultivés, les premiers résultats d'analyse effectués sur les sols sont rassurants quant à la qualité radiologique des productions alimentaires cultivées localement.

En ce qui concerne les radionucléides liés aux activités humaines, 4 points méritent d'être soulignés :

1. La persistance d'une contamination par le **césium 137** dans les sols, mousses terrestres, gâteau de la STEP, sédiments et mousses aquatiques de l'Isère.

Ces résultats sont dans la gamme attendue sur la région du fait du reliquat des retombées des essais nucléaires atmosphériques en particulier dans les années 50-60 et de la catastrophe de **Tchernobyl** en 1986. La période physique du césium 137 est de 30 ans, c'est-à-dire que sa radioactivité est divisée par 2 au bout de 30 ans par décroissance physique, sans compter une élimination progressive par divers mécanismes de transfert physique ou biologique.

Les résultats ne permettent pas d'identifier une éventuelle contribution liée au fonctionnement de l'usine FBFC. On notera par ailleurs que, dans le cadre de l'auto-surveillance, la FBFC n'a jamais détecté de césium 137 dans ses rejets atmosphériques en 2006.

<sup>1</sup> La balise est capable de détecter en continu une élévation anormale de l'activité des émetteurs alpha et bêta dans les aérosols, ainsi que des halogènes gazeux. Les contrôles complémentaires effectués régulièrement par le laboratoire de la CRIIRAD sur les filtres à aérosols de la balise de contrôle de la radioactivité de l'air située à Romans consistent à effectuer une spectrométrie gamma. Cette analyse permet de détecter de nombreux radionucléides artificiels et naturels émetteurs gamma qui seraient présents en cas d'accident radiologique.

 Une contamination par des radionucléides artificiels dans les mousses aquatiques de l'Isère (iode 131) et le gâteau de la STEP de Romans (iode 131 et thallium 201). Leur présence est probablement liés aux pratiques de médecine nucléaire (scintigraphie, thérapie métabolique à l'iode 131).

Ce type de contamination a déjà été identifié par la CRIIRAD dans les réseaux des eaux usées de plusieurs villes en France.

Cette contamination diffuse est liée aux pratiques médicales et ne concerne pas seulement les villes qui disposent de services de médecine nucléaire. En effet, les patients auxquels des substances radioactives ont été administrées à des fins thérapeutiques ou diagnostiques ont un impact lorsqu'ils reviennent à leur domicile ou dans des établissements locaux.

La CRIIRAD s'efforce depuis des années de sensibiliser les pouvoirs publics à cette problématique.

En effet, même s'il s'agit de radionucléides à courte période physique (3 à 8 jours), leur utilisation massive et chronique conduit à la production de déchets solides (alarme des portiques en entrée des Centres d'Enfouissement Technique) et d'effluents liquides qui ont un impact sur l'environnement.

Il pourrait être utile de mettre en œuvre une campagne d'information à destination des patients, en collaboration avec la ville de Romans, afin d'améliorer la protection de leur entourage et en particulier des enfants.

3. Le niveau de rayonnement gamma à proximité de la **clôture de l'usine FBFC** est anormalement élevé (plus de 2 fois supérieur au niveau naturel).

Ceci est très probablement lié au rayonnement émis par les matières entreposées au droit de la clôture, dont a priori des containers d'UF6.

La dose résultante est certes dans la gamme des très faibles doses et elle reste inférieure à la dose maximale annuelle admissible. Mais elle est supérieure au seuil du risque négligeable et la réglementation impose que l'exploitant mette en œuvre tout ce qui est raisonnablement possible pour que l'exposition du public soit la plus faible possible.

4. L'impact des **rejets radioactifs de l'usine FBFC** dans l'atmosphère et dans l'Isère (principalement des isotopes naturels et artificiels de l'uranium) est, en première approche, difficile à distinguer du bruit de fond naturel en ce qui concerne l'uranium 238 et 235.

Les mesures isotopiques complémentaires prévues pour la phase 2 de l'étude sont donc indispensables pour conclure sur ce point, d'autant que l'uranium 234 (émetteur alpha qui n'a pas été dosé dans le cadre de la phase 1) représente plus de 50 % de l'activité des rejets liquides et atmosphériques de la FBFC en 2006.

L'analyse préliminaire par spectrométrie gamma du gâteau de la STEP suggère un transfert probable d'uranium anthropique via les eaux usées mais ceci devra être confirmé par des dosages plus fins.

#### Recommandations pour la phase 2

La phase 2 consistera à réaliser, sur les échantillons déjà prélevés, le dosage de certains isotopes émetteurs alpha ou bêta à longue période. Ceci permettra soit de confirmer le diagnostic préliminaire issu de la phase 1 de l'étude, soit de nuancer le constat pour certains radionucléides.

Nous recommandons que la seconde phase de l'étude comporte également :

- Des contrôles sur l'impact du transport des matières radioactives à destination ou en provenance de l'usine FBFC (en terme d'exposition externe pour le public).
- Une analyse approfondie des documents et résultats de l'autosurveillance effectuée par la FBFC.
- Une réunion de travail avec les techniciens de la FBFC afin d'approfondir certains points concernant l'impact radiologique du site (présence d'isotopes artificiels de l'uranium en amont, rôle du ruisseau La Joyeuse, détection épisodique de technétium 99, interprétation des mesures d'uranium pondéral dans le sol, possibilité de transfert d'uranium via le réseau des eaux usées de la ville, amélioration du dispositif de surveillance de la radioactivité des eaux vannes, problématique du débit de dose anormalement élevé à la clôture de l'usine, interprétation des résultats de dosimétrie passive qui paraissent sous-estimés, etc..).

## 2. CONTEXTE OBJECTIFS ET METHODOLOGIE

## 2.1. Introduction

## Demande formulée par la ville de Romans

La ville de Romans-sur-Isère a souhaité faire réaliser une « évaluation de la radioactivité dans l'environnement de la ville ».

Les premiers contacts ont été pris avec le laboratoire de la CRIIRAD en 2002 pour définir les objectifs, la méthodologie et les moyens techniques à mettre en œuvre.

La demande formulée par la ville de Romans le 31 janvier 2002 est reproduite ci-dessous :

« Depuis 1990, la Mairie de Romans-sur-Isère dispose d'une balise de mesure de la radioactivité de l'air afin de pouvoir détecter rapidement un rejet important de polluants radioactifs dans l'atmosphère.

En effet, la ville de Romans accueille sur son territoire un établissement de la FBFC, entreprise de fabrication de combustibles nucléaires, susceptible de connaître des incidents de production qui l'amène à rejeter dans l'air des niveaux importants d'éléments radioactifs.

La balise, gérée par la CRIIRAD (Commission de Recherche et d'Information Indépendantes sur la Radioactivité) a pour objectif de détecter rapidement ces incidents potentiels afin d'avertir au plus vite la population des mesures de précaution à prendre.

Aujourd'hui, la Mairie de Romans souhaite étoffer ce dispositif de surveillance des accidents par un suivi de l'impact des rejets radioactifs dans son environnement. En effet, pour les besoins de sa production, la FBFC a des autorisations de rejets d'éléments radioactifs dans l'air et dans l'Isère.

Pour cela, la Municipalité souhaite l'établissement d'un « état zéro de la radioactivité dans l'environnement », assuré par un expert indépendant. Cette expertise permettra de connaître de façon précise l'état de la radioactivité dans l'eau, l'air, les sols, les végétaux de Romans et ses environs. Elle servira aussi de base pour évaluer dans les années à venir l'évolution de notre environnement ».

## Présentation de l'usine FBFC

FBFC<sup>2</sup>, filiale d'AREVA, est le premier producteur mondial d'assemblages combustibles pour les réacteurs nucléaires de la filière REP.

Créée en 1973, la société **FBFC** a fabriqué les combustibles nécessaires au démarrage du programme nucléaire en France dont elle fournit aujourd'hui 80 % des recharges.

La société alimente également en combustible des centrales nucléaires implantées dans le monde entier (Belgique, Suède, Allemagne, Chine, Afrique du Sud) et exporte certains de ces produits – pastilles, embouts, composants de grilles et poudre d'uranium,...- au Japon, en Chine et aux Etats-Unis.

L'usine **FBFC** de Romans a été construite en **1977** sur un site industriel qui abrite depuis **1957** la société **CERCA** – Compagnie pour l'Etude et la Réalisation de Combustibles Atomiques – aujourd'hui premier producteur mondial d'éléments combustibles pour les réacteurs de recherche.

Le site FBFC et CERCA regroupe 20 bâtiments répartis sur 35 hectares et emploie 800 personnes.

<sup>&</sup>lt;sup>2</sup> Les informations sont issues principalement du Rapport Environnemental, social et sociétal 2005, FBFC-AREVA-Etablissement de Romans.

La matière première principale est **l'hexafluorure d'uranium (UF6).** L'usine le transforme en oxyde d'uranium (poudre noire), compacté en pastilles cylindriques cuites au four à très haute température. Les pastilles (diamètre 8 mm) sont empilées dans de longs tubes d'environ 4 mètres appelés « crayons » dont la gaine est constituée d'un alliage de zirconium. Les crayons sont réunis en assemblages qui forment des parallélépipèdes d'environ 21X21 cm de section et de 4 à 4,8 mètres de hauteur. La majorité des assemblages comprend un faisceau carré de 264 crayons.

En 2005, l'usine a traité **920 tonnes d'uranium** à la conversion et 484 tonnes à l'assemblage.

Le plan de surveillance FBFC a été mis à niveau<sup>3</sup> dans le cadre d'un nouvel arrêté relatif aux conditions de rejets d'effluents et de prise d'eau et promulgué le **22 juin 2000**.

L'usine FBFC de Romans est autorisée à rejeter dans l'atmosphère (13 cheminées) et dans l'Isère (après traitement par la station Neptune), divers isotopes naturels et artificiels de l'**uranium** et des **transuraniens** (par exemple isotopes du plutonium et du neptunium), ainsi que des **produits de fission** contenus en tant qu'impuretés dans l'uranium livré sur le site (uranium de retraitement). Elle procède également à des rejets chimiques.

Les résultats de l'autosurveillance 2006 pratiquée par la FBFC font état de la présence d'isotopes naturels (234, 235 et 238) et artificiels (232 et 236) de l'**uranium** dans les rejets atmosphériques (5,7 millions de becquerels) et liquides (370 millions de becquerels).

D'autres isotopes artificiels sont détectés mais de manière plus épisodique :

- Au niveau de certaines cheminées (strontium 90 à la cheminée de l'incinérateur en mars 2006, niobium 95 et cérium 144 à la cheminée du service « recyclage », ponctuellement en 2006),
- Au niveau des rejets liquides (contrôles mensuels) de la station de traitement Neptune dans l'Isère: niobium 95 (11 cas sur 12), césium 137 (4 cas sur 12) et strontium 90 (6 cas sur 12).

Nous avons reproduit dans le tableau T0 ci-après les rejets déclarés par l'usine FBFC de Romans en 2006.

#### Activités de médecine nucléaire

D'après l'Annuaire de la Médecine Nucléaire 2006 (Mallinckrodt), il n'y a pas à Romans de service de médecine nucléaire. Par contre, des patients traités à l'hôpital de Valence peuvent, de retour à domicile sur le secteur de Romans, induire une contamination diffuse principalement via les eaux usées .

<sup>&</sup>lt;sup>3</sup> La CRIIRAD a participé à la mise à niveau du plan de surveillance à travers les interventions du président de la CRIIRAD, monsieur Roland Desbordes, lors des réunions de la CLE de la FBFC et par le biais d'une note rédigée par B. Chareyron, responsable du laboratoire adressée à la DRIRE / ASN en avril 2003. Le plan de surveillance actuellement en vigueur est plus satisfaisant, même s'il reste des domaines à améliorer.

Tableau T0: Rejets radioactifs déclarés par l'usine FBFC en 2006

#### Rejets radioactifs gazeux des Installations Nucléaires de Base

Cumul annuel en MBq	Autorisation	2006	Remarques CRIIRAD
Activité alpha		5,57 MBq	
Activité bêta		3,82 MBq	
Isotopes de l'uranium	200 MBq	5,7 MBq	
Transuraniens	10 MBq	0,6 MBq	100 % de l'activité déclarée correspond à la somme de limites de détection sur Pu 239 et Np 237
Produits de fission	300 MBq	2/1/10/	L'essentiel de l'activité déclarée correspond à la somme de limites de détection. Les radionucléides réellement mesurés de façon ponctuelle sont Sr 90, Nb 95, Ce 144

#### Volume rejeté par la station d'épuration Neptune dans l'Isère

Cumul annuel	Autorisation	2006
Eaux Neptune	50 000 m3	12 447 m3

#### Volume des eaux usées rejeté dans le réseau de collecte de la ville de Romans

Rejet annuel	-	2006
Eaux usées	-	34 615 m3
Contrôle de l'absence de	Limite	
radioactivité des eaux usées	autorisée	
(Activité alpha)	1 Bq/l	< 0,73 Bq/l

#### Rejets radioactifs liquides de la station Neptune

Activité volumique moyenne	Autorisation	2006	Remarques CRIIRAD
Activité alpha globale		99 Bq/I	En fait il s'agit de la valeur mensuelle max 2006
Activité bêta globale		21 Bq/l	En fait il s'agit de la valeur mensuelle max 2006
Isotopes de l'uranium	7 000 MBq	370 MBq	U 234 = 84,8 % / U 238 = 10,8 % / U 235 = 3,2 % / U 236 = 1,1 % / U 232 = 0,2 %
Transuraniens	100 MBq	0,6 MBq	Pu 239 et Np 237 inférieurs aux limites de détection ( 0,09 et 0,02 Bq/l)
Produits de fission	3 000 MBq	50 MBq	L'essentiel de l'activité déclarée correspond à la somme de limites de détection. Les radionucléides réellement mesurés sont Nb 95 (11/12), Cs 137 (4/12) et Sr 90 (6/12)

## Méthodologie proposée par la CRIIRAD

Plusieurs propositions ont été discutées à partir du 18 janvier 2002 et modifiées en fonction des priorités fixées et des contraintes budgétaires.

Compte tenu de la présence sur le territoire de la commune de Romans-sur-Isère de l'usine FBFC-CERCA le plan d'échantillonnage a été conçu de manière à tenir compte de l'impact radiologique potentiel des rejets radioactifs atmosphériques et liquides de cette installation, tout en donnant une vision d'ensemble (cas des échantillonnages dans l'Isère).

La stratégie générale a consisté à concevoir une étude en plusieurs phases.

La phase 1 (objet du présent rapport) traite des mesures in situ, des prélèvements et des analyses par spectrométrie gamma d'échantillons.

Conformément au plan d'étude proposé à la mairie de Romans, la seconde phase devra comporter le dosage d'autres radionucléides pertinents mais non mesurables par spectrométrie gamma, et en priorité les isotopes artificiels et naturels de l'uranium.

