

3 Caractérisation radiologique de boues et terres

3.1 Objectif

Afin de disposer d'éléments complémentaires concernant l'impact sanitaire lié aux incidents de 2004 (dispersion de 30 000 m³ de « boues et solutions nitratées » des bassins B1 et B2), et aux incidents de janvier et mars 2006, il était indispensable de procéder à des mesures en laboratoire sur les boues elles-mêmes.

Compte tenu du caractère très bref de la mission du 21 septembre 2006, il n'a pas été possible à l'ingénieur de la CRIIRAD de procéder à des contrôles radiométriques dans le secteur soumis à l'écoulement des boues et liquides contaminés en 2004 (secteur est) et en 2006 (secteur est et sud-ouest).

A défaut, la CRIIRAD a demandé à monsieur M., riverain de l'usine, s'il lui était possible de procéder à des contrôles radiométriques complémentaires, en périphérie du site (secteur soumis aux écoulements de boues), au moyen d'un Compteur Geiger Quartex remis à cet effet. Il s'agit d'un compteur grand public qui ne permet pas de faire de la métrologie mais constitue un bon outil de détection d'anomalies radiométriques. Des conseils lui ont été donnés en outre sur le plan de la radioprotection et du matériel d'échantillonnage lui a été remis.

Il convient de noter que des travaux de réparation des digues étaient toujours en cours, des véhicules circulaient sur les terrains où avaient eu lieu les débordements et passaient devant la propriété de Mme C. (cf. photographies ci-dessous).



Travaux de réparation des digues des bassins B1 et B2 devant la propriété C / 22 septembre 2006

Selon Mme C et M. M., à l'époque de la rupture des digues, en 2004, les boues des bassins B1 et B2 ont atteint la limite de leur propriété. L'incident a eu lieu le samedi 20 mars 2004 et cette famille de riverains n'en a pas eu connaissance.

C'est le lendemain, dimanche 21 mars 2004, alors qu'ils organisaient une fête sur leur terrain avec plusieurs dizaines d'invités que l'un des invités les a joints par téléphone. Basé à Nîmes, Il avait entendu parler de la rupture de la digue et se demandait si la fête n'était pas annulée.

Il a fallu selon les riverains plus de 10 jours (de mémoire) pour que des engins viennent pousser les boues pour reprise à la pelle mécanique et chargement dans des camions. Cette reprise n'a concerné qu'une partie des boues puisque certaines sont toujours présentes sur le chantier de réparation des digues à ce jour.

Les boues reprises auraient été entreposées dans des cellules aménagées spécialement par COMURHEX.

3.2 Réalisation des prélèvements

Les prélèvements ont été effectués par monsieur M, très rapidement après la visite de la CRIIRAD, le **dimanche 24 septembre 2006** entre 16H30 et 17H, alors que le chantier de réparation des digues était arrêté.

Les 2 stations d'échantillonnage (P1 et P2) figurent sur la photographie aérienne page suivante (localisation effectuée par monsieur M.) :

La terre (P1) a été prélevée au droit du bassin B9, dans un secteur où les liquides contaminés ont pu stagner, suite à la rupture de digue en 2004 et également aux débordements des bassins de lagunage des effluents de l'usine, en 2006, (cf. photo ci-dessous).

Les mesures radiométriques in situ ont donné, au contact du sol, un résultat au Quartex de 0,1 à 0,2 $\mu\text{Sv/h}$, légèrement supérieur au niveau naturel typique (0,1 $\mu\text{Sv/h}$).



Prélèvement P1, en position médiane,
zone de stagnation d'eau suite aux débordements de 2006

Les boues P2 ont été échantillonnées sur un monticule de terre situé dans la plaine, en contrebas des bassins B1-B2, et présentant une couleur suggérant un matériau non naturel.

Le niveau de rayonnement mesuré au contact du tas au moyen du Quartex était de $3,2 \mu\text{Sv/h}$ soit une valeur 32 fois supérieure au niveau naturel. Des installations de carottage et des camions étaient situés à proximité.



Vue aérienne de l'usine COMURHEX avant rupture de la digue B2
/ Doc COMURHEX présenté au CLIC du 25 novembre 2005



Localisation des prélèvements de boue (P2) et terre (P1) effectués par Monsieur M. le 24 septembre 2006.

3.3 Méthodologie d'analyse par spectrométrie gamma

Après avoir joint par téléphone le laboratoire de la CRIIRAD, le lundi 25 septembre 2006, il a été convenu que les 2 échantillons pouvaient être adressés au laboratoire dans des flacons spécifiques, de telle sorte que le niveau de rayonnement au contact du colis reste comparable au bruit de fond.

A réception au laboratoire de la CRIIRAD, le 27 septembre 2006, les échantillons ont fait l'objet d'un **contrôle radiométrique au scintillomètre SPP2** et d'un conditionnement direct (matière fraîche) en boîte de Pétri pour comptage sans délai sur **spectromètre HpGe de marque EGG ORTEC**. Le flux de rayonnement gamma sur l'échantillon P2 s'est avéré être 6 fois supérieur au bruit de fond (280 c/s SPP2 contre 45 c/s).

