

Comisión de Investigación e Información Independientes sobre la Radiactividad

**Informe CRIIRAD N°07-117  
Huelva (fosfoyesos y vertido Cs 137)**

**Control radiológico de las balsas de  
fosfoyesos y del vertido de cesio 137  
del CRI-9**

**Medición de la exposición externa.  
Caracterización radiológica de los suelos, los  
vertidos y el agua**

Edición del 29 de noviembre de 2007

**Estudio realizado por el laboratorio de la CRIIRAD  
a petición de Greenpeace España**

Responsable del estudio: Bruno CHAREYRON, ingeniero en física nuclear

Trabajo de campo: Christian COURBON, técnico especializado

Preparación de muestras: Jocelyne RIBOUET, auxiliar

Análisis por espectrometría gamma: Stéphane PATRIGEON, técnico metrólogo

**LABORATORIO DE LA CRIIRAD**

**471, Avenue Victor Hugo, 26000  
Valence**

**laboratoire@criirad.org**

**☎ 04 75 41 82 50    04 75 81 26 48**



**SUMARIO**

**1. CONTEXTO, OBJETIVOS Y METODOLOGÍA.....4**

**2. IMPACTO DE LAS BALSAS DE FOSFOYESOS.....7**

**2.1. CONTROLES RADIOMÉTRICOS.....7**

**2.2. RESULTADOS DE LOS ANÁLISIS EN LABORATORIO.....14**

**3. IMPACTO DEL VERTIDO DEL CRI-9.....19**

**4. SÍNTESIS Y CONCLUSIONES.....23**

# 1. CONTEXTO, OBJETIVOS Y METODOLOGÍA

## **Misión de la CRIIRAD**

Greenpeace España ha solicitado al laboratorio de la CRIIRAD (Francia) la realización de mediciones radiométricas y la extracción de muestras en las balsas en las que se hallan los vertidos de fosfoyesos emitidos por las fábricas del complejo industrial de Huelva.

Más de **120 millones de toneladas** de esos residuos, producidos principalmente por **FERTIBERIA**, se hallan, en efecto, depositadas directamente en el suelo sobre una superficie de 1.200 hectáreas en las marismas de Huelva entre el río Tinto y el río Odiel.

La realización de controles radiológicos es indispensable, pues los fosfoyesos son susceptibles de contener radionucleidos ciertamente naturales, pero en concentraciones anormalmente elevadas. Se trata de las familias del uranio (238 y 235) y del torio 232 (ver anexo 1).

Efectivamente, los fosfatos de origen mineral presentan concentraciones naturales de sustancias radiactivas elevadas (concentración de uranio 238 de varios miles de bequerelios por kilogramo) que son un problema<sup>1</sup> para los trabajadores, la población y el medioambiente.

La estrategia de control ha sido elaborada por Bruno Chareyon, ingeniero en física nuclear y responsable del laboratorio de la CRIIRAD.

Las mediciones sobre el terreno y la recogida de muestras han sido efectuadas por Christian Courbon, técnico especializado (laboratorio CRIIRAD) los días **3 y 4 de octubre de 2007**, en presencia de representantes de Greenpeace. El objetivo de CRIIRAD era caracterizar los fosfoyesos.

Igualmente se llevó a cabo una misión de exploración sobre la cubierta del vertido del CRI-9 situado al Norte de las balsas de fosfoyesos. Este vertedero ha recibido, entre otras cosas, materiales contaminados por cesio 137 (radionucleido artificial, emisor beta y gamma) provenientes de la empresa ACERINOX.

La metodología y los resultados se presentan en el apartado 2.

## **Misión de Greenpeace Internacional**

Además, el día **17 de octubre de 2007**, un equipo de Greenpeace Internacional llevó a cabo controles en el perímetro del CRI-9 por medio de un espectrómetro gamma portátil. Esos controles pusieron de relieve las fugas radiactivas de cesio 137.

Las muestras de sedimentos y de agua recogidas por Greenpeace Internacional al nivel de esa fuga fueron enviadas al laboratorio de la

---

<sup>1</sup> Las fábricas que emplean como materia prima esos fosfatos producen muy a menudo materiales y residuos que reconcentran algunas de esas sustancias radiactivas. El laboratorio de CRIIRAD tuvo ocasión de demostrar esos problemas en el caso de la fábrica de ERKIMIA en Flix (Cataluña) en 2004 y 2005. Esa fábrica utiliza fosforitas como materia prima. La CRIIRAD midió una concentración de uranio 238 de 4.000 Bq/kg en los vertidos de la fábrica de ERKIMIA, y concentraciones de uranio 238 y de plomo 210 superiores a 1.000 Bq/kg en el fosfato bi-cálcico elaborado por la fábrica (aditivo alimentario). Esos resultados se presentaron en una conferencia de prensa en Barcelona el 6 de febrero de 2006.

CRIIRAD para realizar análisis por espectrometría gamma (con el fin de medir la concentración de cesio 137 y otras sustancias radiactivas).

Los resultados se presentan en el apartado 3.

### **Metodología de análisis en el laboratorio CRIIRAD**

Todas las muestras (suelo, sedimentos, residuos sólidos, agua) han sido analizadas por **espectrometría gamma** de alta resolución (Hp Ge) en el laboratorio de la CRIIRAD.

Las modalidades de tratamiento y de análisis de las muestras se precisan en los informes de ensayo. Las muestras sólidas recopiladas por la CRIIRAD han sido analizadas **en equilibrio**<sup>2</sup> sobre materia seca con el fin de medir con precisión la actividad del radio 226.

Las muestras de sedimentos y de agua extraídas por Greenpeace en el vertido del CRI-9 han sido analizadas frescas y sin demora, teniendo en cuenta el deseo de Greenpeace de obtener resultados rápidamente para el cesio 137. Para esos resultados, la actividad del radio 226 se ha asignado por defecto. A continuación, los sólidos fueron desecados en autoclave con el fin de poder expresar los resultados en bequerelios por kilogramo seco.

La espectrometría gamma permite detectar y cuantificar numerosos radionucleidos naturales (potasio 40 y descendientes del uranio 238, del uranio 235 y del torio 232) y artificiales (cesio 137, cobalto 60, yodo 131, americio 241, etc.).

No obstante, algunos radionucleidos no pueden ser detectados mediante espectrometría gamma. Es el caso de los radionucleidos que al desintegrarse sólo emiten radiación beta (por ejemplo el tritio, el carbono 14, el estroncio 90) o alfa (plutonio 238, 239, 240; uranio 234).

### **Reconocimiento oficial del laboratorio de la CRIIRAD**

El laboratorio de la CRIIRAD participa habitualmente en ejercicios de intercomparación nacionales e internacionales. Obtiene regularmente la renovación de su certificado de calificación técnica que da fe de sus capacidades metrológicas.

El decreto del 11 de agosto de 2006 que establece la lista de laboratorios reconocidos por el Ministerio de Medio Ambiente y el Ministerio de Sanidad de Francia para mediciones de radiactividad del medioambiente atestigua que el **laboratorio de la CRIIRAD está reconocido oficialmente** hasta el 31 de diciembre de 2008 en todos los reconocimientos metrológicos que ha solicitado:

1 / **Aguas:** emisores gamma < 100 keV, y > 100 keV y tritio.

2 / **Suelos:** uranio y descendientes, torio y descendientes, Ra 226 y descendientes, Ra 228 y descendientes.

3 / **Matrices biológicas:** emisores gamma < 100 keV y > 100 keV.

La decisión N°2007-DC-0064 de 4 de julio de 2007 de la Autoridad de Seguridad Nuclear francesa referente al reconocimiento de laboratorios para mediciones de radiactividad del medioambiente atestigua, además, que el laboratorio de la CRIIRAD está reconocido hasta el 10 de julio de 2011 para la medición de **emisores gamma** de energía superior a 100 keV en matrices de **tipo suelo** (tierras, sedimentos, lodos).

<sup>2</sup> Cuando los contajes por espectrometría gamma se realizan **en equilibrio**, esto es, más de 21 días después del envasado, es posible evaluar el radio 226 en sus descendientes, el plomo 214 y el bismuto 214 (tras 21 días el equilibrio entre el radio 226 y sus dos descendientes se restablece al 98%).



**Sala de contaje por espectrometría gamma (laboratorio CRIIRAD)**

## 2.IMPACTO DE LAS BALSAS DE FOSFOYESOS

### 2.1. Controles radiométricos

#### Metodología / medición del flujo de radiación gamma

Con el fin de localizar los sectores que contienen sustancias radiactivas, el técnico de la CRIIRAD ha realizado mediciones del **flujo de radiación gamma** por medio de un escintilómetro DG5 de marca Novelec.