Les deux axes d'étude retenus pour la phase 1 sont :

#### • Le milieu terrestre

a. Réalisation et analyse de **7 carottages de sol** (dont une référence hors influence de l'usine FBFC) et mesure du **débit de dose** gamma ambiant.

L'analyse des productions végétales est relativement aléatoire car il faut tenir compte d'une forte variabilité entre les différents types de produits (fruits, légumes-feuilles, légumes racines).

A l'inverse, l'analyse de la radioactivité du sol, et en particulier de la couche superficielle permet de rendre compte de la radioactivité naturelle et artificielle du milieu.

L'absence d'anomalie radiologique dans le sol permet de considérer en première approche que les risques de contamination des végétaux cultivés sur ce sol sont faibles. En effet, à l'exception des champignons, pour la majorité des plantes cultivées sur le territoire français, les facteurs de transfert des radionucléides entre le sol et la plante sont faibles.

De plus, l'analyse de la couche superficielle du sol, permet de rendre compte des dépôts de polluants radioactifs intervenus dans les années précédentes.

b. En complément aux analyses de sol, des analyses préliminaires ont été effectuées sur des bioindicateurs végétaux (mousses terrestres et aiguilles de cèdres et cyprès) prélevés en 2 stations sous les vents du site FBFC (ouest / sud-ouest).

#### • Le milieu aquatique

a. Echantillonnage du gâteau de la STEP de Romans.

Les « eaux vannes (correspondant aux eaux domestiques) » de l'usine FBFC sont déversées dans le réseau de collecte de la ville de Romans et dirigées vers la station d'épuration communale (dénommée ici STEP). Il est apparu utile de contrôler la radioactivité du gâteau de la STEP compte tenu des résultats d'analyses effectuées par la CRIIRAD en 1996 et qui avaient montré une contamination par de l'uranium enrichi et par des radionucléides utilisés en médecine nucléaire.

b. Echantillonnage de **sédiments** (2 stations amont, 2 stations aval proche et 2 stations aval lointain), **roseaux** (2 stations : amont et aval) et **mousses aquatiques** (fontinales, en aval proche du rejet FBFC) dans l'**Isère**.

Les prélèvements ont été effectués en amont et en aval du point de rejet de la station de traitement des effluents radioactifs liquides de l'usine FBFC dans l'Isère.

De plus, pour les sédiments, une des 4 stations aval a été choisie de manière à rendre compte de l'éventuel impact des rejets de la station de traitement des eaux de la commune (STEP).

Les sédiments et plantes ont été retenus compte tenu de leur rôle **intégrateur** qui permet, dans de nombreux cas, de mettre en évidence une contamination qui peut ne pas être décelée par de simples analyses d'eaux, ces dernières ne donnant que des résultats ponctuels.

Les repérages n'ont pas permis de déceler la présence de bioindicateurs aquatiques pertinents (mousses aquatiques) à toutes les stations, c'est pourquoi le programme a été réduit à des échantillons de roseau en 2 stations : amont / aval (afin de comparer les résultats à ceux obtenus par la FBFC) et 1 seul échantillon de mousses aquatiques prélevées à 10 m en aval du point de rejet FBFC dans l'Isère.

## 2.2. Organisation des missions de terrain

Les missions de terrain consistant selon les cas, en des repérages préliminaires, mesures radiamétriques in situ et / ou échantillonnages, ont été effectuées par monsieur Christian Courbon, technicien spécialisé (laboratoire CRIIRAD).

Il a été accompagné pour les échantillonnages dans l'Isère en 2006 par monsieur Thierry Constantin-Blanc, ingénieur environnement (laboratoire CRIIRAD).

Le calendrier suivi figure dans le tableau T1 ci-dessous.

Tableau T1: calendrier des missions CRIIRAD

Code				Mesures	
mission	Date	Objectifs	Intervenant CRIIRAD	radiamétriques	Prélèvements
1111001011				radiamotriquos	
C0	16 et 17 avril 2003	Repérage et radiamétrie	Christian Courbon	Mesure du flux de rayonnement gamma (SPP2) et spectrométrie in situ	Non
C1	24 et 25 avril 2003	Prélèvement de sol et mesure débit de dose	Christian Courbon	Débit de dose (LB123) / flux de rayonnement gamma (SPP2) / spectrométrie in situ	/ carottanes de sol I
C2	16 septembre 2003	Repérage berges Isère	Christian Courbon	Non	Non
		·			
C3	8 novembre 2005	STEP et repérage Isère	Christian Courbon	Non	Gateau de la STEP de Romans
C4	9 novembre 2005	Repérage Isère	Christian Courbon et Alain Rey-Galiay	Non	Non
		Echantillonnages		Non	2 sédiments amont rejet FBFC et 2
C5	20 contombre 2000	sédiments Isère	Christian Courbon et		sédiments aval éloigné
Co	20 septembre 2006	Repérage plantes aquatiques Isère	Thierry Constantin-Blanc		Non
		Echantillonnages		Non	2 sédiments aval proche rejet FBFC
C6	26 octobre 2006	sédiments Isère Echantillonnage plantes aquatiques Isère	Christian Courbon et Thierry Constantin-Blanc		1 mousse aquatique (fontinales) aval proche rejet FBFC
C7	7 novembre 2007	Bioindicateurs atmosphériques	Christian Courbon	Flux de rayonnement gamma DG5	2 mousses terrestres (Grimmia) / 1 aiguilles cèdre / 1 aiguille cyprès sous les vents de l'usine FBFC

## 2.3. Analyses au laboratoire CRIIRAD

Tous les échantillons (sols, sédiments, gâteau de la STEP, roseaux, mousses aquatiques, bioindicateurs atmosphériques) ont été analysés par **spectrométrie gamma** haute résolution (Hp Ge) au laboratoire de la CRIIRAD.

Les modalités de traitement et d'analyse des échantillons sont précisées dans les paragraphes correspondants. Les échantillons ont été analysés le plus souvent à l'équilibre sur matière sèche sauf dans certains cas où, afin de pouvoir détecter dans de bonnes conditions les radionucléides de courte période ou volatils comme l'iode 131, les analyses ont été réalisées sans délai, sur matière fraîche (cas des mousses terrestres, conifères et mousses aquatiques et du gâteau de la STEP).

La spectrométrie gamma permet de détecter et de quantifier de nombreux radionucléides naturels (potassium 40 et descendants de l'uranium 238, de l'uranium 235 et du thorium 232) et artificiels (césium 137, cobalt 60, iode 131, américium 241, etc....).

Cependant certains radionucléides ne peuvent être détectés par spectrométrie gamma. C'est le cas des radionucléides qui n'émettent en se désintégrant que des rayonnements bêta (par exemple tritium, carbone 14, strontium 90) ou alpha (plutonium 238, 239, 240; uranium 234).

Par ailleurs, la quantification de faibles niveaux d'uranium 235 et 238 et la détermination des rapports isotopiques des composés d'uranium, permettant de vérifier si la présence d'uranium est d'origine naturelle ou s'il s'agit d'uranium imputable au fonctionnement de l'usine FBFC (uranium enrichi, uranium issu du retraitement) nécessite le recours à d'autres méthodes analytiques (ICP-MS, spectrométrie alpha, etc..).

Afin de tenir compte des contraintes budgétaires, la CRIIRAD a proposé de réaliser certains de ces dosages dans une seconde phase de l'étude (phase 2).

En particulier, il serait souhaitable de déterminer - sur certains des échantillons prélevés au cours de la phase 1 - les concentrations en isotopes de l'uranium (sols et sédiments, gâteaux de la STEP, roseaux, mousses aquatiques, mousses terrestres, conifères), ainsi que du plutonium, technétium 99 et strontium 90.

<sup>&</sup>lt;sup>4</sup> Lorsque les comptages par spectrométrie gamma sont effectués à l'équilibre, soit plus de 21 jours après conditionnement, il est possible d'évaluer le radium 226 sur ses descendants plomb 214 et bismuth 214 (après 21 jours, l'équilibre entre le radium 226 et ses deux descendants est rétabli à 98 %).

#### Agréments du laboratoire de la CRIIRAD

L'arrêté du 11 août 2006 fixant la liste des laboratoires agréés par le ministre chargé de l'environnement et par le ministre chargé de la santé pour les mesures de la radioactivité de l'environnement atteste que le **laboratoire de la CRIIRAD est agréé** jusqu'au 31 décembre 2008 pour tous les agréments métrologiques qu'il a demandés :

- 1 / Les eaux : émetteurs gamma < 100 keV, et > 100 keV et tritium.
- 2 / Les sols: uranium et descendants, thorium et descendants, Ra 226 et descendants, Ra 228 et descendants.
- 3 / Les matrices biologiques : émetteurs gamma < 100 keV et > 100 keV.

La décision N°2007-DC-0064 du 10 juillet 2007 de l'Autorité de Sureté Nucléaire portant agrément des laboratoires pour les mesures de la radioactivité de l'environnement atteste en outre que le laboratoire de la CRIIRAD est agréé jusqu'au 10 juillet 2011 pour la mesure des **émetteurs gamma** d'énergie supérieure à 100 keV dans les matrices de **type sol** (terres, sédiments, boues).



Salle de comptage par spectrométrie gamma (laboratoire CRIIRAD)

## 3. ANALYSES DE SOLS SUPERFICIELS

## 3.1. Méthodologie

#### **Prélèvements**

Les carottages de sol ont été effectués en 7 stations les 24 et 25 avril 2003.

#### Il s'agit:

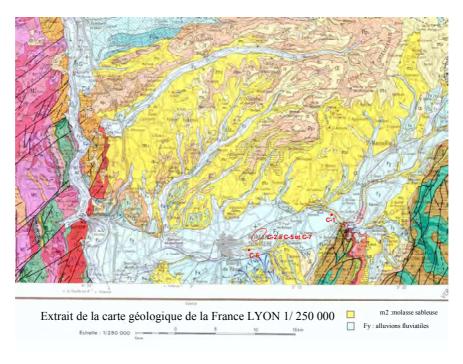
- d'une station de référence (C1) située à une dizaine de kilomètres à l'est de l'usine FBFC. Elle est de fait éloignée de la zone sous influence directe des rejets radioactifs atmosphériques de la FBFC.
- 5 stations (C2, C3, C4, C5, C7) dans l'environnement immédiat de l'usine FBFC selon un axe sud-ouest / nord-est tenant compte des 2 directions principales des vents dominants (cf. rose des vents sur la carte C2 pages suivantes) et,
- une station (C6) dans l'environnement proche, au sud de l'usine.

Comme indiqué sur la carte géologique C1 ci-dessous, les 7 stations correspondent au même substratum géologique (alluvions fluviatiles).

Les sites de carottage ont été choisis de manière à correspondre à des **terrains non remaniés** (conservation du profil de contamination) et **non cultivés** depuis une vingtaine d'années (conservation des contaminants atmosphériques déposés à la surface du sol). Dans la mesure du possible, le technicien CRIIRAD s'est assuré de ces critères auprès des propriétaires.

Il a également veillé à choisir des terrains plans afin d'éviter les phénomènes de reconcentration et a vérifié, au moyen du scintillomètre SPP2, le caractère homogène du flux de rayonnement gamma au contact du sol sur le secteur retenu (cf. résultats au paragraphe 4 « mesures radiamétriques » ci-après).

Carte C1 : localisation des carottages de sol (CRIIRAD, avril 2003), carte géologique BRGM



Les prélèvements des sols à caractériser par des analyses en spectrométrie gamma ont été réalisés par le technicien CRIIRAD à l'aide d'un carottier (diamètre de 70 mm) sur une profondeur<sup>5</sup> de 0 à 10 cm. En chaque station 3 carottages ont été effectués.



Carottages de sols / CRIIRAD avril 2003

#### Traitement des échantillons

Les échantillons ont été conditionnés dans des sacs en polyéthylène pour leur acheminement au laboratoire.

Les échantillons ont subi le traitement suivant : tri (enlèvement des débris végétaux et racines), tamisage à 2 mm et dessiccation en étuve à 90°C, conditionnement de la fraction inférieure à 2 mm en géométrie normalisée (Marinelli) pour analyse par spectrométrie gamma à l'équilibre.

<sup>5</sup> Dans le projet initial, il était prévu de réaliser un carottage sur 50 centimètres et de conserver les strates 10 à 50 cm pour analyses ultérieures. Compte tenu des difficultés de réalisation du carottage (sol dur et sec, présence de cailloux), seule la couche 0 à 10 centimètres a été prélevée.

## 3.2. Résultats des analyses de sol

Les résultats des analyses par spectrométrie gamma effectuées au laboratoire de la CRIIRAD sont reportés dans le tableau en Annexe 2.

## 3.2.1. Radionucléides artificiels

#### Détection de césium 137

Un seul radionucléide artificiel émetteur gamma a été détecté, le **césium 137**, à des niveaux compris entre **17 Bq/kg sec et 65 Bq/kg sec**. Il s'agit d'un produit de fission, émetteur bêtagamma de période physique égale à **30 ans** (sa radioactivité est divisée par 2 au bout de 30 ans, par 4 au bout de 60 ans, etc..).

Ces résultats sont dans la gamme attendue sur la région du fait du reliquat des retombées des essais nucléaires atmosphériques (principalement dans les années 50-60) et de la catastrophe de Tchernobyl en 1986.

On note, au voisinage de l'usine FBFC, des activités en césium 137 sensiblement supérieures (2 à 3,5 fois) à celle mesurée à la station de référence, mais ce constat n'est pas suffisant pour en imputer l'origine au fonctionnement de la FBFC. En effet les dépôts de césium 137 liés aux essais nucléaires et à la catastrophe de Tchernobyl ont très bien pu présenter une variabilité de ce niveau à l'échelle locale en fonction du régime des vents et de la pluviométrie. L'évolution de la contamination déposée a également pu être différente selon la nature du sol.

Par ailleurs, on ne détecte la présence d'aucun autre radionucléide artificiel émetteur gamma dans les 7 sols analysés. Dans l'hypothèse où les rejets de la FBFC contiendraient du césium 137, le dépôt consécutif sur les sols, s'il existe, reste en tout cas dans la gamme de fluctuation du dépôt résiduel imputable aux essais nucléaires et à la catastrophe de Tchernobyl.

#### Mesures FBFC sur les sols

Les résultats CRIIRAD sont cohérents avec les mesures<sup>7</sup> effectuées pour FBFC par COGEMA-Marcoule sur 8 échantillons de terre prélevés en juillet **1996** dans un rayon de 2 km autour de l'usine. Les activités massiques en **césium 137** étaient comprises entre **13 et 45 Bq/kg sec** (couche 0 à 5 cm). **Aucun autre radionucléide artificiel émetteur gamma** n'était détecté (les contrôles portaient sur Co 60, Zr 95, Ru-Rh 106, Sb 125, Cs 134, Ce 144). Les activités des transuraniens (Pu 238, Pu 239+240, Am 241) étaient également inférieures aux limites de détection.