Le protocole habituel prévoit une dessiccation préalable en étuve et un comptage sur matière sèche. Dans le cadre de ce dossier, compte tenu des risques liés à l'inhalation de poussières radioactives, le responsable du laboratoire a estimé qu'il était préférable de **ne pas sécher l'échantillon P2** et a demandé un conditionnement direct, sous hotte aspirante, l'opératrice étant munie d'un masque ad hoc.

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

- Les eaux : émetteurs gamma < 100 keV, et > 100 keV et tritium.
- Les sols : Uranium et descendants, thorium et descendants, Ra 226 et descendants, Ra 228 et descendants.
- Les matrices biologiques : émetteurs gamma < 100 keV et > 100 keV.

Les résultats des analyses préliminaires sont reproduits dans le rapport d'essai ci-après, ainsi que la mesure du radium 226 à l'équilibre.

Un second comptage a en effet été effectué après 1 mois de manière à attendre l'équilibre entre le radium 226 et ses descendants plomb et bismuth 214.

Ce second comptage a permis de constater l'absence d'évolution de l'activité du thorium 234 ce qui suggère qu'il n'y a pas de déséquilibre initial uranium 238-thorium 234 (situation attendue compte tenu de l'âge des boues P2 et de l'antériorité des fuites : reconstitution de l'équilibre U 238-Th 234 en quelques mois).

Pour chaque radioélément, sont reportés dans la dernière colonne du rapport d'essai les ratios entre :

- l'activité mesurée sur la boue P2 et,
- l'activité ajoutée à la terre P1. Cette dernière est estimée en soustrayant à l'activité mesurée sur P1, l'activité typique de l'écorce terrestre : 40 Bq/kg pour l'uranium 238 et ses descendants, 1,8 Bq/kg pour l'uranium 235 et ses descendants ; 40 Bq/kg pour le thorium 232 et ses descendants et 400 Bq/kg pour le potassium 40.

Note : compte tenu du contexte géologique, il est probable que l'activité « naturelle » des sols du secteur soit en réalité inférieure à la moyenne de l'écorce terrestre.

On constate que ces ratios sont relativement constants (51 à 113) pour les descendants de l'uranium 238, uranium 235 et américium 241. Ceci montre bien que la terre P1 a été polluée par des boues de mêmes caractéristiques radiochimiques que les boues P2.

ANALYSE EN SPECTROMETRIE GAMMA LABORATOIRE DE LA CRIIRAD

Activités exprimées en Bq/kg frais (P2) et Bq/kg sec (P1)

NATURE	P2 Boue de décantation effluents usine COMURHEX / Narbonne	Terre P1
Lieu de prélèvement	Point P2 (cf carte) Aval Bassins B1 et B2 dont la digue a cédé en 2004 - P2 - COMURHEX	Point P1 (cf carte) terre soumise aux débordements de 2006 - COMURHEX
Date prélèvement	24/09/2006	24/09/2006
N° d'analyse	C22583 et C22661	C 22587 et B 22672
Date d'analyse	27/09/2006 et 23/10/2006	28/09/2006 et 26/10/2006
Temps de comptage (s)	53 931	54 706
Géométrie	Petri	Petri
Analyse sur matière	fraîche	sèche
Masse analysée (g)	69,32	72,11

Radioactivité naturelle

Ratio P2/(P1-Nat)

Chaîne de l' Uranium 238					
Thorium 234*	49 200 ±	5 100	540 ±	77	98
Thorium 230*	168 200 ±	18 000	1 860 ±	320	92
Radium 226 (1)	3 330 ±	362	98 ±	14	57
Plomb 214	2 760 ±	310	83 ±	14	65
Bismuth 214	2 540 ±	280	90 ±	14	51
Plomb 210*	11 300 ±	1 300	164 ±	30	91
Chaîne de l'Uranium 235					
Uranium 235(2)					
Protactinium 231	2 500 ±	320	28 ±	13	96
Thorium 227	28 700 ±	3 200	400 ±	85	72
Radium 223	13 100 ±	1 400	118 ±	24	113
Radon 219	11 600 ±	1 300	148 ±	35	79
Plomb 211	12 000 ±	1 300	156 ±	36	78
	11 700 ±	1 400	126 ±	43	94
Chaîne du Thorium 232					
Actinium 228	312 ±	51	54 ±	12	22
Plomb 212	319 ±	40	53 ±	10	25
Thallium 208	99 ±	15	15 ±	3	60
Potassium 40	309 ±	75	604 ±	95	2
Beryllium 7	<	16	<	5	

Radioactivité artificielle

Césium 137	trace	<	17,0	5,1 ±	1,8	
Césium 134		<	2,1	<	0,5	
Cobalt 58		<	2,1	<	0,5	
Cobalt 60		<	1,5	<	0,5	
Manganèse 54		<	2,0	<	0,6	
Antimoine 125		<	9,3	<	1,6	
Iode 131		<	2,7	<	0,8	
Cérium 144		<	18,9	<	3,1	
Argent 110m		<	2,1	<	0,6	
Américium 241*	670 ±	79	8,4 ±	2,6	80	
Iode 129*		<	104	<	0,8	
Ruthénium 106		<	19,9	<	5,4	

± : Marge d'incertitude < : Limite de détection

* : 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.

