

RAPPORT D'ETUDE

juin — 2025

ETUDE RADIOLOGIQUE DE L'ENVIRONNEMENT DU SITE DE MALVESI ETUDE RADIOLOGIQUE DU MILIEU TERRESTRE

Rapport N° 2025-00162

RÉSUMÉ

Mots clés :

Dans le cadre de sa mission de surveillance radiologique de l'environnement, l'ASNR a choisi le site industriel de la société Orano à Malvési, près de Narbonne, pour y mener une « Etude radiologique de site » (ERS) destinée, en complément des programmes de surveillance existants, à mieux caractériser l'influence de ce site sur son environnement ainsi que les expositions de la population avoisinante qui en résulte.

Ce site industriel qui comporte notamment une usine de conversion de l'uranium classée pour la protection de l'environnement (ICPE) et une installation d'entreposage de déchets radiologiques, l'Installation nucléaire de base (INB) ECRIN, a connu de profondes transformations ces dernières années et de nouveaux projets sont aujourd'hui terminés, en cours de réalisation ou à l'étude : alvéole PERLE au niveau de l'Installation nucléaire de base (INB) ECRIN, projet CERS, nouvel atelier de production d'UO₂ et projet de traitement des nitrates (TDN) contenus dans les bassins industriels.

L'étude radiologique de l'environnement terrestre du site de Malvési menée par l'ASNR de 2021 à 2023 constitue un des volets de cette ERS. Elle permet à la fois de déterminer les zones influencées par le site, de quantifier les activités des radionucléides ajoutées dans les végétaux du fait de cette influence et également d'identifier l'origine de ces radionucléides. En effet, ceux-ci peuvent provenir des rejets atmosphériques d'uranium par l'usine ou de la remise en suspension de particules provenant du site (sols et bassins de décantation et d'évaporation) ou encore des sols avoisinants marqués par divers radionucléides naturels et artificiels dont certains peuvent résulter de rejets anciens, datant notamment de la période durant laquelle l'usine utilisait de l'uranium de retraitement (URT de 1960 à 1983).

Les données radiologiques acquises dans le cadre de cette étude ont été analysées en les mettant en perspective, d'une part avec des résultats de mesures provenant d'autres régions de France, et d'autre part avec celles obtenues lors d'études passées au travers de chroniques remontant à 2007. En effet, les rejets atmosphériques d'uranium de l'usine de Malvési ont diminué d'un facteur 80 depuis cette date, ce qui devrait se traduire par une diminution des activités radiologiques observées dans les milieux atmosphériques et terrestres sous influence des rejets.

Les analyses radiologiques mises en œuvre pour cette étude, qui ont permis de mesurer de très faibles niveaux de radioactivité dans les végétaux terrestres prélevés autour du site (feuilles d'arbre, blé, légumes-feuilles ou fruits), montrent que l'influence des rejets atmosphériques d'uranium de l'usine de Malvési est décelable à l'est du site jusqu'à une distance d'au moins six kilomètres dans les feuilles d'arbres et d'environ deux kilomètres dans les denrées. Les activités massiques en uranium 238 mesurées dans les feuilles de frêne prélevées à huit cents mètres à l'est de l'usine sont nettement supérieures (deux ordres de grandeur) à celles des feuilles prélevées en zone non-influencée par les rejets. Dans le blé et dans les légumes-feuilles prélevés entre un et deux kilomètres à l'est de l'usine, les activités massiques d'uranium 238 sont supérieures d'un ordre de grandeur à celles observées en zone non-influencée.

Dans le cas des feuilles de frêne, les activités massiques d'uranium mesurées dans les échantillons prélevés en zone influencée sont significativement supérieures à celles observées dans d'autres régions françaises. En revanche, si les activités d'uranium mesurées dans les denrées influencées par les rejets de Malvési sont plus élevées que celles de denrées provenant des grands bassins sédimentaires (Sud-Ouest, Vallée du Rhône...), elles sont du même niveau ou plus faibles que celles observées dans des régions de France dont les sols sont naturellement riches en uranium, comme le Massif-Central.

Si les activités massiques d'uranium 238 mesurées dans les feuilles d'arbre et les denrées produites dans la zone influencée ont diminué depuis 2007 du fait de la baisse des rejets atmosphériques de l'usine, cette diminution est moindre que celle des rejets, suggérant l'existence de sources secondaires diffuses d'uranium. Masquée jusqu'alors, l'influence de ces sources diffuses devient décelable dans l'environnement du fait de la baisse de ces rejets. Elles résultent principalement de la remise en suspension de poussières provenant du site ou de son environnement immédiat (bâtiments, sols, routes, digues, enrochements, etc.) ainsi que de l'envol d'embruns depuis les bassins de décantation, lors d'épisodes de vents forts.

Ces sources secondaires sont aussi à l'origine des traces d'autres radionucléides naturels (thorium 230 et radium 226) et artificiels (uranium 236, césum 137, strontium 90, isotopes du plutonium, américium 241 et technétium 99) mesurées dans les végétaux prélevés autour du site de Malvési. Ces radionucléides peuvent provenir, dans des proportions diverses, soit des rejets passés de l'usine, soit des retombées des retombées des essais atmosphériques d'armes nucléaires et de l'accident de Tchernobyl, soit du fond radiologique naturel de l'environnement du site.

Le fait que les activités de strontium 90 et de césum 137 dans les feuilles d'arbre prélevées sous influence du site sont du même niveau que celles mesurées à distance du site, montre que ces émissions sont indécelables. De même, aucune augmentation des activités massiques en isotopes du plutonium ou en américium 241 n'est observée dans les denrées produites localement : blé, figues, légumes-feuilles, raisin, tomates, vin. Depuis la couverture de l'INB ECRIN finalisée en 2020, qui empêche les émissions de poussières chargées de radionucléides dans l'air, l'activité massique en plutonium des épis de blé par exemple, en constante diminution au fil des années, est maintenant du même niveau que celle observée dans d'autres zones du territoire national.

Le technétium 99, provenant des bassins industriels, n'a été mesuré que dans un échantillon de feuilles de frêne en bordure de site. De plus, l'étude montre que les très faibles traces d'uranium 236 mesurées dans les différents végétaux, proviendraient de l'envol de poussières depuis les sols marqués par les rejets passés de l'usine. Il en serait de même des isotopes du plutonium mesurés dans les feuilles d'arbre prélevées en bordure de site.

Cette connaissance des activités massiques des radionucléides artificiels et de leurs origines constitue un élément de comparaison utile pour la surveillance des rejets atmosphériques à venir de la future installation TDN.

De plus, les estimations des activités des différents radionucléides ajoutées dans les denrées prélevées dans l'environnement du site de Malvési serviront à calculer les doses résultant de leur ingestion par la population avoisinante, objet d'un rapport spécifique.

TABLE DES MATIÈRES

1. INTRODUCTION	12
2. PRESENTATION DU SITE DE MALVESI.....	14
2.1. LE SITE DE MALVESI.....	14
2.2. LE TRAITEMENT DE L'URANIUM SUR LE SITE DE MALVESI.....	14
2.3. LES EFFLUENTS ET LES REJETS DU SITE	15
2.4. L'INB ECRIN	17
2.5. LES PROJETS INDUSTRIELS.....	18
2.5.1. Le projet TDN.....	18
2.5.2. L'atelier UO2.....	18
2.6. SURVEILLANCE RADIOLOGIQUE DE L'ENVIRONNEMENT DU SITE DE MALVESI.....	18
2.6.1. Les dispositifs de surveillance dans l'environnement du site	18
2.6.2. Bilan de la surveillance de l'environnement atmosphérique et terrestre du site	20
2.6.3. Bilan des études radioécologiques de l'IRSN réalisées entre 2007 et 2010	21
2.6.4. Mesures réalisées par la CRIIRAD et le comité « vigilance Malvézy ».....	22
3. L'URANIUM DANS LE MILIEU TERRESTRE	23
3.1. GENERALITES SUR L'URANIUM	23
3.1.1. Les isotopes de l'uranium	23
3.1.2. Les descendants de l'uranium.....	23
3.1.3. Les sources de l'uranium.....	24
3.2. NIVEAUX D'ACTIVITES EN URANIUM MESURES EN FRANCE DANS L'ENVIRONNEMENT TERRESTRE : LE FOND RADIOLOGIQUE	24
3.2.1. Niveaux d'activités en uranium des sols	24
3.2.2. Niveaux d'activités en uranium des végétaux terrestres	25
4. ETUDE DES NIVEAUX DES RADIONUCLEIDES DANS L'ENVIRONNEMENT TERRESTRE DU SITE DE MALVESI.....	28
4.1. STRATEGIE DES PRELEVEMENTS DES VEGETAUX ET DE MESURE DES RADIONUCLEIDES	28
4.1.1. Les zones d'intérêt.....	28
4.1.2. Les échantillons d'intérêt	28
4.1.3. Les radionucléides d'intérêt.....	30
4.2. METHODES DE PRELEVEMENT DES VEGETAUX TERRESTRES ET DE MESURE DES RADIONUCLEIDES.....	31
4.2.1. Les prélèvements de végétaux terrestres et de denrées végétales	31

4.2.2. Traitement des échantillons au laboratoire	34
4.2.3. Métrologie des radionucléides.....	34
5. LES RESULTATS.....	36
5.1. L'URANIUM.....	36
5.1.1. Répartition spatiale des activités massiques de l'uranium 238	36
5.1.2. Comparaison avec les résultats acquis dans d'autres régions françaises	38
5.1.3. Evolution dans le temps des activités massiques d' ^{238}U	39
5.1.4. Caractérisation et origine de l'uranium mesuré dans l'environnement terrestre du site de Malvési	43
5.2. LE RADIUM 226 ET LE THORIUM 230	46
5.2.1. Les feuilles de frênes.....	46
5.2.2. Les denrées	47
5.3. LES RADIONUCLIDES ARTIFICIELS.....	49
5.3.1. Le césium 137.....	49
5.3.2. Le strontium 90	51
5.3.3. Le technetium 99	52
5.3.4. Les transuraniens : isotopes du plutonium et américium 241	52
6. CONCLUSION GENERALE	57
7. REFERENCES	59

TABLE DES FIGURES ET DES TABLEAUX

Figures

Figure 1 : Schéma du procédé de fabrication de l'UF ₄ sur le site de Malvési (d'après [7]).	15
Figure 2 : Evolution temporelle de l'activité des isotopes de l'uranium rejetés dans le milieu atmosphérique et aquatique (synthèse des rapports d'information du site Orano de Malvési).	16
Figure 3 : Localisation des points de la surveillance menée par Orano dans le milieu atmosphérique (prélèvements d'aérosols sur le site) et dans le milieu terrestre (prélèvements de sol, de légumes et de végétaux terrestres à l'est du site).	20
Figure 4 : Activité massique des radionucléides naturels et artificiels dans les feuilles de cypres en fonction de la distance à la barrière du site (en Bq.kg ⁻¹ sec) [4,5]	21
Figure 5 : Famille radioactive de l' ²³⁸ U, avec les émissions radioactives (alpha ou bêta) et les périodes de décroissance de chaque radionucléide [11].	24
Figure 6 : Activité massique en ²³⁸ U des sols en France (HNRN = haut niveau de radioactivité naturelle) [11].	25
Figure 7 : Activité massique en ²³⁸ U dans les légumes-feuilles (en haut) et dans les épis de blé (en bas) prélevés dans différentes régions françaises (données ASNR). HNRN = zones à haut niveau de radioactivité naturelle (d'après [11]).	26
Figure 8 : Activité massique en ²³⁸ U dans les feuilles caduques ou persistantes de différentes espèces d'arbres. Données Vosges [17,18,19] autres données : ASNR.	27
Figure 9 : Direction des vents, station de Mas Flores (en °) de janvier à septembre 2021 (données ASNR).	28
Figure 10 : Potager à Livièvre-Haute où les légumes-feuilles ont été cultivés en concertation avec l'association COLERE en juillet 2021 (crédit ASNR).	31
Figure 11 : Localisation des prélèvements de végétaux terrestres dans la zone influencée à proximité du site de Malvési.	33
Figure 12 : Répartition des sites de prélèvements de végétaux terrestres dans la zone non-influencée par les rejets atmosphériques du site de Malvési. Ces sites sont situés au nord du site de Malvési, à des distances comprises entre 4 et 7,5 km de l'usine.	33
Figure 13 : Activités massiques en ²³⁸ U mesurées dans les feuilles de frêne prélevées par l'ASNR dans le cadre de cette étude (points bleus) et dans les feuilles de cypres prélevées par la CRIIRAD (points verts) et l'ASNR (points gris) dans l'environnement du site de Malvési, en fonction de la distance à l'usine et dans la zone non-influencée par les rejets (ZNI).	36
Figure 14 : Activités massiques en ²³⁸ U mesurées dans les denrées prélevées dans l'environnement du site de Malvési (N, W et E site) en fonction de la distance à l'usine et dans la zone non-influencée par les rejets (ZNI). Cercles « vides » = figue, cercles « pleins » = raisin.	37
Figure 15 : Activités massiques maximales en ²³⁸ U mesurées dans les feuilles de frêne et les denrées (activité volumique pour le vin) provenant de la zone influencée comparée à celle de la zone non-influencée par les rejets atmosphériques du site.	38
Figure 16 : Activités massiques en ²³⁸ U dans les feuilles de frêne (à gauche) et dans les épis de blé (à droite) prélevés dans différentes régions françaises par l'ASNR, comparées aux mesures de la présente étude (Malvési zone influencée et zone non-influencée).	39

