



Note CRIIRAD N° 15-49 /
ECARPIERE

CONTROLES RADIOLOGIQUES ET / OU CHIMIQUES SUR DES EAUX ET SEDIMENTS DU SITE URANIFERE AREVA DE L'ECARPIERE

**Contrôles réalisés par le laboratoire de la CRIIRAD
à la demande de l'association « Moine et Sèvre pour l'Avenir »**

Date de la mission sur le terrain : 22 mai 2015
Date de remise du rapport : 23 septembre 2015

Responsable d'étude : **Bruno CHAREYRON**, Ingénieur en physique nucléaire ;
Réalisation des prélèvements : **Christian COURBON**, Technicien spécialisé et **Bruno CHAREYRON**
Analyses en laboratoire : **Stéphane PATRIGEON**, Technicien métrologue.
Préparations des échantillons : **Jocelyne RIBOUËT**, Technicienne de laboratoire.

LABORATOIRE DE LA CRIIRAD
29 Cours Manuel de Falla, 26 000 VALENCE
☎ 04 75 41 82 50 📠 04 75 81 26 48
[http:// www.criirad.org](http://www.criirad.org) laboratoire@criirad.org

SOMMAIRE

1. Contexte	1
2. Méthodologie	1
3. Résultats.....	3
3.1. Contamination des eaux.....	3
3.2. Contamination radioactive des sédiments et terres de berge	3
4. Recommandations	5
ANNEXE 1 Agréments du laboratoire de la CRIIRAD	6
ANNEXE 2 Résultats détaillés des analyses par spectrométrie gamma	7
ANNEXE 3 Résultats des analyses chimiques sur les eaux	10

1. Contexte

La CRIIRAD a participé en mai 2015 aux travaux du Collectif Mines d'Uranium (CMU) dont la réunion annuelle se tenait dans le secteur de l'Ecarpière (Loire Atlantique).

La participation de la CRIIRAD à ces travaux est rendue possible grâce au soutien financier de la Région Rhône-Alpes au travers d'une convention pluriannuelle d'objectifs, le complément provenant des fonds propres de l'association CRIIRAD.

Dans ce cadre, le laboratoire de la CRIIRAD a animé des ateliers de formation à la mesure de la radioactivité dans l'environnement à destination des associations de protection de l'environnement membres du CMU.

Messieurs Bruno CHAREYRON et Christian COURBON, respectivement directeur du laboratoire de la CRIIRAD et responsable des interventions de terrain, ont effectué à cette occasion des mesures radiométriques et des prélèvements d'échantillons dans l'environnement de l'ancien site minier uranifère AREVA de l'Ecarpière.

La présente note rend compte uniquement des mesures effectuées le vendredi 22 mai 2015 après midi au cours d'un atelier qui portait sur **l'impact de l'ancien site minier uranifère sur le milieu aquatique**.

2. Méthodologie

La CRIIRAD a proposé à « Moine et Sèvre pour l'Avenir » de réaliser des contrôles en deux stations reproduites sur les cartes C1 et C2 page suivante.

- Secteur S1 : au niveau d'une zone humide (frayère) située **en contrebas de l'ancienne mine à ciel ouvert du Tail**, en rive gauche de la Moine.

Cette zone reçoit des eaux de ruissellement provenant du site minier. Ces eaux ne subissent aucun traitement avant de s'écouler dans la frayère.

Elles font l'objet de contrôles par AREVA (a priori au point « TAIL REG F ») qui mesure les paramètres suivants : pH, radium 226 soluble et insoluble et uranium soluble.

La CRIIRAD a souhaité vérifier le niveau de contamination radioactive des sédiments (échantillon S1) et les caractéristiques chimiques des eaux de la frayère (échantillon E1).

Les eaux et les sédiments ont été prélevés à l'extrémité est de la frayère.

- Secteur S2 : **rejet des eaux après traitement dans la Moine**, en aval du pont de Gaudu, en face du village de Saint-Crespin-sur-Moine.

La CRIIRAD a souhaité vérifier le niveau de contamination radioactive des sédiments-terres de berges (échantillon S2) et les caractéristiques chimiques des eaux du rejet (échantillon E2 prélevé en sortie de la buse AREVA).

Les sédiments et terres de berge ont fait l'objet d'analyses par spectrométrie gamma au laboratoire de la CRIIRAD après dessiccation et tamisage à 2 mm. Les rapports d'essai sont reproduits en Annexe 2.