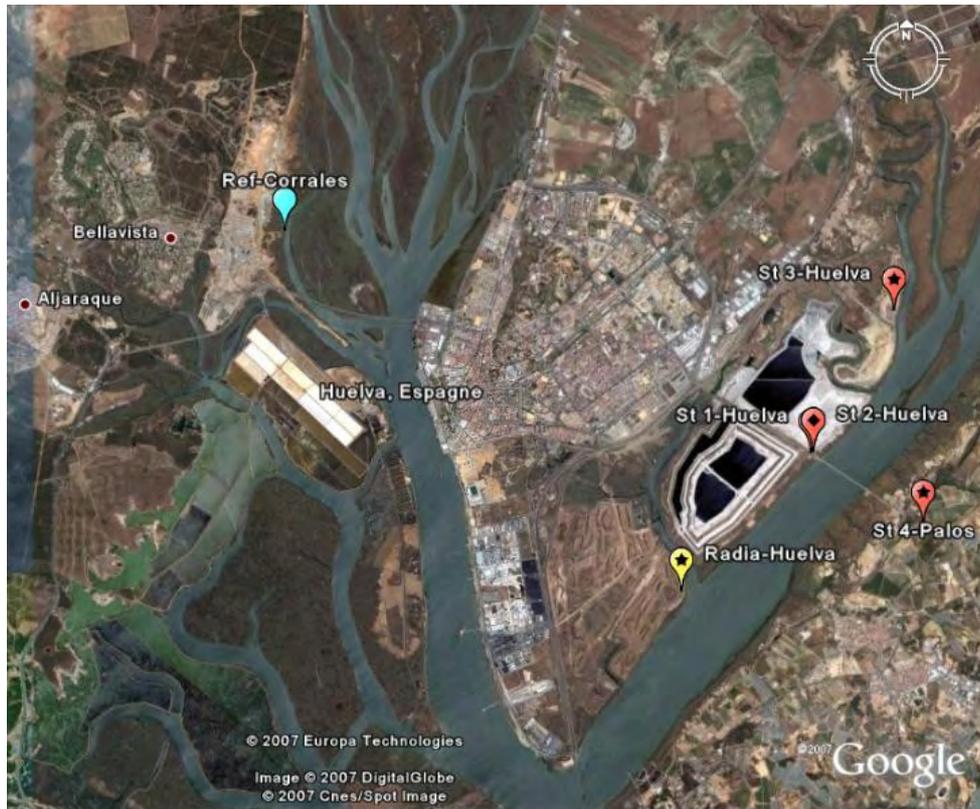
Las mediciones en modo exploración durante las localizaciones se realizan de manera dinámica, es decir, sin paradas durante el desplazamiento del operador.

Cuando se determina que un punto es representativo de una zona o se detecta una anomalía, se lleva a cabo la medición de manera estática: el operador sitúa el escintilómetro sobre ese punto (en contacto y/o a 1 m del suelo) y espera la estabilización de la medición (esto es, un mínimo de 15 segundos). Las mediciones se expresan en **cuentas por segundo (c/s)**.

El técnico de la CRIIRAD ha realizado:

- mediciones en el entorno natural *a priori* fuera del área de influencia directa de los vertidos (estación ST0, en las marismas de Corrales, al oeste de Huelva). Se trataba de establecer el nivel de radiación natural del sector.
- un barrido radiométrico en las zonas de almacenamiento de los vertidos, en particular las balsas que contienen fosfoyesos (estaciones ST1 y ST2), y en un sector que contiene residuos inertizados de ilmenita inatacada (ST3) en el CRI-9.
- mediciones en el pueblo de Palos, al otro lado del río Tinto, a sotavento de las balsas de fosfoyesos (ST4).

Las estaciones de medición figuran en el mapa C1 siguiente.



Mapa C1: localización de las estaciones de medición y muestreo (CRIIRAD, octubre de 2007)

**Metodología / medición del nivel de dosis equivalente**

De manera complementaria, el técnico de la CRIIRAD ha realizado mediciones del nivel de dosis, de manera estática, en puntos fijos cuyo nivel de flujo gamma había sido previamente constatado con la ayuda de un escintilómetro.

El aparato utilizado es un contador proporcional Berthold LB123 compensado energéticamente (sonda LB 1236). Está calibrado por un organismo reconocido.

En cada punto de control, se ha llevado a cabo una serie de varias mediciones integradas (un mínimo de 3) de una duración de 100 segundos.

Los resultados muestran la media de esas mediciones.

Están expresados en **microSieverts por hora** ( $\mu\text{Sv}\cdot\text{h}^{-1}$ ).

Estas mediciones permiten evaluar la exposición externa añadida para la población vecina del emplazamiento en función del tiempo pasado en cada estación.



**Radiómetros DG5 y LB 123 / CRIIRAD, octubre de 2007**



**Residuos inertizados de ilmenita inatacada (400 a 600 c/s DG5) / fábricas de Huelva**

**Resultados de las mediciones radiométricas**

Los resultados de las mediciones radiométricas han sido trasladados al siguiente cuadro T1.

Cuadro T1 : mediciones radiométricas CRIIRAD (octubre de 2007)

Código estación	ST0	ST1	ST2	ST3	ST4
Naturaleza	Tierra de marismas	Residuo fosfoyeso (negro)	Residuo fosfoyeso (blanco)	Residuo inertizado de ilmenita inatacada	Tierra superficial a sotavento
Localización	Corrales (marisma)	Huelva (Este lagunas de decantación)	Huelva (Este lagunas de decantación)	vertedero CRI-9	Palos (vergel)
Fecha extracción	03/10/2007	03/10/2007	03/10/2007	04/10/2007	04/10/2007

**Mediciones radiométricas sobre el terreno**

Flujo gamma en contacto (DG5) c/s	90	3 500	500	630	80
Flujo gamma a 1 m. (DG5) c/s	70	1 300	100	500	70

Cantidad dosis en contacto (LB123) µSv/h	0,16	3,1	0,39	0,54	0,12
Cantidad dosis a 1 m. (LB123) µSv/h	0,12	0,90	0,33	0,42	0,11

**Evaluación de la exposición externa añadida**

Exposición añadida (µSv/h)	0,78	0,21	0,30
Exposición añadida para 100 horas al año	78	21	30

**Nivel natural de radiación**

Fuera de la influencia de la radiación directa emitida por los materiales radiactivos vertidos en el suelo (esto es, en las estaciones ST0 y ST4), los flujos de radiación gamma en contacto con el suelo son de entre **80 y 90 c/s** y las cantidades de dosis equivalente gamma a 1 metro por encima del suelo están entre **0,11 y 0,12 µSv/h**.

Esos valores son **clásicos para la región**, teniendo en cuenta la naturaleza del suelo, y corresponden a la suma de los componentes cósmicos (radiación proveniente del espacio) y los telúricos (presencia en el suelo de radionucleidos naturales de las familias del uranio 238 y 235, del torio 232 y del potasio 40).

**Aumento del nivel de radiación imputable al fosfoyeso**

En las proximidades de las balsas de fosfoyesos y de los residuos inertizados de ilmenita inatacada, los flujos de radiación gamma son más de 5 veces superiores a lo normal:

- **500 c/s** en la estación ST2 en contacto con fosfoyesos de color blanco,
- **630 c/s** en la estación ST3 en contacto con residuos inertizados de ilmenita inatacada,
- hasta 3.500 c/s en contacto con materiales de color negro. Ese valor es **38 veces superior a lo normal**.

Los valores de cantidad de dosis gamma a 1 metro por encima de esos vertidos son anormalmente elevados: de **0,3 a 0,9 µSv/h**.

Las mediciones realizadas de manera dinámica en otros sectores del emplazamiento han mostrado que desde que los fosfoyesos están al aire libre, el nivel de radiación gamma es de 3 a 6 veces superior a lo normal (de 300 a 600 c/s y más). De hecho esto concierne a sectores considerados oficialmente como restaurados. Es el caso, por ejemplo, en la estación "Radia Huelva" (ver mapa C1) [ver siguiente fotografía].



**Sector supuestamente restaurado: tierra que cubre los fosfoyesos erosionada por la lluvia (nivel de radiación gamma de 2 a 9 veces superior a lo normal)**



**Fosfoyesos no recubiertos**

### **Estimación de la exposición añadida**

A partir de las mediciones de CRIIRAD *a priori* representativas de medias anuales, se puede calcular la exposición horaria añadida encima de los vertidos.

Los cálculos se han trasladado al cuadro T1. Para cada estación, la exposición añadida se obtiene restando el componente natural, estimado

en 0,12  $\mu\text{Sv/h}$ . La exposición añadida por sólo 100 horas de presencia al año está comprendida entre 21 y 78 microSieverts.

Dicha exposición no es nada despreciable en el plano sanitario. Incluso si la industria del abono no es una "práctica nuclear", se puede recordar aquí que la directiva Euratom 96/29 considera que el impacto de una práctica no es despreciable si supera los 10 microSieverts al año.

Recordemos, por lo demás, que la Directiva<sup>3</sup> 96/29/Euratom de 13 de mayo de 1996 impone, en el título VII, la puesta en práctica de medidas de protección respecto a la exposición a las fuentes naturales de radiación. Especialmente, los Estados miembros han de elaborar un censo de actividades profesionales de riesgo, en particular de aquellas que utilicen materiales (o produzcan residuos) que contengan niveles elevados de radionucleidos naturales susceptibles de implicar una elevación significativa de la exposición de la población en general o de los trabajadores.

La industria de los fosfatos y los abonos forma parte de las actividades de riesgo. Las exposiciones que generan deben ser controladas, y dicho control debe ser completado, si es preciso, con medidas correctoras destinadas a limitar la exposición de las personas. Los Estados miembros debían llevar a ejecución las prescripciones de la directiva europea a más tardar el 13 de mayo de 2000.

---

<sup>3</sup> La Directiva 96/29/Euratom del Consejo fija las normas básicas relativas a la protección sanitaria de la población y de los trabajadores contra los peligros provocados por las radiaciones ionizantes.

## 2.2. Resultados de los análisis en laboratorio

Los días 3 y 4 de octubre de 2007, el técnico de CRIIRAD procedió al muestreo de suelo "natural" del sector (ST0 y ST4) y de los vertidos de fosfatos y de ilmenita inatacada (ST1, ST2 y ST3). Además, se tomaron muestras de agua en contacto con los vertidos de fosfoyesos en la estación ST1.

La extracción de sólidos se realizó a una profundidad de 10 cm. Las muestras fueron envasadas en bolsas de polietileno para su traslado al laboratorio.