Par contre, il n'est pas possible de comparer les résultats CRIIRAD avec les analyses effectuées chaque année par FBFC, sur 4 échantillons de sol, dans la mesure où le plan de surveillance FBFC ne prévoit pas la mesure des émetteurs gamma artificiels (mesure de l'indice d'activité bêta global, de l'uranium pondéral et du potassium 40 naturel).

#### Remarque sur les rejets atmosphériques de l'usine

Le rapport environnement FBFC 2006 fait état des contrôles effectués sur les 13 cheminées du site. Les contrôles portent sur les indices d'activité alpha et bêta global, certains isotopes de l'uranium (U 232, U 234, U 235, U 236 et U 238), deux transuraniens (Pu 239 et Np 237) et certains produits de fission dont Zr 95, Nb 95, Tc 99, Ru-Rh 106, Cs 137, Ce-Pr 144, Sr 90 et Y 90.

<sup>&</sup>lt;sup>6</sup> On notera que la FBFC n'a pas détecté de césium 137 dans les effluents atmosphériques dans le cadre de l'auto-surveillance 2006.

<sup>&</sup>lt;sup>7</sup> Rapport environnement 2006, FBFC-AREVA, page 149

Les analyses sont effectuées sur filtres hebdomadaires en général et sur filtre journalier pour l'incinérateur. En 2006, FBFC indique avoir rejeté 2,4 millions de Becquerels de produits de fission. L'examen des résultats détaillés par cheminée et par radionucléides montre que ce chiffre est essentiellement égal à la somme de limites de détection.

Sur l'année **2006** les contrôles publiés par FBFC pour les onze cheminées en fonctionnement font état de la détection effective de produits de fission dans quelques cas :

- Incinérateur (arrêt fin mars 2006): rejet de 398 Bq de Sr 90 et Y 90 en mars 2006.
- Recyclage: **niobium 95** (mars et octobre 2006, respectivement 2,32 et 2,63 E<sup>-5</sup> Bq/m<sup>3</sup>) et **cérium 144**-Pr 144 (juin et juillet 2006, respectivement 1,83 et 3,36 E<sup>-4</sup> Bq/m<sup>3</sup>).

Ces données suggèrent que, s'ils existent, les rejets de césium 137 à l'atmosphère par l'usine FBFC sont très faibles actuellement (inférieurs aux limites de détection. Ceci est en accord avec les résultats d'analyse de sol effectuées par la CRIIRAD.

## 3.2.2. Radionucléides « naturels »

#### **Uranium 238 et descendants**

L'uranium 238 est détecté par spectrométrie gamma à partir de son premier descendant le thorium 234.

Les activités sont très homogènes d'un site à l'autre, quelle que soit la position par rapport à l'usine (23 à 38 Bq/kg sec), et comparables à la valeur obtenue à la station de référence (35 Bq/kg sec). Les résultats sont reportés sur la carte C2 ci-dessous.

On observe globalement, pour les 7 stations, que les activités de l'uranium 238 et de ses descendants radium 226, plomb 214 et bismuth 214 sont égales (aux marges d'incertitude près) ce qui suggère une situation naturelle (en effet, l'uranium 238 rejeté dans l'atmosphère par la FBFC n'est pas accompagné de son descendant le radium 226, contrairement à l'uranium 238 naturellement présent dans l'écorce terrestre).

On notera par ailleurs que les activités en uranium 238 mesurées par la CRIIRAD dans les sols sont globalement comparables à la moyenne de l'écorce terrestre (40 Bg/kg).

Il n'est donc pas possible de mettre en évidence l'éventuelle contribution des rejets de l'usine FBFC à la teneur en uranium 238 des sols. Des mesures isotopiques complémentaires sont néanmoins nécessaires pour affiner ce diagnostic et rechercher en particulier l'uranium 234 et les isotopes artificiels (232 et 236) de l'uranium ; ces derniers n'étant pas détectables par spectrométrie gamma.

Note: on observe classiquement un léger excès de plomb 210 (2 à 3) par rapport au radium 226 (apports d'origine atmosphérique du fait de la décroissance du radon 222 naturel présent dans l'atmosphère).

#### Comparaison avec les mesures FBFC

Les résultats CRIIRAD sont cohérents avec les mesures<sup>8</sup> effectuées pour FBFC par COGEMA-Marcoule sur 8 échantillons de terre prélevés en juillet **1996** dans un rayon de 2 km autour de l'usine. Les activités massiques en thorium 234 étaient comprises entre **< 21 et 30 Bq/kg sec** (couche 0 à 5 cm). Les résultats concernant le radium 226 étaient du même ordre de grandeur.

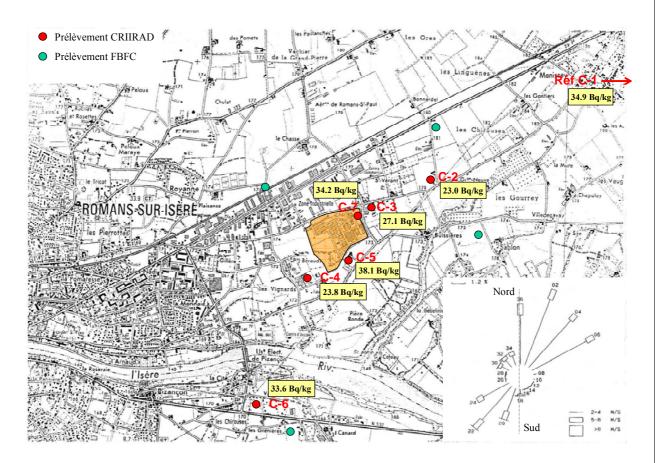
\_

<sup>&</sup>lt;sup>8</sup> Rapport environnement 2006, FBFC-AREVA, page 147

Par contre, il n'est pas possible de comparer strictement les résultats CRIIRAD avec les analyses effectuées chaque année par FBFC, sur 4 échantillons de sol, dans la mesure où le plan de surveillance FBFC ne prévoit pas la mesure spécifique des différents isotopes de l'uranium (mesure de l'uranium pondéral en µg/kg).

Pour l'année 2003, ces résultats sont de 524 à 803 μg/kg frais. Dans l'hypothèse d'un uranium naturel cela correspondrait à des activités massiques en uranium 238 de 6 à 10 Bq/kg frais. Ces résultats paraissent un peu faibles par rapport aux mesures CRIIRAD de 2003 et COGEMA-Marcoule de 1996.

Carte C2 : localisation des carottages de sol (CRIIRAD, avril 2003), activité de l'uranium 238 dans la couche 0 à 10 cm en Bq/kg sec.



## **Uranium 235 et descendants**

Les activités de l'uranium 235 (et de ses descendants émetteurs gamma) sont inférieures aux limites de détection (< 2,1 à < 3,6 Bq/kg sec pour l'uranium 235).

En situation naturelle, les activités attendues devraient être égales à celle de l'uranium 238 divisées par 21,6 soit ici de l'ordre de 1 à 2 Bq/kg.

De telles valeurs sont trop faibles pour être mesurées par spectrométrie gamma classique (dans le cadre de l'étude de 1996, COGEMA-MARCOULE obtenait également des activités en uranium 235 dans les sols autour de la FBFC inférieures aux limites de détection : < 4 Bq/kg sec).

D'où l'intérêt de <u>procéder ultérieurement à des dosages isotopiques</u> fins, de manière à évaluer le rapport isotopique U 238 / U 235 et à vérifier s'il est conforme à la valeur typique pour l'uranium naturel, ou s'il correspond à l'uranium enrichi (moins de 5 %) à fortement enrichi utilisé respectivement par FBFC et CERCA.

#### Thorium 232 et descendants

Pour les 7 stations, les activités massiques des 3 descendants du thorium 232 détectés (actinium 228, plomb 212 et thallium 208) sont classiques et sensiblement inférieures à la moyenne de l'écorce terrestre (40 Bq/kg).

Les chaînes apparaissent à l'équilibre (Ac 228 = Pb 212 = 3 fois Tl 208).

Ce point est important car l'un des isotopes artificiels de l'uranium rejeté dans l'atmosphère par la FBFC (l'uranium 232, période physique de 68,9 ans) se désintègre en donnant naissance au thorium 228 qui, par une cascade de désintégrations, engendre entre autres le plomb 212 et le thallium 208. Un déséquilibre de la chaîne pourrait suggérer une contamination par de l'uranium 232.

Dans le cadre de l'étude de 1996, COGEMA-MARCOULE obtenait des résultats similaires dans les sols prélevés autour de la FBFC (Ac 228 = Pb 212 = 20 à 28 Bg/kg sec)

#### Potassium 40

Les activités mesurées dans les 7 échantillons de sol sont homogènes (338 à 469 Bq/kg sec) et comparables à la moyenne de l'écorce terrestre (300 à 600 Bg/kg).

## 4. MESURES RADIAMETRIQUES

## 4.1. Méthodologie

Les mesures radiamétriques (flux de rayonnement gamma et débit de dose gamma) ont été effectuées par le technicien CRIIRAD au droit des 7 stations associées aux carottages de sol.

Les relevés radiamétriques ont été réalisés à l'aide des scintillomètres NOVELEC DG5 et SAPHYMO SPP2 permettant de mesurer le flux de rayonnement gamma, au contact ou à distance du sol.

Les résultats sont exprimés en coups par seconde (c/s).

Les mesures en mode exploratoire au cours des repérages sont réalisées en dynamique c'est-à-dire sans arrêt lors du déplacement de l'opérateur.

Lorsqu'un point est déterminé comme représentatif d'une zone ou qu'un point particulier est identifié, la mesure est « affinée » : l'opérateur place le scintillomètre sur ce point (au contact et / ou à 1 m du sol) et attend la stabilisation de la mesure (soit un minimum de 15 secondes , mesures en statique).

Les mesures de débit d'équivalent de dose ont été réalisées à l'aide d'un compteur proportionnel Berthold LB123 compensé en énergie et de sa sonde LB 1236, au contact et à 1 m du sol. Cet appareil a été étalonné par un organisme agréé (CENG).

Ces mesures ont été réalisées en statique sur des points fixes dont le niveau de flux gamma avait été préalablement relevé à l'aide d'un scintillomètre.

A chaque point de contrôle, une série de plusieurs mesures intégrées (3 au minimum) d'une durée de 100 secondes a été réalisée.

Les résultats représentent la moyenne de ces mesures. Ils sont exprimés en **microSieverts** par heure (µSv.h<sup>-1</sup>).



Enregistrement du débit de dose gamma à 1 mètre du sol (CRIIRAD, avril 2003)

## 4.2. Résultats des mesures radiamétriques

Les résultats des mesures radiamétriques sont reportés dans le tableau T2 ci-dessous.

C-6 N°station C-7 25 04 03 A1 25 04 03 A2 25 04 03 A3 25 04 03 A4 25 04 03 A5 25 04 03 A6 25 04 03 A7 Envir-Envir-**Envir-Proche** Envir-immedia Envir-Clôture nord Situation Référence immediat NORD NORD immediat SUD **Proche SUD** est FBFC EST Service espace Ferme vert près Friche industrielle (terrain non secteur avec Ferme (friche cerisiers Descriptif Poste EDF (parc à retourné Friche anomalie proche poulailler) (terrain non matériaux) depuis 20 radiamétrique remanié depuis ans) 20 ans) 24/04/2003 24/04/2003 24/04/2003 25/04/2003 25/04/2003 24/04/2003 24/04/2003 Mesure LB 123 à 1 m 0.12 0,12 0,15 0,11 0,12 0,12 0,16 Mesure SPP2 50 55 55 60 130 60 50 contact (c/s Mesure SPP2 à 1 45 50 60 50 55 50 150

Tableau T2: mesures radiamétriques CRIIRAD (avril 2003)

Hors influence du rayonnement direct émis par les matériaux radioactifs entreposés sur le site FBFC (soit aux stations C1, C2 et C6), les débits d'équivalent de dose gamma à 1 mètre au dessus du sol sont compris entre **0,11 et 0,12 μSv/h**.

Ces valeurs sont classiques pour la région compte tenu de la nature du sol et correspondent à la somme des composantes cosmiques et telluriques (présence dans le sol de radionucléides des familles de l'uranium 238 et 235, du thorium 232 et potassium 40).

#### Anomalie à proximité de la clôture FBFC

A proximité de l'usine FBFC, les valeurs de débit de dose gamma sont légèrement supérieures en particulier à proximité de la **clôture au nord-est** du site (point C7) où l'on mesure **0,16 µSv/h** au droit de l'aire de stockage des **containers d'hexafluorure d'uranium** (cf. photographie page suivante).

La mesure du flux de rayonnement gamma effectuée le **24 avril 2003** au moyen d'un **scintillomètre** SPP2 confirme l'excès de radiation à la clôture du site FBFC. En effet les valeurs enregistrées à 1 mètre au dessus du sol sont comprises entre 45 et 60 c/s aux stations C1 à C6 mais la valeur à la station C7 (clôture FBFC) est plus de 2 fois supérieure (150 c/s).

On remarque par ailleurs que la station C7 est la seule pour laquelle le flux de rayonnement gamma à 1 mètre au dessus du sol est sensiblement supérieur à la valeur au contact. Habituellement, lorsqu'un excès de rayonnement gamma est lié à la contamination du sol c'est le phénomène inverse qui est observé. Au point C7, l'origine de l'excès de radiation n'est pas le sol, mais une source diffuse située de l'autre côté du grillage.

De nouvelles mesures du flux de rayonnement gamma effectuées le long de la clôture le **7 novembre 2007** ont permis de confirmer la persistance de cet excès de rayonnement en particulier sur la portion nord-est de la clôture (250 c/s mesurés au niveau de l'un des dosimètres du site au moyen du scintillomètre DG5 N<sup>o</sup>2).

L'enregistrement, par la CRIIRAD, le 16 avril 2003, d'un spectre gamma au moyen d'un spectromètre Target Nanospec, au droit de la station C7 avait permis de constater que l'excès de radiation provenait de **rayonnements diffus de basse énergie** très probablement imputables à des matières radioactives entreposées sur le site FBFC (en l'occurrence des containers d'UF6). L'existence d'un **merlon de terre** (cf. photographie ciaprès) atténue fortement le rayonnement direct émis par ces matières mais laisse passer du rayonnement diffus.

Ce type de phénomène a été constaté fréquemment par la CRIIRAD au droit des clôtures de divers sites nucléaires : sites AREVA (La Hague, Malvesi, Marcoule, Tricastin), sites EDF (Tricastin), site ANDRA de Soulaines, etc..