Les eaux ont fait l'objet de mesures chimiques par le laboratoire départemental d'analyses de la Drôme (LDA26). Les résultats sont reproduits en Annexe 3.

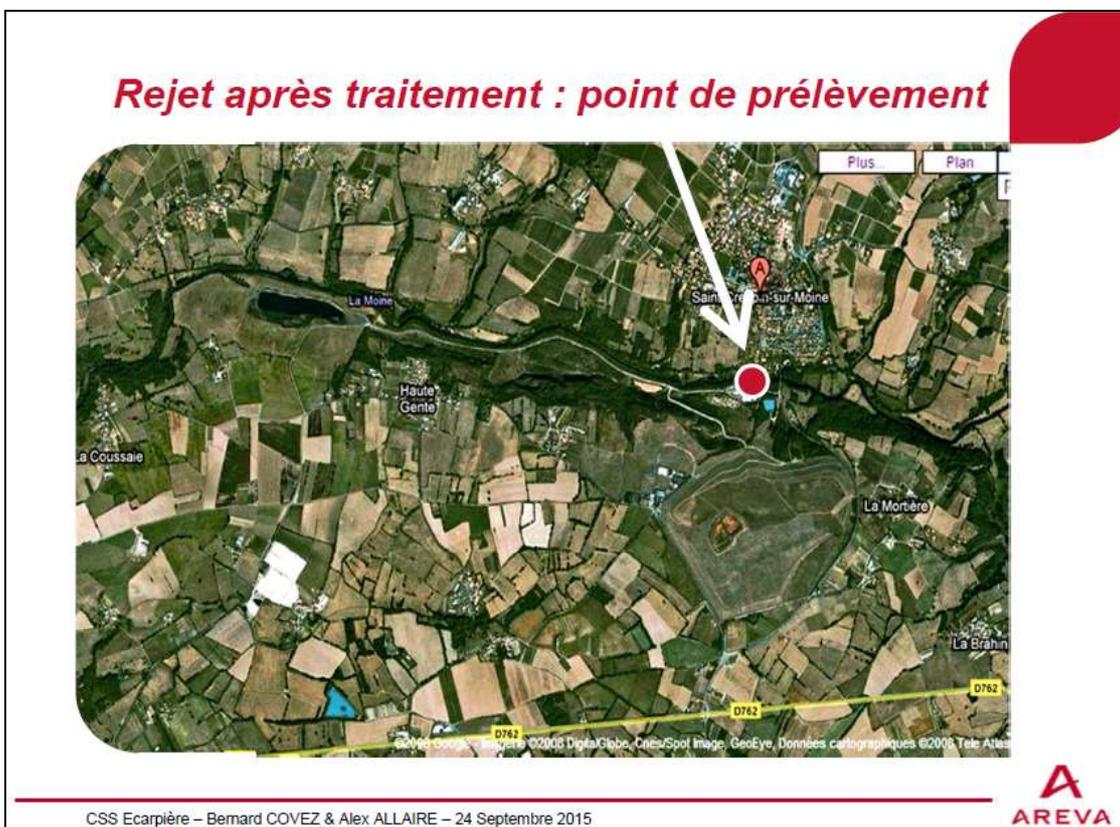
Les frais d'analyse des échantillons en laboratoire ont été pris en charge par l'association « Moine et Sèvre pour l'Avenir ».

Carte C1 / localisation des points de contrôle des eaux de ruissellement non traitées (document AREVA)

Note : le point S1 (frayère) correspond au premier cercle bleu à gauche sur la carte



Carte C2 / localisation du point de rejet après traitement dans la Moine (document AREVA)



3. Résultats

3.1. Contamination des eaux

La charge en uranium des **eaux de la Frayère** est très importante (**319 µg/l**) et bien supérieure à celle mesurée dans le rejet après traitement (28,4 µg/l). Il faut dire que l'une des « sources » qui alimente cette frayère est directement en contrebas de l'ancienne mine d'uranium du Tail désormais en eau.

Ceci pose la question de l'impact de cette contamination en uranium sur la faune et la flore aquatique, contamination d'autant plus choquante que cette frayère est probablement, comme son nom l'indique, un lieu fondamental pour le biotope local.