Figure 17 : Activités massiques en ^{238}U dans les légumes-feuilles (gauche) et les fruits (droite) prélevés dans différentes zones du territoire par l'ASNR, notamment dans les zones à haut niveau de radioactivité naturelle (HNRN) comparées à celles mesurées lors de la présente étude (Malvési zone influencée et non-influencée) [11].	39
Figure 18 : Evolution temporelle de l'activité massique de l' ^{238}U dans les feuilles de cyprès prélevées entre 2007 et 2023 par l'IRSN et la CRIIRAD et dans les feuilles de frêne prélevées en 2021 (ERS de Malvési) en différents points de prélèvements, dans la zone influencée et dans la zone non-influencée par les rejets atmosphériques de l'usine.	40
Figure 19 : Evolution temporelle de l'activité massique de l' ^{238}U dans les feuilles de cyprès prélevées entre 2007 et 2023 à Livière-Haute, comparée aux rejets atmosphériques annuels des isotopes de l'uranium de l'ICPE de Malvési (2007-2022).	40
Figure 20 : Evolution temporelle de l'activité massique de l' ^{238}U dans les épis de blé prélevés entre 2007 et 2021 dans la zone influencée par les rejets et en dehors de celle-ci, comparée aux rejets atmosphériques annuels de l'ICPE de Malvési sur la même période. Les différents points de mesures pour les années 2008, 2009 et 2021 (ERS Malvési) correspondent à différents sites de prélèvements et rendent compte de la variabilité spatiale de l' ^{238}U	41
Figure 21 : Evolution temporelle de l'activité massique de l' ^{238}U dans les légumes-feuilles prélevés entre 2007 et 2022 dans la zone influencée par les rejets et en dehors de celle-ci. Distance à l'usine pour les échantillons prélevés dans la zone influencée par les rejets atmosphériques.	42
Figure 22 : Evolution temporelle de l'activité massique de l' ^{238}U dans les fruits prélevés entre 2007 et 2023 dans la zone influencée par les rejets atmosphériques et en dehors de l'influence des rejets. Les symboles « ouverts » représentent les prélèvements réalisés en dehors de l'influence des rejets.....	42
Figure 23 : Rapports $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ et $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ dans les feuilles de frêne.	43
Figure 24 : Rapports $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ et $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ dans les denrées.	44
Figure 25 : Rapport $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ des végétaux prélevés dans la zone influencée par les rejets du site (N et E du site) en fonction de la distance à l'usine.	45
Figure 26 : Variations du rapport $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ en fonction de l'activité massique en ^{238}U des sols et de la distance à l'usine dans la zone influencée par les rejets atmosphériques située à l'est du site et dans la zone non-influencée (ZNI).	45
Figure 27 : Activité massique du ^{230}Th et du ^{226}Ra , comparée à celle de l' ^{238}U dans les feuilles de frêne, en fonction de la distance à l'usine dans la zone influencée (N et E du site) et dans la zone non-influencée par les rejets (ZNI).	47
Figure 28 : Activité massique du ^{230}Th et du ^{226}Ra , comparée à celle de l' ^{238}U dans les denrées, en fonction de la distance à l'usine dans la zone influencée (N et E du site) et dans la zone non-influencée par les rejets atmosphériques (ZNI) (a) épis de blé, (b) légumes-feuilles et (c) fruits. Les cercles « ouverts » représentent les activités massiques inférieures au seuil de décision.....	48
Figure 29 : Variation du rapport $^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th}$ des végétaux terrestres prélevés dans l'environnement du site de Malvési et en dehors de l'influence des rejets atmosphériques (ZNI).	49
Figure 30 : Activité massique du ^{137}Cs dans les échantillons de végétaux en fonction de la distance à l'usine dans la zone influencée (N et E du site) et dans la zone non-influencée par les rejets (ZNI).	49
Figure 31 : Activité massique en ^{137}Cs dans les feuilles d'arbres entre 2007 et 2021 dans l'environnement terrestre du site de Malvési.....	50

Figure 32 : Activité massique en ^{137}Cs dans les feuilles caduques d'arbres prélevées dans différentes zones du territoire par l'ASNR, comparées aux mesures de la présente étude (Malvési et zone non-influencée)	50
Figure 33 : Activité massique du ^{90}Sr dans les échantillons de feuilles de frêne en fonction de la distance à l'usine dans la zone influencée (E du site) et dans la zone non-influencée par les rejets (ZNI).	51
Figure 34 : Activité massique en ^{90}Sr dans les feuilles caduques d'arbres prélevées dans différentes zones du territoire par l'ASNR, comparées aux mesures de la présente étude (Malvési zone influencée et non-influencée)	52
Figure 35 : Activité massique du technétium (^{99}Tc) dans les échantillons de feuilles de frêne, en fonction de la distance à l'usine, dans la zone influencée (E du site) et dans la zone non-influencée par les rejets (ZNI).	52
Figure 36 : Activité massique du plutonium ($^{239+240}\text{Pu}$) dans les échantillons de végétaux (feuilles de frêne, épis de blé et figues) en fonction de la distance à l'usine dans la zone influencée (N et E du site) et dans la zone non-influencée par les rejets (ZNI)	53
Figure 37 : Rapport $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ des végétaux prélevés dans la zone influencée et dans la zone non-influencée par les rejets du site en fonction de l'activité massique en $^{239+240}\text{Pu}$. Le rapport des retombées globales est donné par la littérature scientifique. Le rapport dans les sols en bordure immédiate de Malvési est issu des travaux de l'IRSN [12]. NB : il n'a pas été possible de quantifier le rapport $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ dans les figues prélevées à l'Oeillal, au nord du site.....	54
Figure 38 : Activité massique de l' ^{241}Am dans les échantillons de végétaux en fonction de la distance à l'usine dans la zone influencée (est du site) et dans la zone non-influencée par les rejets (ZNI).	54
Figure 39 : Rapport $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ des végétaux prélevés dans la zone influencée et dans la zone non-influencée par les rejets du site en fonction de l'activité massique en plutonium $^{239+240}\text{Pu}$. Le rapport des retombées globales et des sols de l'environnement de Malvési sont issus des travaux de l'IRSN [21, 12].....	55
Figure 40 : Evolution temporelle de l'activité massique en plutonium ($^{239+240}\text{Pu}$) dans les épis de blé prélevés entre 2007 et 2021 dans la zone influencée par les rejets atmosphériques et en dehors de l'influence des rejets.	55
Figure 41 : Rapports $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ et $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ des végétaux prélevés dans la zone influencée par les rejets de Malvési, comparés à ceux des sols, des aérosols et du rejet atmosphérique de l'ICPE de Malvési (hypothèse).	56
Figure 42 : Variation du rapport $^{238}\text{U}/^{232}\text{Th}$ dans les végétaux en fonction de l'activité massique en ^{238}U dans les denrées (en $\text{Bq}.\text{kg}^{-1}$ frais) et les feuilles de frêne (en $\text{Bq}.\text{kg}^{-1}$ sec).	61
Figure 43 : Variation du rapport $^{238}\text{U}/^{232}\text{Th}$ dans les végétaux en fonction de la distance à l'usine. La ligne pointillée représente la tendance de l'évolution du rapport $^{238}\text{U}/^{232}\text{Th}$ des feuilles de frêne à l'est du site.....	62
Figure 44 : Facteur d'enrichissement de l'uranium dans les feuilles de frêne et les denrées prélevés dans la zone influencée par le rejet atmosphérique, à l'est, à l'ouest et au nord du site en fonction de la distance à l'usine.	63

Tableaux

Tableau 1 : Les radionucléides contenus dans les bassins industriels du site de Malvési en 2021 [8].	16
Tableau 2 : Les radionucléides naturels et artificiels entreposés dans l'INB ECRIN [9].	17
Tableau 3 : Plans de surveillance de l'environnement réalisés par Orano et l'ASNR (issue de l'IRSN). AG=alpha global, Am = americium, BG=béta global, Ded=débit d'équivalent de dose, Pu=plutonium, Rn=radon, U=uranium. [11]	19
Tableau 4 : Période radioactive, abondance naturelle et activité spécifique des isotopes de l'uranium [13].	23
Tableau 5 : Les critères de comparaison des feuilles de cyprès et des feuilles de frêne utilisés comme des bioindicateurs de l'activité en ^{238}U dans l'air.	29
Tableau 6 : Mode opératoire des prélèvements des végétaux en milieu terrestre, dans la zone influencée par les rejets de Malvési et en dehors de l'influence des rejets (2021-2023).	31
Tableau 7 : Les légumes-feuilles prélevés dans la zone influencée par les rejets de Malvési et en dehors de l'influence des rejets (2021-2022).	32
Tableau 8 : Méthodes de mesure mises en œuvre pour quantifier l'activité massique des radionucléides naturels et artificiels dans les végétaux.	34
Tableau 9 : Stratégie de mesure des végétaux prélevés entre 2021 et 2023 dans la zone influencée par les rejets du site de Malvési (ZI) et dans la zone non-influencée (ZNI).	35
Tableau 10 : Activité massique des isotopes du thorium et de l'uranium des feuilles de frêne prélevées en 2021 (en $\text{Bq}.\text{kg}^{-1} \text{ sec}$).	64
Tableau 11 : Activité massique des isotopes du thorium et de l'uranium des feuilles de frêne prélevées en 2022 et 2023 (en $\text{Bq}.\text{kg}^{-1} \text{ sec}$).	65
Tableau 12 : Activité massique des isotopes du thorium et de l'uranium des denrées prélevées en 2021, 2022 et 2023 (en $\text{Bq}.\text{kg}^{-1} \text{ frais}$).	66
Tableau 13 : Activité volumique des isotopes du thorium et de l'uranium dans le vin prélevées entre 2021 et 2023 (en $\text{Bq}.\text{L}^{-1}$).	67
Tableau 14 : Activité massique des émetteurs gamma naturels des végétaux terrestres prélevés en 2021.	67
Tableau 15 : Activité massique des émetteurs gamma naturels des végétaux prélevés en 2022.	69
Tableau 16 : Activité massique des émetteurs gamma artificiels des végétaux prélevés en 2021.	69
Tableau 17 : Activité massique des émetteurs gamma artificiels des végétaux prélevés en 2022.	71
Tableau 18 : Activité massique des émetteurs gamma artificiels des végétaux prélevés en 2023.	72
Tableau 19 : Activité massique en ^{99}Tc des végétaux terrestres prélevés en 2021 (en $\text{Bq}.\text{kg}^{-1} \text{ sec}$).	72
Tableau 20 : Activité massique en ^{99}Sr des végétaux terrestres prélevés en 2021 et 2022 (en $\text{Bq}.\text{kg}^{-1} \text{ sec}$).	72
Tableau 21 : Activité massique et rapports d'activités des transuraniens dans les végétaux terrestres prélevés en 2021.	73

1. INTRODUCTION

Dans le cadre de sa mission de surveillance de l'environnement, l'ASNR souhaite renforcer ses connaissances sur l'influence des sites nucléaires sur leur environnement ainsi que sur l'exposition de la population avoisinante qui en résulte. C'est à cette fin et en complément de la connaissance issue de la surveillance régulière de l'environnement des sites nucléaires, qu'un programme d'«Études radiologiques de site » (ERS) a démarré en 2019 [1].

Le programme d'une ERS est organisé autour de trois axes principaux :

- Des études de terrain dans les différentes composantes de l'environnement (atmosphérique, terrestre et aquatique), par l'acquisition de mesures de radioactivité à proximité et à distance du site. Ces études permettent de multiplier et diversifier les types de prélèvements et d'analyses effectués dans le cadre de la surveillance régulière. Ce type d'étude est aussi l'occasion de mettre en œuvre des moyens techniques de prélèvement et de mesure très performants afin de pouvoir mesurer des niveaux très faibles de radioactivité,
- Des enquêtes de proximité pour connaître les modes de vie des habitants résidant autour du site (habitudes alimentaires et utilisation de l'espace et du temps) et ainsi mieux estimer leurs expositions,
- L'implication des acteurs locaux, en leur donnant la possibilité de participer à la définition et la réalisation du programme d'études, afin de s'assurer de répondre à leurs préoccupations, de les informer et de leur restituer de manière pédagogique cette connaissance des niveaux de radioactivité d'origine naturelle et artificielle auxquels ils sont exposés et les enjeux dosimétriques associés.

Après une ERS « pilote » menée entre 2019 et 2021 dans l'environnement du Centre nucléaire de production d'électricité de St-Alban Saint-Maurice (Isère) dans la vallée du Rhône [2], l'ASNR a choisi le site de la société Orano à Malvési, près de Narbonne, pour y mener une seconde ERS.

Ce site industriel qui comporte notamment une usine de conversion de l'uranium qui est une installation classée pour la protection de l'environnement (ICPE), et une installation d'entreposage de déchets radiologiques, l'Installation nucléaire de base (INB) ECRIN, a connu de profondes transformations ces dernières années et de nouveaux projets sont à l'étude ou en cours de réalisation : projets PERLE-CERS au niveau de l'Installation nucléaire de base (INB) ECRIN, le nouvel atelier de production d'UO₂ et le projet de traitement des nitrates (TDN) contenus dans les bassins industriels.