Merlon de terre au point C7, clôture FBFC / CRIIRAD, avril 2003



Mesure du flux de rayonnement gamma au point C7, clôture FBFC / CRIIRAD, novembre 2007

#### Estimation de l'exposition ajoutée

Dans le cadre du dispositif d'auto surveillance constitué de 10 dosimètres mensuels fixés à la clôture intérieure, les mesures FBFC révèlent également un excès de radiation gamma à la clôture.

La dose annuelle cumulée est en effet de 300 et 510 microSieverts sur l'année 2006 aux 2 stations de la clôture Est, contre 200 à 370 microSieverts pour les 8 autres stations (rapport environnement FBFC 2006, page 217).

Ces résultats paraissent sous-estimés puisqu'ils correspondraient à un débit de dose horaire de 0,02 à 0,06 µSv/h bien inférieur au niveau naturel.

Les mesures CRIIRAD donnent en effet un niveau naturel de 0,11 à  $0,12~\mu Sv/h$ , comparable à celui enregistré par la sonde FBFC qui enregistre en mode continu le débit de dose gamma ambiant à 2 mètres de hauteur au sud du site et dont la valeur moyenne est de 0,089 à  $0,093~\mu Sv/h$  sur la période 2003 à 2006 (rapport environnement FBFC 2006, page 26).

Les mesures effectuées par FBFC sur les dosimètres fixes situés à la clôture permettent par contre d'effectuer un calcul en relatif en comparant les valeurs annuelles des points les plus actifs aux valeurs des points les moins actifs (ces dernières étant supposées correspondre au niveau naturel).

Ceci permet d'estimer que l'exposition ajoutée à la clôture est (par défaut), au droit du point le plus actif, de l'ordre de **140 à 310 microSieverts par an**, pour une présence permanente de 8 760 heures.

A partir des mesures CRIIRAD d'avril 2003, en les supposant représentatives de moyennes annuelles, on peut calculer qu'au point C7, l'exposition horaire ajoutée est de  $0,16-0,12~\mu Sv/h$  soit  $+0,04~\mu Sv/h$ . Cela correspond à une exposition ajoutée de **10 microSieverts pour 250 heures** de présence, **100 microSieverts pour 2 500 heures**, etc...

Cette exposition n'est pas négligeable sur le plan sanitaire. La directive Euratom 96/29 considère en effet qu'au-delà de 10 microSieverts par an, l'impact d'une pratique n'est pas négligeable.

La FBFC indique dans son rapport environnement 2006 (page 27) que « l'usine FBFC n'a pas le droit d'exposer un habitant des environs de l'usine à une dose annuelle de rayonnement gamma supérieure à 1 000 µSv ».

S'il est exact que la réglementation impose aux exploitants d'INB de ne pas soumettre les populations à une exposition supérieure à 1 000 microSieverts par an; encore faut-il préciser qu'il s'agit de la limite d'exposition correspondant à toutes les pratiques et toutes les voies d'exposition (pas seulement l'exposition externe) et que cette valeur correspond à la dose au-delà de laquelle les risques de cancer mortel sont jugés inacceptables.

Les principes de justification et d'optimisation des expositions imposent que tout ce qui est raisonnablement possible soit mis en œuvre par les exploitants pour maintenir les expositions bien en dessous de cette limite.

## 5. ANALYSES DE BIOINDICATEURS TERRESTRES

## 5.1. Méthodologie

## **Prélèvements**

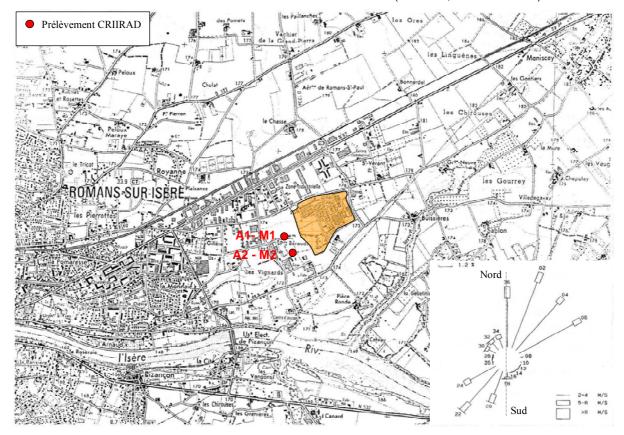
Comme indiqué en introduction, s'agissant de l'étude du milieu terrestre, le laboratoire de la CRIIRAD a fait porter l'essentiel des campagnes d'échantillonnage et de mesure de la présente étude sur la couche superficielle des sols.

Habituellement, le laboratoire de la CRIIRAD a cependant recours en complément à des bioindicateurs atmosphériques (en particulier les mousses terrestres) qui ont un fort pouvoir de concentration des polluants présents dans l'air. Ce type de mesure a permis par exemple à la CRIIRAD de mettre en évidence la contamination de l'environnement par les rejets d'iode 129 de l'usine de retraitement de la Hague dans le Cotentin.

De précédentes études effectuées par la CRIIRAD en 2001 dans le secteur de la FBFC avaient montré que, compte tenu de la rareté de ce type de bioindicateur sur le site, il ne serait pas possible de réaliser une cartographie détaillée de la répartition géographique des niveaux de radioactivité dans les mousses terrestres (impossibilité de trouver la même espèce en une dizaine de stations autour de l'usine FBFC).

A défaut un contrôle préliminaire a été effectué sur des mousses terrestres et le feuillage de conifères (cèdre et cyprès) échantillonnées par le technicien CRIIRAD le 7 novembre 2007 aux stations M1 et M2 situées à l'ouest / sud-ouest, sous les vents de l'usine.

Les échantillons ont été prélevés à la main et / ou à la spatule et conditionnés en sachets polyéthylène.



Carte C3: localisation des mousses terrestres et conifères (CRIIRAD, novembre 2007).

#### Traitement des échantillons

Les bioindicateurs végétaux (mousses terrestres et aiguilles de cèdre et cyprès) ont été débarrassés de la fraction minérale par frottement sur tamis puis conditionnés frais en géométrie normalisée (Marinelli) pour analyse sans délai par spectrométrie gamma au laboratoire de la CRIIRAD (afin de pouvoir rechercher des radionucléides volatils et de courte période comme l'iode 131).







Cèdre et mousses terrestres (grimmia pulvinata) / CRIIRAD, novembre 2007

## 5.2. Résultats des analyses de bioindicateurs terrestres

Les résultats des analyses par spectrométrie gamma effectuées au laboratoire de la CRIIRAD sont reportés dans le tableau T3 ci-après, et exprimés en becquerel par kilogramme frais. Les taux de matières sèches, déterminés après l'analyse en frais, sont mentionnés pour conversion des résultats en Bq/kg sec si nécessaire.

## 5.2.1. Radionucléides artificiels

## Détection de césium 137 dans les mousses

Un seul radionucléide artificiel émetteur gamma a été détecté dans les mousses, le **césium 137**, à des niveaux compris entre 4,7 et 4,8 Bq/kg frais (soit **5,0 à 5,2 Bq/kg sec**).

Ces résultats peuvent correspondre au reliquat des retombées des essais nucléaires atmosphériques (principalement dans les années 50-60) et de la catastrophe de Tchernobyl en 1986.

On ne détecte la présence d'aucun autre radionucléide artificiel émetteur gamma dans les 2 mousses terrestres et les feuillages de conifères. En particulier le niobium 95 et le cérium 144, ponctuellement présents dans les rejets atmosphériques de la FBFC ne sont pas détectés.

#### Comparaison aux mesures CRIIRAD de 2001

Dans le cadre d'une campagne de prélèvements effectuée en octobre **2001**, la CRIIRAD obtenait une activité en césium 137 comprise entre **48 et 637 Bq/kg sec** dans les 5 échantillons de mousses terrestres prélevées à moins de 250 m au sud de la clôture de la FBFC.

A la station de référence située au Nord de l'usine FBFC (Génissieux), les activités en césium 137 mesurées dans les 4 échantillons étaient de 344 à 616 Bq/kg sec.

#### Mesures FBFC de 1996

Les résultats CRIIRAD peuvent être comparés avec les mesures<sup>9</sup> effectuées pour FBFC par COGEMA-Marcoule sur 2 échantillons de mousses prélevés en juillet **1996** dans un rayon de 1 à 2 km au N/NE de l'usine.

Les activités massiques en **césium 137** étaient comprises à l'époque entre **74 et 96 Bq/kg sec** soit 41 à 75 Bg/kg frais.

Aucun autre radionucléide artificiel émetteur gamma n'était détecté à l'exception du **césium 134** (1,6 Bq/kg sec).

Le ratio césium 137 / césium 134 (soit 46 à 60) était comparable au ratio théorique attendu à cette date (48) dans l'hypothèse d'une contamination liée à la catastrophe de **Tchernobyl.** 

Compte tenu de sa courte période physique (2 ans), le césium 134 de Tchernobyl n'était plus détectable dans les mousses prélevées par la CRIIRAD en octobre 2001 et novembre 2007.

Les isotopes émetteurs alpha du plutonium n'étaient pas détectés dans les mousses (Pu 238 < 0.1 à < 0.2 Bq/kg sec / Pu 239-240 : < 0.3 à < 0.5 Bq/kg sec), ni l'américium 241 (< 0.2 à < 0.6 Bq/kg sec).

## Mesures FBFC de 2003 à 2006

Il n'est pas possible de comparer strictement les résultats CRIIRAD avec les analyses effectuées chaque année par FBFC, sur 3 échantillons de mousses terrestres.

En effet, le plan de surveillance FBFC ne prévoit pas la mesure spécifique des radionucléides artificiels émetteurs gamma (à défaut : activité bêta globale, potassium 40 et mesure de l'uranium pondéral en  $\mu g/kg$ ).

<u>Du fait de l'absence de mesures isotopiques, ce plan de surveillance ne permet pas d'identifier clairement une contamination par de l'uranium anthropique lié à l'usine,.</u>

\_

<sup>9</sup> Rapport environnement 2006, FBFC-AREVA, page 161

Tableau T3 : analyses par spectrométrie gamma de mousses terrestres et conifères échantillonnés à l'ouest / sud-ouest de la FBFC en novembre 2007 (laboratoire CRIIRAD). Résultats en Bq/kg frais.

Code CRIIRAD	081107A1	081107A4	081107A2	081107A3
Code prélèvement	M1	M2	A1	A2
Lieu de prélèvement	O / SO FBFC	O / SO FBFC	O / SO FBFC	O / SO FBFC
Nature de l'échantillon	Grimmias	Grimmias	Aiguilles de cèdres	Aiguilles de cyprès
N°analyse	23366	23367	23364	23365
Géométrie	C MAR	B MAR	C MAR	B MAR
Etat F/S?	F	F	F	F
Masse analysée (g)	90,98	80,76	171,73	184,52
Temps de comptage (s)	54 969	54 760	27 375	26 251
TMS	94,89%	92,67%	49,61%	48,64%
Date de la mesure	08/11/2007	08/11/2007	08/11/2007	08/11/2007
Date d'échantillonage	07/11/2007	07/11/2007	07/11/2007	07/11/2007