Il faut alors rechercher les responsabilités : soit les arrêtés préfectoraux n'ont pas imposé à AREVA de collecter les eaux de ruissellement potentiellement impactées par les anciennes activités minières, ce qui constituerait une violation du décret 90-222, soit cette collecte est prescrite et AREVA ne respecte pas cette prescription.

Dans tous les cas, le décret 90-222 aurait dû être revu depuis bien longtemps (au plus tard en 2000), car il repose sur des connaissances dépassées. On sait depuis plus de 20 ans que de faibles concentrations en uranium peuvent avoir des conséquences néfastes pour le milieu aquatique.

La concentration en uranium mesurée dans cette frayère est nettement supérieure aux valeurs de référence désormais retenues par l'IRSN : « *les valeurs de référence spécifiques (QS) applicables dans l'eau visant la protection des organismes pélagiques d'eau douce ont été déterminées pour une utilisation en évaluation des risques. La Concentration Moyenne Annuelle applicable pour une situation d'exposition chronique (0,3 microgramme par litre) est très proche de la Concentration Maximale Admissible applicable en situation aiguë (0,4 microgramme par litre)* ».

Les analyses chimiques indiquent également la présence d'autres substances pouvant avoir un effet négatif sur l'environnement. On notera par exemple, dans les **eaux du rejet**, des niveaux élevés d'**aluminium** (2 100 µg/l), **sulfates** (1 000 mg/l) et un pH acide (4,5). Ceci illustre les lacunes des prescriptions imposées à AREVA pour la surveillance de l'impact de son site sur l'environnement aquatique. En effet, en ce qui concerne les contrôles chimiques hors radioactivité, seul l'élément fer est mesuré.

3.2. Contamination radioactive des sédiments et terres de berge

La présence d'uranium (et ses descendants) dans les écoulements traités ou non traités entraîne une contamination des sédiments et terres de berge.

En effet, qu'il s'agisse des sédiments de la frayère ou des terres des berges de la Moine en aval du rejet dans le secteur du pont de Gaudu, on observe une contamination de ces matières solides par l'**uranium 238 (environ 4 000 Bq/kg sec)** et ses descendants, ainsi que par l'**uranium 235 (environ 200 Bq/kg sec)** et ses descendants.

Ces valeurs sont environ **100 fois supérieures** à l'activité moyenne de l'écorce terrestre (40 Bq/kg) et environ 40 fois supérieures à l'activité mesurée dans des sédiments en amont. AREVA mesure en effet 110 Bq/kg sec en 2014 dans les sédiments de la Moine en amont ; valeur comparable à la mesure CRIIRAD de 1991 dans des sédiments prélevés dans la Moine à Moulin Bodin en amont du site AREVA (95 Bq/kg sec).

On observe dans les deux échantillons un déséquilibre entre l'uranium 238 (thorium 234) et le radium 226 qui suggère un phénomène d'accumulation de ces métaux lourds radioactifs à partir des écoulements.

Les résultats de surveillance radiologique de l'environnement contenus dans le document préparé par AREVA en vue de la CSS du 24 septembre 2015 ne rendent pas compte de cette contamination des sédiments et terres de berges. En effet la page « sédiments de la Moine » (reproduite ci-après) mentionne des activités en uranium ne dépassant pas **140 Bq/kg sec**.

Pour AREVA : « *En 2014, le rapport dans la concentration en uranium entre l'amont (Serpillette) et l'aval proche (Gaudu) est de 1,3 (de 110 à 140 Bq/kg de matière sèche)* ».

Les mesures CRIIRAD montrent qu'en réalité, il y a environ 40 fois plus d'uranium dans les terres de berge en aval immédiat du rejet après traitement et dans les sédiments de la frayère soumise aux écoulements de l'ancienne mine du Tail que dans les sédiments en amont.