L'environnement du site de Malvési a déjà fait l'objet d'études radioécologiques approfondies de la part de l'Institut de radioprotection et de sûreté nucléaire (IRSN)¹, entre 2007 et 2010, concernant les milieux terrestre et aquatique (2007-2008) et le milieu atmosphérique (2009-2010) [4,5,6]. En outre, l'environnement du site fait l'objet d'une surveillance radiologique et chimique réglementaire par l'exploitant et d'une surveillance radiologique complémentaire par l'ASNR. D'autres acteurs qu'Orano et l'ASNR réalisent des prélèvements et des mesures dans l'environnement du site de Malvési. Ainsi, un collectif de riverains du site soutenu par la CRIIRAD a réalisé ses propres mesures du débit de dose et des prélèvements de végétaux dans l'environnement du site dans le but de comprendre l'exposition chronique à l'uranium des riverains [3]. Cependant, les données anciennement acquises dans ces divers cadres nécessitent d'être actualisées et les plus récentes ne permettent pas une caractérisation radiologique complète et précise de l'environnement car le nombre de points d'observation et les radionucléides mesurés (essentiellement l'uranium) sont limités.

Aussi, l'ASNR a estimé qu'une étude approfondie, en complément de la surveillance de routine et des études radioécologiques passées, permettrait de mieux évaluer les conséquences dans l'environnement des évolutions industrielles du site et d'apporter des éléments de réponses aux questionnements du public, notamment par l'évaluation de l'exposition des riverains.

L'étude radiologique du milieu terrestre dans l'environnement des installations de Malvési répond à différents objectifs. Il s'agit tout d'abord de mieux caractériser l'influence, dans le milieu terrestre, des émissions

¹ En 2025, l'IRSN a fusionné avec l'Autorité de sûreté nucléaire (ASN) créant ainsi l'Autorité de sûreté nucléaire et de radioprotection (ASNR).

atmosphériques actuelles ou passées de radionucléides provenant du site : localisation plus précise de la zone sous influence, activités des radionucléides ajoutées par le site et origine précise de ces radionucléides.

La quantification des activités massiques des radionucléides ajoutées dans les denrées terrestres produites localement permettra, en outre, l'évaluation de l'exposition de la population liée à leur ingestion potentielle qui fera l'objet d'un rapport d'étude spécifique dans lequel l'ensemble des mesures radiologiques effectuées dans le cadre de l'ERS et les spécificités du mode de vie de la population riveraine du site seront pris en compte.

Enfin, cette étude constitue un référentiel radiologique « point zéro », avant le démarrage de l'installation TDN. En effet, les activités massiques actuelles des radionucléides qui seront rejetés par la future installation constitueront des éléments de comparaison utiles pour les futures études radiologiques dans l'environnement de Malvési.

Après la présentation du site Orano de Malvési, suivie de rappels sur les principales études radiologiques menées antérieurement dans son environnement ainsi que sur l'uranium en milieu terrestre, ce rapport détaille la stratégie de l'étude, les méthodes de prélèvement des échantillons végétaux et les protocoles de mesure des radionucléides étudiés. Les résultats sont ensuite présentés et interprétés. Cette interprétation comporte : une analyse de la répartition spatiale des activités massiques mesurées dans les végétaux, la mise en perspective de ces résultats avec ceux observés dans d'autres régions de France, un commentaire sur leurs évolutions temporelles depuis 2007, puis une analyse pour identifier les sources possibles des différents radionucléides et leurs contributions aux activités massiques mesurées.

Des rapports à venir concerneront les résultats des autres études menées dans le cadre de l'ERS Malvési : les études relatives aux milieux atmosphériques et aquatiques, celle portant sur le rayonnement émis par le site (débit de dose) ainsi que celle relative aux enquêtes sur le mode de vie de la population riveraine.

2. PRESENTATION DU SITE DE MALVESI

2.1. LE SITE DE MALVESI

Le site de Malvési est situé dans le département de l'Aude (11), à 3 km environ au nord de Narbonne. Il s'étend sur une surface de 100 hectares environ. Avec le site du Tricastin, Malvési est un des deux sites de l'amont du cycle du combustible situés sur le territoire français sur lesquels sont implantées des installations de la société Orano². La principale activité du site de Malvési est la purification des concentrés miniers importés en France, puis la conversion de l'uranium purifié en UF₄. C'est sous cette forme que l'uranium est expédié ensuite sur le site du Tricastin, où il est converti en hexafluorure d'uranium (UF₆), avant l'étape d'enrichissement. La production annuelle d'UF₄ par l'usine de Malvési était de 9285 tonnes en 2022.

A son démarrage en 1959 et jusqu'en 1991, le site industriel avait pour vocation de produire de l'uranium métal à partir de concentrés miniers. À partir de 1964, l'objectif de l'installation est également de produire de l'UF₄. L'uranium converti est essentiellement de l'uranium naturel (concentrés miniers) mais, entre 1960 et 1983, l'uranium de retraitement (URT), issus du retraitement à Marcoule de combustibles de la filière UNGG et également des réacteurs G1, G2 et G3, a été utilisé comme matière-première.

L'usine de conversion de l'uranium de Malvési est une installation classée pour la protection de l'environnement (ICPE).

En plus de l'ICPE, le site de Malvési comporte une Installation Nucléaire de Base, l'INB n°175, d'entreposage de déchets radiologiques appelée ECRIN (« entreposage confiné de résidus issus de la conversion »). Le décret de création de cette installation a été publié en 2015. L'INB est implantée sur d'anciens bassins de décantation (bassins B1 et B2) et contient les boues résiduelles concentrées en radionucléides naturels issus de la purification de l'uranium depuis le démarrage de l'activité industrielle sur le site (voir paragraphe 2.3) et aussi concentrées en radionucléides artificiels, résidus du traitement de l'URT (voir paragraphe 2.4).

2.2. LE TRAITEMENT DE L'URANIUM SUR LE SITE DE MALVESI

En amont du traitement industriel de l'uranium, le site dispose d'un parc d'entreposage de fûts de concentrés miniers, dont la capacité maximale autorisée est de 37 000 tonnes.

La transformation des concentrés miniers en UF₄ nécessite plusieurs étapes successives (Figure 1) :

- Dissolution : les concentrés miniers sont dissous avec de l'acide nitrique,
- Purification : dans la colonne de purification, l'uranium est extrait par un solvant organique à 40 % de TBP (tributylphosphate) et 60 % d'ISOPAR, qui fixe le nitrate d'uranium sous forme de complexe. Le solvant organique et l'uranium sont extraits au sommet de la colonne de purification. Au bas de la colonne sort la solution aqueuse contenant les impuretés chimiques et radiologiques (descendants de l'²³⁸U encore présents : le ²³⁰Th et le ²²⁶Ra, pour l'essentiel). Après traitement, ces effluents sont dirigés vers les bassins de décantation, puis d'évaporation,
- Concentration : lors de cette étape, le nitrate d'uranium est concentré avant l'étape de dénitrification,
- Dénitrification thermique : le nitrate d'uranium subit une réaction thermique par un système de combustion au gaz naturel (procédé Isoflash) qui conduit à la formation instantanée de poudre d'oxyde d'uranium (UO₃),
- Hydrofluoruration : cette dernière étape consiste à transformer l'oxyde d'uranium en UF₄. Le tétrafluorure d'uranium UF₄ obtenu est un cristal de couleur verte qui est conditionné en citerne avant son acheminement vers le site de Tricastin.

² Le site de l'amont du cycle nucléaire de Romans-sur-Isère est exploité par la société Framatome.

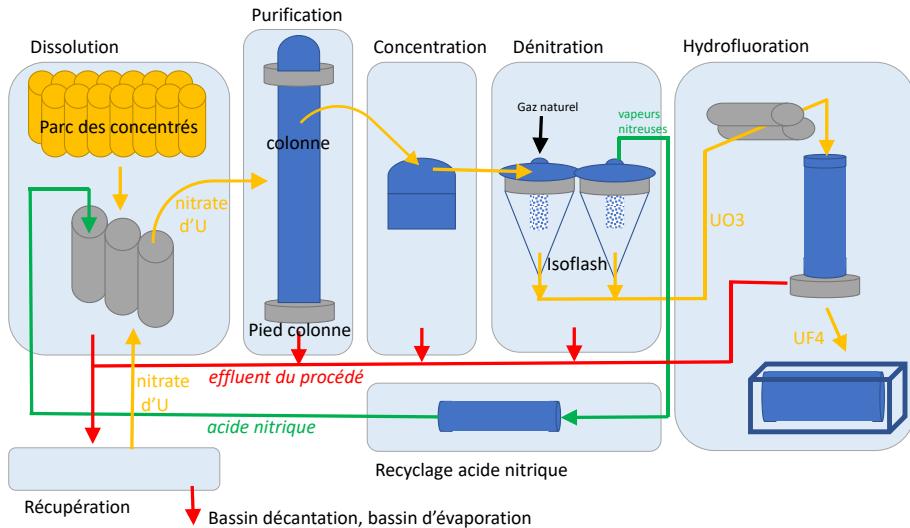


Figure 1 : Schéma du procédé de fabrication de l'UF₄ sur le site de Malvési (d'après [7]).

2.3. LES EFFLUENTS ET LES REJETS DU SITE

Les effluents liquides nitratés et les boues issus du procédé de purification de l'uranium sont d'abord neutralisés, puis dirigés vers les bassins industriels du site :

- La séparation solide/liquide s'opère progressivement dans les bassins de décantation (B3, B5 et B6) qui recueillent les résidus solides et les radionucléides qu'ils contiennent (certains descendants de l'²³⁸U, comme le ²³⁰Th ou le ²²⁶Ra) ainsi que des traces d'uranium (Tableau 1),
- les effluents liquides obtenus sont ensuite envoyés vers les bassins d'évaporation (B7 à B12), où les effluents liquides et les impuretés solubles qu'ils contiennent sont concentrés par évaporation naturelle, sous l'effet des conditions météorologiques locales (vent et chaleur). Ces bassins contiennent les radionucléides les plus solubles, parmi lesquels le ⁹⁹Tc, produit de fission provenant du traitement de l'URT et l'uranium.

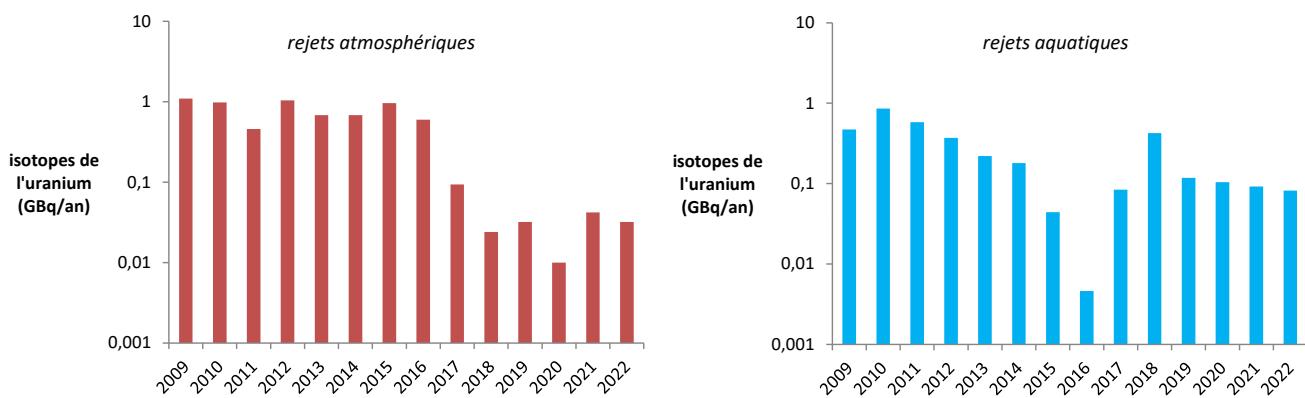
Tableau 1 : Les radionucléides contenus dans les bassins industriels du site de Malvési en 2021 [8].

	Volume déclaré (m³)	radionucléides
1. Bassins pour l'entreposage de déchets solides		
Bassin B5	19 922	²²⁶ Ra, ²³⁰ Th, ²³⁴ U, ²³⁵ U, ²³⁸ U
Bassin B6 (boues produites avant 2019)	19 104	²²⁶ Ra, ²³⁰ Th, ²³⁴ U, ²³⁵ U, ²³⁸ U
Bassin B6 production (boues produites depuis 2019)	4225	²²⁶ Ra, ²³⁰ Th, ²³⁴ U, ²³⁵ U, ²³⁸ U
2. Bassins d'évaporation des solutions (B7, B8, B9, B10, B11, B12)		
Bassins d'évaporation (solutions nitratées produites avant 2019)	372 266	⁹⁹ Tc, ²²⁶ Ra, ²³² Th, ²³⁴ U, ²³⁸ U, ²²⁷ Th
Solutions nitratées produites depuis 2019	5597	⁹⁹ Tc, ²²⁶ Ra, ²³² Th, ²³⁴ U, ²³⁸ U, ²²⁷ Th

Les eaux de refroidissement de l'usine ainsi que les eaux pluviales (plateforme industrielle et zone des bassins), sont rejetées dans le canal de Tauran (rejet unique site), après traitement par osmose inverse et contrôles.

Ancienne mine de soufre à ciel ouvert située au nord-ouest du site et aujourd'hui ennoyée, le bassin de régulation n'est plus en relation avec la plateforme industrielle et ne reçoit plus d'effluents industriels.

Enfin, les ateliers de transformation de l'uranium (ICPE) rejettent des effluents atmosphériques après traitement et/ou filtration, composés de poussières et de gaz résiduels. Les évolutions temporelles des rejets des isotopes de l'uranium dans le milieu aquatique et dans le milieu atmosphérique sont présentées dans la Figure 2.