Energie

Natureis	(KeV)	Résultats	exprime	és en Be	cquerel	par kil	ogramn	ne de ma	atière	fraiche			
Chaîne de l'urar	ium 238												
Th234*	63,3		<	36,0		<	17,5		<	34,1		<	9,4
Ra226**	186,1		<	8,1		<	10,0		<	4,8		<	3,9
Pb214	351,9		<	6,3		<	8,1		<	4,5		<	2,8
Bi214	609,3		<	9,9		<	12,0		<	5,1		<	5,1
Pb210*	46,5	1 216	±	151	736	±	101	37,6	±	14,2		<	28,6
Chaîne de l'urar	ium 235				-								
U235	163,4		<	10,3		<	9,8		<	6,1		<	5,8
Chaine du thori	um 232												
Ac228	911,2		<	21,0		<	12,9		<	4,4		<	2,4
Pb212	238,6	10,7	±	2,9	7,9	±	2,8	3,8	±	1,5	4,7	±	1,7
TI208	583,0	3,8	±	1,8	4,3	±	1,7		<	1,8		<	2,0
<u> </u>		•											
K40	1 460,8		<	437		<	219		<	244		<	89,0
Be7	477,6	611	±	80	529	±	71	39,2	±	10,4	28,1	±	8,8
Artificiels	Energie												
Cs137	(KeV)												
US137	(KeV) 661,6	4,7	±	1,7	4,8	±	1,6		<	0,46		<	0,46
Cs137		4,7	± <	1,7 0,42	4,8	± <	1,6 0,60		< <	0,46 0,33		< <	0,46 0,35
	661,6	4,7			4,8		, -			-, -			
Cs134	661,6 604,7	4,7	<	0,42	4,8	<	0,60		<	0,33		<	0,35
Cs134 Co58	661,6 604,7 810,8	4,7	< <	0,42 0,54	4,8	<	0,60 0,62		< <	0,33		< <	0,35 0,39
Cs134 Co58 Co60	661,6 604,7 810,8 1 332,5	4,7	< < <	0,42 0,54 0,52	4,8	< <	0,60 0,62 0,53		< <	0,33 0,33 0,40		< <	0,35 0,39 0,35
Cs134 Co58 Co60 Mn54	661,6 604,7 810,8 1 332,5 834,8	4,7	< < <	0,42 0,54 0,52 0,51	4,8	< < <	0,60 0,62 0,53 0,62		< < <	0,33 0,33 0,40 0,37		< < <	0,35 0,39 0,35 0,41
Cs134 Co58 Co60 Mn54 Sb125	661,6 604,7 810,8 1 332,5 834,8 427,9	4,7	< < < < < < < < <	0,42 0,54 0,52 0,51 1,29	4,8	< < < < < < < < <	0,60 0,62 0,53 0,62 1,83		< < < < < < < < < < < < < < < < < < <	0,33 0,33 0,40 0,37 0,98		< < < < < < < < < < < < < < < < < < <	0,35 0,39 0,35 0,41 1,12
Cs134 Co58 Co60 Mn54 Sb125	661,6 604,7 810,8 1 332,5 834,8 427,9 364,5	4,7	< < < < < < < < < < < < < < < < < < <	0,42 0,54 0,52 0,51 1,29 0,53	4,8	< < < < < < < < < < < < < < < < < < <	0,60 0,62 0,53 0,62 1,83 0,74		< < < < < < < < < < < < < < < < < < <	0,33 0,33 0,40 0,37 0,98 0,38		< < < < < < < < < < < < < < < < < < <	0,35 0,39 0,35 0,41 1,12 0,45
Cs134 Co58 Co60 Mn54 Sb125 I131 Ce144 Ag110m Am241*	661,6 604,7 810,8 1 332,5 834,8 427,9 364,5 133,5 657,7 59,5	4,7	<	0,42 0,54 0,52 0,51 1,29 0,53 2,67 0,48 0,72	4,8	< < < < < < < < < < < < < < < < < < <	0,60 0,62 0,53 0,62 1,83 0,74 3,94 0,60 1,29		< < < < < < < < < < < < < < < < < < <	0,33 0,33 0,40 0,37 0,98 0,38 1,81 0,32 0,46		< < < < < < < < < < < < < < < < < < <	0,35 0,39 0,35 0,41 1,12 0,45 2,46 0,42 0,78
Cs134 Co58 Co60 Mn54 Sb125 I131 Ce144 Ag110m Am241* I129*	661,6 604,7 810,8 1 332,5 834,8 427,9 364,5 133,5 657,7 59,5 29,6	4,7	<	0,42 0,54 0,52 0,51 1,29 0,53 2,67 0,48 0,72 0,85	4,8	< < < < < < < < < < < < < < < < < < <	0,60 0,62 0,53 0,62 1,83 0,74 3,94 0,60 1,29 1,28		< < < < < < < < < < < < < < < < < < <	0,33 0,33 0,40 0,37 0,98 0,38 1,81 0,32 0,46 0,60		< < < < < < < < < < < < < < < < < < <	0,35 0,39 0,35 0,41 1,12 0,45 2,46 0,42 0,78 0,74
Cs134 Co58 Co60 Mn54 Sb125 I131 Ce144 Ag110m Am241* I129* Ru106	661,6 604,7 810,8 1 332,5 834,8 427,9 364,5 133,5 657,7 59,5 29,6 621,9	4,7	<th>0,42 0,54 0,52 0,51 1,29 0,53 2,67 0,48 0,72 0,85 4,18</th> <th>4,8</th> <th>&lt; <!--</th--><th>0,60 0,62 0,53 0,62 1,83 0,74 3,94 0,60 1,29 1,28 5,81</th><th></th><th><th>0,33 0,33 0,40 0,37 0,98 0,38 1,81 0,32 0,46 0,60 3,16</th><th></th><th><th>0,35 0,39 0,35 0,41 1,12 0,45 2,46 0,42 0,78 0,74 3,50</th></th></th></th>	0,42 0,54 0,52 0,51 1,29 0,53 2,67 0,48 0,72 0,85 4,18	4,8	< </th <th>0,60 0,62 0,53 0,62 1,83 0,74 3,94 0,60 1,29 1,28 5,81</th> <th></th> <th><th>0,33 0,33 0,40 0,37 0,98 0,38 1,81 0,32 0,46 0,60 3,16</th><th></th><th><th>0,35 0,39 0,35 0,41 1,12 0,45 2,46 0,42 0,78 0,74 3,50</th></th></th>	0,60 0,62 0,53 0,62 1,83 0,74 3,94 0,60 1,29 1,28 5,81		<th>0,33 0,33 0,40 0,37 0,98 0,38 1,81 0,32 0,46 0,60 3,16</th> <th></th> <th><th>0,35 0,39 0,35 0,41 1,12 0,45 2,46 0,42 0,78 0,74 3,50</th></th>	0,33 0,33 0,40 0,37 0,98 0,38 1,81 0,32 0,46 0,60 3,16		<th>0,35 0,39 0,35 0,41 1,12 0,45 2,46 0,42 0,78 0,74 3,50</th>	0,35 0,39 0,35 0,41 1,12 0,45 2,46 0,42 0,78 0,74 3,50
Cs134 Co58 Co60 Mn54 Sb125 I131 Ce144 Ag110m Am241* I129*	661,6 604,7 810,8 1 332,5 834,8 427,9 364,5 133,5 657,7 59,5 29,6	4,7	<	0,42 0,54 0,52 0,51 1,29 0,53 2,67 0,48 0,72 0,85	4,8	<	0,60 0,62 0,53 0,62 1,83 0,74 3,94 0,60 1,29 1,28		<	0,33 0,33 0,40 0,37 0,98 0,38 1,81 0,32 0,46 0,60		<	0,35 0,39 0,35 0,41 1,12 0,45 2,46 0,42 0,78 0,74

<sup>\*:</sup> S'agissant de raies gamma à basse énergie (<100 keV), les valeurs publiées constituent des valeurs par défaut, compte ter phénomènes d'autoatténuation possibles au sein de l'échantillon.

<sup>\*\* :</sup> Le Radium 226 est évalué par défaut à partir de ses descendants Plomb 214 et Bismuth 214 hors équilibre.

## 5.2.2. Radionucléides « naturels »

#### **Résultats CRIIRAD**

Dans les mousses terrestres et le feuillage des conifères on détecte classiquement :

- Le **plomb 210** appartenant à la famille de l'uranium 238. Son accumulation qui est particulièrement nette dans les mousses terrestres (736 à 1 216 Bq/kg frais) est due à la décroissance du radon 222 naturellement présent dans l'air ambiant.
- Le **plomb 212** appartenant à la famille du thorium 232 et provenant de la décroissance du radon 220 naturellement présent dans l'atmosphère (3,8 à 10,7 Bg/kg frais).
- Le **béryllium 7** (529 à 611 Bq/kg frais dans les mousses et 28 à 39 Bq/kg frais dans le feuillage des conifères). Il s'agit d'un radionucléide cosmogénique d'origine naturelle et de période physique égale à 53,3 jours.

**L'uranium 238** (< 9 à < 36 Bq/kg frais) et **l'uranium 235** (< 5,8 à < 10,3 Bq/kg frais) ne présentent pas d'activités supérieures aux limites de détection dans les végétaux analysés. Comme indiqué en introduction, des analyses complémentaires par spectrométrie alpha et ICP-MS seront nécessaires pour quantifier les traces d'uranium nécessairement présentes et déterminer les rapports isotopiques.

#### Comparaison avec les mesures FBFC de 1996 (mousses)

Les résultats CRIIRAD sont globalement cohérents avec les mesures<sup>10</sup> effectuées pour FBFC par COGEMA-Marcoule sur 2 échantillons de mousses terrestres prélevés en juillet **1996** dans un rayon de 1 à 2 km autour de l'usine :

- Plomb 210 : non mesuré,
- Plomb 212: 9,1 et 11,1 Bq/kg sec,
- Béryllium 7 : 152 et 192 Bq/kg sec,
- Thorium 234 (uranium 238): < 30 à < 35 Bq/kg sec,</li>
- Uranium 235 : < 6 à < 7 Bq/kg sec.</li>

## Comparaison avec les mesures FBFC de 2003 à 2006 (mousses et aiguilles de pins)

Il n'est pas possible de comparer strictement les résultats CRIIRAD avec les analyses effectuées chaque année par FBFC, sur 3 échantillons de mousses terrestres, dans la mesure où le plan de surveillance FBFC ne prévoit pas la mesure spécifique des différents isotopes de l'uranium (mesure de l'uranium pondéral en μg/kg). Pour l'année 2006, ces résultats sont de 71 à 199 μg/kg frais. Dans l'hypothèse d'un uranium naturel cela correspondrait à des activités massiques en uranium 238 de **0,9 à 2,5 Bq/kg frais**. Ces résultats sont trop faibles pour être quantifiés par spectrométrie gamma. De plus, la réalisation de dosages isotopiques est indispensable pour déterminer s'il s'agit d'uranium naturel ou enrichi.

On remarquera que les campagnes de mesures annuelles FBFC mettent en évidence de façon assez systématique des concentrations en uranium pondéral dans les **mousses** qui décroissent de la station S19, à E23 et à N11. Ce gradient est assez compatible avec la rose des vents et **suggère la présence d'uranium anthropique**. Ce phénomène est en tout cas clairement attesté par les mesures mensuelles d'uranium pondéral effectuées par FBFC sur des **aiguilles de pins** en 4 stations autour de l'usine. La valeur moyenne à la station sud (100 µg/kg frais en 2006) est nettement supérieure à celle des 3 autres stations (14 à 21 µg/kg frais). Là encore des mesures isotopiques sont indispensables pour conclure.

 $<sup>^{10}</sup>$  Rapport environnement 2006, FBFC-AREVA, page 157 à 161.

## 6. ANALYSE DU GATEAU DE LA STEP

## 6.1. Méthodologie

Le prélèvement de gâteau correspondant à **72 heures** de fonctionnement a été effectué par le technicien CRIIRAD à la STEP de Romans le **8 novembre 2005** et ramené au laboratoire en double sachet polyéthylène.

Après homogénéisation, l'échantillon de gâteau de la STEP a été conditionné frais en géométrie 250 cc pour comptage le **jour même** (recherche d'isotopes artificiels à courte période dont l'iode 131 et le thallium 201).

Une fraction aliquote a été desséchée en étuve à 90°C, tamisée à 2 mm et conditionnée en géométrie Marinelli pour comptage par spectrométrie gamma à l'équilibre après un délai supérieur à **21 jours** (dosage du radium 226).

Un troisième comptage a été effectué **plus de 6 mois** après conditionnement afin de vérifier si le thorium 234 (premier descendant de l'uranium 238) était bien à l'équilibre avec l'uranium 238.

## 6.2. Résultats des analyses de gâteau

Les résultats des analyses par spectrométrie gamma effectuées au laboratoire de la CRIIRAD sont reportés dans le tableau T4 ci-après.

## 6.2.1. Radionucléides artificiels

## lode 131 et thallium 201

Ces deux radionucléides à période courte sont détectés dans le gâteau à des niveaux respectifs de 104,7 Bq/kg sec pour l'iode 131 (période physique de 8 jours) et 35,8 Bq/kg sec pour le thallium 201 (période physique de 3 jours).

Il s'agit de produits radioactifs couramment utilisés en **médecine nucléaire** et présents de fait dans les urines des patients (pour l'iode 131, plusieurs milliers à plusieurs millions de becquerels par litre) donc dans les systèmes de collecte des eaux usées.

#### Césium 137

Le césium 137 est détecté à un niveau de **13 Bq/kg sec**, comparable à celui mesuré dans la couche superficielle des sols.

Ces résultats sont dans la gamme attendue sur la région du fait du reliquat des retombées des essais nucléaires atmosphériques (principalement dans les années 50-60) et de la catastrophe de Tchernobyl en 1986.

On ne détecte la présence d'aucun autre radionucléide artificiel émetteur gamma qui pourrait être associé aux activités de l'usine FBFC (niobium 95, cérium 144), il n'est donc pas possible de conclure quant à une contribution de cette usine à l'activité du césium 137 mesurée, sans pouvoir l'exclure (l'autosurveillance FBFC fait apparaître la présence épisodique de césium 137 dans les eaux après traitement à la station Neptune).

Tableau T4 : analyses par spectrométrie gamma du gâteau de la STEP de Romans échantillonné le 8 novembre 2005 (laboratoire CRIIRAD). Résultats en Bq/kg sec.

Activités exprimées en Becquerels par kilogramme sec (Bq/kg sec)

NATURE	Gateau (boues épaissies) 72 H
Date de prélèvement	08/11/2005
Lieu de prélèvement	STEP Romans
N° d'analyse	B 21967, B 22070, C 22209
Date d'analyse	8/11/05; 20/12/2005 et 06/04/2006
Temps de comptage (s)	55 516 ; 82 402 et 54 906
Géométrie	B250 et Marinelli
Masse analysée (g)	238,51 g frais puis 392,86 g sec
Taux de matières sèches (%)	21,5%

#### Radioactivité "naturelle"

Chaîne de l' Uranium 238			
Thorium 234*	77,9	±	15,6
Radium 226**	24,0	±	3,6
Plomb 214	25,2	±	3,7
Bismuth 214	22,8	±	3,5
Plomb 210*	121,5	±	19,0
Uranium 235		<	3,3
Protactinium 231		<	8,3
Thorium 227		<	2,0
Radium 223		<	3,6
Radon 219		<	2,3
Plomb 211		<	4,9
Chaîne du Thorium 232			
Actinium 228	13,3	±	3,2
Plomb 212	8,5	$\pm$	1,7
Thallium 208	3,2	±	0,8
Potassium 40	90,0	±	16,9
Beryllium 7 (***)	163,0	±	20,0

## Radioactivité artificielle

Césium 137	13,1	±	1,9
Césium 134		<	0,2
Cobalt 58		<	0,8
Cobalt 60		<	0,2
Manganèse 54		<	0,3
Antimoine 125		<	0,6
Iode 131 (****)	104,7	±	14,9
thallium 201 (****)	35,8	±	18,6
Cérium 144		<	1,5
Argent 110m		<	0,3
Américium 241*		<	0,3
Iode 129*		<	0,4
Ruthénium 106		<	2,2
Zirconium 95		<	1,8
Niobium 95		<	4,0

#### <u>Légende</u>:

 $\pm$  : marge d'incertitude

<sup>&</sup>lt; : limite de détection

<sup>\*:</sup> S'agissant de raies gamma à basse énergie (<100 keV), les valeurs publiées constituent des valeurs par défaut, compte tenu des phénomènes d'autoatténuation possibles au sein de l'échantillon.

<sup>\*\* :</sup> Radium 226 évalué à l'équilibre sur ses descendants plomb et bismuth 214

<sup>\*\*\* :</sup> Beryllium 7 évalué sur le comptage du 20 décembre 2005

<sup>\*\*\*\* :</sup> l'iode 131 et le thallium 201 sont évalués sur le comptage du 8 novembre 2005

#### Comparaison avec les mesures CRIIRAD de 1996

La CRIIRAD a réalisé en 1996 des analyses de gâteau et boues épaissies de la STEP de Romans échantillonnées par la CGE du 1<sup>er</sup> au 5 avril 1996.

Les activités en **césium 137** étaient respectivement de **12 et 15 Bq/kg sec**. Aucun autre radionucléide artificiel émetteur gamma n'était détecté.

Il est étonnant de constater que les activités en césium 137 mesurées par la CRIIRAD en 2005 ne soient pas plus faibles que celles de 1996. Une discussion avec les techniciens de la STEP serait utile pour comprendre ce phénomène (évolution des débits traités, gestion des eaux pluviales, etc.).

## 6.2.2. Radionucléides « naturels »

#### **Uranium 238 et descendants**

L'uranium 238 est détecté par spectrométrie gamma à partir de son premier descendant le thorium 234.

L'activité du thorium 234 est de 78 Bq/kg sec, à la date du 6 avril 2006.

On notera que l'activité du thorium 234 :

- est sensiblement supérieure à celle mesurée dans les sols (23 à 38 Bq/kg sec),
- est 3 fois supérieure à celle du radium 226 contenu dans le gâteau (24 Bq/kg sec).
- a augmenté de façon sensible entre le comptage du 20 décembre 2005 (49 +/- 9 Bq/kg sec) et celui du 6 avril 2006. Ce qui montre que l'uranium 238 et le thorium 234 n'étaient pas initialement à l'équilibre.