Document C3 / extrait de la présentation AREVA sur les sédiments

Les sédiments de la Moine

Moyennes 2014 en amont et en aval

- **En 2014** le rapport dans la concentration en uranium entre l'amont (Serpillette) et l'aval proche (Gaudu) est de **1,3** (de 110 à 140 Bq/Kg de matière sèche)
- Il est de **1** à Fromont (de 110 à 30 Bq/Kg de matière sèche)
- **A Moulin Cassé**, ce rapport est de **1** (de 110 à 110 Bq/Kg de matière sèche)

En 1993 les rapports étaient respectivement de **1,4 – 2,7 et 1,7.**



CSS Ecarpière – Bernard COVEZ & Alex ALLAIRE – 24 Septembre 2015



Tableau T1 / Niveau de radiation gamma en bordure des cours d'eau (mesures CRIIRAD)

Station	S1	S2	Reference
Lieu	Frayère en contrebas MCO du Tail	Berges de la Moine, rive gauche, aval Rejet AREVA au Pont de Gaudu	Prairie secteur du Tail
Type de sol	Sédiments sous eau et lentilles d'eau	Terre de berges entre racines d'un arbre à quelques cm de l'eau	Prairie
Date mesure	22-mai-15	22-mai-15	22-mai-15
Flux de rayonnement gamma DG5 au contact du sol (coups par seconde)	1080	1400	220
Flux de rayonnement gamma DG5 à 1 mètre du sol (coups par seconde)	800	400	200

On note en outre dans ce document AREVA une erreur concernant l'uranium dans les sédiments à Fromont. Le rapport amont aval ne peut être de 1 si l'activité est de 30 Bq/kg à Fromont. Ou alors c'est la valeur de 30 Bq/kg qui est erronée.

Concernant l'exposition externe (irradiation), il convient de souligner que la contamination des sédiments et terres soumises aux écoulements issus du site AREVA induit une exposition des personnes aux radiations ionisantes.

Comme le montrent les mesures reportées dans le tableau T1 ci-contre, le flux de rayonnement gamma au contact de ces sols contaminés est près de 5 à plus de 6 fois supérieur au niveau naturel de base.

4. Recommandations

Sur la base de ces contrôles, la CRIIRAD recommande que l'Administration revoie les prescriptions imposées à AREVA en ce qui concerne la maîtrise des transferts de polluants radioactifs et chimiques par le vecteur eau sur son site de l'ECARPIERE à savoir :

- la collecte de tous les écoulements contaminés,
- la caractérisation radiologique et chimique détaillée de ces écoulements,
- leur traitement en vue de respecter des normes de rejet réellement protectrices du milieu naturel,
- la révision des plans de surveillance environnementale (contrôle sur les sédiments et terres de berges impactés, contrôles sur la faune aquatique),
- la justification des écarts entre les niveaux de contamination observés par la CRIIRAD dans les sédiments et terres de berge et ceux relevés par AREVA.

ANNEXE 1

Agréments du laboratoire de la CRIIRAD

Le laboratoire de la CRIIRAD est agréé par l'Autorité de Sûreté Nucléaire pour les mesures de radioactivité de l'environnement. La portée détaillée de l'agrément est disponible sur le site internet de l'Autorité de sûreté nucléaire.

Une liste actualisée au 1^{er} juillet 2015 est présentée ci-dessous :

1 / **Les eaux** : émetteurs gamma d'énergie inférieure à 100 keV et d'énergie supérieure à 100 keV (agrément valable jusqu'au **31/12/2015**) et tritium (agrément valable jusqu'au **30/06/2019**).

2 / **Les sols** : émetteurs gamma d'énergie inférieure à 100 keV et d'énergie supérieure à 100 keV (agrément valable jusqu'au **30/06/2016**), isotopes de l'uranium, isotopes du thorium, radium 226 et descendants, radium 228 et descendants (agrément valable jusqu'au **30/06/2020**).

3 / **Les matrices biologiques** : émetteurs gamma d'énergie inférieure à 100 keV et d'énergie supérieure à 100 keV (agrément valable jusqu'au **31/12/2018**).

4 / **Les matrices gaz** : émetteurs gamma d'énergie inférieure à 100 keV et d'énergie supérieure à 100 keV et gaz halogénés (agrément valable jusqu'au **30/06/2017**).

En outre, Le laboratoire de la CRIIRAD est agréé pour les mesures d'activité volumique du radon dans les lieux ouverts au public et les lieux de travail :

Niveau 1A (valable jusqu'au 15 septembre 2016) – dépistage et contrôle après actions correctrices dans les bâtiments, y compris les bâtiments souterrains et les établissements thermaux : agrément délivré par décision CODEP-DIS n°2011-038870 du 11 juillet 2011 de l'Autorité de sûreté nucléaire ;

Niveau 2 (valable jusqu'au 15 septembre 2016) – identification des sources, des voies d'entrée et de transfert du radon dans tout bâtiment, y compris les bâtiments souterrains et les établissements thermaux, ainsi que dans des cavités et des ouvrages souterrains : agrément délivré par décision CODEP-DIS n°2011-038926 du 11 juillet 2011 de l'Autorité de sûreté nucléaire.