(1) Le radium 226 est mesuré à partir de l'activité de ses descendants plomb et bismuth 214 sur le second comptage à l'équilibre. Les valeurs Plomb et bismuth 214 sont données ici pour le premier comptage.

(2) Pour l'échantillon P1, l'activité pour l'uranium 235 est celle obtenue lors du second comptage (meilleure précision).

3.4 Présence de transuraniens (plutonium)

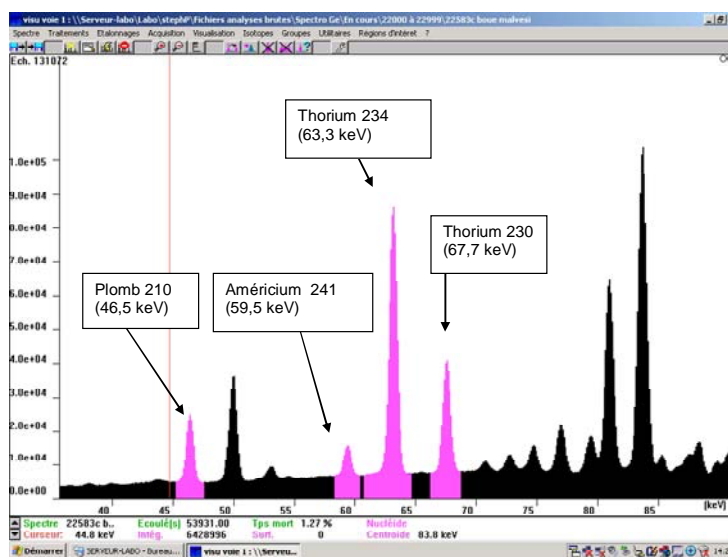
Détection d'américium 241

On constate une contamination des boues P2 par de l'américium 241 (**670 Bq/kg frais**), transuranien émetteur alpha et gamma de période physique égale à 432,7 ans et de très forte radiotoxicité.

Cette contamination permet de supposer la présence d'isotopes du **plutonium**. En effet, l'américium 241 est le descendant du plutonium 241 (émetteur bêta de période 14,4 ans).

La présence de plutonium et d'américium dans ces boues n'est mentionnée dans aucun des inventaires de l'ANDRA publiés depuis 1993.

Des mesures complémentaires seront nécessaires pour déterminer l'activité de tous les isotopes artificiels présents et notamment celle des isotopes du plutonium et autres transuraniens.



Spectre CRIIRAD N°C 22 583 du 27 septembre 2006 (53 931 secondes), géométrie Petri (69,32 grammes frais) de boue COMURHEX P2 (aval bassins B1 et B2)

Origine du plutonium

Il convient de souligner que selon [MBD 97], l'usine a reçu de **l'uranium de retraitement** sous forme de nitrate d'uranyle en provenance de Marcoule (de **1960 à 1983**), ce qui explique probablement⁸ la présence de plutonium.

En effet, au sein des réacteurs nucléaires apparaissent des isotopes artificiels (plutonium) qui se retrouvent sous forme d'impuretés dans l'uranium extrait des combustibles usés.

⁸ A noter que d'autres types de déchets ont pu être « purifiés » à Malvési.

Extension de la contamination

La contamination par l'américium 241 (donc le plutonium) est également détectée dans la terre P1 (8,4 Bq/kg sec), **ce qui suggère que du plutonium a pu être entraîné dans l'environnement suite aux incidents de mars 2004, janvier et mars 2006.**

3.5 Présence de descendants de l'uranium 238 à très forte radiotoxicité

La chaîne de désintégration de l'uranium 238 est reproduite ci-après.

Uranium 238, thorium 234 et protactinium 234m

On relève une contamination en **thorium 234** (période de 24 jours), premier descendant de **l'uranium 238 (49 200 Bq/kg frais** dans les boues, alors que l'activité moyenne de l'écorce terrestre est de 40 Bq/kg). Cette contamination est également détectée dans la terre P1 (**540 Bq/kg sec**).

Dans la mesure où ces boues sont présentes depuis 2004, il y a tout lieu de penser que l'équilibre uranium 238-thorium 234 est reconstitué et qu'il est juste de déterminer l'activité de l'uranium 238 à partir de celle du thorium 234.

La période physique de l'uranium 238 est de **4,5 milliards d'années** et celle du thorium 234 de 24 jours. En cas de déséquilibre initial entre uranium 238 et thorium 234 (par exemple en sortie des usines d'extraction de l'uranium ou en sortie des colonnes de purification de l'usine COMURHEX), l'équilibre se reconstitue progressivement au bout de quelques mois. Au bout de 6 mois on peut considérer que l'activité mesurée pour le thorium 234 est égale à celle de l'uranium 238.

L'activité du second descendant de l'uranium 238, le protactinium 234^m est nécessairement égale à celle du thorium 234 (équilibre reconstitué en 12 minutes).

Uranium 234

L'activité du troisième descendant de l'uranium 238, l'uranium 234 (émetteur **alpha** de période physique **245 000 ans**) n'est pas mesurable par spectrométrie gamma et ne peut être évaluée précisément sans savoir s'il s'agit d'uranium naturel, d'uranium naturel enrichi, d'uranium naturel appauvri, ou d'uranium de retraitement (ce que suggère la présence de l'américium 241).