Los resultados detallados de los análisis por espectrometría gamma efectuados en el laboratorio de la CRIIRAD se muestran en el Anexo 2. Los principales resultados del análisis de sólidos se muestran en el cuadro T2 siguiente:

Cuadro T2 : resultados de los análisis por espectrometría gamma en sólidos  
CRIIRAD (octubre de 2007)

Código estación	ST0	ST1	ST2	ST3	ST4
Código muestra	081007 A1	081007 A6	081007 A4	081007 A3	081007 A2
Naturaleza	Tierra de marisma	Fosfoyeso negro	Fosfoyeso blanco	Residuo de ilmenita	Tierra superficial a sotavento
Localización	Corrales (marismas)	Balsas (Huelva)	Balsas	Vertido del CRI-9	Palos (cultivos)
Coordenadas GPS	Nº138	Nº139	Nº140	Nº141	Nº142
Estrato (cm)	0-10	0-10	0-10	0-10	0-10
Modo extracción	Pala	Pala	Pala	Pala	Pala
Fecha extracción	03/10/07	03/10/07	03/10/07	04/10/07	04/10/07

### Mediciones radiométricas sobre el terreno

Flujo gamma in situ (DG5) c/s	90	3500	500	630	80
-------------------------------	----	------	-----	-----	----

### Mediciones radiométricas sobre muestra en el laboratorio CRIIRA

Flujo gamma en laboratorio (SPP2) c/s	40	190	60	60	45
---------------------------------------	----	-----	----	----	----

### Elementos radiactivos "naturales". Actividades expresadas en Bequerelios por kilogramo seco (Bq/kg seco)

#### Cadena de uranio 238

Torio 234**	270 ± 60	3020 ± 470	770 ± 120	150 ± 60	< 30
Torio 230**	< 390	11100 ± 3000	<310	<330	< 120
Radio 226	156 ± 22	18000 ± 1900	1070 ± 120	540 ± 70	23 ± 6
Plomo 210**	219 ± 45	10100 ± 1200	17600 ± 1900	370 ± 70	< 44

**Cadena del uranio 235**

Uranio 235	< 42	< 300	< 70	< 27	< 11
------------	------	-------	------	------	------

**Cadena del torio 232**

Actinio 228	56 ± 16	<100	19 ± 9	1280 ± 160	30 ± 9
Plomo 212	50 ± 8	129 ± 25	19 ± 5	590 ± 70	27 ± 5
Potasio 40	< 600	< 310	< 100	< 390	350 ± 80

**Elementos radiactivos artificiales**

Cesio 137	10,1 ± 3,0	< 4,4	< 1,1	< 2,6	< 0,9
Cesio 134	< 0,8	< 4,2	< 1,1	< 2,2	< 0,7

Actividad +/- incertidumbre o límite de detección si <

\*\* teniendo en cuenta la débil energía de su radiación gamma, la actividad de esos radionucleidos puede ser infravalorada.

**Radionucleidos artificiales**

Se detectó sólo un radionucleido artificial emisor gamma, el **cesio 137**, y únicamente en el **suelo** de las marismas de Corrales (10 Bq/kg seco).

En teoría es posible medir trazas de cesio 137 en los suelos de España a causa de los restos de las lluvias radiactivas de los ensayos nucleares atmosféricos (principalmente en los años 50-60) y de la catástrofe de Chernobil en 1986.

Es de señalar, no obstante, que el cesio 137 no fue detectado en la tierra de Palos (ST4: <0,9 Bq/kg seco), lo cual es lógico en la medida en que España es uno de los territorios de Europa menos afectados por las lluvias de Chernóbil.

De modo que en el caso de las marismas de Corrales no se puede excluir una contaminación de cesio 137 de origen local.

**Radionucleidos "naturales": uranio 238 y descendientes**

El uranio 238 es detectado por espectrometría gamma a partir de su primer descendiente, el torio 234 (ver Anexo 1).

Las actividades medidas en la **tierra** de Palos son de baja intensidad (menos de 44 Bq/kg) y comparables a la media de la corteza terrestre (40 Bq/kg). En el suelo de las marismas de Corrales los valores son más elevados (156 270 Bq/kg).

Se observan concentraciones muy superiores a lo normal, así como desequilibrios importantes en la cadena del uranio 238 en los residuos de:

- **fosfoyeso blanco** (uranio 238 = 770 Bq/kg; plomo 210 = 17.600 Bq/kg) y
- **fosfoyeso negro** (uranio 238 = 3.000 Bq/kg; torio 230 = 11.100 Bq/kg; radio 226 = 18.000 Bq/kg; plomo 210 = 10.100 Bq/kg).

Los **residuos inertizados de ilmenita inatacada** presentan igualmente actividades superiores a lo normal (radio 226 = 540 Bq/kg).

Los análisis efectuados por la CRIIRAD sobre las **aguas** en contacto con los fosfoyesos en la estación ST1 han mostrado una fuerte acidez (pH de 2,47), una elevada carga iónica (conductividad superior a 4.000  $\mu\text{S}/\text{cm}$ ) y una importante contaminación en plomo 210 (30 +/- 9 Bq/l). Ese resultado es coherente con el déficit de plomo 210 (en relación con el radio 226) constatado en los fosfoyesos de la estación ST1. El plomo 210, radionucleido de radiotoxicidad por ingestión muy elevada, es transportado pues por las aguas de arroyada.

#### **Radionucleidos "naturales": torio 232 y descendientes**

Las actividades medidas en la **tierra** de Palos y el suelo de las marismas de Corrales son débiles (entre 30 y 56 Bq/kg) y comparables a la media de la corteza terrestre (40 Bq/kg).

Los **residuos inertizados de ilmenita inatacada** presentan actividades anormalmente elevadas con un desequilibrio de las actividades del actinio 228 (1.280 Bq/kg) en relación con el plomo 212 (590 Bq/kg).



**Fosfoyesos al aire libre (estación ST2) / estación ST1**



**Estructura del fosfoyeso ST1**



**Balsas de fosfoyesos / vertedero de inertes**

### 3.IMPACTO DEL VERTIDO DEL CRI-9

#### Descripción de los muestreos

El **17 de octubre de 2007**, un equipo de Greenpeace Internacional llevó a cabo mediciones radiológicas por medio de un espectómetro portátil en la zona de vertido del CRI-9 (Centro de Recuperación de Inertes) situado al Norte de las marismas de Huelva.

El vertedero CRI-9 recibió en 1998 vertidos al medio natural contaminados por **cesio 137** a consecuencia del accidente acaecido en la fábrica de **ACERINOX de Algeciras (Cádiz)**. Alrededor de **7.000 toneladas** de esos residuos habrían sido vertidos en ese emplazamiento encima de los **fosfoyesos**, y recubiertos después con 1 a 2 metros de tierra.



**CRI-9, mediciones realizadas por GREENPEACE (17 de octubre de 2007)**

Las mediciones efectuadas por Greenpeace han permitido poner de manifiesto la contaminación de cesio 137 en una escorrentía proveniente de las laderas del vertedero CRI-9. Esa fuga alimenta a continuación a un riachuelo que desemboca en el río Tinto.

El equipo de Greenpeace ha extraído 2 muestras de agua y 4 muestras de sedimentos:

- Agua W3 extraída del río, en un punto de su curso inmediatamente posterior a aquel que presenta la mayor contaminación de cesio 137.
- Agua W4 extraída a unos 4 metros de profundidad mediante el piezómetro S4-5.
- Sedimentos S1/0 extraídos en la superficie, en la pendiente en que tiene lugar la fuga de líquido.
- Sedimentos S2/0; S2/10 y S2/20 extraídos en las orillas del riachuelo al pie de la loma, correspondientes a 3 capas sucesivas: superficie; 0-10 cm; 10-20 cm.

### **Tratamiento de las muestras en la CRIIRAD**

Las muestras fueron recibidas en el laboratorio de la CRIIRAD el 25 de octubre de 2007.

Los sedimentos fueron homogeneizados, envasados frescos en geometría Petri y analizados por espectrometría gamma sin demora. A continuación fueron sometidos a desecación en autoclave a 105 °C con el fin de expresar los resultados en bequerelios por kilogramo seco.

Los resultados detallados de los análisis por espectrometría gamma efectuados en los sedimentos se muestran en el cuadro T3 más abajo.

Las aguas han sido analizadas inicialmente en bruto, y a continuación las aguas W3 han sido filtradas a 8 micrones para el análisis por separado de las fracciones solubles e insolubles.

Los resultados detallados de los análisis por espectrometría gamma efectuados en las aguas se muestran en el Anexo 3.

### **Contaminación por cesio 137**

Sólo ha sido detectado un radionucleido artificial emisor gamma en los sedimentos y aguas, el **cesio 137**.

En todas las muestras de sedimentos se ha detectado contaminación en niveles comprendidos entre 276 y **3.195 Bq/kg seco**.

Estas elevadas actividades —muy superiores a los valores medidos en la tierra de Palos (<0,9 Bq/kg seco) y en la de las marismas de Corrales (10 Bq/kg seco)— no pueden ser imputables a los restos de las lluvias radiactivas de los ensayos nucleares atmosféricos (principalmente en los años 50-60) y de la catástrofe de Chernóbil en 1986. Son prueba de una contaminación por residuos radiactivos acumulados en el vertedero CRI-9.

La contaminación prosigue actualmente, pues las aguas de superficie están contaminadas por cesio 137 (**1,73 Bq/l** en la fracción insoluble y **0,41 Bq/l** en la fracción soluble).

Por el contrario, en las aguas subterráneas no se ha detectado cesio 137 (< 0,1 Bq/l).

Se puede conjeturar que el agua de lluvia que atraviesa la capa de tierra llega a los residuos de ACERINOX, arrastra el cesio 137 (elemento muy soluble), y después fluye por las laderas del vertido por encima de las capas de fosfoyesos.