ANNEXE 2
Résultats détaillés des analyses par spectrométrie gamma

LABORATOIRE DE LA CRIIRAD



Commission de Recherche
et d'Information Indépendantes
sur la Radioactivité

29 Cours Manuel de Falla
26000 Valence - France
Tél. : + 33 (0)4 75 41 82 50
Fax : + 33 (0)4 75 81 26 48

Site Internet : www.criirad.org
E-mail : laboratoire@criirad.org

Laboratoire agréé par l'Autorité de sûreté nucléaire pour les mesures de radioactivité de l'environnement — portée détaillée de l'agrément disponible sur le site internet de l'Autorité de sûreté nucléaire.

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° 28450-2 PAGE 1 / PAGE 1
RESULTATS D'ANALYSE EN SPECTROMETRIE GAMMA

Identification de l'échantillon analysé

Etude ECARPIERE

Code Prélèvement S1
Code Enregistrement 270515A3
N° d'analyse C 28450

Nature de l'échantillon Sédiments

Taux de matière sèche 61,9%

Lieu de prélèvement Ecarpière
Localisation du prélèvement Frayère
En contrebas MCO Le Tail

Association Moine et Sevre
pour l'Avenir

Sédiment d'une frayère en contrebas
de la MCO du TAIL

Valence, le 23 septembre 2015

Prélèvement
Date de prélèvement 22/05/2015
Opérateur de prélèvement CRIIRAD (C Courbon / B. Chareyron)
Mode de prélèvement Spatule

Pré-traitement
Date de préparation 03/06/2015
Délai avant analyse (j) 70
Conditions de préparation Etuvage 105 °C
Tamisage 2 mm

Analyse en spectrométrie gamma
Date de mesure 12/08/2015
Géométrie de comptage Pétri
Etat de l'échantillon à l'analyse Sec
Masse analysée (g) 75,18
Temps de comptage (s) 29 306

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)

Eléments radioactifs naturels*	Activité et incertitude ou limite de détection si <	
Chaîne de l'Uranium 238		
Thorium 234**	3 900 ±	500
Protactinium 234m	4 000 ±	1 400
Thorium 230**	3 000 ±	1 000
Radium 226***	2 380 ±	260
Plomb 214	2 490 ±	270
Bismuth 214	2 270 ±	250
Plomb 210**	3 130 ±	380
Chaîne de l'Uranium 235		
Uranium 235	180 ±	70
Protactinium 231	<	410
Thorium 227	183 ±	48
Radium 223	280 ±	90
Radon 219	190 ±	60
Plomb 211	250 ±	100
Chaîne du Thorium 232		
Actinium 228	89 ±	22
Plomb 212	81 ±	14
Thallium 208	21 ±	6
Potassium 40	1 210 ±	190
Béryllium 7	<	12
Eléments radioactifs artificiels		
Césium 137	<	1,7
Césium 134	<	1,6

Activités calculées à la date de mesure

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
Directeur du laboratoire

LABORATOIRE DE LA CRIIRAD

Site internet : www.criirad.org
E-mail : laboratoire@criirad.org

Commission de Recherche
et d'Information Indépendantes
sur la Radioactivité

29 Cours Manuel de Falla
26000 Valence - France
Tél. : + 33 (0)4 75 41 82 50
Fax : + 33 (0)4 75 81 26 48

Valence, le 23 septembre 2015

Laboratoire agréé par l'Autorité de sûreté nucléaire pour les mesures de radioactivité de l'environnement — portée détaillée de l'agrément disponible sur le site internet de l'Autorité de sûreté nucléaire.