Le ratio des activités Th 234 / U 235 dans la boue P2 est estimé à 19,7 et 19,3 dans la terre P1. Ces valeurs sont proches de celles de l'uranium naturel (21,7), sans exclure qu'il s'agisse d'uranium très légèrement enrichi comme pourrait l'être de l'uranium de retraitement.

Compte tenu des marges d'incertitude élevées en spectrométrie gamma, **il sera nécessaire d'engager d'autres mesures d'uranium isotopique** pour trancher cette question. Il conviendra de rechercher entre autres les isotopes artificiels de l'uranium.

Pour des calculs de dose par ingestion ou inhalation de poussières issues de ces boues on supposera en première approche que l'activité de l'uranium 234 est égale à celle de l'uranium 238.

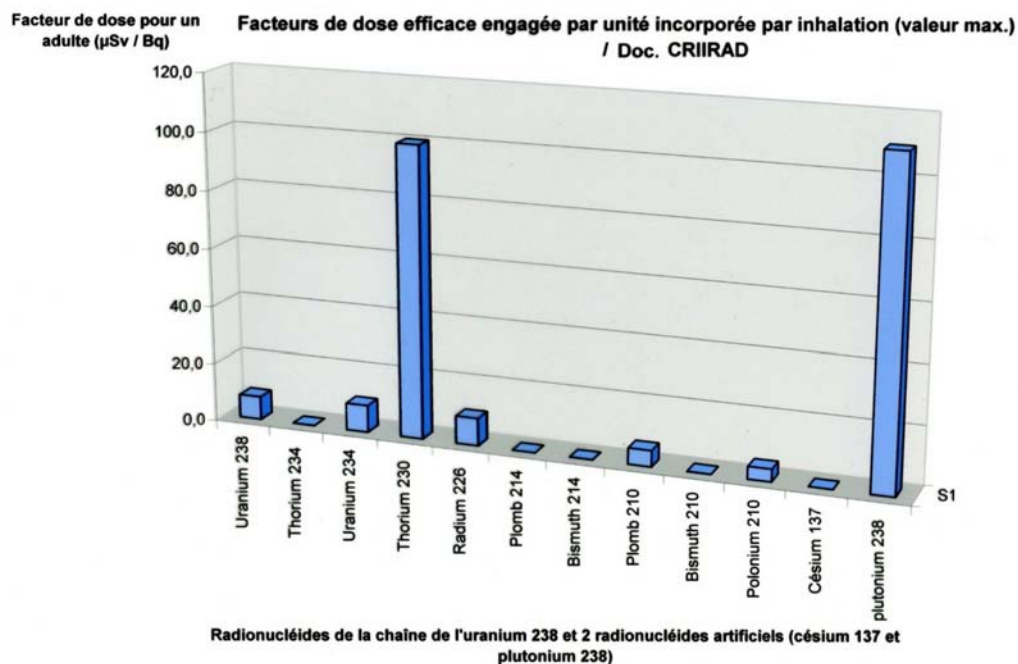
CHAINE RADIOACTIVE Famille de l'Uranium 238

Radioéléments	Mode de désintégration	Période de radioactivité
Uranium 238	α	4,5 10^9 ans
Thorium 234	β	24 jours
Protactinium 234m	β	1,2 minutes.
Uranium 234	α	2,5 10^5 ans
Thorium 230	α	7,5 10^4 ans
Radium 226	α	1,6 10^3 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^{-4} secondes
Plomb 210	β	22,3 ans
Bismuth 210	β	5 jours
Polonium 210	α	138,5 jours
Plomb 206		Stable

Les radioéléments en gras dans ce tableau peuvent être analysés et quantifiés en spectrométrie gamma directement ou par le biais de leurs descendants

Thorium 230

Il convient d'insister sur la contamination en thorium 230, descendant de l'uranium 234. Ce radionucléide émetteur **alpha** et gamma de longue période physique (**75 400 ans**) est **très radiotoxique par inhalation**. Sous certaines conditions, le facteur de dose par inhalation du thorium 230 est comparable à celui du plutonium (de l'ordre de 100 microSieverts par Becquerel, cf. graphique ci-dessous), or l'activité mesurée dans les boues P2 est très importante (**168 000 Bq/kg frais**). Compte tenu de l'importance de ce résultat, des analyses par spectrométrie alpha devront être réalisées pour confirmer ce résultat et abaisser la marge d'incertitude.



Radium 226

Les boues P2 présentent également une contamination par le radium 226 (émetteur alpha et gamma de longue période physique : **1 600 ans**).

L'activité mesurée (**3 300 Bq/kg**) est plus de **80 fois supérieure** à la moyenne de l'écorce terrestre (40 Bq/kg).

La contamination en radium 226 du sol P1 est difficile à mettre en évidence car l'activité obtenue (98 Bq/kg) est proche de la moyenne de l'écorce terrestre (facteur 2).

En se désintégrant, le radium 226 donne naissance à un **gaz radioactif le radon 222** de période 3,8 jours. Sa période relativement longue lui permet de parcourir de grandes distances avant disparition. Le radon 222 est un cancérigène reconnu par l'Agence Internationale de Recherche sur le Cancer. Il est responsable en particulier de **cancers du poumon**. Il serait responsable de 10 % des cancers du poumon.