**Figure 2 : Evolution temporelle de l'activité des isotopes de l'uranium rejetés dans le milieu atmosphérique et aquatique (synthèse des rapports d'information du site Orano de Malvési).**

Les rejets d'uranium dans l'atmosphère ont fortement diminué, d'un facteur 80 environ sur la période 2007-2022, en conséquence principalement de la modernisation de la ligne de production de l'UF₄ (projet COMURHEX2). Sur la période 2009-2022, la diminution des rejets en uranium dans le milieu aqueux atteint un facteur 10 environ.

Nous rappelons ci-dessous les limites réglementaires fixées par l'Arrêté Préfectoral n°2017-39 :

- milieu atmosphérique : limite annuelle de 64 kg d'U.an⁻¹, soit 1,6 GBq.an⁻¹ pour les isotopes de l'uranium,
- milieu aquatique : limite annuelle de 131 kg d'U.an⁻¹, soit 3,2 GBq.an⁻¹ pour les isotopes de l'uranium, complétée par une limite journalière de 10 kg d'U.jour⁻¹ (soit 0,28 GBq.jour⁻¹ pour les isotopes de l'uranium).

2.4. L'INB ECRIN

L'INB ECRIN (« entreposage confiné de résidus issus de la conversion ») correspond aux anciens bassins B1 et B2 qui ont reçu les premiers effluents du traitement de l'uranium dès la création de l'usine. En 2004, ces bassins dénommés à cette époque « bassins d'effluents de procédé », ont subi une rupture de digue entraînant environ 30 000 m³ de boue en contrebas. Dans les semaines qui suivent, les digues des bassins sont reconstruites et les boues sont remontées vers les bassins. En 2006, sous l'effet d'un très fort coup de vent, les bassins d'évaporation ont débordé vers les eaux périphériques (réseau de drainage des eaux de surface autour des bassins), puis les eaux périphériques ont débordé vers le canal de Tauran.

A partir de 2004, d'importants travaux ont été menés dans le but de reconstruire la digue des bassins B1 et B2 et de sécuriser l'ensemble de ce secteur lagunaire. Puis, entre 2012 et 2013, des travaux de confortement ont également été menés au niveau de ces bassins, pour réduire l'empreinte environnementale de l'entreposage des déchets solides de procédé vis-à-vis des eaux souterraines (parois étanche et couverture stérile).

En plus des résidus du traitement de l'uranium naturel, les bassins B1 et B2 ont collecté des radionucléides artificiels (transuraniens et produits de fission) provenant du traitement de l'URT (uranium de retraitement) sur le site, entre 1960 et 1983 (Tableau 2). De ce fait, l'entreposage de ces radionucléides artificiels ne peut être effectué réglementairement que dans une installation nucléaire de base (INB). C'est ainsi qu'en 2018, l'Autorité de sûreté nucléaire et de radioprotection (ASNR) a autorisé la mise en service de l'INB n°175 dénommée ECRIN.

L'INB ECRIN est ainsi destinée à entreposer des déchets radioactifs de procédé, en attendant la définition et la mise en œuvre d'une filière de gestion à long terme, dont la recherche s'inscrit dans le cadre des prescriptions du Plan National de Gestion des Matières et des Déchets Radioactifs (PNGMDR).

Les travaux de couverture étanche visant à améliorer le confinement des déchets entreposés dans l'INB ECRIN, ont été achevés en octobre 2020. Enfin, la réalisation d'alvéoles d'entreposage étanches dans lesquelles sont entreposés les résidus solides issus des bassins B5 et B6, est également achevée (projets PERLE et CERS). Au préalable, ces résidus ont été déshydratés dans le but de réduire d'un facteur deux les volumes des solides.

Tableau 2 : Les radionucléides naturels et artificiels entreposés dans l'INB ECRIN [9].

	Volume déclaré (m ³)	radionucléides
1. Bassins d'entreposage d'effluents solides		
résidus/boues solides issues de la conversion de l'uranium	-	²³⁵ U, ²³⁸ U, ²³⁷ Np, ²³⁹ Pu, ²⁴¹ Pu, ²⁴¹ Am
2. Stériles miniers en partie contaminés par les infiltrations des bassins non revêtus de membranes à l'origine		
stériles anciennes mine de soufre	200 000	²³⁸ U, ²³⁰ Th
3. Déchets de couverture		
couverture terre	43 000	²³⁸ U, ²³⁴ U, ²³⁵ U
matériaux aménagement	22 000	²³⁸ U, ²³⁴ U, ²³⁵ U

2.5. LES PROJETS INDUSTRIELS

En plus des projets de rénovation et de modernisation des ateliers de transformation de l'uranium, Orano développe de nouveaux projets dans le but de réduire l'empreinte environnementale du site (traitement des nitrates = TDN) et de diversifier l'activité industrielle du site (atelier UO₂).

2.5.1. Le projet TDN

La future installation TDN est destinée à traiter le passif historique des effluents liquides des bassins d'évaporation du site par la mise en œuvre d'un procédé de dénitration thermique³, afin d'obtenir un déchet solide stockable dans une filière agréée.

Le rejet atmosphérique annuel autorisé pour l'installation TDN est de 7,97 GBq.an⁻¹ au total, dont 7,26 GBq.an⁻¹ de radon-222. Une petite partie de ce rejet atmosphérique concerne d'autres radionucléides naturels, comme le ²²⁶Ra et ses descendants (7,26 MBq.an⁻¹) et aussi des radionucléides artificiels, comme le ⁹⁹Tc (85,6 MBq.an⁻¹), d'autres produits de fission (⁹⁰Sr et ¹³⁷Cs) et des transuraniens présents dans les effluents liquides des bassins.

2.5.2. L'atelier UO₂

Un nouvel atelier destiné à recycler de l'uranium appauvri de Tricastin pour produire de l'oxyde d'uranium (UO₂) à destination de l'usine MELOX (site de Marcoule) est en cours de développement. La production maximale de cet atelier, qui est opérationnel depuis fin 2022, est de 300 tonnes d'uranium par an.

2.6. SURVEILLANCE RADIOLOGIQUE DE L'ENVIRONNEMENT DU SITE DE MALVESI

Dans ce paragraphe sont synthétisés les principaux résultats des mesures réalisées dans l'environnement terrestre du site étudié. Il s'agit pour l'essentiel des données produites par Orano et l'ASNR dans le cadre de la surveillance des rejets atmosphériques des installations et également des études réalisées par l'IRSN. Enfin, des mesures réalisées par la CRIIRAD sont également présentées.

2.6.1. Les dispositifs de surveillance dans l'environnement du site

L'exploitation de l'usine de Malvési est soumise à autorisation préfectorale, conformément à la réglementation applicable en matière d'installations classées pour la protection de l'environnement (ICPE). A ce titre, les rejets de cette installation sont encadrés par des autorisations propres à ce site délivrées par la DREAL et sont effectués après contrôle. Les activités des radionucléides dans l'environnement qui en résultent font l'objet d'une surveillance.

Par ailleurs, au titre de la réglementation des INB, ECRIN fait l'objet d'une surveillance spécifique encadrée par des décisions de l'ASNR.

Le plan de surveillance de l'environnement de l'exploitant, mis en œuvre en application de décisions de la DREAL et de l'ASNR⁴, vise à détecter dans l'environnement, l'uranium⁵ présent dans les rejets effectués en situation de fonctionnement normal, à mesurer son activité ainsi qu'à alerter en cas d'augmentation anormale des niveaux de radioactivité dans l'environnement ou de dépassement des limites prescrites par les deux autorités (Tableau 3). Cette surveillance réglementaire, assurée par l'exploitant consiste à prélever des échantillons à des fins d'analyses,

³ L'installation TDN utilise en effet le procédé breveté THOR (Thermal Organic Reduction), développé par Studsvik et utilisé par le DOE (USA) pour pyrolyser les produits organiques dans un lit fluidisé, en atmosphère réductrice. Ce traitement permet notamment de réduire les nitrates en azote et de transformer un effluent liquide en un résidu solide stabilisé, d'une part et en un effluent gazeux, d'autre part. Le produit solide obtenu est une poudre cimentaire contenant des minéraux dont la structure moléculaire en cage piége les radioéléments et les alcalins, les rendant peu solubles.

⁴ les limites prescrites par les autorités sont des valeurs qui garantissent l'absence d'impact sanitaire des populations.

⁵ Dans le cas du milieu atmosphérique, le plan de surveillance fixé par l'arrêté préfectoral ne comporte pas d'analyses d'uranium dans les poussières atmosphériques prélevées sur le site, mais seulement des mesures mensuelles des activités alpha et bêta globales. Ces analyses permettent de déceler une anomalie dans les rejets, mais pas de connaître les niveaux d'uranium dans l'air.

dans les compartiments atmosphérique, terrestre et aquatique, sous et hors influence potentielle du site, dans les eaux souterraines, en amont et en aval du point de rejet principal (rejet unique site, dans le Canal de Tauran).

L'ASNR réalise également une surveillance autour du site de Malvési (Tableau 3). Cette surveillance vise principalement à évaluer l'influence du fonctionnement du site sur son environnement. Il s'agit de quantifier de manière plus précise les niveaux d'activités des radionucléides dans l'environnement afin de permettre une évaluation des expositions de la population qui en résulte. Répondant à un objectif différent mais complémentaire des mesures réalisées par l'exploitant, elle repose sur une métrologie plus performante permettant d'atteindre le plus souvent le bruit de fond radiologique ou, à minima, de mesurer de faibles activités et de déceler toute anomalie. Les résultats de ces programmes de surveillance sont accessibles sur le site internet et dans les rapports annuels d'Orano [7], sur le site internet du Réseau National de Mesures de la radioactivité de l'environnement (RNM) [10] et dans le bilan de l'état radiologique de l'environnement français [11], synthèse de l'ensemble des mesures produites dans le cadre de la surveillance radiologique de l'environnement.

Tableau 3 : Plans de surveillance de l'environnement réalisés par Orano et l'ASNR (issue de l'IRSN).
AG=alpha global, Am = américium, BG=béta global, Ded=débit d'équivalent de dose, Pu=plutonium, Rn=radon, U=uranium. [11]

Milieu surveillé ou nature du contrôle	Orano				IRSN			
	Précision	Fréquence annuelle	Nombre de points de prélèvement	Analyses	Précision	Fréquence annuelle	Nombre de points de prélèvement	Analyses
Rayonnement	Clôture site	4	22	DeD				
	B1	12	1					
Air	Activité du radon	12	3	Rn				
Aérosols	Tauran 600, Tauran B8, (Eillal, bassin B1 et portail nord	12	5	AG, BG		52	1	Gamma, U
	Cumul sur 4 filtres consécutifs par point de prélèvement	2	5	^{234}U , ^{235}U , ^{238}U , ^{238}Pu , $^{239-240}\text{Pu}$, ^{241}Am , ^{137}Cs				
Eau de cours d'eau	Amont RU	4	1	AG, BG, U				
	PV0, PV1, PV3, écluse de Mandirac et Sainte-Lucie	1	5	U				
	Rocade	52	1	U				
	T600	52	1	U				
Eau d'étang		12		AG, BG				
	Bages 9, 10 et 11	1	3	U				
Eau de nappe	Piézomètres et puits	4	30	AG, BG, U	Eau douce	2	2	U
		2	5	^{99}Tc				
Eau de pluie	Jauge T600	12	1	AG, BG		12	1	Gamma, U
Faune aquatique	Mollusques/ coquillages aux 3 points Bages	Tous les 3 ans	3	U	Poissons	1	1	Gamma, U
	Poissons à T600, PV3 et les points Bages	Tous les 3 ans	5	U				
Lait						2	1	Gamma, U
Principales productions agricoles	Légumes et fines herbes : 2 prélèvements possibles par point de prélèvement points 12, 13, 16 et 17 selon espèces agricoles racinaires ou aériennes	1	4	U	Légumes fruits	1	1	Gamma, U
					Légumes racines	1	1	Gamma, U
					Céréales	1	1	Gamma, U
	(Eillal, T600, rocade, PV3	1	4					
Sédiments dulçaquicoles	Bages 9, 10 et 11	1	3	U				
Sédiments marins	Points 12, 13, 16 et 17	1	4	U		1	1	Gamma, gamma <i>in situ</i>
Végétaux aquatiques	Macrophytes : (Eillal, T600, rocade et PV3	1	4	U				
Végétaux terrestres	Points 12, 13, 16 et 17	1	4	U	Aiguilles de conifère	1	2	Gamma, U
					Herbe	1	1	Gamma, U

Comme expliqué précédemment, les prélèvements dans le compartiment atmosphérique et terrestre sont majoritairement réalisés sous les vents dominants, à l'est du site (Figure 3) et aussi hors vents dominants. En effet, le vent dominant provenant du nord-ouest (le Cers) dirige le rejet atmosphérique vers l'est du site (voir rose des vents et commentaires de la Figure 9, paragraphe 4).