### **Radionucleidos "naturales"**

En los **sedimentos**, la actividad de los radionucleidos de la cadena del uranio 238 y del torio 232 son relativamente débiles y comparables a la media de la corteza terrestre (40 Bq/kg).

Pero se observa un exceso de **uranio 238** (torio 234) en relación con el plomo 210 en las 4 muestras de sedimentos, y particularmente en la estación S2 en la capa 10-20 cm (**275 Bq/kg seco**) y en menor medida en la capa 0-10 cm (131 Bq/kg seco).

Estos resultados sugieren una transferencia de uranio desde los vertidos, transferencia que fue más importante en el pasado. Ese fenómeno podría explicarse por una movilización del uranio contenido en los fosfoyesos provocada por el agua de lluvia (los análisis efectuados por la CRIIRAD han demostrado que ciertos residuos asociados a los fosfoyesos pueden presentar actividades de uranio 238 de varios miles de bequerelios por kilogramo).

Esta hipótesis se apoya en la presencia de elevados niveles de uranio 238 (torio 234) en la fracción insoluble de las **aguas** de superficie W3 (**14,6 Bq/l**).

**Table 3 / Sediments samples S1 and S2**

**HUELVA / SPAIN (CRI-9 dump)**

**Sampling by GREENPEACE**

**Gamma spectrometry analysis by the CRIIRAD Laboratory (France)**

CRIIRAD code	251007A1	251007A2	251007A3	251007A4
Sample code	S1/0	S2/0	S2/0	S2/0
Sampling location	HUELVA Top layer of sediment taken on the slope where water leaks out	HUELVA Top layer of sediment taken at river bank at foot of slope	HUELVA Second layer of sediment (0-10cm) same spot as S2/0	HUELVA Third layer of sediment (10-20cm) same spot as S2/0
Sampling day	17/10/2007	17/10/2007	17/10/2007	17/10/2007
Sample type	Sediment (approx. 1 kg wet)	Sediment (approx. 1 kg wet)	Sediment (approx. 1 kg wet)	Sediment (approx. 1 kg wet)
Preparation of sample by CRIIRAD lab.	Homogeneization	Homogeneization	Homogeneization	Homogeneization
Analysis number	23337	23339	23342	23341
Counting geometry	B P	B P	C P	B P
Wet (W) or Dry (D) when analysed	W	W	W	W
Weight (grams)	124,42	136,60	119,07	123,37
Dry / Wet ratio (%)	64,00	77,00	69,50	66,70
Counting time (seconds)	29 325	54 644	27 627	28 217
Counting day	25/10/2007	25/10/2007	26/10/2007	26/10/2007

Natural nuclides	Energy (KeV)
------------------	--------------

**Results in Bq/kg dry (Becquerel per kilogram dry)**

Uranium 238 decay chain					
Thorium 234 *	63,3	64 ± 30	41 ± 15	131 ± 39	275 ± 52
Radium 226**	186,1	29 ± 9	18 ± 4	38 ± 9	62 ± 11
Lead 214	351,9	33 ± 11	17 ± 4	41 ± 10	69 ± 11
Bismuth 214	609,3	26 ± 8	19 ± 4	35 ± 8	55 ± 10
Lead 210*	46,5	42 ± 28	< 40	41 ± 26	119 ± 33
Uranium 235 decay chain					
Uranium 235	163,4	< 20	< 7,7	< 13,8	< 13,1
Thorium 232 decay chain					
Actinium 228	911,2	56 ± 12	17 ± 5	47 ± 12	49 ± 12
Lead 212	238,6	48 ± 9	21 ± 4	56 ± 10	55 ± 9
Thallium 208	583,0	15 ± 4	7,6 ± 1,9	15 ± 4	19 ± 4
Potassium 40	1 460,8	520 ± 97	302 ± 57	846 ± 133	818 ± 132
Beryllium 7	477,6	< 20	< 7	< 12	< 9

Artificial nuclides <sup>1</sup>	Energy (KeV)				
Caesium 137	661,6	3 195 ± 339	680 ± 74	1 788 ± 195	276 ± 34
Caesium 134	604,7	< 1,3	< 0,5	< 0,7	< 0,9
Cobalt 58	810,8	< 0,8	< 0,4	< 0,7	< 0,9
Cobalt 60	1 332,5	< 0,8	< 0,4	< 0,7	< 0,7
Manganese 54	834,8	< 0,9	< 0,4	< 0,6	< 1,0
Antimony 125	427,9	< 7,0	< 2,2	< 4,0	< 3,0
Iodine 131	364,5	< 4,0	< 1,4	< 3	< 2
Cerium 144	133,5	< 7,8	< 3,0	< 5,0	< 5,0
Silver 110m	657,7	< 1,5	< 0,6	< 1,0	< 0,9
Americium 241*	59,5	< 2,1	< 0,9	< 1,23	< 1,6
Iodine 129*	29,6	< 2,2	< 0,8	< 1,3	< 1,4
Ruthenium / Rhodium 106	621,9	< 13,4	< 5,2	< 7,9	< 8,6

\* : For low energy gamma emitters (<100 keV), given values could be underestimated due to self absorption

\*\* : Radium 226 is estimated using the mean value of lead 214 and bismuth 214 without waiting for equilibrium (at least 21 days after preparation).

1 : No other gamma emitting artificial nuclides have been identified on the gamma spectra (gamma energy between 20 keV and 2 MeV)

## 4. SÍNTESIS Y CONCLUSIONES

### Resumen

**Greenpeace España** ha solicitado al laboratorio de la CRIIRAD (Francia) la realización de mediciones radiométricas y la extracción de muestras en las balsas de fosfoyesos, residuos producidos por las fábricas del complejo industrial de Huelva.

Más de **120 millones de toneladas** de esos residuos, producidos principalmente por **FERTIBERIA**, han sido efectivamente vertidos directamente en el suelo en una superficie de 1.200 hectáreas en las marismas de Huelva, entre los ríos Tinto y Odiel.

La realización de controles radiológicos es indispensable, pues los fosfoyesos son susceptibles de contener radionucleidos de las familias del uranio (238 y 235) y del torio 232 en concentraciones anormalmente elevadas.

Las mediciones sobre el terreno y las extracciones han sido efectuadas por la CRIIRAD los días **3 y 4 de octubre de 2007** en presencia de representantes de Greenpeace. La prioridad de la CRIIRAD era caracterizar los fosfoyesos.

Una breve misión de exploración se llevó a cabo igualmente sobre la cubierta del **vertido del CRI-9** (Centro de Recuperación de Inertes) situado al Norte de las balsas de fosfoyesos.

Este vertedero ha recibido entre otras cosas, en 1998, residuos contaminados por **cesio 137** a consecuencia del accidente acaecido en la fábrica de **ACERINOX en Algeciras (Cádiz)**. Alrededor de 7.000 toneladas de esos residuos habrían sido vertidas en el emplazamiento encima de los **fosfoyesos**, y recubiertas después con 1 a 2 metros de tierra. El vertedero contiene igualmente diferentes clases de residuos, entre los cuales se halla la ilmenita inatacada procedentes de Tioxide (tras pasar por un proceso de inertización en la planta de Palos de la Frontera).

El **17 de octubre de 2007**, un equipo de Greenpeace International efectuó controles por medio de un espectómetro gamma portátil en el CRI-9 y detectó fugas radiactivas de cesio 137.

Al laboratorio de la CRIIRAD fueron enviadas muestras de sedimentos y agua, extraídas por Greenpeace International, para realizar análisis por espectrometría gamma con el fin de medir la concentración de cesio 137 y otras sustancias radiactivas.

Todas las muestras (suelos, sedimentos contaminados por las fugas del CRI-9, residuos de fosfoyeso, ilmenita inatacada, agua) han sido analizadas por **espectrometría gamma** de alta resolución (Hp Ge) en el laboratorio de la CRIIRAD. El laboratorio está reconocido oficialmente por el Ministerio de Sanidad y el Ministerio de Medioambiente (Francia).

### Problemas que plantean los fosfoyesos

En las tierras naturales de Palos, las actividades de los descendientes del uranio 238 (torio 230, radio 226, plomo 210) son comparables a la media de la corteza terrestre (40 Bq/kg seco). Es el caso igualmente de los descendientes del torio 232 (actinio 228, plomo 212).

Por el contrario, en los fosfoyesos, la CRIIRAD ha medido concentraciones elevadas de radionucleidos de las cadenas de desintegración del uranio 238 y 235.

La concentración de uranio está comprendida entre 770 y 3.000 Bq/kg.

La de torio 230 puede rebasar los 11.000 Bq/kg; la de radio 226 está comprendida entre 1.000 y 18.000 Bq/kg, y la de plomo 210 entre 10.000 y 17.600 Bq/kg.

Además, en los residuos inertizados de ilmenita inatacada se observan concentraciones elevadas de los radionucleidos de la familia del torio 232 (actinio 228 = 1.280 Bq/kg).