L'ensemble de ces 3 constatations suggère qu'une partie de cet uranium 238 pourrait avoir une origine « non naturelle ». Afin de vérifier ce point, <u>il sera nécessaire de procéder à des</u> dosages complémentaires par spectrométrie alpha et ICP-MS.

Note: on observe un excès de **plomb 210** (facteur 5) par rapport au radium 226 ce qui est classique pour des boues de STEP du fait de l'entrainement par les eaux de pluie du plomb 210 déposé au sol par la décroissance du radon 222 naturellement présent dans l'atmosphère.

## Comparaison avec les mesures CRIIRAD de 1996

La CRIIRAD a réalisé en 1996 des analyses de gâteau et boues épaissies de la STEP de Romans échantillonnées par la CGE du 1<sup>er</sup> au 5 avril 1996. Les activités du thorium 234 étaient respectivement de **268 et 340 Bq/kg sec**. Et l'examen des rapports isotopiques thorium 234 / uranium 235 montrait qu'il s'agissait **d'uranium enrichi donc non « naturel** ».

Les résultats de la campagne CRIIRAD de novembre 2005 montrent une forte baisse de la contamination en uranium anthropique du gâteau de la STEP tout en indiquant une contamination résiduelle probable.

Il faut noter que les contrôles effectués par la FBFC sur les « eaux vannes » sont perfectibles. En effet, la FBFC, en accord avec l'administration, retient une limite d'activité **alpha globale de 1 Bq/l** en dessous de laquelle les eaux vannes sont réputées non contaminées. Cette valeur est relativement élevée si on la compare à l'indice d'activité alpha globale naturel des eaux de la région qui est plutôt de l'ordre du dixième de Bq/l. Sur la période 2003 à 2005, la FBFC indique des activités alpha globales des eaux vannes de 0,68 à 0,93 Bq/l. Ces chiffres suggèrent qu'il y a bien transfert de radionucléides émetteurs alpha (a priori de l'uranium) du site FBFC vers la STEP.

La CRIIRAD recommandait en 1996 que des mesures isotopiques soient effectuées dans les boues de la STEP.

L'état de référence FBFC de 1996 concluait également, page 115 : « L'uranium présent dans les boues de la STEP semble presque exclusivement issu des rejets de la FBFC, l'apport en uranium naturel étant vraisemblablement très faible » et « A l'occasion des prochaines analyses annuelles des boues de la STEP, il conviendra de s'attacher à conclure plus nettement en dosant régulièrement tous les radionucléides concernés (U234, U235, U238, U232, U236, Ra 226) ».

<u>Sauf erreur, ces mesures ne semblent pas figurer dans le rapport environnement FBFC 2006.</u>

#### **Uranium 235 et descendants**

En 2005, les activités de l'uranium 235 (et de ses descendants émetteurs gamma) dans le gâteau sont inférieures aux limites de détection (< 3,3 à < 8,3 Bq/kg sec). Alors que l'activité mesurée par la CRIIRAD était de 63 Bq/kg sec sur le gâteau prélevé en avril 1996.

#### Thorium 232 et descendants

Les activités massiques des 3 descendants du thorium 232 détectés (actinium 228, plomb 212 et thallium 208) sont classiques et sensiblement inférieures à la moyenne de l'écorce terrestre (40 Bq/kg).

#### Potassium 40

L'activité mesurée (90 Bq/kg sec) est inférieure à l'activité moyenne de l'écorce terrestre (300 à 600 Bq/kg).

## Béryllium 7

Le béryllium 7 d'origine cosmogénique est détecté (163 Bq/kg sec), ce qui est courant dans les boues de STEP pour les mêmes raisons que le plomb 210.

## 7. ANALYSES DE SEDIMENTS DE L'ISERE

## 7.1. Méthodologie

Le plan d'échantillonnage a été conçu de manière à pouvoir disposer de :

• 2 stations AM 1 S et AM 2 S, à respectivement environ 1 et 6,5 kilomètres en amont du rejet des effluents liquides de la FBFC dans l'Isère. Ces deux stations sont également en amont de la confluence entre la rivière la Joyeuse et l'Isère.

En effet, la station amont du plan de surveillance FBFC est située en aval de la confluence Isère / Joyeuse et pourrait de ce fait ne pas constituer un amont « hors influence » du fonctionnement de l'usine FBFC.

Les prélèvements ont été effectués par le technicien CRIIRAD le 20 septembre 2006.

 2 stations AV 0 S et AV 1 S, en aval immédiat et aval proche du rejet FBFC dans l'Isère.

Les prélèvements n'ont pu être effectués le 20 septembre 2006, compte tenu d'un fort courant dans toute la zone en aval du rejet et jusqu'à plus d'un kilomètre en aval.

Une seconde tentative a été programmée le **26 octobre 2006**, au cours de laquelle ont été échantillonnés des sédiments fins AV0 S déposés sur le bardeau à environ 10 à 30 mètres en aval du rejet FBFC et des sédiments sous eau AV1 S à environ **1,8 km en aval**.

Il convient de noter que dans la partie aval direct du rejet FBFC et le long de la traversée de la ville de Romans, le lit de l'Isère est endigué (berges empierrées et bétonnées sur de nombreux secteurs, ce qui laisse peu de chances de repérer des zones propices à une bonne sédimentation).

• 2 stations (AV 2 S et AV 3 S) en aval plus lointain du rejet FBFC dans l'Isère, respectivement à environ 5,5 et 8,2 kilomètres en aval.

La station AV 3 S est à environ 1,4 kilomètres en aval du point de rejet de la STEP de Romans dans l'Isère.

Les prélèvements ont été effectués par le technicien CRIIRAD le 20 septembre 2006.





Stations Amont 1 et Amont 2 (CRIIRAD, septembre 2006)





Rejet FBFC (20 septembre 2006)



Aval 2 S (CRIIRAD, septembre 2006)





Rejet de la STEP / station Aval 3 S (CRIIRAD, septembre 2006)

Les prélèvements de sédiments ont été réalisés par le technicien CRIIRAD à partir d'une embarcation (zodiac). Dans 4 cas sur 6 les échantillonnages ont été effectués au moyen d'un carottier (tube transparent) sur une profondeur de **0** à **30** centimètres, sous eau et en bordure de rive (cf. photographies ci-dessous).

Le prélèvement AV0 S est constitué de fines décollées à la raclette à l'interface air / eau, sur le bardeau, en rive droite, sur une distance de 10 à 30 mètres en aval du rejet FBFC.

Le prélèvement AV 1 S a été réalisé en rive gauche, au godet en bout de perche, sur une profondeur de **0 à 8 cm**, l'utilisation du tube étant impossible du fait de la présence de cailloux.

En chaque station AM1 et 2 et AV 2 et 3, 5 échantillonnages distants de quelques dizaines de centimètres ont été effectués et conditionnés en pot plastique de contenance 2 litres pour acheminement au laboratoire. Il s'agit de sédiments fins limoneux de couleur gris foncé.





Zodiac utilisé par la CRIIRAD / prélèvement au tube à la station Amont 1 (CRIIRAD, septembre 2006)

Sauf mention contraire indiquée dans le rapport d'essai, les échantillons de **sédiments** ont subi le traitement suivant : élimination de l'eau surnageant, tri, dessiccation en étuve à 90°C, tamisage à 2 mm, conditionnement de la fraction inférieure à 2 mm en géométrie normalisée (Marinelli ou Petri en fonction des quantités disponibles) pour comptage par spectrométrie gamma à l'**équilibre**.

Les caractéristiques des stations sont reportées dans le tableau T5 ci-après.

Tableau T5 : caractéristiques des stations d'échantillonnage de sédiments en septembre et octobre 2006 (laboratoire CRIIRAD).

Station de prélèvement / distance au reiet FBFC	Localisation	Nature strate	Date et heure de mesure GPS	Position GPS (hdddfmm.mmm')
AM2 S (6,5 km amont)	Amont éloigné rejet FBFC Rive droite (Amont proche usine élect., rive opposée)	limoneux 0-30 cm	20/09/2006 13:19	N45 03.143 E5 09.304
AM1 S (1 km amont)	Amont proche FBFC Rive gauche (Amont proche Club Aviron, rive opposée)	limoneux 0-30 cm	20/09/2006 14:23	N45 02.362 E5 05.699
Rejet FBFC	Reiet FBFC		20/09/2006 17:47	N45 02.431 E5 05.020
AV0 S (10 à 30 m aval)	Aval direct Rejet FBFC prélèvement réalisé sur le bardeau sur une distance de 10 à 30 m en aval du rejet Rive droite	Dépôts argileux gris sur bardeau	26/10/2006 15:04	N45 02.429 E5 05.016
AV1 S (1,8 km aval)	Aval "proche" Rejet FBFC Rive gauche	Argileux sableux et matière organique (feuilles en décomposition) env. 0-8 cm	26/10/2006 16:12	N45 02.425 E5 03.674
AV2 S (5,5 km aval)	Aval éloigné rejet FBFC / Amont STEP Rive droite (Amont proche pont de chemin de fer)	limoneux 0-30 cm	20/09/2006 17:08	N45 01.665 E5 01.937
Rejet STEP Romans	Rejet STEP Romans		20/09/2006 16:47	N45 01.912 E5 01.044
AV3 S (8,2 km aval)	Aval éloigné rejet FBFC / Aval STEP (1,4 km) Rive gauche (Amont "proche" station de pompage, même rive / aval "proche" ligne élect. / au niveau du S de la route)	limoneux 0-30 cm	20/09/2006 16:41	N45 01.943 E5 00.046

### 7.2. Résultats des analyses de sédiments

Les résultats des analyses par spectrométrie gamma effectuées par la CRIIRAD sont reportés dans le tableau T6 ci-après.

### 7.2.1. Radionucléides artificiels

### Détection de césium 137

Le césium 137 est détecté dans les 6 échantillons de sédiments à un niveau de 3,7 à 19,7 Bq/kg sec.

Ces résultats sont dans la gamme attendue sur la région du fait du reliquat des retombées des essais nucléaires atmosphériques (principalement dans les années 50-60) et de la catastrophe de Tchernobyl en 1986.

Les valeurs ne peuvent être strictement comparées que pour les 2 stations amont (9,6 et 12,0 Bq/kg sec) et les 2 stations en aval lointain (6,4 et 8,8 Bq/kg sec). En effet, ces 4 stations correspondent à des profondeurs d'échantillonnage comparables (0 à 30 cm).

On ne détecte la présence d'aucun autre radionucléide artificiel émetteur gamma qui pourrait être associé aux activités de l'usine FBFC (niobium 95 par exemple), il n'est donc pas possible de conclure quant à une contribution de cette usine à l'activité du césium 137 mesurée.

### Résultats de la FBFC (sédiments)

Les résultats<sup>11</sup> des campagnes annuelles de mesure des sédiments (juillet 2003 à 2006) publiées par la FBFC en 3 stations font état de la détection de **césium 137** en amont dans 3 cas sur 4 (4,4 à 7,8 Bq/kg sec), et aux 2 stations aval dans 3 cas sur 8 (2,9 à 6,2 Bq/kg sec). Ces résultats sont comparables à ceux de la CRIIRAD.

<sup>&</sup>lt;sup>11</sup> Rapport Environnement FBFC AREVA 2006, page 223 et 228

Tableau T6 : analyses par spectrométrie gamma des sédiments de l'Isère échantillonnés en septembre et octobre 2006 (laboratoire CRIIRAD). Résultats en Bq/kg sec.

Code CRIIRAD	210906A2	210906A1	271006A6	271006A5	210906A4	210906A3
Code prélèvement	AM 1 S	AM 2 S	AV 0S	AV 1S	AV2S	AV 3 S
Lieu de prélèvement (rive)	1 km amont (RG)	6,5 km amont (RD)	10 m aval rejet (RD)	1,8 km aval (RG)	5,5 km aval (RD)	8,2 km aval (RG)
Nature de l'échantillon	Sédiments (0 à 30 cm) sédiments (0 à 30 cm		Dépôt de sédiments	Sédiments (0 à 8 cm)	Sédiments (0 à 30 cm)	Sédiments (0 à 30 cm)
N°analyse	22676 22665		22741	22735	22681	22653
Géométrie	C MAR	C MAR	B P	B MAR	C MAR	C MAR
Etat F/S?	s	s	s	s	s	s
Masse analysée (g)	503,02	530,82	47,99	692,18	571,88	546,66
Temps de comptage (s)	82 194	88 338	76 800	81 251	142 420	76 029
TMS	55,17%	57,24%	40,23%	69,27%	58,42%	57,46%
Date de la mesure	30/10/2006	26/10/2006	27/11/2006	28/11/2006	31/10/2006	19/10/2006
Date d'échantillonage			26/10/2006	26/10/2006	20/09/2006	20/09/2006