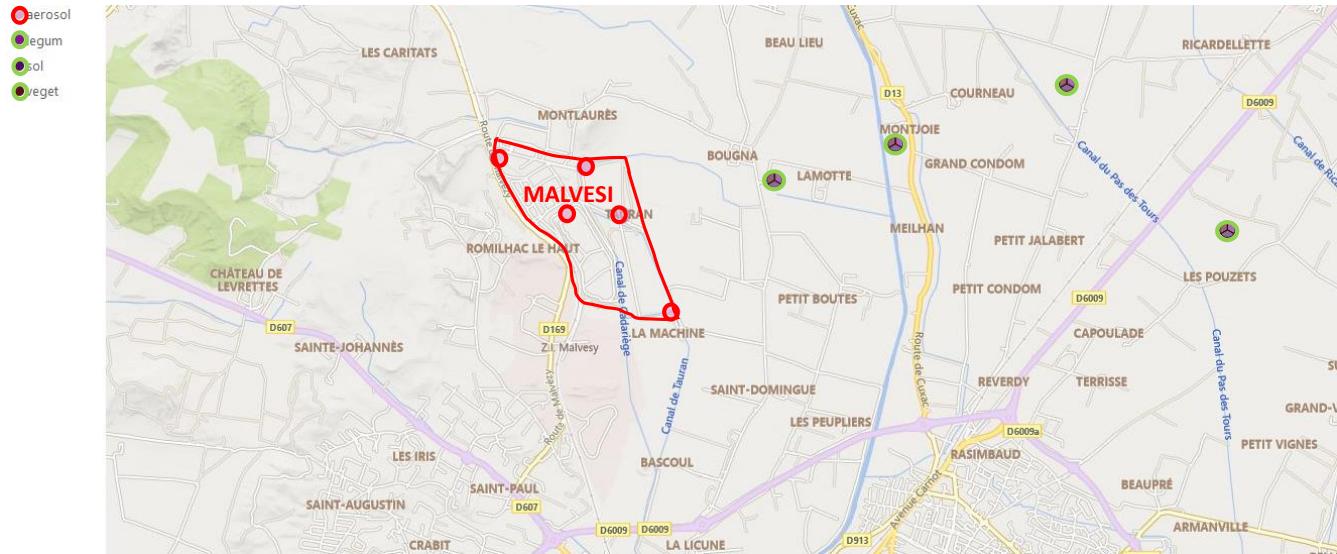


Figure 3 : Localisation des points de la surveillance menée par Orano dans le milieu atmosphérique (prélèvements d'aérosols sur le site) et dans le milieu terrestre (prélèvements de sol, de légumes et de végétaux terrestres à l'est du site).

2.6.2. Bilan de la surveillance de l'environnement atmosphérique et terrestre du site

Le plan de surveillance du compartiment atmosphérique fixé par l'arrêté préfectoral comporte des mesures mensuelles des activités alpha et bêta globales dans les poussières atmosphériques prélevées sur le site et quelques analyses complémentaires d'uranium (Tableau 3 et Figure 3). Depuis fin 2020, l'IRSN (l'ASNR depuis 2025) réalise des prélèvements hebdomadaires de poussières atmosphériques, en dehors du site sous les vents dominants provenant du site industriel (bordure sud-est du site), suivis de mesures de l'uranium de ces échantillons par ICP-MS. Les activités moyennes volumiques en ^{238}U dans l'air étaient de $14 \mu\text{Bq.m}^{-3}$ fin 2020. Cette valeur est plus faible que l'activité moyenne en ^{238}U mesurée par l'IRSN entre 2009-2010 à Malvési ($34 \mu\text{Bq.m}^{-3}$) (voir paragraphe suivant) en lien avec la baisse des rejets atmosphérique au fil des années, mais elle est plus élevée que l'activité volumique mesurée en dehors de l'influence des rejets de l'industrie nucléaire (de l'ordre de $0,2 \mu\text{Bq.m}^{-3}$) [11].

En complément de la surveillance du compartiment atmosphérique, des prélèvements de feuilles d'arbre (cypres et pin) et d'herbe, suivis de mesures de l'uranium de ces échantillons par ICP-MS sont également réalisés aux quatre points cardinaux autour du site [11]. Les activités massiques de ^{238}U sont très variables d'un point d'observation à l'autre. Les valeurs les plus élevées sont mesurées à l'est du site, zone sous l'influence des vents provenant du site industriel ($20-30 \text{ Bq.kg}^{-1} \text{ sec}$ à Livière-Haute). En comparaison, les activités mesurées aux autres points de prélèvement sont plus faibles ($< 10 \text{ Bq.kg}^{-1} \text{ sec}$ au nord et au sud-est du site). Ainsi, les activités massiques en ^{238}U des végétaux terrestres témoignent de l'influence des rejets atmosphériques en uranium du site industriel, plus ou moins marquée d'un point de prélèvement à un autre, en comparaison de prélèvements réalisés en dehors de l'influence d'une installation nucléaire, soit $0,05$ à $0,5 \text{ Bq.kg}^{-1} \text{ sec}$ attendu dans les feuilles d'arbre (voir paragraphe 3.2).

Comme l'activité volumique de ^{238}U dans l'air, l'activité massique des végétaux terrestres à l'est du site (Livière-Haute et Tauran) en 2020 est très inférieure à celle observée précédemment, entre 2014 et 2017 ou entre 2011 et

2014. Cette diminution de l'activité de l' ^{238}U dans l'air et dans les végétaux est probablement la conséquence de la baisse des rejets atmosphériques d'uranium, explicitée dans le paragraphe 2.3.

2.6.3. Bilan des études radioécologiques de l'IRSN réalisées entre 2007 et 2010

Les études de l'IRSN ont été menées en 2007-2008, pour les compartiments terrestres et aquatiques [4,5]. Le compartiment atmosphérique a été étudié en 2009-2010 [6]. Ces études avaient pour objectif d'évaluer les activités en uranium et ses descendants ainsi que les activités en radionucléides artificiels potentiellement ajoutées dans l'air et en milieu terrestre par les rejets atmosphériques et les émissions de poussières provenant du site industriel, sans négliger les activités industrielles passées en tant que sources potentielles de radionucléides. Dans cet objectif, les prélèvements d'échantillons ont été réalisés essentiellement dans la zone influencée par les rejets atmosphériques de l'usine et par les émissions de poussières ou d'embruns émis par le site, située à l'est du site d'après la rose des vents (voir Figure 9 paragraphe 4). Les échantillons ont fait ensuite l'objet de mesures dans les laboratoires de l'IRSN, permettant de quantifier de très faibles activités de radionucléides naturels et artificiels. Pour disposer d'éléments de comparaison, des prélèvements ont aussi été réalisés en dehors de l'influence des rejets atmosphériques du site, à 5 km environ au nord du site.

L'étude de l'IRSN de 2007 a montré que l'influence des rejets de l'installation de Malvési sur son environnement proche était mesurable dans le milieu terrestre (sols, blé, fruits et feuilles de cyprès prélevés sous les vents dominants jusqu'à 1 km à l'est de la clôture du site⁶), comme l'illustre la Figure 4 pour les feuilles de cyprès. Ce marquage de l'environnement se traduisait par des activités en uranium et en ses descendants ainsi qu'en plutonium, plus élevées à proximité immédiate du site en comparaison de la zone non-influencée. Ainsi, ont été observées des activités en uranium 20 fois plus élevées dans les figues prélevées à 20 mètres de la clôture (0,13 Bq.kg⁻¹ frais) que dans celles prélevées à 1 km. Dans les feuilles de cyprès prélevées à proximité immédiate du site, l'activité massique en uranium était plus de 100 fois plus élevée que dans les feuilles échantillonnées dans la zone non-influencée par les rejets du site.

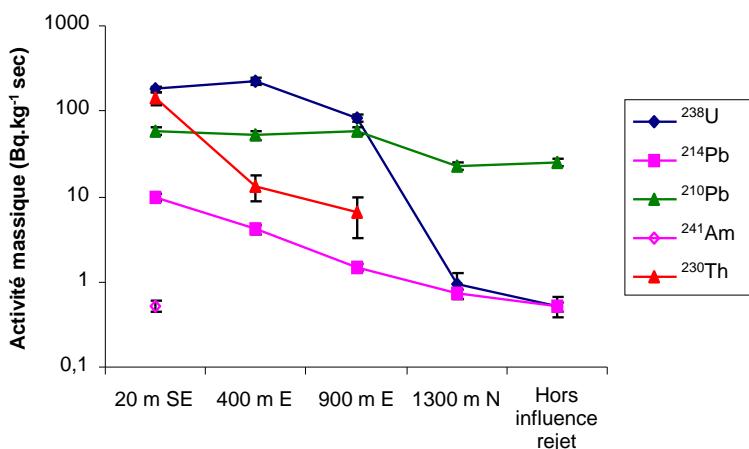


Figure 4 : Activité massique des radionucléides naturels et artificiels dans les feuilles de cyprès en fonction de la distance à la barrière du site (en Bq.kg⁻¹ sec) [4,5].

Cette étude de 2007 avait également révélé des activités élevées de plutonium et de ^{230}Th dans un échantillon de blé prélevé à 50 mètres à l'est de la clôture du site (0,4 Bq.kg⁻¹ frais en $^{239+240}\text{Pu}$, soit 1000 à 10 000 fois supérieure à celle mesurée habituellement en France). L'origine de ce marquage du blé par des radionucléides qui ne figurent pas dans les rejets atmosphériques de l'usine (ICPE) a pu être attribuée à la remise en suspension de particules

⁶ Dans cette direction, environ 1 km sépare la clôture du point de rejet de l'usine qui est pris comme point de référence dans la présente étude. On peut donc considérer que, dans cette étude de 2007, les mesures avaient révélé une influence du site visible jusqu'à 2 km du point de rejet.

provenant de bassins d'entreposage de déchets. L'hypothèse d'une remise en suspension renforcée par des travaux de terrassement effectués à cette période a été confirmée par une teneur en plutonium 40 fois moindre de l'échantillon de blé prélevé au même endroit en 2008, après l'arrêt des travaux.

L'étude menée en 2007-2008 a également montré que les activités en uranium et ses descendants dans les végétaux diminuent très vite dès lors que l'on s'écarte de la direction des vents dominants ou que l'on s'éloigne de l'installation. Ainsi, les trois échantillons de blé prélevés à l'est du site à une centaine de mètres de distance les uns des autres, sur une ligne orientée globalement nord-sud et donc perpendiculaire aux vents dominants, présentaient des activités massiques en ^{238}U qui diminuaient rapidement : 6,8 Bq.kg $^{-1}$ frais, 1,2 Bq.kg $^{-1}$ frais et 0,3 Bq.kg $^{-1}$ frais, à comparer à un bruit de fond hors influence de l'ordre de 0,1 Bq.kg $^{-1}$ frais dans cette matrice.

L'étude des rapports $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ et $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ des sols a montré que les activités massiques de l' ^{238}U et du $^{239+240}\text{Pu}$ dans les sols localisés en bordure immédiate à l'est du site étaient multipliées respectivement par deux et par cinq, du fait des apports atmosphériques depuis le démarrage de l'activité industrielle à Malvési [12]. En particulier, la présence de radionucléides artificiels (isotopes du plutonium et ^{236}U) dans les sols à proximité du site est liée au traitement de l'URT, entre 1960 et 1983.

Enfin, l'étude menée en 2008 a permis de confirmer les différentes sources et voies de transfert des radionucléides provenant du site, à savoir les rejets atmosphériques à la cheminée et la remise en suspension de particules provenant des bassins d'entreposage. Elle a aussi révélé une autre voie de transfert par la présence de ^{99}Tc dans les feuilles de cyprès. Ce radionucléide, marqueur des activités de traitement de l'URT entre 1960 et 1983 et aujourd'hui présent dans les bassins industriels, est très soluble dans l'eau en conditions oxydantes et était probablement transféré au milieu terrestre *via* des embruns provenant des bassins industriels.

L'étude du compartiment atmosphérique menée en 2009-2010 a confirmé l'influence des rejets de l'usine de Malvési, avec une activité volumique moyenne en ^{238}U dans l'air de 34 $\mu\text{Bq.m}^{-3}$ (prélèvements réalisés en un point unique situé en bordure sud-est du site) ainsi que l'influence de poussières émises lors de travaux de terrassement, mise en évidence par la présence de traces de ^{230}Th (résidu de la conversion du concentrat minier) et d'isotopes du plutonium. Lors de deux périodes d'arrêt de production et des rejets atmosphériques de l'usine, l'activité en uranium dans l'air a diminué comme attendu, mais s'est maintenue à un niveau deux et cinq fois inférieure à celle observée lors du fonctionnement normal de l'usine. Les données acquises lors de ces périodes d'arrêt ont permis d'estimer à environ 20 % la proportion de l'uranium provenant de la remise en suspension dans l'air de poussières de sol marquées en uranium, provenant du site ou de son environnement.

2.6.4. Mesures réalisées par la CRIIRAD et le comité « vigilance Malvézy »

Entre 2020 et début 2023, la CRIIRAD (Commission de Recherche et d'Information Indépendantes sur la RADioactivité) et le Collectif Vigilance Malvézy ont effectué une étude sur les activités massiques de l'uranium dans les feuilles de cyprès dans l'environnement du site, en fonction des vents dominants [3]. L'activité massique de l' ^{238}U des échantillons a été analysée par ICP-MS au laboratoire LDA26 (Valence). La méthodologie de l'étude de la CRIIRAD est très proche de celle de l'ASNR, avec des prélèvements de feuilles de cyprès réalisés dans les zones influencées par les rejets atmosphériques, à l'ouest et à l'est du site. Pour disposer d'éléments de comparaison, des prélèvements ont également été réalisés par la CRIIRAD en dehors de l'influence des rejets à Ouveillan, à 8 km au nord du site d'Orano.

Les résultats des mesures réalisées par la CRIIRAD et le comité « Vigilance Malvézy », mis à disposition lors de la conférence de presse de la CRIIRAD du 29 novembre 2024 [30], ont été comparés avec les données acquises dans le cadre de la présente étude, dans le but d'améliorer la connaissance de la variabilité spatiale des activités massiques d'uranium dans les feuilles de cyprès autour du site (paragraphe 5).