Le stockage de près de 300 000 tonnes de boues (inventaire ANDRA à juin 2005) pourrait donc receler **900 milliards de becquerels de radon 222 dont une partie va diffuser vers l'atmosphère**.

L'impact de ce gaz radioactif sur les travailleurs du chantier en zone lagunaire et sur les riverains n'est **pas mesuré par COMURHEX** (dosage des émetteurs alpha à vie longue dans l'air mais absence de dosage du radon 222).

Plomb 210 et polonium 210

Les boues P2 sont contaminées par le plomb 210 (émetteur bêta et gamma de période physique **22,3 ans**). L'activité mesurée (11 300 Bq/kg) est plus de **280 fois** supérieure à la moyenne de l'écorce terrestre.

La terre P1 est également marquée (164 Bq/kg, soit 4 fois l'activité typique de l'écorce terrestre).

Le plomb 210 donne naissance en se désintégrant au bismuth 210 et au polonium 210 (émetteur alpha de période physique égale à 138 jours). Ces deux éléments ne sont pas détectables par spectrométrie gamma. Compte tenu de l'âge des boues P2, les activités du polonium 210, du bismuth 210 et du plomb 210 sont a priori égales.

Le plomb 210 et le polonium 210 sont parmi les radionucléides **les plus radiotoxiques par ingestion**. Leurs facteurs de dose par ingestion pour un adulte (directive Euratom de mai 96) sont respectivement de 0,69 et 1,2 microSievert par becquerel soit des valeurs 3 et 5 fois supérieures à celle du plutonium 238 (0,23 μ Sv/Bq).

Le stockage de près de 300 000 tonnes de boues (inventaire ANDRA à juin 2005) pourrait donc receler **3 400 milliards de becquerels de plomb 210** et autant de polonium 210 dont une partie pourrait rejoindre la nappe phréatique et le milieu hydrographique de surface.

Une partie de ces boues a été laissée à l'air libre et soumise à la pluie et aux inondations pendant plus de deux ans.

Par ailleurs le plomb 210 et le polonium 210 ne semblent pas recherchés par COMURHEX dans l'environnement (seul l'uranium est recherché dans les eaux).

3.6 Présence de descendants de l'uranium 235 à très forte radiotoxicité

L'uranium 238 est le plus abondant dans les concentrés uranifères d'origine naturelle (99,3 % en masse, contre seulement 0,7 % pour l'uranium 235). Le ratio des activités de l'uranium 238 sur l'uranium 235 est typiquement de l'ordre de 21,7 pour l'uranium naturel.

C'est ce que l'on observe, aux marges d'incertitude près, dans les boues P2 et la terre P1 (ratio de 19,7 et 19,3).

La chaîne de désintégration de l'uranium 235 est reproduite ci-après.

Uranium 235 et thorium 231

L'activité de **l'uranium 235** (émetteur alpha et gamma de période longue : **700 millions d'années**) est de **2 500 Bq/kg** dans la boue P2 et 28 Bq/kg dans la terre P1.

On peut considérer que l'activité du **thorium 231** (émetteur bêta de période 25,6 heures), premier descendant de l'uranium 235 est égale à celle de son précurseur avec lequel il se met en équilibre au bout d'une dizaine de jours.

CHAINE RADIOACTIVE

Famille de l'Uranium 235

Radioéléments	Mode de désintégration	Période radioactive
Uranium 235	α	7 10⁸ ans
Thorium 231	β	25,6 heures
Protactinium 231	α	3,3 10⁴ 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 ⁻³ secondes
Plomb 211	β	36 minutes
Bismuth 211	α	2,2 minutes
Thallium 207	β	4,8 minutes
Plomb 207		Stable

Les radioéléments en gras dans ce tableau peuvent être analysés et quantifiés en spectrométrie gamma directement ou par le biais de leurs descendants

Protactinium 231

On observe un fort déséquilibre de la chaîne à partir du **protactinium 231** (émetteur alpha et gamma de période très longue : **33 000 ans**).

Son activité est en effet pour P2 et P1, de **28 700 Bq/kg** et 400 Bq/kg respectivement soit des valeurs 11 et 14 fois supérieures à celles de l'uranium 235.

Il s'agit d'un phénomène comparable à celui observé pour le thorium 230 dans la chaîne de l'uranium 238. Le procédé de purification de l'uranium mis en œuvre dans l'usine COMURHEX produit des effluents et boues qui concentrent les métaux lourds radioactifs présents sous forme d'impuretés dans les concentrés livrés à l'usine. Ils se retrouvent alors dans les déchets avec une activité supérieure à celle de l'uranium résiduel.

Le protactinium 231 est **très radiotoxique** par ingestion (0,71 $\mu\text{Sv/Bq}$ pour un adulte) et par inhalation (jusqu'à 140 $\mu\text{Sv/Bq}$ pour un adulte) soit des valeurs supérieures à celles du plutonium 238.