Los fosfoyesos se caracterizan por:

- Radionucleidos de periodo físico muy largo (4.500 millones de años el uranio 238, 75.000 años el torio 230 y 1.600 años el radio 226).
- Radionucleidos extremadamente radiotóxicos por ingestión. El polonio 210 (descendiente del plomo 210) presenta una radiotoxicidad superior a la del plutonio 239.
- Además, esos vertidos producen constantemente un gas radiactivo, el radón 222, que se dispersa en la atmósfera. El carácter cancerígeno de ese gas es sobradamente conocido, y los especialistas estiman que sería responsable del 10% de los cánceres de pulmón.
- Algunos de estos residuos ni siquiera están recubiertos de materiales inertes, lo que hace que el nivel de radiación gamma en esos lugares sea entre 5 y 38 veces superior a lo normal. La cantidad de dosis equivalente medida por la CRIIRAD a 1 metro del suelo es de 2 a 7 veces superior a lo normal (hasta 0,9  $\mu$ Sv/h). Basta con permanecer allí 9 minutos al día cada día del año, para recibir una dosis acumulada superior a 10 microSieverts por año. Ese es el valor a partir del cual la Directiva EURATOM 96-29 considera que los riesgos sanitarios (cánceres) dejan de ser despreciables.
- Los fosfoyesos contienen además elementos químicos, entre ellos metales pesados. Las aguas que se estancan sobre los vertidos de fosfoyesos son ácidas (pH = 2,47), muy cargadas (conductividad superior a 4.000  $\mu$ S/cm) y transportan plomo 210 (30 Bq/l), un elemento extremadamente radiotóxico por ingestión y cuya desintegración da lugar al polonio 210.

Los fosfoyesos son pues residuos que contienen sustancias radiactivas de una vida media muy larga y de radiotoxicidad muy fuerte. Estos materiales deberían gestionarse como residuos radiactivos. Para ello, deberían ser almacenados en contenedores estancos, y colocados en un emplazamiento para tal fin que presente garantías de confinamiento a muy largo plazo.

Las observaciones sobre el terreno demuestran que lo que se ha hecho en Huelva es lo contrario.

Los residuos han sido vertidos incontroladamente, sin una capa impermeable infrayacente (bajo los mismos), en una zona pantanosa, cerca de la costa, sin confinamiento perenne de la superficie (capa de tierra de algunas decenas de centímetros que es arrastrada por la lluvia), y sin dispositivos que impidan el acceso a los paseantes, pescadores, etc.

### **El problema del cesio 137**

Por añadidura, las autoridades han sumado a esa contaminación por radionucleidos relacionados con los fosfoyesos, una contaminación por cesio 137. El cesio 137 es un radionucleido artificial, emisor beta y gamma, de periodo físico igual a 30 años, es decir que su radiactividad se divide por 2 al cabo de 30 años, por 4 al cabo de 60 años, etc.

Las mediciones efectuadas en el laboratorio de la CRIIRAD sobre muestras de agua y de sedimentos extraídas por Greenpeace en el borde del vertido del CRI-9 confirman que las aguas de escorrentía arrastran cesio 137 (cesio 137: 1,73 Bq/l en la fracción insoluble y 0,41 Bq/l en la fracción soluble). Una parte se acumula en los sedimentos río abajo (hasta 3.200 Bq/kg seco de cesio 137).

Igualmente existen fugas de uranio 238 contenido en los fosfoyesos acumulados en el CRI-9 (Uranio 238: 14,6 Bq/l en la fracción insoluble de las aguas de escorrentía).

### **Conclusiones**

Los fosfoyesos y los residuos de ACERINOX que contienen cesio 137 plantean serios problemas de radioprotección. Frente a esta situación, la CRIIRAD recomienda:

1. La realización de un peritaje radioecológico completo que incluya mediciones de las tasas de emanación de radón a la atmósfera, controles de radiactividad de la flora y la fauna, de las aguas de superficie y subterráneas, de los bioindicadores atmosféricos y acuáticos, de los sedimentos y de los productos alimenticios de ese sector. En ese peritaje habrá de hacer también el inventario del conjunto de sustancias radiactivas (tonelaje, actividad másica, actividad total).
2. La puesta en marcha de un estudio de viabilidad respecto a la posibilidad de recuperar los fosfoyesos y los residuos de ACERINOX y trasladarlos a un lugar de almacenamiento acondicionado y controlado.
3. Si el traslado de los residuos a un lugar acondicionado no es viable, es preciso prever trabajos cuyo objetivo sea:
  - mejorar el confinamiento de los residuos, ralentizar y limitar al máximo la transferencia de radionucleidos al medioambiente y a la población (transferencia a la atmósfera y a través de la escorrentía);
  - establecer un plan de vigilancia química y radiológica en profundidad;
  - establecer dispositivos que permitan garantizar la memoria del lugar a largo plazo (varias centenas de años para el cesio 137, varios millones o miles de millones de años para los fosfoyesos), y prohibir la construcción y ciertos trabajos (excavaciones, catas) en el lugar.
4. Buscar responsabilidades, en particular a nivel de las autoridades que autorizaron tales disfunciones. Al tratarse de sustancias que contienen radionucleidos naturales en tasas elevadas, como los fosfoyesos, la conciencia de los riesgos radiológicos es bastante reciente (en 1986 la CIPR, en 1996 la Directiva Euratom de mayo de 1996) y los Estados miembros tenían hasta el 13 de mayo de 2000 para adaptar su legislación. En el caso del cesio 137 resulta difícil hallar una excusa para los responsables que autorizaron el vertido deliberado de esos residuos radiactivos en condiciones tan desfavorables para la protección del medioambiente y de la población.

## **ANEXO 1 / Cadenas de desintegración del uranio 238, uranio 235 y torio 232**

Nota : los radionucleidos que figuran en negrita son detectables por espectrometría gamma

### **CADENA RADIATIVA Familia del Uranio 238**

<b>Radioelementos</b>	<b>Modo de desintegración</b>	<b>Periodo de radiactividad</b>
Uranio 238	$\alpha$	4.500 millones de años
<b>Torio 234</b>	$\beta$	<b>24 días</b>
<b>Protactinio234</b>	$\beta$	<b>1,2 minutos</b>
Uranio 234	$\alpha$	250.000 años
<b>Torio 230</b>	$\alpha$	<b>75.000 años</b>
<b>Radio 226</b>	$\alpha$	<b>1.600 años</b>
Radón 222	$\alpha$	3,8 días
Polonio 218	$\alpha$	3 minutos
<b>Plomo 214</b>	$\beta$	<b>27 minutos</b>
<b>Bismuto 214</b>	$\beta$	<b>20 minutos</b>
Polonio 214	$\alpha$	1,6 $10^{-4}$ segundos
<b>Plomo 210</b>	$\beta$	<b>22,3 años</b>
Bismuto 210	$\beta$	5 días
Polonio 210	$\alpha$	138,5 días
Plomo 206		Estable

## CADENA RADIATIVA

### Familia del uranio 235

Radioelementos	Modo de desintegración	Periodo de radiactividad
<b>Uranio 235</b>	$\alpha$	<b>700 millones de años</b>
Torio 231	$\beta$	25,6 horas
<b>Protactinio 231</b>	$\alpha$	<b>33.000 años</b>
Actinio 227	$\beta$	21,8 años
<b>Torio 227</b>	$\alpha$	<b>18,7 días</b>
<b>Radio 223</b>	$\alpha$	<b>11,4 días</b>
<b>Radón 219</b>	$\alpha$	<b>3,9 segundos</b>
Polonio 215	$\alpha$	1,8 $10^{-3}$ segundos
<b>Plomo 211</b>	$\beta$	<b>36 minutos</b>
Bismuto 211	$\alpha$	2,2 minutos
Talio 207	$\beta$	4,8 minutos
Plomo 207		Estable

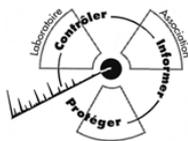
## CADENA RADIATIVA

### Familia del torio 232

Radioelementos	Modo de desintegración	Periodo de radiactividad
Torio 232	$\alpha$	14.000 millones de años
Radio 228	$\beta$	5,8 años
<b>Actinio 228</b>	<b><math>\beta</math></b>	<b>6,1 horas</b>
Torio 228	$\alpha$	1,9 año
Radio 224	$\alpha$	3,7 días
Radón 220	$\alpha$	55,6 segundos
Polonio 216	$\alpha$	0,15 segundos
<b>Plomo 212</b>	<b><math>\beta</math></b>	<b>10,6 horas</b>
<b>Bismuto 212</b>	<b><math>\alpha \beta</math></b>	<b>1 hora</b>
<b>Talio 208</b>	<b><math>\beta</math></b>	<b>3 minutos</b>
Polonio 212	$\alpha$	$3 \cdot 10^{-7}$ segundos
Plomo 208		Estable

# ANEXO 2 / Análisis por espectrometría gamma de suelos, residuos y agua extraídos por la CRIIRAD en Huelva

## LABORATOIRE DE LA CRIIRAD



Site internet : [www.criirad.org](http://www.criirad.org)  
E-mail : [laboratoire@criirad.org](mailto:laboratoire@criirad.org)

**Commission de Recherche  
et d'Information Indépendantes  
sur la Radioactivité**

Le Cime  
471 avenue Victor Hugo  
26000 Valence - France  
Tél. : +33 (0)4 75 41 82 50  
Fax : +33 (0)4 75 81 26 48

Valence, le 28/11/2007

Laboratoire agréé par les ministères chargés de la santé et de l'environnement pour les mesures de radioactivité de l'environnement - portée détaillée de l'agrément disponible sur demande ou consultable sur [www.criirad.org](http://www.criirad.org).

Méthode d'essai : spectrométrie gamma en containers de géométrie normalisée.  
DéTECTEUR semi-conducteur au germanium hyperpur refroidi à l'azote liquide.  
Efficacité relative de 22 à 24 %. Résolution de 1,7 keV pour la raie à 1,33 MeV.

### RAPPORT D'ESSAI N° 23378-1 PAGE 1 / PAGE 1 RESULTATS D'ANALYSE EN SPECTROMETRIE GAMMA

#### Identification de l'échantillon analysé

Etude HUELVA  
Code Prélèvement ST 0  
Code Enregistrement 081007A1  
N° d'analyse C 23378  
Nature de l'échantillon Terre de marais  
Strate 0-10 cm  
Taux de matière sèche 41,9%  
Lieu de prélèvement Huelva  
Localisation du prélèvement Espagne  
Corrales RD (marais)

Latitude, longitude (degrés minutes) N° 138

Le présent rapport comporte 1 page et ne concerne que l'échantillon soumis à l'analyse.  
La reproduction de ce rapport n'est autorisée que sous sa forme intégrale.