3. L'URANIUM DANS LE MILIEU TERRESTRE

3.1. GENERALITES SUR L'URANIUM

3.1.1. Les isotopes de l'uranium

L'uranium est un élément radioactif présent sur terre depuis sa formation en raison de la longue période radioactive de deux de ses isotopes naturels : ^{235}U et ^{238}U (0,704 et 4,47 milliards d'années, respectivement) [13]. Ces deux isotopes sont à l'origine de deux familles radioactives, composées de descendants qui se forment par des désintégrations radioactives successives. Ainsi, l' ^{234}U , est un troisième isotope naturel de l'uranium, d'une période radioactive de 246 000 ans, qui appartient à la famille de l' ^{238}U (Tableau 4).

Tableau 4 : Période radioactive, abondance naturelle et activité spécifique des isotopes de l'uranium [13].

Isotope	^{234}U	^{235}U	^{236}U	^{238}U
Période radioactive (années)	$2,46 \times 10^5$	$0,704 \times 10^9$	$2,34 \times 10^7$	$4,47 \times 10^9$
Abondance naturelle (% masse)	0,0057	0,71	-	99,275
Activité spécifique (Bq/g d'uranium)	13 110	575	-	12 346

L'uranium naturel, tel qu'il est extrait de son minerai, contient en masse 99,275 % de l'isotope 238, 0,719 % de l'isotope 235 et 0,0057 % de l'isotope 234. Ainsi, pour 1 g d'uranium naturel et sans considérer la radioactivité des descendants, l'élément chimique se répartit comme suit :

- 0,99275 g d' ^{238}U soit approximativement 12 346 Bq ;
- 0,00719 g d' ^{235}U soit approximativement 575 Bq ;
- 0,000057 g d' ^{234}U soit approximativement 13 110 Bq.

En plus de ces isotopes naturels, l'uranium possède des isotopes artificiels dont l' ^{236}U (période : $2,34 \times 10^7$ années) qui est produit par l'activation neutronique de l' ^{235}U dans les réacteurs nucléaires et qui a également été produit lors des essais d'armes nucléaires.

3.1.2. Les descendants de l'uranium

L' ^{235}U et l' ^{238}U sont à l'origine de familles radioactives, formées de successions de radionucléides qui se terminent par un isotope stable du plomb, le ^{207}Pb et le ^{206}Pb , respectivement (Figure 5).

Dans les matrices de l'environnement suffisamment anciennes comme les roches (> 1 Ma), les radionucléides des familles radioactives sont en « équilibre séculaire », ce qui signifie que les activités des radionucléides sont égales d'un bout à l'autre de la chaîne.

Dans la biosphère, les équilibres séculaires des familles radioactives de l' ^{235}U et de l' ^{238}U sont rompus. Par exemple, le ^{226}Ra , homologue du calcium, est transféré dans les végétaux terrestres préférentiellement aux actinides du sol (uranium et thorium). De plus, les activités dans les végétaux terrestres sont enrichies par les apports atmosphériques de ^{210}Pb et de ^{210}Po , qui sont des descendants du radon émis dans l'atmosphère.

Dans les matières uranifères (concentrés miniers, UF_4 , UO_2 , UF_6 , etc.), les déchets solides ou liquides de l'industrie nucléaire, les équilibres séculaires des familles de décroissance radioactive sont rompus par les procédés industriels mis en œuvre qui consistent à séparer et purifier l'uranium.

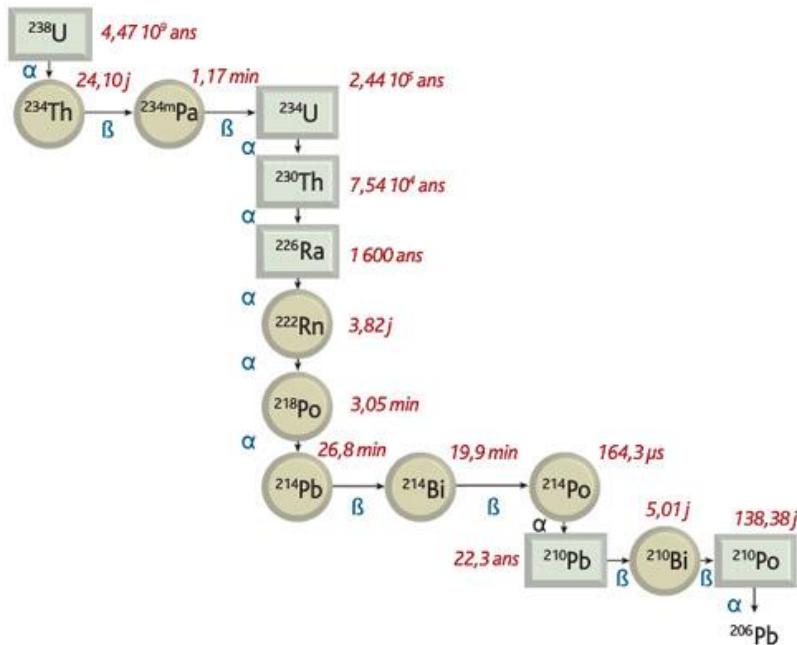


Figure 5 : Famille radioactive de l' ^{238}U , avec les émissions radioactives (alpha ou bêta) et les périodes de décroissance de chaque radionucléide [11].

3.1.3. Les sources de l'uranium

L'uranium est un élément tellurique, c'est-à-dire qu'il provient des roches qui composent la croûte terrestre. Au sein des roches, la concentration en ^{238}U varie d'un type de roche à un autre. Les roches sédimentaires, comme les calcaires et certaines roches volcaniques, comme les basaltes présentent les teneurs les plus faibles (activité massique $< 50 \text{ Bq} \cdot \text{kg}^{-1} \text{ sec}$). A l'opposé, les activités massiques en uranium les plus élevées sont observées dans certains granites des Massifs Hercyniens de Bretagne et du Massif-Central, pour l'essentiel ($> 125 \text{ Bq} \cdot \text{kg}^{-1} \text{ sec}$) [15]. Dans d'autres cas de figure, l'uranium est associé à la matière organique (comme les lignites) de roches sédimentaires.

Certaines activités humaines peuvent émettre de l'uranium dans l'environnement. Il s'agit :

- du cycle du combustible nucléaire, à savoir l'exploitation des gisements d'uranium, puis la fabrication du combustible qui sont à l'origine de rejets dans l'atmosphère et dans les eaux de surface. Dans le paragraphe précédent, le contexte industriel et les rejets du site Orano de Malvési ainsi que les conséquences radiologiques de ces rejets dans l'environnement proche du site ont été explicités,
- de l'usage militaire de l'uranium appauvri (teneur en ^{235}U de l'ordre de 0,2 %) pour ses propriétés pyrophoriques, qui est à l'origine de l'émission de particules fines d' UO_2 déposées sur les sites bombardés,
- de la combustion du charbon qui conduit à l'émission atmosphérique de l'uranium,
- de l'exploitation minière, pétrolière et gazière, dont les effluents liquides et les résidus solides sont potentiellement enrichis en uranium,
- de la production d'acide phosphorique et d'engrais à partir de minerais phosphatés.

3.2. NIVEAUX D'ACTIVITES EN URANIUM MESURES EN FRANCE DANS L'ENVIRONNEMENT TERRESTRE : LE FOND RADIOLOGIQUE

3.2.1. Niveaux d'activités en uranium des sols

Dans la nature, l'uranium des sols provient de la dégradation des roches sous-jacentes, dont les teneurs sont elles-mêmes variables (voir paragraphe 3.1). En première approximation, l'activité massique du sol est donc fonction de la nature de la roche.

Les mesures réalisées par l'ASNR, le BRGM et Orano confirment cette hypothèse, en montrant que l'activité massique en ^{238}U des sols varie suivant trois grands ensembles [11]. En effet, la médiane des activités massiques de l' ^{238}U des sols des bassins sédimentaires (médiane : 26 Bq.kg $^{-1}$ sec) est plus faible que celle des sols des massifs anciens (médiane : 44 Bq.kg $^{-1}$ sec) et des sols à haut niveau de radioactivité naturelle (zones HNRN : données de Haute-Vienne et Saône-et-Loire > 100 Bq.kg $^{-1}$ sec) (Figure 6).

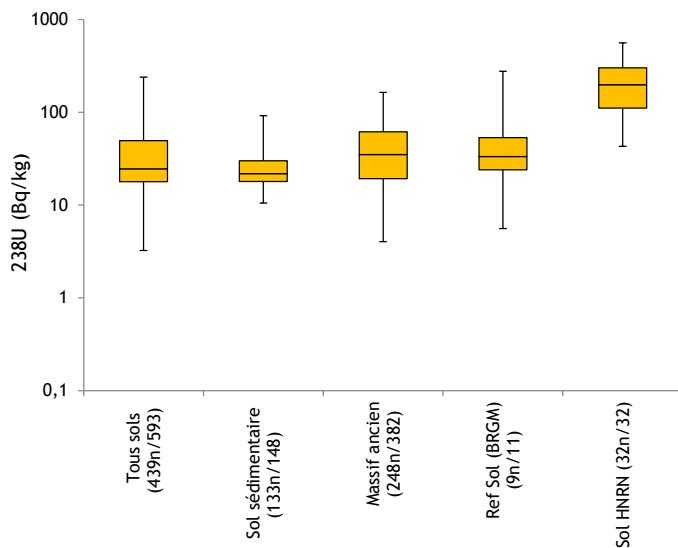


Figure 6 : Activité massique en ^{238}U des sols en France⁷ (HNRN = haut niveau de radioactivité naturelle) [11].

3.2.2. Niveaux d'activités en uranium des végétaux terrestres

Les activités massiques en ^{238}U dans les denrées végétales (légumes-feuilles et épis de blé) et les feuilles d'arbre prélevées en dehors de l'influence des rejets de l'industrie nucléaire sont discutées dans ce paragraphe, dans le but de disposer d'éléments de comparaison avec les mesures réalisées dans le cadre de l'ERS de Malvési.

⁷ Axe horizontal : entre parenthèses nombre de mesures significatives/nombre de mesures disponibles. Les barres verticales représentent les bornes maximum et minimum, déterminant ainsi la gamme complète des valeurs. La gamme des variations est également représentée par deux barres horizontales qui délimitent un rectangle coloré : il s'agit des percentiles 10 % et 90 %. L'intervalle délimité par ces deux percentiles contient 80 % des données. Enfin, la barre horizontale au sein du rectangle représente la médiane des valeurs (50 % des valeurs sont inférieures à la médiane).

3.2.2.1. Les denrées

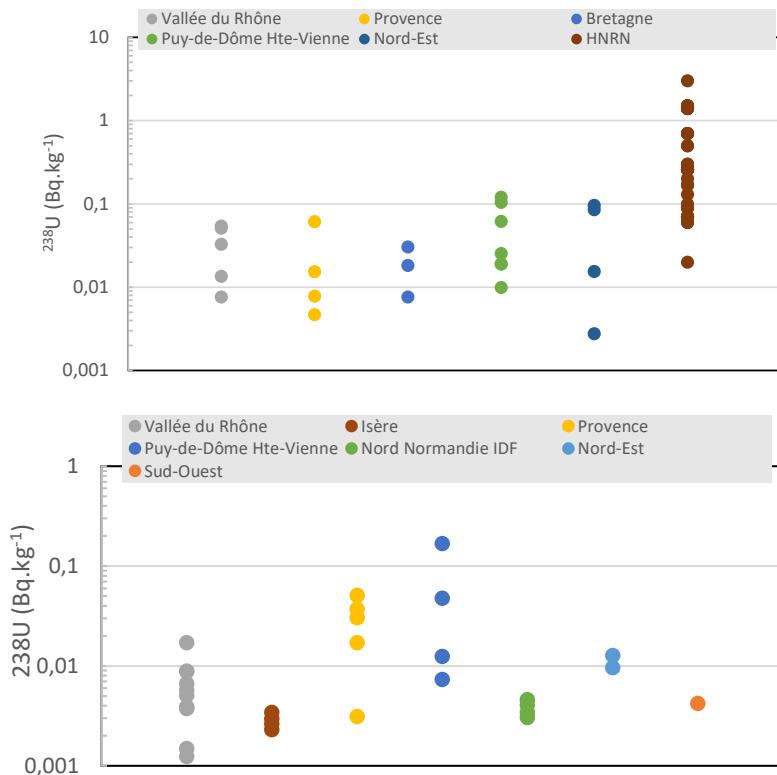


Figure 7 : Activité massique en ^{238}U dans les légumes-feuilles (en haut) et dans les épis de blé (en bas) prélevés dans différentes régions françaises (données ASNR). HNRN = zones à haut niveau de radioactivité naturelle (d'après [11]).

Pour 90 % des mesures disponibles, l'activité massique de l'uranium 238 dans les légumes-feuilles issus de différentes zones du territoire est comprise entre 0,008 et 0,08 Bq.kg⁻¹ de matière fraîche (Figure 7). Les zones à haut niveau de radioactivité naturelle (HNRN), incluant les départements de la Haute-Vienne, de l'Hérault, de la Vendée, du Puy-de-Dôme et de la Saône-et-Loire, s'en distinguent par des activités massiques qui peuvent être supérieures ou égales à 0,1 Bq.kg⁻¹ frais et parfois dépasser 1 Bq.kg⁻¹ frais.