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° 28446-2 PAGE 1 / PAGE 1
RESULTATS D'ANALYSE EN SPECTROMETRIE GAMMA

Identification de l'échantillon analysé

Etude	Association Moine et Sevre
Code Prélèvement	S2
Code Enregistrement	270515A4
N° d'analyse	C 28446
Nature de l'échantillon	Sédiments / Terre de berge
Taux de matière sèche	63,0%
Lieu de prélèvement	Rive gauche Moine (44)
Localisation du prélèvement	Quelques mètres Aval rejet AREVA Aval Pont Gaudu
Code de l'unité territoriale (NUTS)	FR511

Association Moine et Sevre
pour l'Avenir

Sédiment-terre de berge
Aval rejet AREVA dans la Moine

Prélèvement	
Date de prélèvement	22/05/2015
Opérateur de prélèvement	CRIIRAD (B. Chareyron)
Mode de prélèvement	Spatule

Pré-traitement	
Date de préparation	02/06/2015
Délai avant analyse (j)	69
Conditions de préparation	Etuvage 105°C Tamisage 2 mm

Analyse en spectrométrie gamma	
Date de mesure	10/08/2015
Géométrie de comptage	Pétri
Etat de l'échantillon à l'analyse	Sec
Masse analysée (g)	71,66
Temps de comptage (s)	30 618

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)

Eléments radioactifs naturels* Activité et incertitude ou limite de détection si <

Chaîne de l'Uranium 238		
Thorium 234**	4 000 ±	500
Protactinium 234m	4 300 ±	1 600
Thorium 230**	3 900 ±	1 200
Radium 226***	7 700 ±	800
Plomb 214	8 000 ±	800
Bismuth 214	7 300 ±	800
Plomb 210**	6 500 ±	700

Chaîne de l'Uranium 235		
Uranium 235	200 ±	90
Protactinium 231	<	600
Thorium 227	420 ±	90
Radium 223	280 ±	120
Radon 219	360 ±	100
Plomb 211	<	450

Chaîne du Thorium 232		
Actinium 228	83 ±	30
Plomb 212	71 ±	15
Thallium 208	24 ±	7

Potassium 40	1 020 ±	190
Béryllium 7	<	19

Eléments radioactifs artificiels Activité et incertitude ou limite de détection si <

Césium 137	<	2,6
Césium 134	<	2,5

Activités calculées à la date de mesure

Activités ramenées à la date de prélèvement

Stéphane PATRIGEON
Technicien de laboratoire

Bruno CHAREYRON
Directeur du laboratoire

ANNEXE 3

Résultats des analyses chimiques sur les eaux

1 / Description des échantillons

Note : les échantillons ont été prélevés par la CRIIRAD

Code Echantillon	E1	E2
Code CRIIRAD	270515A1	270515A2
Type d'eau	Eau de surface	Eau de rejet après traitement
Lieu prélèvement	Frayère en contrebas MCO du Tail	Rejet AREVA au Pont de Gaudu
Date prélèvement	22/5/15 17:15	22/5/15 18:45

pH et conductivité (au laboratoire) (a)

pH	6,9	4,5
T°c de l'eau lors de la mesure du pH	20,8	20,8
Conductivité à 25 °C (µS/cm)	806	2 007
Conductivité à 20 °C (µS/cm)	727	1 810

Vérification uranium par ICP MS (a)

Uranium 238 (µg/l)	318,8	28,4
Calcul de l'activité de U238 (Bq/l)	3,985	0,355
Uranium 235 (% uranium 238)	0,68	0,67

2 / Anions-cations

(dépistage semi-quantitatif par chromatographie ionique) (a)

Ammonium mg/l (NH4)	0,41	0,76
Bromures mg/l	0,365	0,134
Calcium mg/l	91	217
Chlorures mg/l (Cl)	29	110
Fluorures mg/l	3,50	11,00
Magnesium mg/l	33	90
Nitrates mg/l (NO3)	< 1	< 1
Nitrites mg/l (NO2)	0,20	0,011
Orthophosphates mg/l (PO4)	< 0,015	< 0,015
Potassium mg/l	4,3	14
Sodium mg/l	28	88
Sulfates mg/l	280	1000

3 / Métaux

Métaux / évaluation semi-quantitative par ICP (a) / résultats en µg/l

Ag	0	0
Al	69	2 100
As	2	0,6
B	80	52
Ba	19	24
Be	0,4	18
Cd	0	0
Co	0	8,5
Cr	0,2	0
Cu	3	1,4
Fe	105	411
Li	36	242
Mn	16	2 680
Mo	0,6	0
Ni	1,2	8,7
Pb	0,3	0
Sb	0,8	0
Se	0,8	0
Sn	0	0
Sr	231	430
Te	0	0
Ti	2	2
Tl	0	0
U	319	28
V	0,5	0
Zn	3	25

Notes

(a) Laboratoire LDA 26 (France) pour CRIIRAD