Naturels	Energie (KeV)	Résultats	expri	més en	Becque	rel pai	r kilograr	nme sec											
Chaîne de l'uran Th234*	63.3	46,5	±	10,4	51.4	±	10,2	65,8	±	28,2	30.3	±	6.1	38.5	±	7.8	44.3	±	9,5
Ra226**	186.1	46,5	±	5,7	46.4	±	5,6	64.5	±	11.0	29.0	±	3.6	42.2	±	4.9	46.0	±	5,6
Pb214	351,9	47,1	±	5,7	47,2	±	5,6	67,6	±	11,4	30,8	±	3,8	43,6	±	5,0	47,1	±	5,6
Bi214	609,3	45.9	±	5,7	45,5	±	5,6	61,3	±	10,6	27,1	±	3,4	40,8	±	4,8	44,9	±	5,5
Pb210*	46.5	69,2	±	12,0	67,1	±	11.2	113	±	31	36,6	±	6,8	56,1	±	8,5	67,4	±	10,9
Chaîne de l'uran	-7-	00,2		.2,0	01,1		, _			0.	00,0		0,0	00,1		0,0	01,1		.0,0
U235	163,4		<	2.2		<	2,1		<	15.1		<	2.3		<	6.5		<	2,1
Pa231	283,7		<	4,9		<	4,7		<	35,8		<	5,0		<	3,4		<	4,9
Th227	256,2		<	1,2		<	1,1		<	8,4		<	3,1		<	0,8		<	5,8
Ra223	323,9		<	2,2		<	2,0		<	15,4		<	2,2		<	1,5		<	2,0
Rn219	401,7		<	1,5		<	1,3		<	9,7		<	1,3		<	4,4		<	1,4
Pb211	831,9		<	3,1		<	2,8		<	21,0		<	2,2		<	2,1		<	2,9
Chaine du thoriu	ım 232																		
Ac228	911,2	47,9	±	6,7	50,9	±	6,8	74,0	±	15,3	28,9	±	4,0	43,4	±	5,6	48,1	±	6,6
Pb212	238,6	53,6	±	6,1	55,4	±	6,2	81,8	±	11,4	34,3	±	3,9	48,8	±	5,4	50,5	±	5,8
TI208	583,0	16,3	±	2,1	17,9	±	2,3	25,5	±	4,7	10,5	±	1,4	15,7	±	1,9	16,6	±	2,1
K40	1 460,8	764	±	88	691	±	79	936	±	150	351	±	42	678	±	76	707	±	82
Be7	477,6		<	0,95	11,2	±	2,8	45,3	±	14,0	4,5	±	1,6	3,7	±	1,4	4,3	±	2,0
Artificiels	Energie (KeV)																		
Cs137	661,6	12,0	±	1,6	9,6	±	1,3	19,7	±	3,8	3,7	±	0,6	6,4	±	0,9	8,8	±	1,3
Cs134	604,7		<	0,11		<	0,10		<	0,83		<	0,10		<	0,08		<	0,10
Co58	810,8		<	0,17		<	0,14		<	1,13		<	0,14		<	0,11		<	0,14
Co60	1 332,5		<	0,12		<	0,10		<	0,73		<	0,09		<	0,07		<	0,11
Mn54	834,8		<	0,15		<	0,14		<	0,95		<	0,13		<	0,10		<	0,14
Sb125	427,9		<	0,32		<	0,30		<	2,32		<	0,30		<	0,22		<	0,32
I131	364,5		<	3,25		<	2,14		<	12,63		<	1,80		<	2,42		<	1,23
Ce144	133,5		<	0,76		<	0,70	-	<	4,86		<	0,73		<	0,52		<	0,72
Ag110m	657,7		<	0,12		<	0,12	-	<	0,85		<	0,12		<	0,08		<	0,12
Am241*	59,5	1	<	0,24	_	<	0,23		<	1,36		<	0,20		<	0,17		<	0,24
I129*	29,6	1	<	0,22		<	0,21	-	<	1,16		<	0,21		<	0,15		<	0,22
Ru106	621,9	1	<	1,11		<	1,03		<	7,94		<	1,03		<	0,75		<	1,08
Zr 95	756,7	1	<	0,30		<	0,29		<	2,04		<	0,27		<	0,21		<	0,28
Nb 95	765,8		<	0,27		<	0,23		<	1,61		<	0,20		<	0,18		<	0,21

<sup>|</sup> Nb 95 | 765,8 | < 0,27 | < 0,23 | < 1,61 | < 0,20 | < 0,18 |
\* : S'agissant de raies gamma à basse énergie (<100 keV), les valeurs publiées constituent des valeurs par défaut, compte tenu des phénomènes d'autoatténuation possibles au sein de l'échantillon.

 $<sup>\</sup>ensuremath{^{**}}$  : Le Radium 226 est évalué à partir de ses descendants Plomb 214 et Bismuth 214 à l'équilibre.

Les campagnes de mesures 2003-2006 de la FBFC ne mentionnent la détection dans les sédiments d'aucun autre produit de fission émetteur gamma (valeurs seuils pour Zr 95, Nb 95, Ru-Rh 106, Ce-Pr 144), ni strontium 90 (émetteur bêta).

Par contre le **technétium 99** (mesure par ICP-MS) a été détecté en aval 1 fois sur 8 (75,4 Bq/kg sec en juillet 2004).

Les isotopes émetteurs alpha du **plutonium** ont également été détectés en aval 1 fois sur 8 (25,1 Bg/kg sec en juillet 2003).

Ces résultats mériteraient des vérifications dans le cadre de la phase 2 de l'étude CRIIRAD (dosage des radionucléides non émetteurs gamma).

Carte C3 : localisation schématique des stations d'échantillonnage de sédiments (et plantes aquatiques) (CRIIRAD, septembre et octobre 2006).



### 7.2.2. Radionucléides « naturels »

### **Uranium 238 et descendants**

L'uranium 238 est détecté par spectrométrie gamma à partir de son premier descendant, le thorium 234.

L'activité du **thorium 234** est comprise entre **30,3 et 65,8 Bq/kg sec**, soit des valeurs proches de la moyenne de l'écorce terrestre (40 Bq/kg sec).

La valeur la plus élevée correspond à l'aval très proche AV 0 S (65,8 Bq/kg sec), mais elle est entachée d'une incertitude élevée (peu de matière échantillonnée) et n'est pas très différente du résultat de la station amont AM 2 S (51,4 Bq/kg sec). Il convient de noter en outre que les sédiments AV 0 S sont particulièrement fins ce qui augmente leur capacité d'adsorption.

On ne note pas de déséquilibre uranium 238 / **radium 226** ce qui suggère que l'essentiel de l'uranium détecté est bien d'origine naturelle.

Afin de vérifier ce point, <u>il sera nécessaire de procéder à des dosages complémentaires par spectrométrie alpha et ICP-MS.</u>

Note: on observe un léger excès de **plomb 210** (facteur inférieur à 2) par rapport au radium 226 ce qui est classique pour les sédiments superficiels du fait de l'entrainement par les eaux de pluie du plomb 210 déposé au sol par la décroissance du radon 222 naturellement présent dans l'atmosphère.

### **Uranium 235 et descendants**

Les activités de l'uranium 235 (et de ses descendants émetteurs gamma) sont inférieures aux limites de détection (< 2,1 à < 15,1 Bq/kg sec pour l'uranium 235).

### Thorium 232 et descendants

Les activités massiques des 3 descendants du thorium 232 détectés (actinium 228, plomb 212 et thallium 208) sont classiques et comparables à la moyenne de l'écorce terrestre (40 Bq/kg). On ne note pas de déséquilibre de la chaîne (Ac 228 = Pb 212 = 3 fois Thallium 208)

### Potassium 40

Les activités mesurées (351 à 936 Bq/kg sec) sont comparables à l'activité moyenne de l'écorce terrestre (300 à 600 Bq/kg).

### Béryllium 7

Le béryllium 7 d'origine cosmogénique est détecté dans 5 des 6 stations (3,7 à 45,3 Bq/kg sec), ce qui est courant dans les sédiments superficiels pour les mêmes raisons que le plomb 210.

### 8. ANALYSES DE VEGETAUX DE L'ISERE

### 8.1. Méthodologie

### **Prélèvements**

Comme indiqué en introduction, s'agissant du milieu aquatique, le laboratoire de la CRIIRAD a fait porter l'essentiel des campagnes d'échantillonnage et de mesure de la présente étude sur la couche superficielle des sédiments de l'Isère.

Habituellement le laboratoire de la CRIIRAD a cependant recours en complément à des **bioindicateurs aquatiques** (en particulier les mousses) qui ont un fort pouvoir de concentration des polluants présents dans l'eau.

Les repérages effectués par la CRIIRAD dans le secteur de Romans avaient montré que, compte tenu de la rareté de ce type de bioindicateur, il ne serait pas possible de réaliser une cartographie détaillée de la répartition géographique des niveaux de radioactivité dans les mousses aquatiques en 6 stations réparties le long de l'Isère dans le secteur de Romans.

A défaut, un contrôle ponctuel a été effectué :

- sur des mousses aquatiques (fontinales) prélevées sur le bardeau, 10 à 30 m en aval du rejet FBFC et
- sur les parties racinaires et aériennes de roseaux prélevés aux stations amont (AM2 : 6,5 km amont rejet FBFC) et aval (AV2 bis : 4,6 km aval rejet).

Les mousses aquatiques ont été prélevées au racloir ; les parties racinaires des roseaux à la machette-scie puis à la bêche-pelle, les parties aériennes à la machette.

Les prélèvements ont été effectués par le technicien CRIIRAD le 26 octobre 2006.

Les échantillons ont été triés afin de ne conserver que les spécimens frais et non dégradés.

Les mousses aquatiques ont subi un premier lavage sur le terrain avec l'eau du milieu dans lequel elles ont été prélevées. Les échantillons ont été ramenés le jour même au laboratoire dans des sacs en polyéthylène. Les espèces ont été identifiées au laboratoire après une première détermination sur le terrain.





Station AV 0 M / Mousses aquatiques sur le bardeau en aval du rejet FBFC (CRIIRAD, octobre 2006)





Echantillonnage de roseaux (CRIIRAD, octobre 2006)

### Traitement au laboratoire

Les **roseaux** (*Phragmites australis*) ont été séchés à l'air (après rinçage des parties souterraines) coupés et conditionnés en géométrie Marinelli pour comptage à l'**équilibre**.

Les **mousses aquatiques** (*Fontinalis antipyretica*) ont été triées, conditionnées en géométrie Marinelli, en frais pour un premier comptage **sans délai** (afin de détecter des radionucléides de courte période comme l'iode 131) puis desséchées en étuve à 40°C, reconditionnées en géométrie Marinelli pour un second comptage à l'équilibre.

Les caractéristiques des stations sont reportées dans le tableau T7 ci-après.

Tableau T7 : caractéristiques des stations d'échantillonnage de mousses aquatiques et roseaux en octobre 2006 (laboratoire CRIIRAD).

Station de prélèvement / Rejet	Localisation	Nature	Date et heure de mesure GPS	Position GPS (hddd <sup>o</sup> mm.mmm')		
AM2 (6,5 km amont)	Amont éloigné rejet FBFC Rive droite (Amont proche usine élect., rive opposée)	Roseaux parties aériennes	26/10/2006 12:26	N45 03.145 E5 09.307		
AM2 (6,5 km amont)	Amont éloigné rejet FBFC Rive droite (Amont proche usine élect., rive opposée)	Roseaux parties racinaires	26/10/2006 12:26	N45 03.145 E5 09.307		
Rejet FBFC	Rejet FBFC		20/09/2006 17:47	N45 02.431 E5 05.020		
AV0 M (10 à 30 m aval)	Aval direct Rejet FBFC prélèvement réalisé sur le bardeau sur une distance de 10 à 30 m en aval du rejet Rive droite	Mousses aquatiques Fontinalis antipyretica sur bardeau	26/10/2006 15:04	N45 02.429 E5 05.016		
AV2 bis (4,6 km aval)	Aval éloigné rejet FBFC / Amont STEP Rive droite	Roseaux parties aériennes	26/10/2006 17:01	N45 01.749 E5 02.555		
Aval éloigné rejet FBFC / AV2 bis (4,6 km aval)  Aval éloigné rejet FBFC / Amont STEP Rive droite		Roseaux parties racinaires	26/10/2006 17:01	N45 01.749 E5 02.555		
Rejet STEP Romans	Rejet STEP Romans		20/09/2006 16:47	N45 01.912 E5 01.044		

## 8.2. Résultats des analyses de mousses aquatiques et roseaux

Les résultats des analyses par spectrométrie gamma effectuées au laboratoire de la CRIIRAD sont reportés dans le tableau T8 ci-après.

### 8.2.1. Radionucléides artificiels

### **lode 131**

Ce radionucléide à période courte (période physique de 8 jours) est détecté dans les mousses aquatiques à un niveau de **8,4 Bq/kg sec**.

Il s'agit d'une substance radioactive couramment utilisée en **médecine nucléaire** et présente de fait dans les urines des patients donc dans les systèmes de collecte des eaux usées, et plus généralement dans les cours d'eaux. Il est probable que des activités plus importantes seraient mesurées en aval de la STEP.

Les analyses de roseaux ayant été effectuées à l'équilibre les seuils de détection pour l'iode 131 sont élevés (< 7,3 à < 14,9 Bq/kg sec).

### Césium 137

Le césium 137 n'est détecté que dans les mousses aquatiques à un niveau de 13,8 Bq/kg sec.

Ce résultat est dans la gamme attendue sur la région du fait du reliquat des retombées des essais nucléaires atmosphériques (principalement dans les années 50-60) et de la catastrophe de Tchernobyl en 1986.

On ne détecte la présence d'aucun autre radionucléide artificiel émetteur gamma qui pourrait être associé aux activités de l'usine FBFC, il n'est donc pas possible de conclure quant à une contribution de cette usine à l'activité du césium 137 mesurée.

### Résultats de la FBFC (mousses aquatiques et roseaux)

Les résultats<sup>12</sup> des campagnes annuelles de mesure des mousses (juillet 2003 à 2006) publiées par la FBFC font état de la détection de **césium 137** en amont dans 1 cas sur 4 (2,3 Bq/kg sec en juillet 2004), et jamais à la station aval (< 3,6 à < 5 Bq/kg sec). Ces résultats sont sensiblement inférieurs à ceux de la CRIIRAD. On notera que la station aval AV2 retenue par FBFC (située en aval du rejet STEP) n'est pas comparable à la station AV0 retenue par la CRIIRAD.

Les résultats<sup>13</sup> des campagnes annuelles de mesure des roseaux (juillet 2003 à 2006) publiées par la FBFC font état de la détection de **césium 137** en amont dans 2 cas sur 4 (0,88 à 1,2 Bq/kg sec en juillet 2003 et 2004), et aux 2 stations aval dans 3 cas sur 8 (0,68 à 1,1 Bq/kg sec en 2003 et 2004). Le césium 137 n'est plus détecté lors des campagnes FBFC de juillet 2005 et 2006 (< 0,6 à < 1,1 Bq/kg sec). Ces résultats sont cohérents avec ceux de la CRIIRAD.

<sup>&</sup>lt;sup>12</sup> Rapport Environnement FBFC AREVA 2006, page 228

<sup>&</sup>lt;sup>13</sup> Rapport Environnement FBFC AREVA 2006, page 229

Tableau T8 : analyses par spectrométrie gamma des mousses aquatiques et roseaux de l'Isère échantillonnés en octobre 2006 (laboratoire CRIIRAD). Résultats en Bq/kg sec.