Actinium 227 au Thallium 207

Pour les 8 autres radionucléides descendants de l'uranium 235, à partir du protactinium 231, seuls 4 sont mesurables par spectrométrie gamma (thorium 227, radium 223, radon 219, plomb 211). Les activités obtenues sont comparables et de l'ordre de **12 000 Bq/kg** pour P2 et 140 Bq/kg pour P1.

Ceci pose problème sur le plan sanitaire. En effet, le radium 223 produit un **gaz radioactif, le radon 219**, dont l'activité dans l'air ambiant n'est pas contrôlée par COMURHEX.

Par ailleurs, l'actinium 227 (émetteur bêta de période 21,8 ans) est **très radiotoxique** par ingestion (1,1 $\mu\text{Sv/Bq}$ pour un adulte) et par inhalation (jusqu'à 550 $\mu\text{Sv/Bq}$ pour un adulte) soit des valeurs **5 fois supérieures à celles du plutonium 238**.

3.7 Présence de descendants du thorium 232

Le thorium 232 est un radionucléide émetteur **alpha** de très longue période (**14 milliards d'années**) naturellement présent dans l'écorce terrestre (activité typique de 40 Bq/kg).

Il donne naissance à une chaîne de désintégration comportant **10 descendants radioactifs** émetteurs alpha, bêta et gamma. La chaîne de désintégration est reproduite page ci-contre.

La spectrométrie gamma ne permet de doser directement que 4 de ces descendants (actinium 228, plomb et bismuth 212, thallium 208). Le ratio des activités obtenues suggère en première approche un équilibre de la chaîne. Ceci devra être vérifié par un dosage spécifique des isotopes émetteurs alpha du thorium.

L'industrie de l'uranium mentionne rarement le fait que du thorium 232 est fréquemment associé à l'uranium dans les minerais. Ceci a pourtant été constaté par la CRIIRAD dans le cadre d'études sur l'impact des mines d'uranium.

Si les activités mesurées pour les descendants du thorium 232 dans les boues P2 (**300 Bq/kg** environ) sont nettement inférieures (d'un à deux ordres de grandeur) à celles des descendants de l'uranium 238 et 235, elles ne peuvent être négligées sur le plan sanitaire.

En effet, la chaîne du thorium 232 produit **un gaz radioactif, le radon 220**, qui n'est pas mesuré dans l'air ambiant par COMURHEX.

Le thorium 232 et certains de ses descendants sont par ailleurs très radiotoxiques par ingestion (Radium 228 : 0,69 $\mu\text{Sv/Bq}$ pour un adulte) et par inhalation (Thorium 232 : 110 $\mu\text{Sv/Bq}$).

CHAINE RADIOACTIVE

Famille du thorium 232

Radioéléments	Mode de désintégration	Période de radioactivité
Thorium 232	α	1,4 10 ¹⁰ ans
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	$\alpha \beta$	1 heure
Thallium 208	β	3 minutes
Polonium 212	α	3 10 ⁻⁷ secondes
Plomb 208		Stable

Les radioéléments en gras dans ce tableau peuvent être analysés et quantifiés en spectrométrie gamma directement ou par le biais de leurs descendants

3.8 Risques liés à l'exposition externe

Compte tenu de leurs activités massiques, les boues émettent un niveau de rayonnement alpha, bêta et gamma élevé.

Le débit de dose gamma est susceptible⁹ de dépasser **plusieurs microSieverts par heure** à 1 mètre soit une exposition non négligeable pour quelques heures de présence.

Le débit de dose bêta et alpha à proximité des boues peut être également très élevé.

3.9 Risques liés à l'inhalation

Gaz radioactif

Les boues contiennent les radionucléides précurseurs des isotopes radioactifs du **gaz radon** (radon 222, radon 220 et radon 219) et ne devraient en aucune façon être entreposées à l'air libre.

Le contrôle de l'exposition des travailleurs et des riverains par inhalation de ces gaz radioactifs n'est pas effectué actuellement et doit être mis en œuvre sans délai.

Poussières radioactives

Le potentiel de dose par inhalation de poussières issues des boues peut être estimé à **28,8 µSv/mg de poussière** pour un adulte. Cela signifie que l'inhalation d'un seul milligramme de cette matière entraîne déjà une exposition non négligeable (supérieure à 10 microSieverts).

La méthodologie de calcul est reproduite dans le tableau T10 ci-après.

Même en supposant un taux d'empoussièrement de l'air très faible de 3 µg/m³ (les taux typiques d'empoussièrement de l'air dans l'environnement, hors chantier sont plutôt de l'ordre de 10 µBq/m³), on obtient une dose cumulée sur l'année de **673 microSieverts pour les riverains (adulte)**, dans l'hypothèse où la poussière est constituée de la même matière que celle constitutive des boues P2.

Si l'on considère un taux d'empoussièrement classique de 10 µBq/m³, la dose annuelle est de **2 242 microSieverts** pour un adulte.

La seule voie inhalation pourrait donc induire des dépassements importants de la limite sanitaire.

Pour les riverains, la somme des doses induites par le fonctionnement de l'usine COMURHEX pour toutes les voies d'exposition ; c'est-à-dire inhalation de poussières, inhalation de gaz radioactif, ingestion et exposition externe pourrait conduire au dépassement de la limite sanitaire de 1000 microSieverts par an.