L'activité massique dans le blé issu de différentes zones du territoire est comprise entre 0,002 et 0,05 Bq.kg⁻¹ de matière fraîche (90 % des valeurs). Comme pour les légumes-feuilles, une valeur supérieure à 0,1 Bq.kg⁻¹ frais est observée en Haute-Vienne, qui fait partie des zones à haut niveau de radioactivité naturelle. Aux points de prélèvement où sont observées les valeurs les plus élevées dans le blé et les légumes-feuilles, dans des zones granitiques de Haute-Vienne et des Vosges, l'influence de l'activité du sol sur ces denrées a été montrée [16].

3.2.2.2. Les feuilles d'arbres

En raison de la variabilité liée aux différentes zones de prélèvement et aux différentes espèces d'arbres, l'activité massique en ^{238}U dans les feuilles d'arbres varie dans un intervalle d'un ordre de grandeur environ (0,02 à 0,5 Bq.kg⁻¹ sec) (Figure 8). Aucune différence n'est observée entre les feuilles caduques (hêtre : 0,03 à 0,08 Bq.kg⁻¹ sec) et les feuilles persistantes prélevées dans les Vosges (épicéa : 0,02 à 0,06 Bq.kg⁻¹ sec). En comparaison de ces mesures, les activités massiques mesurées dans les feuilles de cyprès (Cuxac-d'Aude : 0,5 Bq.kg⁻¹ sec) sont les plus élevées. Pour le cyprès en particulier, ses feuilles persistantes renouvelées tous les trois ans sont

probablement davantage exposées aux dépôts atmosphériques que les feuilles des autres espèces. De plus, les feuilles de cyprès présentent une importante surface d'échange avec l'atmosphère, du fait de leur morphologie.

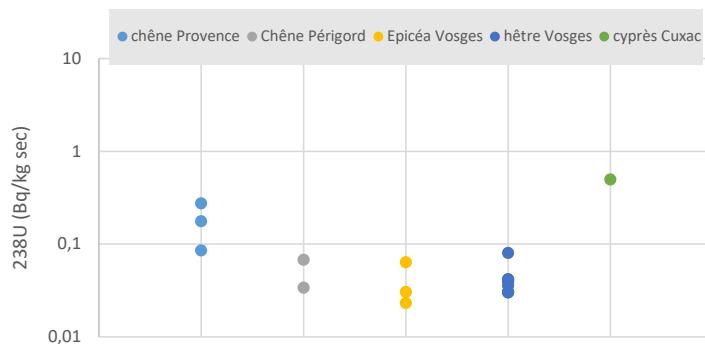


Figure 8 : Activité massique en ^{238}U dans les feuilles caduques ou persistantes de différentes espèces d'arbres. Données Vosges [17,18,19] autres données : ASNR.

4. ETUDE DES NIVEAUX DES RADIONUCLEIDES DANS L'ENVIRONNEMENT TERRESTRE DU SITE DE MALVESI

4.1. STRATEGIE DES PRELEVEMENTS DES VEGETAUX ET DE MESURE DES RADIONUCLEIDES

4.1.1. Les zones d'intérêt

4.1.1.1. La zone influencée par les rejets atmosphériques du site de Malvési

La zone influencée par les rejets atmosphériques du site est déterminée par la rose des vents qui fournit l'origine et la fréquence des vents. (Figure 9). Les vents dominants provenant principalement du secteur nord-ouest (entre 270° et 310°), correspondant à la Tramontane (appelé le Cers, dans la région de Narbonne), soufflent environ 55 % du temps. Ainsi, la zone influencée par les rejets atmosphériques du site se situe principalement à l'est du site. Les vents faibles, principalement de nord-est à est-sud-est, ne sont cependant pas négligeables en termes d'occurrence. Les directions de vent les moins fréquentes sont de secteur sud à sud-ouest (180 à 200°) et s'observent dans moins de 10 % des cas.

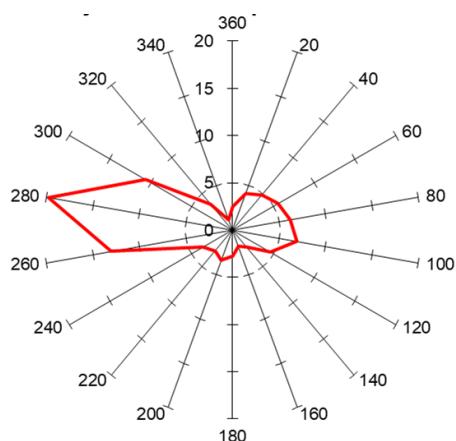


Figure 9 : Direction des vents, station de Mas Flores (en °) de janvier à septembre 2021 (données ASNR).

Ainsi, c'est principalement à l'est et dans une moindre mesure à l'ouest du site que sont réalisés les prélèvements de végétaux terrestres potentiellement influencés par les rejets atmosphériques de Malvési.

4.1.1.2. La zone non-influencée par les rejets atmosphériques du site de Malvési

Pour disposer de niveaux représentatifs de végétaux terrestres non-influencés par les rejets du site, des prélèvements complémentaires ont été réalisés à 4-5 kilomètres environ au nord de Malvési, aux alentours du village de Cuxac-d'Aude.

4.1.2. Les échantillons d'intérêt

4.1.2.1. Choix d'un bioindicateur de l'activité dans l'air

Du fait de sa surface d'échange avec l'atmosphère, un bioindicateur végétal (lichen, mousse terrestre, écorce, feuilles d'arbre, etc.) est considéré comme un capteur naturel des radionucléides présents dans l'air et, à ce titre, il permet d'évaluer la variabilité spatiale ou temporelle des radionucléides présents dans l'atmosphère. En amont de l'étude, le choix de l'espèce du bioindicateur doit respecter certains critères :

- L'espèce choisie doit être répandue dans la zone d'étude,
- La période végétative de l'espèce choisie doit permettre d'enregistrer un rejet de routine ou un rejet incidentel,

- En dehors de la zone d'influence, l'activité massique du bioindicateur doit être faible pour constituer un enregistreur sensible de la présence des radionucléides dans l'air dans la zone d'influence.

En comparaison des feuilles caduques, les feuilles de cyprès présentent certaines spécificités. Ainsi, les feuilles persistantes du cyprès, renouvelées tous les trois ans, sont davantage exposées aux dépôts atmosphériques que les feuilles caduques qui sont renouvelées à chaque printemps. De plus, les feuilles de cyprès présentent une importante surface d'échange avec l'atmosphère, du fait de leur morphologie. Ainsi, les activités particulièrement élevées des feuilles de cyprès observées dans la précédente étude radioécologique de l'IRSN (2007-2008), puis dans les mesures effectuées par la CRIIRAD (paragraphe 5) résultent de ces spécificités. Enfin, l'activité massique en ^{238}U des feuilles de cyprès en dehors de l'influence des installations nucléaires est relativement élevée (0,5 Bq.kg $^{-1}$ sec), en comparaison d'autres espèces à feuilles caduques (de 0,02 à 0,3 Bq.kg $^{-1}$ sec) (paragraphe 3.2).

Bien que concentrant les apports atmosphériques, les feuilles de cyprès présentent un double inconvénient :

- Du fait de l'activité initiale en ^{238}U des feuilles (0,5 Bq.kg $^{-1}$ sec), ce sont des indicateurs peu sensibles si l'uranium est apporté en faible quantité, comme c'est le cas à plusieurs kilomètres du point de rejet,
- Les apports annuels, conséquences du rejet de routine ou d'éventuels apports incidentels sont difficiles à quantifier car les feuilles de cyprès ne sont pas renouvelées totalement tous les ans.

Pour pallier ces inconvénients, nous avons échantillonné des feuilles d'arbre caduques, en alternative aux prélèvements de feuilles de cyprès. En effet, le principal avantage des feuilles caduques comme bioindicateur de l'activité dans l'air réside dans le renouvellement annuel du feuillage qui enregistre l'activité dans l'air représentative de l'activité rejetée durant la période végétative (Tableau 5). De plus, le niveau d'activité en ^{238}U des feuilles caduques en dehors de la zone d'influence des rejets est plus faible que dans les feuilles de cyprès. Le principal inconvénient des feuilles caduques réside dans le fait qu'en l'absence de feuillage (hiver), aucune donnée n'est disponible.

Tableau 5 : Les critères de comparaison des feuilles de cyprès et des feuilles de frêne utilisés comme des bioindicateurs de l'activité en ^{238}U dans l'air.

Critères	Feuilles cyprès	Feuilles caduques
Présence de l'espèce sur la zone d'étude	oui	oui
Renouvellement des feuilles	pluriannuel	annuel
Présence des feuilles toute l'année	oui	non
Activité en ^{238}U hors influence des rejets (Bq.kg $^{-1}$ sec)	0,5	0,05-0,5

4.1.2.2. Choix des denrées étudiées

Le principal critère qui préside aux choix des denrées produites dans la zone d'étude est qu'elles doivent être exposées aux radionucléides apportés par voie aérienne, comme les légumes-feuilles, les épis de blé et les fruits (raisin, tomate, figue). Très peu ou pas du tout exposés aux apports atmosphériques, les légumes-racines (pomme de terre, carotte, oignon, asperge, etc.) n'ont pas été étudiés. De plus, l'activité en ^{238}U des sols de la zone d'étude étant faible (30 à 70 Bq.kg $^{-1}$ sec [4,5]), l'activité massique des légumes-racines liée au transfert de l'uranium à partir du sol est également faible.

En complément des prélèvements de raisin destiné à la production de vin, des prélèvements de vin ont été réalisés. Enfin, aucune denrée d'origine animale (lait, fromage, œufs, viande, etc.) n'a été prélevée car aucune production majeure de ce type n'a été identifiée dans la zone influencée par les rejets atmosphériques du site.

4.1.3. Les radionucléides d'intérêt

Les radionucléides mesurés dans les végétaux terrestres sont des radionucléides naturels, comme l'²³⁸U et ses descendants ainsi que certains radionucléides artificiels. Ces radionucléides proviennent de multiples sources comme le site lui-même (rejet de l'ICPE, émissions de poussières et d'embruns et rejets de la future installation TDN) et également de l'environnement du site (fond radiologique et sols marqués par les rejets anciens de l'URT).

4.1.3.1. Les radionucléides naturels

L'²³⁸U et ses isotopes naturels (²³⁴U et ²³⁵U) sont étudiés car l'uranium est rejeté dans l'atmosphère par l'usine de Malvési (voir paragraphe 2.3). Issus de la purification de l'uranium naturel, les descendants de l'²³⁸U (²³⁰Th et ²²⁶Ra, principalement) sont entreposés dans les bassins industriels du site et ne sont pas rejetés dans l'environnement. Néanmoins, les bassins industriels peuvent potentiellement émettre des poussières et des embruns dans l'atmosphère, dont les descendants de l'uranium peuvent constituer des traceurs dans l'environnement, aussi ces descendants de l'²³⁸U seront étudiés dans les végétaux. En comparaison de l'²³⁸U (abondance = 99,27 %), l'abondance de l'²³⁵U est très faible (0,71 %) dans l'uranium naturel (voir paragraphe 3.1) et de ce fait, les descendants de ce radionucléide, en très faible proportion par rapport à ceux de l'²³⁸U, n'ont pas été étudiés dans cette étude.

Comme l'²³⁸U, le ²³²Th appartient à la famille des actinides. Mais, à la différence de l'uranium, ce radionucléide naturel n'est pas rejeté par le site de Malvési. A ce titre, le ²³²Th est représentatif du fond radiologique et considéré comme un indicateur du niveau des actinides provenant de cette source.

4.1.3.2. Les radionucléides artificiels

Les radionucléides artificiels qui proviennent du traitement de l'URT entre 1960 et 1983 sont des produits de fission (⁹⁹Tc, ⁹⁰Sr et ¹³⁷Cs), des transuraniens (isotopes du plutonium) et des descendants radiogéniques (²⁴¹Am, qui provient de la décroissance du ²⁴¹Pu). La majorité de ces radionucléides artificiels est aujourd'hui entreposée dans l'INB ECRIN. Cependant, il subsiste dans l'environnement du site de Malvési des sources secondaires de ces radionucléides artificiels issus du traitement de l'URT :

- Dirigés vers les bassins d'évaporation, les radionucléides artificiels le plus solubles comme le ⁹⁹Tc y est toujours présents en fortes concentrations dans la phase liquide. Les eaux des bassins contiennent également du ¹³⁷Cs et du ⁹⁰Sr. Les émissions d'embruns de ces bassins lors des épisodes de vents violents expliquent la présence de ⁹⁹Tc dans les feuilles de cyprès en bordure de site [5],
- Les travaux sur les bassins industriels sont à l'origine d'émissions de poussières et du marquage des végétaux prélevés à proximité du site par les transuraniens (isotopes du plutonium et ²⁴¹Am) (voir paragraphe 2.6),
- Les sols situés en bordure est du site sont marqués par les isotopes du plutonium, l'²³⁶U rejetés lors du traitement de l'URT et par l'²⁴¹Am [12]. Ainsi, les transuraniens des sols sont des sources secondaires de radionucléides artificiels susceptibles d'influencer le compartiment atmosphérique (émission de poussières) et les végétaux terrestres (dépôts de ces poussières sur les feuilles).

Enfin, rappelons que les radionucléides artificiels issus des essais nucléaires atmosphériques (années 1950 à 1980) et de l'accident de Tchernobyl (1986) constituent, en plus des rejets de l'industrie nucléaire, une source de radionucléides artificiels dans l'environnement en France métropolitaine (cas du ¹³⁷Cs, des transuraniens et du ⁹⁰Sr).