#### Prélèvement

Date de prélèvement 03/10/2007  
Opérateur de prélèvement Laboratoire de la CRIIRAD  
Mode de prélèvement Pelle

#### Pré-traitement

Date de préparation 11/10/2007  
Décal avant analyse (j) 34  
Conditions de préparation Mis à l'étuve. Température 105°C.  
Tamisé à 2 mm.

#### Analyse en spectrométrie gamma

Date de mesure 13/11/2007  
Géométrie de comptage Pétri  
Etat de l'échantillon à l'analyse Sec  
Masse analysée (g) 47,84  
Temps de comptage (s) 55 669

#### Mesures radiométriques in situ au point de prélèvement

Appareil de mesure Novelec DG5  
Flux gamma au contact du sol (C/S) 90  
Flux gamma à 1 m du sol (C/S) 70

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

Eléments radioactifs naturels*	Activité et incertitude ou limite de détection si <	
<b>Chaîne de l'Uranium 238</b>		
Thorium 234**	270	± 60
Protactinium 234m		< 500
Thorium 230**		< 390
Radium 226***	156	± 22
Plomb 214	161	± 23
Bismuth 214	152	± 22
Plomb 210**	219	± 45
<b>Chaîne de l'Uranium 235</b>		
Uranium 235		< 42
Protactinium 231		< 33
Thorium 227		< 8
Radium 223		< 15
Radon 219		< 10
Plomb 211		< 22
<b>Chaîne du Thorium 232</b>		
Actinium 228	56	± 16
Plomb 212	50	± 8
Thallium 208	17,8	± 4,4
Potassium 40		< 600
Béryllium 7		< 6
<b>Eléments radioactifs artificiels</b>		
	Activité et incertitude ou limite de détection si <	
Césium 137	10,1	± 3,0
Césium 134		< 0,8

Activités ramenées à la date de prélèvement

\* Eléments radioactifs existant à l'état naturel. Leur présence dans l'échantillon peut être naturelle ou liée à des activités humaines.

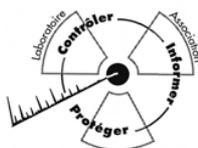
\*\* S'agissant de raies gamma à basse énergie (<100 keV), les valeurs publiées constituent des valeurs par défaut, compte tenu des phénomènes d'autoatténuation possibles au sein de l'échantillon.

\*\*\* Le Radium 226 est évalué à partir de ses descendants le Plomb 214 et le Bismuth 214 à l'équilibre, soit plus de 21 jours après conditionnement de l'échantillon.

**Stéphane PATRIGEON**  
Technicien de laboratoire

**Bruno CHAREYRON**  
Responsable du laboratoire

## LABORATOIRE DE LA CRIIRAD



Site internet : [www.criirad.org](http://www.criirad.org)  
E-mail : [laboratoire@criirad.org](mailto:laboratoire@criirad.org)

### Commission de Recherche et d'Information Indépendantes sur la Radioactivité

Le Cime  
471 avenue Victor Hugo  
26000 Valence - France  
Tél. : +33 (0)4 75 41 82 50  
Fax : +33 (0)4 75 81 26 48

Valence, le 28/11/2007

Laboratoire agréé par les ministères chargés de la santé et de l'environnement pour les mesures de radioactivité de l'environnement - portée détaillée de l'agrément disponible sur demande ou consultable sur [www.criirad.org](http://www.criirad.org).

Méthode d'essai : spectrométrie gamma en containers de géométrie normalisée.  
DéTECTEUR semi-conducteur au germanium hyperpur refroidi à l'azote liquide.  
Efficacité relative de 22 à 24 %. Résolution de 1,7 keV pour la raie à 1,33 MeV.

## RAPPORT D'ESSAI N° 23372-1 PAGE 1 / PAGE 1 RESULTATS D'ANALYSE EN SPECTROMETRIE GAMMA

### Identification de l'échantillon analysé

Etude	HUELVA
Code Prélèvement	ST1
Code Enregistrement	081007A6
N° d'analyse	C 23372
Nature de l'échantillon	Déchet phosphogypse (noir)
Strate	0-10 cm
Taux de matière sèche	53,2%
Lieu de prélèvement	Huelva
Localisation du prélèvement	Espagne (Est des lagunes de décantation)

Latitude, longitude (degrés minutes) N° 139

Le présent rapport comporte 1 page et ne concerne que l'échantillon soumis à l'analyse.  
La reproduction de ce rapport n'est autorisée que sous sa forme intégrale.

### Prélèvement

Date de prélèvement	03/10/2007
Opérateur de prélèvement	Laboratoire de la CRIIRAD
Mode de prélèvement	Pelle

### Pré-traitement

Date de préparation	11/10/2007
Délai avant analyse (j)	32
Conditions de préparation	Mis à l'étuve. Température 105°C. Tamisé à 2 mm.

### Analyse en spectrométrie gamma

Date de mesure	12/11/2007
Géométrie de comptage	Pétri
Etat de l'échantillon à l'analyse	Sec
Masse analysée (g)	55,07
Temps de comptage (s)	27 553

### Mesures radiométriques in situ au point de prélèvement

Appareil de mesure	Novelec DG5
Flux gamma au contact du sol (C/S)	3500
Flux gamma à 1 m du sol (C/S)	1300

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

Eléments radioactifs naturels*	Activité et incertitude ou limite de détection si <	
<b>Chaîne de l'Uranium 238</b>		
Thorium 234**	3 020	± 470
Protactinium 234m	<	3 700
Thorium 230**	11 100	± 3 000
Radium 226***	18 000	± 1 900
Plomb 214	18 700	± 1 900
Bismuth 214	17 300	± 1 800
Plomb 210**	10 100	± 1 200
<b>Chaîne de l'Uranium 235</b>		
Uranium 235	<	300
Protactinium 231	<	190
Thorium 227	390	± 120
Radium 223	410	± 190
Radon 219	<	450
Plomb 211	<	450
<b>Chaîne du Thorium 232</b>		
Actinium 228	<	100
Plomb 212	129	± 25
Thallium 208	34	± 10
Potassium 40	<	310
Béryllium 7	<	34
<b>Eléments radioactifs artificiels</b>		
Activité et incertitude ou limite de détection si <		
Césium 137	<	4,4
Césium 134	<	4,2

Activités ramenées à la date de prélèvement

\* Eléments radioactifs existant à l'état naturel. Leur présence dans l'échantillon peut être naturelle ou liée à des activités humaines.

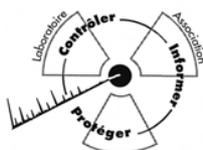
\*\* S'agissant de raies gamma à basse énergie (<100 keV), les valeurs publiées constituent des valeurs par défaut, compte tenu des phénomènes d'autoatténuation possibles au sein de l'échantillon.

\*\*\* Le Radium 226 est évalué à partir de ses descendants le Plomb 214 et le Bismuth 214 à l'équilibre, soit plus de 21 jours après conditionnement de l'échantillon.

**Stéphane PATRIGEON**  
Technicien de laboratoire

**Bruno CHAREYRON**  
Responsable du laboratoire

## LABORATOIRE DE LA CRIIRAD



Site internet : [www.criirad.org](http://www.criirad.org)  
E-mail : [laboratoire@criirad.org](mailto:laboratoire@criirad.org)

### Commission de Recherche et d'Information Indépendantes sur la Radioactivité

Le Cime  
471 avenue Victor Hugo  
26000 Valence - France  
Tél. : +33 (0)4 75 41 82 50  
Fax : +33 (0)4 75 81 26 48

Valence, le 28/11/2007

Laboratoire agréé par les ministères chargés de la santé et de l'environnement pour les mesures de radioactivité de l'environnement – portée détaillée de l'agrément disponible sur demande ou consultable sur [www.criirad.org](http://www.criirad.org).

Méthode d'essai : spectrométrie gamma en containers de géométrie normalisée.  
DéTECTEUR semi-conducteur au germanium hyperpur refroidi à l'azote liquide.  
Efficacité relative de 22 à 24 %. Résolution de 1,7 keV pour la raie à 1,33 MeV.

## RAPPORT D'ESSAI N° 23379-1 PAGE 1 / PAGE 1 RESULTATS D'ANALYSE EN SPECTROMETRIE GAMMA

### Identification de l'échantillon analysé

Etude HUELVA  
Code Prélèvement ST2  
Code Enregistrement 081007A4  
N° d'analyse B 23379  
Nature de l'échantillon Déchet phosphogypse (blanc)  
Strate 0-10 cm  
Taux de matière sèche 66,6%  
Lieu de prélèvement Huelva  
Localisation du prélèvement Espagne  
(Est lagunes de décantation)  
Latitude, longitude (degrés minutes) N° 140

Le présent rapport comporte 1 page et ne concerne que l'échantillon soumis à l'analyse.  
La reproduction de ce rapport n'est autorisée que sous sa forme intégrale.