Note : le fait que les dernières versions de l'inventaire ANDRA à propos de l'entreposage de près de 300 000 tonnes de ces boues, ne mentionnent ni le thorium 230, ni le protactinium 231, ni l'actinium 227 conduit à sous-estimer fortement les impacts sanitaires. Ces 3 radionucléides représentent en effet d'après nos calculs plus de **95 % de la dose par inhalation**, en cas de remise en suspension de poussières issues des boues.

⁹ On obtient par le calcul 1,6 µSv/h en ne considérant que les émissions gamma du radium 226, des descendants du thorium 232 et le potassium 40.

T10/ Evaluation des doses liées à l'inhalation de poussières issues de la remise en suspension de la fraction fine des boues P2 (pour un adulte).

Coefficients de dose	boues P2, aval		Taux d'empoussièrément ⁴ (mg/m ³)		
	bassins B1-B2 COMURHEX		0,003	0,100	20,00
			Normal 0,010	Remise en suspension	Chantier / labour

Radionucléides "naturels"				Activité volumique (mBq/m ³)			
	μSv/Bq ⁽²⁾	Bq/Kg ⁽¹⁾	μSv/Kg ⁽³⁾	% ⁽³⁾			
Chaîne de l' Uranium 238							
Uranium 238	8	49 200	393 600	1	0,1640	4,92	984
Thorium 234	0,0077	49 200	379	0	0,1640	4,92	984
Uranium 234	9,4	49 200	462 480	2	0,1640	4,92	984
Thorium 230	100	168 200	16 820 000	58	0,5607	16,82	3 364
Radium 226	9,5	3 300	31 350	0	0,0110	0,33	66
Plomb 214	0,015	3 300	50	0	0,0110	0,33	66
Bismuth 214	0,014	3 300	46	0	0,0110	0,33	66
Plomb 210	5,6	11 300	63 280	0	0,0377	1,13	226
Bismuth 210	0,093	11 300	1 051	0	0,0377	1,13	226
Polonium 210	4,3	11 300	48 590	0	0,0377	1,13	226
Total		418 700		62			
Chaîne de l' Uranium 235							
Uranium 235	8,5	2 500	21 250	0	0,0083	0,25	50
Thorium 231	0,00033	2 500	1	0	0,0083	0,25	50
Protactinium 231	140	28 700	4 018 000	14	0,0957	2,87	574
Actinium 227	550	12 000	6 600 000	23	0,0400	1,20	240
Thorium 227	10	12 000	120 000	0	0,0400	1,20	240
Radium 223	8,7	12 000	104 400	0	0,0400	1,20	240
Plomb 211	0,012	12 000	144	0	0,0400	1,20	240
Total		129 700		38			
Chaîne du Thorium 232							
Thorium 232	110	300	33 000	0	0,0010	0,03	6
Radium 228	16	300	4 800	0	0,0010	0,03	6
Actinium 228	0,025	300	8	0	0,0010	0,03	6
Thorium 228	40	300	12 000	0	0,0010	0,03	6
Radium 224	3,4	300	1 020	0	0,0010	0,03	6
Plomb 212	0,19	300	57	0	0,0010	0,03	6
Bismuth 212	0,031	300	9	0	0,0010	0,03	6
Total		3 000		0			
Potassium 40	0,0021	300	1	0	0,0010	0,03	6
Radionucléides artificiels							
Am 241	96	670	64320	0	0,0022	0,07	13
Activité massique totale				552 370	Bq/kg		

Activité EAVL (mBq/m ³)		
1,13	33,77	6 753,40
Durée d'exposition (heures)		
8760,0	2000,0	8,0
Ventilation pulmonaire (m ³ /h)		
0,8	0,8	1,2
Dose annuelle cumulée (μSv / an)		
673	4 608	5 530

Potentiel de dose par inhalation brut (μSv/Kg)	2,9E+07
Potentiel de dose par inhalation brut (μSv/mg)	28,8
Potentiel de dose par inhalation ⁵ (μSv/Kg)	1,1E+07
Potentiel de dose par inhalation ⁵ (μSv/mg)	10,8

Methode de calcul :

- 1/ Les activités massiques des boues sont issues des analyses par spectrométrie gamma CRIIRAD.
- 2/ Les coefficients de dose efficace engagée par inhalation pour un adulte sont tirés de la directive Euratom 96/29 et exprimés en microsieverts par becquerel (μSv/Bq). En l'absence de connaissances précises sur la granulométrie des boues et la forme physico-chimique des éléments, c'est le coefficient correspondant à l'hypothèse la plus pénalisante qui est retenu.
- 3/ Pour chaque échantillon, la seconde colonne est obtenue par le produit des activités massiques (Bq/Kg) par les coefficients de dose. La contribution relative de chaque radionucléide à la dose totale par inhalation est calculée dans la troisième colonne.
- 4 / Valeurs typiques du taux d'empoussièrément : chantier lourd / labour forte remise en suspension : 10 mg/m³ et 20 mg/m³ (IPSN); Remise en suspension du sol en place : 100 μg/m³ (valeur conservatoire); taux d'empoussièrément normal typique : 10 μg/m³.
- 5 / L'IPSN recommande une fraction inhalable de 0,375 pour la remise en suspension des sols (Guide méthodologique / Mai 2001). Dans le cas de ces boues fines, il est raisonnable de supposer que 100 % est inhalable.