Code CRIIRAD	271006A7	271006A3	271006A1	271006A4	271006A2
Code prélèvement	AV 0M	AM 2	AV2 bis	AM2	AV2 bis
Lieu de prélèvement	10 m aval rejet / rive droite	6,5 km amont (RD)	4,6 km aval (RD)	6,5 km amont (RD)	4,6 km aval (RD)
Nature de l'échantillon	Mousse aquatique (Fontinalis)	Roseaux (partie aérienne)	Roseaux (partie aérienne)	Roseaux (partie racine)	Roseaux (partie racine)
N° analyse	22673 et 22738	22749	22747	22742	22745
Géométrie	C MAR et B MAR	B MAR	B MAR	B MAR	B MAR
Etat F/S?	Frais puis sec	S	S	S	S
Masse analysée (g)	352,38 (F) et 98,7 (s)	93,58	108,69	88,68	72,93
Temps de comptage (s)	22909 et 85540	85 948	79 374	86 308	263 913
TMS	24,30%	non mesuré	non mesuré	non mesuré	non mesuré
Date de la mesure	Date de la mesure 27/10/2006 et 29/11/2006		04/12/2006	30/11/2006	01/12/2006
Date d'échantillonage	26/10/2006	26/10/2006	26/10/2006	26/10/2006	26/10/2006

Naturels	Energie (KeV)	Résultats e	exprimés	en Becqı	uerel par kiloç	gramme s	ec					
Chaîne de l'uran		_										
Th234*	63,3	71,9	±	22,5	<	25,8	<	- , -	<	13,9	<	20,3
Ra226**	186,1	65,7	±	9,6	<	4,1	<	- / -	<	5,9	<	4,9
Pb214	351,9	70,6	±	10,1	<	5,5	<	-,-	<	6,0	<	4,7
Bi214	609,3	60,7	±	9,1	<	2,7	<		<	5,9	<	5,1
Pb210*	46,5	60,7	±	19,1	<	37,2	<	22,5	<	13,6	<	18,9
Chaîne de l'uran												
U235	163,4		<	7,2	<	6,6	<	5,9	<	6,7	<	4,7
Pa231	283,7		<	22,3	<	22,0	<	19,6	<	22,3	<	15,5
Th227	256,2		<	5,1	<	4,8	<	4,4	<	5,2	<	3,6
Ra223	323,9		<	10,2	<	8,6	<	7,8	<	9,4	<	6,6
Rn219	401,7		<	6,1	<	5,0	<	4,6	<	5,6	<	3,9
Pb211	831,9		<	13,3	<	10,3	<	9,5	<	11,6	<	8,1
Chaine du thoriu	ım 232											
Ac228	911,2	86,9	±	14,1	<	6,1	<	3,8	<	11,4	<	3,6
Pb212	238,6	44,0	±	6,3	<	2,1	<	1,3	<	4,4	<	4,4
TI208	583,0	13,4	±	2,6	<	1,0	<	0,8	<	2,1	<	1,4
K40	1 460,8	388	±	70	<	91	<		<	202	<	276
Be7	477,6	96,1	±	17,5	109,1 ±	18,4	48,8 ±	10,6	<	3,9	<	2,7
Artificiels	Energie (KeV)	1										
Cs137	661,6	13,8	±	2,5	<	0,5	<	1,7	<	2,7	<	2,6
Cs134	604,7		<	0,5	<	0,4	<	0,4	<	0,4	<	0,3
Co58	810,8		<	0,7	<	0,6	<	0,5	<	0,6	<	0,4
Co60	1 332,5		<	0,4	<	0,4	<	0,3	<	0,4	<	0,3
Mn54	834,8		<	0,6	<	0,5	<	0,4	<	0,5	<	0,3
Sb125	427,9		<	1,5	<	1,3	<	1,2	<	1,3	<	0,9
I131(***)	364,5	8,4	±	2,4	<	14,9	<	11,7	<	10,0	<	7,3
Ce144	133,5		<	3,2	<	2,9	<	2,6	<	2,9	<	2,1
Ag110m	657,7		<	0,6	<	0,5	<	0,4	<	0,5	<	0,4
Am241*	59,5		<	1,0	<	0,8	<	0,8	<	0,9	<	0,6
I129*	29,6		<	1,0	<	0,8	<		<	0,9	<	0,6
Ru106	621,9		<	5,1	<	4,3	<	3,9	<	4,6	<	3,2
Zr 95	756,7		<	1,4	<	1,2	<	1,1	<	1,3	<	0,8
Nb 95	765.8	1	<	1.0	<	1.0	<	0,8	<	0.9	<	0.7

Nb 95 | 765,8 | < 1,0 | < 1,0 | < 0,8 | < 0
\*: S'agissant de raies gamma à basse énergie (<100 keV), les valeurs publiées constituent des valeurs par défaut, compte tenu des phénomènes d'autoatténuation possible au sein de l'échantillon.

<sup>\*\*</sup> : Le Radium 226 est évalué à partir de ses descendants Plomb 214 et Bismuth 214 à l'équilibre.

<sup>\*\*\* :</sup> L'iode 131 est évalué pour la mousse aquatique sur le comptage du 27 octobre 2006 (matière fraîche)

Les campagnes de mesures 2003-2006 de la FBFC ne mentionnent la détection dans les mousses aquatiques et roseaux d'aucun autre produit de fission émetteur gamma (valeurs seuils pour Zr 95, Nb 95, Ru-Rh 106, Ce-Pr 144).

Par contre le **strontium 90** (émetteur bêta pur) est détecté systématiquement dans les **mousses** amont (0,87 à 2 Bq/kg sec) et aval (0,7 à 2,2 Bq/kg sec). Dans les **roseaux**, il est détecté en amont 1 fois sur 3 (0,5 Bq/kg sec en juillet 2005) et aux 2 stations aval dans 3 cas sur 6 (0,6 à 1 Bq/kg sec en juillet 2004 et 2005). Les résultats 2006 ne sont pas encore publiés.

Le technétium 99 (mesure par ICP-MS) n'a jamais été détecté dans les mousses et roseaux, contrairement aux sédiments.

Les isotopes émetteurs alpha du **plutonium** n'ont pas été détectés dans les mousses et l'ont été dans les **roseaux** en aval 1 fois sur 8 (3,4 Bg/kg sec en juillet 2003).

Ces résultats mériteraient des vérifications dans le cadre de la phase 2 de l'étude CRIIRAD (dosage des radionucléides non émetteurs gamma) ainsi qu'une réflexion sur la localisation de la station amont FBFC en aval de la Joyeuse.

### 8.2.2. Radionucléides « naturels »

### **Uranium 238 et descendants**

L'uranium 238 est détecté par spectrométrie gamma à partir de son premier descendant le thorium 234. L'activité du **thorium 234** n'est mesurable que dans les mousses aquatiques **71,9 Bq/kg sec.** 

On ne note pas de déséquilibre uranium 238 / **radium 226** ce qui suggère que l'essentiel de l'uranium détecté est bien d'origine naturelle. Afin de vérifier ce point, <u>il sera nécessaire de procéder à des dosages complémentaires par spectrométrie alpha et ICP-MS.</u>

### **Uranium 235 et descendants**

Les activités de l'uranium 235 (et de ses descendants émetteurs gamma) sont inférieures aux limites de détection dans les mousses et roseaux analysés (< 4,7 à < 7,2 Bq/kg sec pour l'uranium 235).

### Thorium 232 et descendants

Les activités massiques des 3 descendants du thorium 232 (actinium 228, plomb 212 et thallium 208) ne sont mesurables que dans les mousses aquatiques. Les niveaux sont classiques. On note un déséquilibre de la chaîne en faveur de l'actinium 228.

### Potassium 40

Les activités mesurées dans les mousses (388 Bq/kg sec) sont classiques.

### **Béryllium 7**

Le béryllium 7 d'origine cosmogénique est détecté dans les mousses (96 Bq/kg sec) et les parties aériennes des roseaux (109 et 49 Bq/kg sec).

Ces résultats confirment que les mousses aquatiques constituent un bioindicateur plus fin que les roseaux.

## ANNEXE 1 / Chaînes de désintégration de l'uranium 238, uranium 235 et thorium 232

Note : les radionucléides figurant en gras sont détectables par spectrométrie gamma

## CHAINE RADIOACTIVE FAMILLE DE L'URANIUM 238

Radioéléments	Mode de désintégration	Période de radioactivité
Uranium 238	α	4,5 milliards d'années
Thorium 234	β	24 jours
Protactinium 234m	β	1,2 minutes.
Uranium 234	α	250 000 ans
Thorium 230	α	75 000 ans
Radium 226	α	1 600 ans
Radon 222	α	3,8 jours
Polonium 218	α	3 minutes
Plomb 214	β	27 minutes
Bismuth 214	β	20 minutes
Polonium 214	α	1,6 10 <sup>-4</sup> secondes
Plomb 210	β	22,3 ans
Bismuth 210	β	5 jours
Polonium 210	α	138,5 jours
Plomb 206		Stable

# **CHAINE RADIOACTIVE Famille de l'Uranium 235**

Radioéléments	Mode de désintégration	Période radioactive
Uranium 235	α	700 millions d'années
Thorium 231	β	25,6 heures
Protactinium 231	α	33 000 ans.
Actinium 227	β	21,8 ans
Thorium 227	α	18,7 jours
Radium 223	α	11,4 jours
Radon 219	α	3,9 secondes
Polonium 215	α	1,8 10 <sup>-3</sup> secondes
Plomb 211	β	36 minutes
Bismuth 211	α	2,2 minutes
Thallium 207	β	4,8 minutes
Plomb 207		Stable

### **CHAINE RADIOACTIVE**

Famille du thorium 232

Radioéléments	Mode de désintégration	Période de radioactivité
Thorium 232	α	14 milliards d'annéess
Radium 228	β	5,8 ans
Actinium 228	β	6,1 heures
Thorium 228	α	1,9 an
Radium 224	α	3,7 jours
Radon 220	α	55,6 secondes
Polonium 216	α	0,15 secondes
Plomb 212	β	10,6 heures
Bismuth 212	α β	1 heure
Thallium 208	β	3 minutes
Polonium 212	α	3 10 <sup>-7</sup> secondes
Plomb 208		Stable

les sols (CRIIRAD, 2003)

**ANNEXE** 

Analyses

spectrométrie gamma sur

Lieu de prélèvement	Référence	Envir-proche NORD	Envir-immediat NORD	Envir-immediat SUD	Enviro immediat EST	Enviro proche SUD	Clôture N-E FBFC
Code CRIIRAD	250403A1	250403A2	250403A3	250403A4	250403A5	250403A6	250403A7
Code prélèvement (cf. carte)	C1	C2	C3	C4	C5	C6	C7
Date de mi-prélèvement	24/04/2003	24/04/2003	24/04/2003	24/04/2003	24/04/2003	25/04/2003	25/04/2003
N°analyse	20689	20672	20691	20702	20676	20674	20704
Géométrie	CNATmar	CNATmar	CNATmar	CNATmar	CNATmar	CNATmar	CNATmar
Etat F/S?	S	S	S	S	S	S	S
Masse analysée (g)	603,11	603,33	656,24	656,89	659,00	591,01	570,63
Temps de comptage (s)	28 700	56 464	29 000	70 620	53 050	55 040	53 900
TMS	86,90%	89,12%	95,13%	92,94%	92,64%	91,80%	88,80%
Date de la mesure	10/06/2003	26/05/2003	11/06/2003	13/06/2003	05/06/2003	27/05/2003	14/06/2003
Date de prélèvement	24/04/2003	24/04/2003	24/04/2003	24/04/2003	24/04/2003	25/04/2003	25/04/2003

		ì																				
Naturels	Energie (KeV)	Résulta	ats ex	xprimé	s en B	ecque	erel pa	ar kilogi	ramm	ne sec												
Chaîne de l'uran	nium 238	-																				
Th234*	63,3	34,9	±	12,1	23,0	±	7,9	27,1	±	10,3	23,8	±	7,7	38,1	±	9,7	33,6	±	9,5	34,2	±	9,2
Ra226**	186,1	48,9	±	6,4	22,8	±	3,2	31,6	±	4,4	28,3	±	3,7	27,3	±	3,7	38,1	±	4,9	31,8	±	4,3
Pb214	351,9	49,9	±	6,5	23,5	±	3,2	32,9	±	4,5	29,4	±	3,7	27,6	±	3,7	39,3	±	5,0	34,0	±	4,5
Bi214	609,3	47,9	±	6,4	22,2	±	3,2	30,2	±	4,4	27,3	±	3,6	27,1	±	3,7	36,9	±	4,8	29,5	±	4,1
Pb210*	46,5	66,5	±	15,4	53,4	±	10,6	61,8	±	14,5	49,8	±	9,9	49,4	±	10,3	82,5	±	14,6	63,3	±	12,7
Chaîne de l'uran	nium 235																					
U235	163,4		<	3,6		<	2,4		<	3,4		<	2,1		<	2,4		<	2,7		<	2,7
Chaine du thoris	um 232																					
Ac228	911,2	34,7	±	5,8	23,1	±	3,9	25,6	±	4,6	29,5	±	4,4	30,8	±	4,7	29,3	±	4,7	31,6	±	5,1
Pb212	238,6	31,3	±	4,2	24,2	±	3,1	24,7	±	3,5	25,9	±	3,2	28,6	±	3,6	30,4	±	3,8	28,9	±	3,7
T1208	583,0	12,5	±	1,9	8,7	±	1,3	8,9	±	1,5	9,7	±	1,4	10,6	±	1,5	10,6	±	1,6	10,9	±	1,6
	•	-																		-		
K40	1 460,8	338	±	47	469	±	58	367	±	49	407	±	49	460	±	56	403	±	51	408	±	52
Be7	477,6		<	1,9		<	1,4		<	2,0		<	1,2		<	1,4		<	1,6		<	1,6
Artificiels	Energie (KeV)																					
Cs137	661,6	17,3	±	2,5	37,1	±	4,4	64,7	±	7,7	36,1	±	4,3	38,1	±	4,6	60,8	±	7,0	45,9	±	5,5
Cs134	604,7		<	0,2		<	0,2		<	0,2		<	0,1		<	0,2		<	0,7		<	0,2
Co58	810,8		<	0,4		<	0,2		<	0,3		<	0,2		<	0,2		<	0,2		<	0,3
Co60	1 332,5		<	0,2		<	0,2		<	0,2		<	0,1		<	0,2		<	0,2		<	0,2
Mn54	834,8		<	0,3		<	0,2		<	0,3		<	0,2		<	0,2		<	0,2		<	0,2
Sb125	427,9		<	0,7		<	0,5		<	0,8		<	0,4		<	0,5		<	0,6		<	0,6
I131	364,5		<	14,1		<	2,8		<	14,6		<	10,8		<	6,2		<	3,0		<	14,0
Ce144	133,5		<	1,7		<	1,1		<	1,6		<	1,0		<	1,1		<	1,2		<	1,3
Ag110m	657,7		<	0,2		<	0,2		<	0,2		<	0,2		<	0,2		<	0,2		<	0,2
Am241*	59,5		<	0,5		<	0,3		<	0,5		<	0,3		<	0,4		<	0,4		<	0,4
l129*	29,6		<	0,5		<	0,3		<	0,5		<	0,3		<	0,4		<	0,4		<	0,4
Ru106	621,9		<	2,4		<	1,6		<	2,1		<	1,4		<	1,6		<	1,7		<	1,8
Zr 95	756,7		<	0,8		<	0,4		<	0,6		<	0,4		<	0,5		<	0,5		<	0,6
Nb 95				0,6			0,3		<	0,6			0,4			0.4		<	0,3		<	0,5

<sup>\*:</sup> S'agissant de raies gamma à basse énergie (<100 keV), les valeurs publiées constituent des valeurs par défaut, compte tenu des phénomènes d'autoatténuation possibles au sein de l'échantillon.

<sup>\*\* :</sup> Le Radium 226 est évalué à partir de ses descendants Plomb 214 et Bismuth 214 à l'équilibre.