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

Éléments radioactifs naturels*	Activité et incertitude ou limite de détection si <	
<b>Chaîne de l'Uranium 238</b>		
Thorium 234**	770 ±	120
Protactinium 234m	<	1 300
Thorium 230**	<	310
Radium 226***	1 070 ±	120
Plomb 214	1 130 ±	120
Bismuth 214	1 010 ±	110
Plomb 210**	17 600 ±	1 900
<b>Chaîne de l'Uranium 235</b>		
Uranium 235	<	70
Protactinium 231	<	50
Thorium 227	49 ±	21
Radium 223	<	90
Radon 219	58 ±	28
Plomb 211	<	31
<b>Chaîne du Thorium 232</b>		
Actinium 228	19 ±	9
Plomb 212	19,0 ±	4,6
Thallium 208	5,3 ±	2,5
Potassium 40	<	100
Béryllium 7	<	9

Éléments radioactifs artificiels	Activité et incertitude ou limite de détection si <	
Césium 137	<	1,1
Césium 134	<	1,1

\* Éléments radioactifs existant à l'état naturel. Leur présence dans l'échantillon peut être naturelle ou liée à des activités humaines.

\*\* 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.

\*\*\* Le Radium 226 est évalué à partir de ses descendants le Plomb 214 et le Bismuth 214 à l'équilibre, soit plus de 21 jours après conditionnement de l'échantillon.

### Prélèvement

Date de prélèvement 03/10/2007  
Opérateur de prélèvement Laboratoire de la CRIIRAD  
Mode de prélèvement Pelle

### Pré-traitement

Date de préparation 11/10/2007  
Décal avant analyse (j) 34  
Conditions de préparation Mis à l'étuve. Température 105°C.  
Tamisé à 2 mm.

### Analyse en spectrométrie gamma

Date de mesure 13/11/2007  
Géométrie de comptage Pétri  
Etat de l'échantillon à l'analyse Sec  
Masse analysée (g) 64,06  
Temps de comptage (s) 55 349

### Mesures radiométriques in situ au point de prélèvement

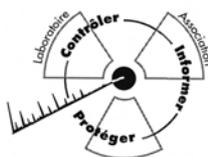
Appareil de mesure Novelec DG5  
Flux gamma au contact du sol (C/S) 500  
Flux gamma à 1 m du sol (C/S) 100

Activités ramenées à la date de prélèvement

**Stéphane PATRIGEON**  
Technicien de laboratoire

**Bruno CHAREYRON**  
Responsable du laboratoire

## LABORATOIRE DE LA CRIIRAD



Site internet : [www.criirad.org](http://www.criirad.org)  
E-mail : [laboratoire@criirad.org](mailto:laboratoire@criirad.org)

### Commission de Recherche et d'Information Indépendantes sur la Radioactivité

Le Cime  
471 avenue Victor Hugo  
26000 Valence - France  
Tél. : +33 (0)4 75 41 82 50  
Fax : +33 (0)4 75 81 26 48

Valence, le 28/11/2007

Laboratoire agréé par les ministères chargés de la santé et de l'environnement pour les mesures de radioactivité de l'environnement – portée détaillée de l'agrément disponible sur demande ou consultable sur [www.criirad.org](http://www.criirad.org).

Méthode d'essai : spectrométrie gamma en containers de géométrie normalisée.  
DéTECTEUR semi-conducteur au germanium hyperpur refroidi à l'azote liquide.  
Efficacité relative de 22 à 24 %. Résolution de 1,7 keV pour la raie à 1,33 MeV.

## RAPPORT D'ESSAI N° 23376-1 PAGE 1 / PAGE 1 RESULTATS D'ANALYSE EN SPECTROMETRIE GAMMA

### Identification de l'échantillon analysé

Etude HUELVA

Code Prélèvement ST3  
Code Enregistrement 081007A3  
N° d'analyse B 23376

Nature de l'échantillon Déchet titane  
Strate 0-10 cm

Taux de matière sèche 68,4%

Lieu de prélèvement Huelva  
Localisation du prélèvement Espagne  
Décharge CRI-9

Latitude, longitude (degrés minutes) N° 141

Le présent rapport comporte 1 page et ne concerne que l'échantillon soumis à l'analyse.  
La reproduction de ce rapport n'est autorisée que sous sa forme intégrale.

### Prélèvement

Date de prélèvement 04/10/2007  
Opérateur de prélèvement Laboratoire de la CRIIRAD  
Mode de prélèvement Pelle

### Pré-traitement

Date de préparation 11/10/2007  
Délai avant analyse (j) 33  
Conditions de préparation Mis à l'étuve. Température 105°C.  
Tamisé à 2 mm.

### Analyse en spectrométrie gamma

Date de mesure 13/11/2007  
Géométrie de comptage Pétri  
Etat de l'échantillon à l'analyse Sec  
Masse analysée (g) 51,93  
Temps de comptage (s) 29 858

### Mesures radiométriques in situ au point de prélèvement

Appareil de mesure Novelec DG5  
Flux gamma au contact du sol (C/S) 630  
Flux gamma à 1 m du sol (C/S) 500

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

Eléments radioactifs naturels*	Activité et incertitude ou limite de détection si <	
<b>Chaîne de l'Uranium 238</b>		
Thorium 234**	150 ±	60
Protactinium 234m	<	300
Thorium 230**	<	330
Radium 226***	540 ±	70
Plomb 214	570 ±	70
Bismuth 214	500 ±	70
Plomb 210**	370 ±	70
<b>Chaîne de l'Uranium 235</b>		
Uranium 235	<	27
Protactinium 231	<	90
Thorium 227	<	21
Radium 223	<	38
Radon 219	<	25
Plomb 211	<	50
<b>Chaîne du Thorium 232</b>		
Actinium 228	1 280 ±	160
Plomb 212	590 ±	70
Thallium 208	175 ±	24
Potassium 40	<	390
Béryllium 7	<	17
<b>Eléments radioactifs artificiels</b>		
Césium 137	<	2,6
Césium 134	<	2,2

Activités ramenées à la date de prélèvement

\* Eléments radioactifs existant à l'état naturel. Leur présence dans l'échantillon peut être naturelle ou liée à des activités humaines.

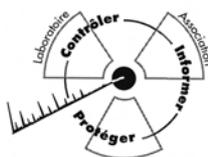
\*\* S'agissant de raies gamma à basse énergie (<100 keV), les valeurs publiées constituent des valeurs par défaut, compte tenu des phénomènes d'autoatténuation possibles au sein de l'échantillon.

\*\*\* Le Radium 226 est évalué à partir de ses descendants le Plomb 214 et le Bismuth 214 à l'équilibre, soit plus de 21 jours après conditionnement de l'échantillon.

**Stéphane PATRIGEON**  
Technicien de laboratoire

**Bruno CHAREYRON**  
Responsable du laboratoire

## LABORATOIRE DE LA CRIIRAD



Site internet : [www.criirad.org](http://www.criirad.org)  
E-mail : [laboratoire@criirad.org](mailto:laboratoire@criirad.org)

### Commission de Recherche et d'Information Indépendantes sur la Radioactivité

Le Cime  
471 avenue Victor Hugo  
26000 Valence - France  
Tél. : +33 (0)4 75 41 82 50  
Fax : +33 (0)4 75 81 26 48

Valence, le 28/11/2007

Laboratoire agréé par les ministères chargés de la santé et de l'environnement pour les mesures de radioactivité de l'environnement – portée détaillée de l'agrément disponible sur demande ou consultable sur [www.criirad.org](http://www.criirad.org).

Méthode d'essai : spectrométrie gamma en containers de géométrie normalisée.  
DéTECTEUR semi-conducteur au germanium hyperpur refroidi à l'azote liquide.  
Efficacité relative de 22 à 24 %. Résolution de 1,7 keV pour la raie à 1,33 MeV.

## RAPPORT D'ESSAI N° 23373-1 PAGE 1 / PAGE 1 RESULTATS D'ANALYSE EN SPECTROMETRIE GAMMA

### Identification de l'échantillon analysé

Etude HUELVA

Code Prélèvement ST4  
Code Enregistrement 081007A2  
N° d'analyse B 23373

Nature de l'échantillon Terre superficielle  
Strate 0-10 cm

Taux de matière sèche 88,6%

Lieu de prélèvement Huelva  
Localisation du prélèvement Espagne  
Palos (verger)

Latitude, longitude (degrés minutes) N° 142

Le présent rapport comporte 1 page et ne concerne que l'échantillon soumis à l'analyse.  
La reproduction de ce rapport n'est autorisée que sous sa forme intégrale.

### Prélèvement

Date de prélèvement 04/10/2007  
Opérateur de prélèvement Laboratoire de la CRIIRAD  
Mode de prélèvement Pelle

### Pré-traitement

Date de préparation 11/10/2007  
Délai avant analyse (j) 32  
Conditions de préparation Mis à l'étuve. Température 105°C.  
Tamisé à 2 mm.

### Analyse en spectrométrie gamma

Date de mesure 12/11/2007  
Géométrie de comptage Pétri  
Etat de l'échantillon à l'analyse Sec  
Masse analysée (g) 80,22  
Temps de comptage (s) 27 132

### Mesures radiométriques in situ au point de prélèvement

Appareil de mesure Novelec DG5  
Flux gamma au contact du sol (C/S) 80  
Flux gamma à 1 m du sol (C/S) 70

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

Eléments radioactifs naturels*	Activité et incertitude ou limite de détection si <	
<b>Chaîne de l'Uranium 238</b>		
Thorium 234**	<	30
Protactinium 234m	<	140
Thorium 230**	<	120
Radium 226***	23 ±	6
Plomb 214	22 ±	6
Bismuth 214	23 ±	6
Plomb 210**	<	44
<b>Chaîne de l'Uranium 235</b>		
Uranium 235	<	11
Protactinium 231	<	34
Thorium 227	<	8
Radium 223	<	16
Radon 219	<	9
Plomb 211	<	21
<b>Chaîne du Thorium 232</b>		
Actinium 228	30 ±	9
Plomb 212	27 ±	5
Thallium 208	8,2 ±	2,3
Potassium 40	350 ±	80
Béryllium 7	<	6
<b>Eléments radioactifs artificiels</b>		
Césium 137	<	0,9
Césium 134	<	0,7

Activités ramenées à la date de prélèvement

\* Eléments radioactifs existant à l'état naturel. Leur présence dans l'échantillon peut être naturelle ou liée à des activités humaines.