Insuffisance des contrôles (sensibilité de mesure et emplacement des stations)

Cette contamination de l'air ambiant ne serait pas forcément détectable par les 5 à 6 dispositifs de contrôle de l'air mis en œuvre sur le site et son environnement proche, à poste fixe.

Ces appareils effectuent un échantillonnage continu des poussières. Sur les filtres mensuels, le laboratoire ALGADE mesure ensuite l'activité des radionucléides émetteurs alpha à vie longue. Mais la sensibilité de ce dispositif est insuffisante car le **seuil de détection est trop élevé (de l'ordre de 1 mBq/m3)**.

Comme indiqué dans le tableau T10, une contamination permanente de l'air susceptible de délivrer aux riverains une dose de **590 microSieverts par an ne serait pas détectable avec un seuil de 1 mBq/m3**. On obtient en effet une dose de 673 microSieverts par an pour une activité volumique de 1,13 mBq/m3, correspondant à la remise en suspension des boues avec un très faible taux d'empoussièrement de 3 µg/m3.

On notera par ailleurs qu'à la station implantée près du bassin B5, l'activité des poussières était supérieure à la limite de détection en février 2006 (1,1 mBq/m3), avril 2006 (1,3 mBq/m3) et mai 2006 (1,1 mBq/m3).

Il conviendra de clarifier la question **du probable déplacement de la station de mesure** de l'emplacement B1 (2,5 et 2,2 mBq/m3 mesurés en moyenne annuelle en 2004 et 2005) à la station B5, apparemment utilisée en 2006 et qui donne des résultats nettement plus faibles.

Pour les travailleurs du site, une exposition de 2000 heures par an, dans une ambiance de 2,5 mBq/m3 (moyenne de l'année 2004) entraînerait une exposition de 511 microSieverts.



La surveillance radiologique du site

u Poussières :

Activité volumique alpha totale des poussières en suspension dans l'air :

Valeurs exprimées en mBq / m3 (limite de détection = 1) :

EMPLACEMENTS	Janvier 2006	Février 2006	Mars 2006	Avril 2006	Mai 2006	Juin 2006
Station B5	<1	1,1	< 1	1,3	1,1	< 1
Tauran	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1
Tauran 600	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1
Ferme Florès -Livière haute	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1
Ferme Camps - Oeillal	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1

Toutes les mesures effectuées en clôture
sont inférieures à la limite de détection depuis 2004

Exposition des travailleurs

Dans la mesure où il s'agit de valeurs moyennes mensuelles, on peut aisément imaginer qu'elles sous-estiment les valeurs en journée (arrêt du chantier la nuit) ainsi que les pics lors de fortes remises en suspension.

Pour un travailleur exposé sur le chantier pendant 8 heures dans l'année, lors de travaux à forte remise en suspension de poussière (20 mg/m³), la dose cumulée pourrait être de 5 500 microSieverts soit une valeur plus de 5 fois supérieure à la limite sanitaire.

Si les pics de contamination sont ponctuels et étalés dans le temps, par exemple 1 heure à 20 mg/m³ chaque mois pendant 8 mois, les pics pourraient passer inaperçus avec le système de surveillance actuel (moyenne mensuelle) en particulier si les systèmes d'échantillonnage de l'air sont situés à plusieurs dizaines de mètres du lieu de production des poussières (et d'exposition des travailleurs).

Des riverains nous ont indiqué que **certains travailleurs opèrent sans masque respiratoire.**

Ceci est confirmé d'ailleurs par une photographie du chantier prise par l'exploitant le 10 octobre 2006 (cf. ci-après).

Les risques liés à l'inhalation des poussières radioactives engendrées par la remise en suspension des boues sont très élevés et le dispositif de surveillance de l'activité de l'air mise en œuvre par COMURHEX et le laboratoire sous-traitant (ALGADE) est totalement inadapté.

Tout devrait être mis en œuvre pour limiter au maximum l'envol de poussières. Or ces boues sont à l'air libre depuis plus de 2 ans et de surcroît dans une zone de chantier où les risques de remise en suspension sont élevés (sondages, circulation d'engins, etc.).

Des photographies prises par les riverains le 4 septembre 2006 attestent par ailleurs visuellement de la formation de nuages de poussière sur le chantier (cf. photos ci-dessous). En réunion de CLIC du 12 octobre 2006, un représentant de COMURHEX a prétendu que ces poussières n'étaient pas radioactives.



Photographies prises par un riverain le 9 septembre 2006 depuis son terrain situé en bordure du chantier (nuages de poussière).



Vue générale du chantier lagunes – été 2006



COMURHEX

> CLIC du 12 Octobre 2006

16

Photographie prise par l'exploitant sur le chantier en zone lagunaire (poussières due à la circulation d'un engin sur une rampe d'accès aux digues) / Présentation AREVA CLIC du 12 octobre 2006



Photographie prise par l'exploitant le 10 octobre 2006 sur le chantier en zone lagunaire (la personne ne porte aucune protection respiratoire) / Présentation AREVA CLIC du 12 octobre 2006