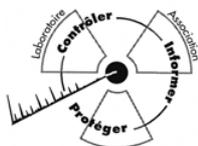
\*\* S'agissant de raies gamma à basse énergie (<100 keV), les valeurs publiées constituent des valeurs par défaut, compte tenu des phénomènes d'autoatténuation possibles au sein de l'échantillon.

\*\*\* Le Radium 226 est évalué à partir de ses descendants le Plomb 214 et le Bismuth 214 à l'équilibre, soit plus de 21 jours après conditionnement de l'échantillon.

**Stéphane PATRIGEON**  
Technicien de laboratoire

**Bruno CHAREYRON**  
Responsable du laboratoire

## LABORATOIRE DE LA CRIIRAD



Site internet : [www.criirad.org](http://www.criirad.org)  
E-mail : [laboratoire@criirad.org](mailto:laboratoire@criirad.org)

### Commission de Recherche et d'Information Indépendantes sur la Radioactivité

Le Cime  
471 avenue Victor Hugo  
26000 Valence - France  
Tél. : +33 (0)4 75 41 82 50  
Fax : +33 (0)4 75 81 26 48

Valence, le 28/11/2007

Laboratoire agréé par les ministères chargés de la santé et de l'environnement pour les mesures de radioactivité de l'environnement – portée détaillée de l'agrément disponible sur demande ou consultable sur [www.criirad.org](http://www.criirad.org).

Méthode d'essai : spectrométrie gamma en containers de géométrie normalisée.  
DéTECTEUR semi-conducteur au germanium hyperpur refroidi à l'azote liquide.  
Efficacité relative de 22 à 24 %. Résolution de 1,7 keV pour la raie à 1,33 MeV.

## RAPPORT D'ESSAI N° 23380-1 PAGE 1 / PAGE 1 RESULTATS D'ANALYSE EN SPECTROMETRIE GAMMA

### Identification de l'échantillon analysé

Etude HUELVA  
Code Prélèvement ST1  
Code Enregistrement 081007A7  
N° d'analyse C 23380  
Nature de l'échantillon Eau  
Ecoulement sur déchet phosphogypse  
Lieu de prélèvement Huelva  
Localisation du prélèvement Espagne  
(Est laques de décantation)

### Prélèvement

Date de prélèvement 04/10/2007  
Opérateur de prélèvement Laboratoire de la CRIIRAD  
Mode de prélèvement Flacon

### Pré-traitement

Date de préparation 09/10/2007  
Délai avant analyse (j) 36

### Analyse en spectrométrie gamma

Date de mesure 14/11/2007  
Géométrie de comptage B250  
Etat de l'échantillon à l'analyse Frais  
Masse analysée (q) 277,73  
Temps de comptage (s) 86 156

Le présent rapport comporte 1 page et ne concerne que l'échantillon soumis à l'analyse.  
La reproduction de ce rapport n'est autorisée que sous sa forme intégrale.

### Activités exprimées en Becquerels par kilogramme frais (Bq/kg frais)

Éléments radioactifs naturels*	Activité et incertitude ou limite de détection si <	
<b>Chaîne de l'Uranium 238</b>		
Thorium 234**	<	18
Protactinium 234m	<	90
Thorium 230**	<	23
Radium 226***	<	1,3
Plomb 214	<	1,3
Bismuth 214	<	2,9
Plomb 210**	30 ±	9
<b>Chaîne de l'Uranium 235</b>		
Uranium 235	<	5
Protactinium 231	<	8
Thorium 227	<	2,1
Radium 223	<	3,6
Radon 219	<	2,2
Plomb 211	<	5
<b>Chaîne du Thorium 232</b>		
Actinium 228	<	2,8
Plomb 212	<	1,3
Thallium 208	<	0,7
Potassium 40	<	50
Béryllium 7	<	1,5

### Éléments radioactifs artificiels

	Activité et incertitude ou limite de détection si <	
Césium 137	<	0,22
Césium 134	<	0,19

Activités ramenées à la date de prélèvement

\* Éléments radioactifs existant à l'état naturel. Leur présence dans l'échantillon peut être naturelle ou liée à des activités humaines.

\*\* 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.

\*\*\* Le Radium 226 est évalué à partir de ses descendants le Plomb 214 et le Bismuth 214 à l'équilibre, soit plus de 21 jours après conditionnement de l'échantillon.

**Stéphane PATRIGEON**  
Technicien de laboratoire

**Bruno CHAREYRON**  
Responsable du laboratoire

## ANEXO 3 / Análisis por espectrometría gamma de las aguas extraídas por Greenpeace en el emplazamiento CRI-9 en Huelva

Table 4 / Water samples W3 and W4

HUELVA / SPAIN (CRI-9 dump)

Sampling by GREENPEACE

Gamma spectrometry analysis by the CRIIRAD Laboratory (France)

Final results

CRIIRAD code	251007A5	251007A5	251007A5	251007A6
Sample code	W3	W3	W3	W4
Sampling location	Taken from a small stream, just downstream from where the highest levels of Cs-137 were measured by in situ spectrometry (Greenpeace)	Taken from a small stream, just downstream from where the highest levels of Cs-137 were measured by in situ spectrometry (Greenpeace)	Taken from a small stream, just downstream from where the highest levels of Cs-137 were measured by in situ spectrometry (Greenpeace)	From monitoring station S4-5, a few hundred meters from where Greenpeace found the leaking Cs 137. Water level -4 m from surface
Sampling day	17/10/2007	17/10/2007	17/10/2007	17/10/2007
Sample type	Water (1 liter)	Water (1 liter)	Water (1 liter)	Water (1 liter)

Preparation of sample by CRIIRAD lab.	No filtration	Fraction > 8 microns	Fraction < 8 microns	No filtration
Analysis number	23338	23368	23383	23340
Counting geometry	C MAR	Petri	B MAR	C MAR
Wet (W) or Dry (D) when analysed	W	W	W	W
Weight (grams)	553,23	36,21	570,00	586,63
Counting time (seconds)	26 471	26 917	142 206	54 593
Counting day	25/10/2007	09/11/2007	14/11/2007	25/10/2007

Natural nuclides	Energy (KeV)	Results in Bq/l (Becquerel per liter)					
<b>Uranium 238 decay chain</b>							
Thorium 234*	63,3	< 8,8	14,6 +/- 3,2	< 1,6	< 4,4	< 9,4	< 4,4
Th230*	67,7	< 15,4	< 4,8	NM	< 0,5	< 0,8	< 3,4
Lead 214	351,9	< 2,1	< 0,4	< 0,3	< 3,0	< 0,8	< 3,4
Bismuth 214	609,3	< 1,7	< 0,3	< 0,3	< 0,3	< 0,3	< 0,3
Lead 210*	46,5	< 5,8	traces < 5,2	< 3,0	< 3,0	< 3,0	< 3,0
<b>Uranium 235 decay chain</b>							
Uranium 235	163,4	< 6,0	traces < 2,7	< 0,8	< 1,6	< 1,6	< 1,6
<b>Thorium 232 decay chain</b>							
Actinium 228	911,2	< 1,2	< 0,7	< 0,5	< 1,7	< 0,3	< 0,3
Lead 212	238,6	< 0,6	< 0,4	< 0,2	< 0,3	< 0,3	< 0,3
Thallium 208	583,0	< 0,4	< 0,2	< 0,2	< 0,3	< 0,3	< 0,3
Potassium 40	1 460,8	< 23,3	< 8,4	< 7,4	< 31,4	< 0,6	< 0,6
Beryllium 7	477,6	< 1,0	< 0,4	< 0,5	< 0,6	< 0,6	< 0,6

Artificial nuclides <sup>1</sup>	Energy (KeV)	Results in Bq/l (Becquerel per liter)					
Caesium 137 (2)	661,6	Detected (see 2)	1,73 +/- 0,35	0,41 +/- 0,14	< 0,1	< 0,1	< 0,1
Caesium 134	604,7	< 0,1	< 0,04	< 0,1	< 0,1	< 0,1	< 0,1
Cobalt 58	810,8	< 0,1	NM	< 0,1	< 0,1	< 0,1	< 0,1
Cobalt 60	1 332,5	< 0,1	NM	< 0,1	< 0,1	< 0,1	< 0,1
Manganese 54	834,8	< 0,1	NM	< 0,1	< 0,1	< 0,1	< 0,1
Antimony 125	427,9	< 0,3	NM	< 0,2	< 0,2	< 0,2	< 0,2
Iodine 131	364,5	< 0,2	NM	< 0,6	< 0,1	< 0,1	< 0,1
Cerium 144	133,5	< 0,6	NM	< 0,4	< 0,4	< 0,4	< 0,4
Silver 110m	657,7	< 0,1	NM	< 0,1	< 0,1	< 0,1	< 0,1
Americium 241*	59,5	< 0,2	NM	< 0,1	< 0,1	< 0,1	< 0,1
Iodine 129*	29,6	< 0,2	NM	< 0,1	< 0,1	< 0,1	< 0,1
Ruthenium / Rhodium 106	621,9	< 1,0	NM	< 0,6	< 0,7	< 0,7	< 0,7

\* : For low energy gamma emitters (&lt;100 keV), given values could be underestimated due to self absorption

1 : No other gamma emitting artificial nuclides have been identified on the gamma spectra (gamma energy between 20 keV and 2 MeV)

2 : CS 137 is actually present in the sample but the activity has to be calculated after filtering the sample first.