4.1.3.3. Les radionucléides rejetés par la future installation TDN

Les mesures des radionucléides dans les végétaux terrestres doivent servir de référence pour évaluer les activités ajoutées par les rejets atmosphériques de la future installation TDN dans le milieu terrestre. L'inventaire des rejets de cette installation permet d'évaluer les radionucléides qui seront les traceurs des rejets de cette installation dans l'environnement.

Le radon figure en tête de l'inventaire des radionucléides rejetés dans l'atmosphère par l'installation TDN (7,26 GBq.an⁻¹). Ce radionucléide gazeux diffuse dans l'atmosphère à partir des points d'émission et ne se dépose pas dans le milieu terrestre ; il n'y est donc pas mesuré.

Parmi les autres radionucléides rejetés, figurent des radionucléides artificiels comme le ^{99}Tc (85,6 MBq.an $^{-1}$) et, dans une moindre mesure, le ^{90}Sr et le ^{137}Cs , ainsi que des radionucléides naturels, comme le ^{226}Ra (7,26 MBq.an $^{-1}$) et ses descendants (^{214}Pb , ^{214}Bi , ^{210}Pb et ^{210}Po). D'autres radionucléides artificiels, comme les transuraniens (isotopes du plutonium, ^{241}Am et ^{237}Np) figurent également dans les rejets, mais avec des activités très faibles (0,0005 à 0,05 MBq.an $^{-1}$).

4.2. METHODES DE PRELEVEMENT DES VEGETAUX TERRESTRES ET DE MESURE DES RADIONUCLEIDES

4.2.1. Les prélèvements de végétaux terrestres et de denrées végétales

4.2.1.1. Mode opératoire

Le mode opératoire des prélèvements de végétaux réalisés par l'IRSN dans la zone influencée par les rejets de Malvési et en dehors de l'influence des rejets est synthétisé dans le Tableau 6.

Tableau 6 : Mode opératoire des prélèvements des végétaux en milieu terrestre, dans la zone influencée par les rejets de Malvési et en dehors de l'influence des rejets (2021-2023).

Matrices	quand ?	où ?	comment ?	masse ?
épis blé	juin 2021	champs	ciseaux	5-8 kg
légumes-feuilles	été 2021, 2022	jardins	couteau	5-8 kg
fruits	été 2021, 2023	haies, champs	cueillette	5-8 kg
vin	octobre 2021, 2022	producteur, coopérative	bidon	5 L
feuilles arbres	octobre 2021, 2022, 2023	arbres	cueillette	3-4 kg



Figure 10 : Potager à Livièvre-Haute où les légumes-feuilles ont été cultivés en concertation avec l'association COLERE en juillet 2021 (crédit ASNR).

Pour minimiser les écarts d'activités provenant de la variabilité des espèces végétales, des espèces identiques ont été prélevées pour chaque matrice. Cependant, cette règle n'a pu être respectée dans tous les cas en raison de la disponibilité de la ressource et des espèces différentes ont été prélevées pour les légumes-feuilles (Tableau 7).

Tableau 7 : Les légumes-feuilles prélevés dans la zone influencée par les rejets de Malvési et en dehors de l'influence des rejets (2021-2022).

Site de prélevement	espèces	année
Livière-Haute	rougette de Montpellier	2021
Gourgasse	blette	2021, 2022
Cuxac-d'Aude	laitue	2021

4.2.1.2. Localisation des prélevements

La localisation des prélevements des végétaux dans la zone influencée par les rejets du site de Malvési et dans la zone non-influencée par les rejets est présentée sur les Figures 11 et 12, respectivement.

Zone influencée par les rejets atmosphériques

Dans cette zone, les prélevements ont été ciblés en fonction de la rose des vents qui dirige majoritairement les rejets atmosphériques vers l'est du site d'étude (Figure 9). Ainsi, un maximum d'échantillons a été prélevé dans la plaine agricole située à l'est du site, c'est-à-dire sous les vents dominants provenant du site industriel. Dans cette zone, les feuilles de frêne ont été prélevées le long d'un transect à partir du site vers l'est et jusqu'à 5,5 km de l'usine. En complément, un échantillon de feuilles de frêne a été prélevé à l'ouest du site (1,8 km de l'usine). Enfin, deux échantillons de cette matrice proviennent du nord et du nord-ouest du site.

Dans la mesure du possible, les échantillons de denrées ont été prélevés à l'est et au nord du site. En comparaison des feuilles de frêne, la répartition des échantillons de denrées n'est pas homogène, du fait de la disponibilité des denrées dans la zone d'étude.

Moins influencée par les rejets atmosphériques, la zone située à l'ouest du site comporte moins de prélevements. Cette zone est très différente de la plaine agricole située à l'est du site : l'ouest du site est une zone de collines où la végétation dominante est celle de la garrigue (épineux, pins et cyprès) et où le frêne est beaucoup moins présent. Les cultures dominantes sont les oliviers et la vigne. Par ailleurs, sur cette zone sont implantés des panneaux photos-voltaïques sur une surface d'environ 35 ha, où aucun prélevement de végétaux n'est possible.

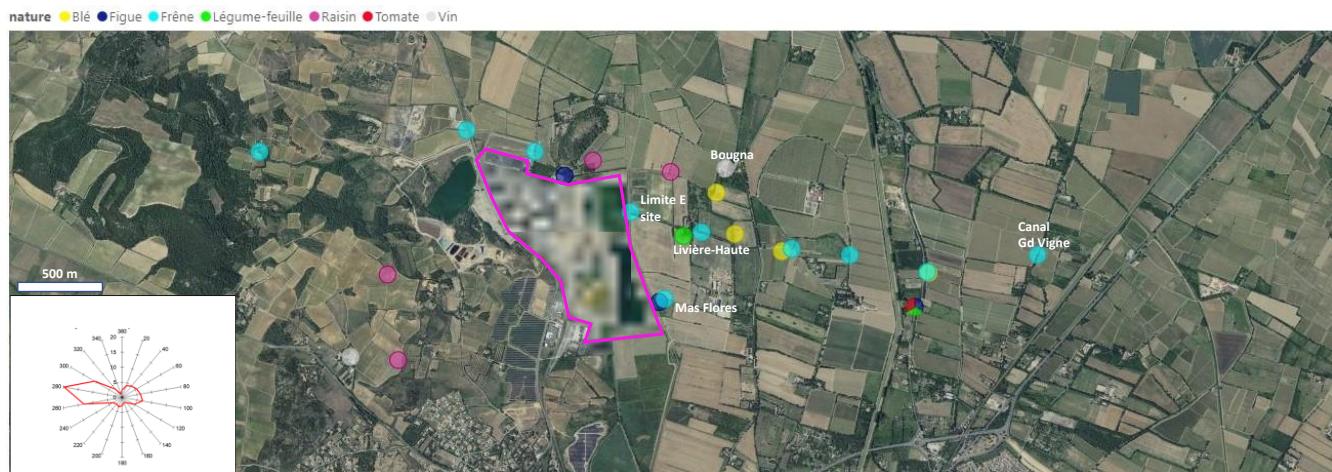


Figure 11 : Localisation des prélèvements de végétaux terrestres dans la zone influencée à proximité du site de Malvési.

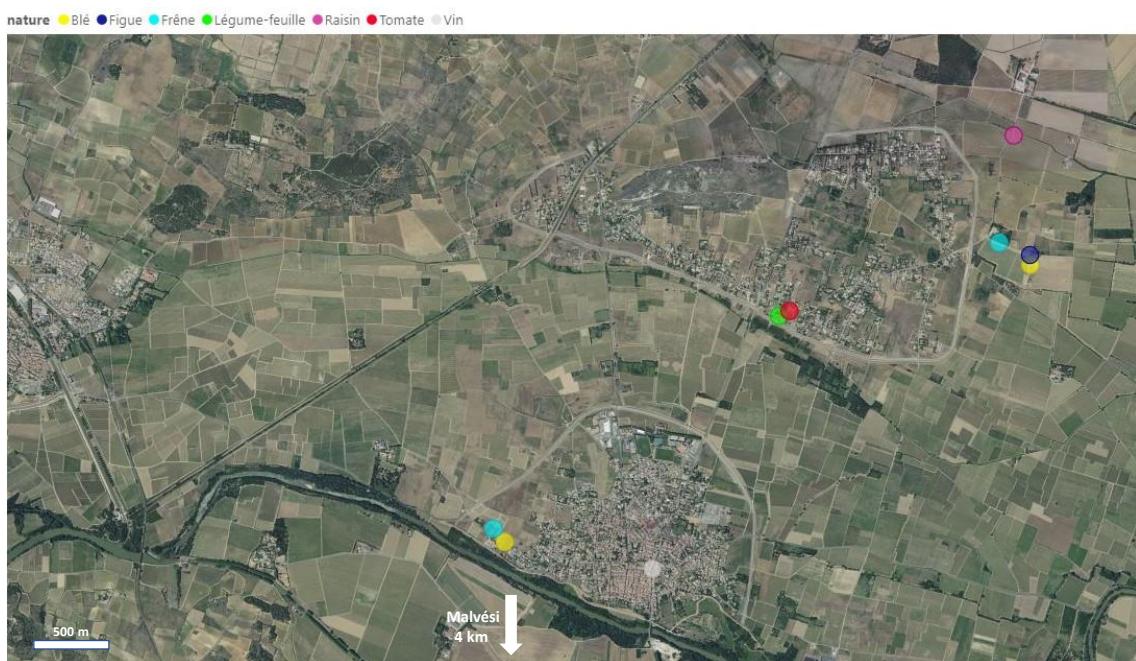


Figure 12 : Répartition des sites de prélèvements de végétaux terrestres dans la zone non-influencée par les rejets atmosphériques du site de Malvési. Ces sites sont situés au nord du site de Malvési, à des distances comprises entre 4 et 7,5 km de l'usine.

Zone non-influencée par les rejets atmosphériques

Comme expliqué précédemment, des prélèvements des mêmes matrices ont été réalisés dans la zone non-influencée par les rejets atmosphériques du site de Malvési, afin de disposer d'éléments de comparaison avec les mesures réalisées dans la zone influencée (Figure 12).

Au total, 44 prélèvements de végétaux ou de denrées végétales ont été réalisés entre 2021 et 2023 dans les deux zones.

4.2.2. Traitement des échantillons au laboratoire

De retour au laboratoire, les échantillons de végétaux sont triés pour éliminer les parties abîmées et les matrices indésirables, avant d'être pesés. Puis, les échantillons de tomates, de figues et de légumes-feuilles sont lavés à l'eau courante pour éliminer les poussières et autres impuretés, improches à la consommation humaine. A l'opposé, les échantillons de raisin et d'épis de blé ne sont pas lavés. De même, les feuilles de frêne, bioindicateur de l'activité dans l'air, ne sont pas lavées.

Puis, tous les échantillons sont séchés à l'étuve (80°C), avant d'être réduits en cendres par incinération à 480°C.

4.2.3. Métrologie des radionucléides

4.2.3.1. Méthodes de mesure des radionucléides

Les analyses radiologiques ont été réalisées dans le Laboratoire de Mesure de la Radioactivité dans l'Environnement, de l'ASNR à Orsay. Les méthodes mises en œuvre pour la mesure des radionucléides sont données dans le Tableau 8.

Tableau 8 : Méthodes de mesure mises en œuvre pour quantifier l'activité massique des radionucléides naturels et artificiels dans les végétaux.

	radionucléides naturels, descendants de l' ²³⁸ U + ²³² Th			radionucléides artificiels			
	²³⁸ U isotopes U	²³⁰ Th isotopes Th	²²⁶ Ra	¹³⁷ Cs	plutonium, ²⁴¹ Am	⁹⁰ Sr	⁹⁹ Tc
radiochimie	oui	oui	non	non	oui	oui	oui
méthodes de mesure	ICP-MS	ICP-MS	spectro. gamma	spectro. gamma	spectro. alpha ICP-MS	spectro. bêta	ICP-MS

4.2.3.2. Stratégie de mesure des radionucléides

L'activité massique des radionucléides naturels (l'²³⁸U, ses descendants ainsi que le ²³²Th) a été recherchée dans tous les échantillons de végétaux (Tableau 9).

La mesure de l'activité massique des radionucléides artificiels, nécessitant une séparation radiochimique (plutonium, ²⁴¹Am, ⁹⁰Sr et ⁹⁹Tc), a également été réalisée pour un nombre réduit d'échantillons de végétaux issus de la zone influencée et de la zone non-influencée. La seule exception est le ¹³⁷Cs, dont l'activité massique a été recherchée dans l'ensemble des échantillons de végétaux (spectrométrie gamma).

Tableau 9 : Stratégie de mesure des végétaux prélevés entre 2021 et 2023 dans la zone influencée par les rejets du site de Malvési (ZI) et dans la zone non-influencée (ZNI).

	<i>Nombre de prélevements</i>	<i>²³⁸U isotopes U</i>	<i>²³⁰Th isotopes Th</i>	<i>²²⁶Ra</i>	<i>¹³⁷Cs</i>	<i>plutonium, ²⁴¹Am</i>	<i>⁹⁰Sr</i>	<i>⁹⁹Tc</i>
frêne ZI	15	15	15	15	15	3	3	3
frêne ZNI	2	2	2	2	2	1	1	2
blé ZI	4	4	4	4	4	3		
blé ZNI	2	2	2	2	2	1		
légumes-feuilles ZI	3	3	3	3	3			
légumes-feuilles ZNI	1	1	1	1	1			
fruits ZI	7	7	7	7	7	2		
fruits ZNI	3	3	3	3	3			
vin ZI	2	2	2	2	2			
vin ZNI	1	1	1	1	1			

5. LES RESULTATS

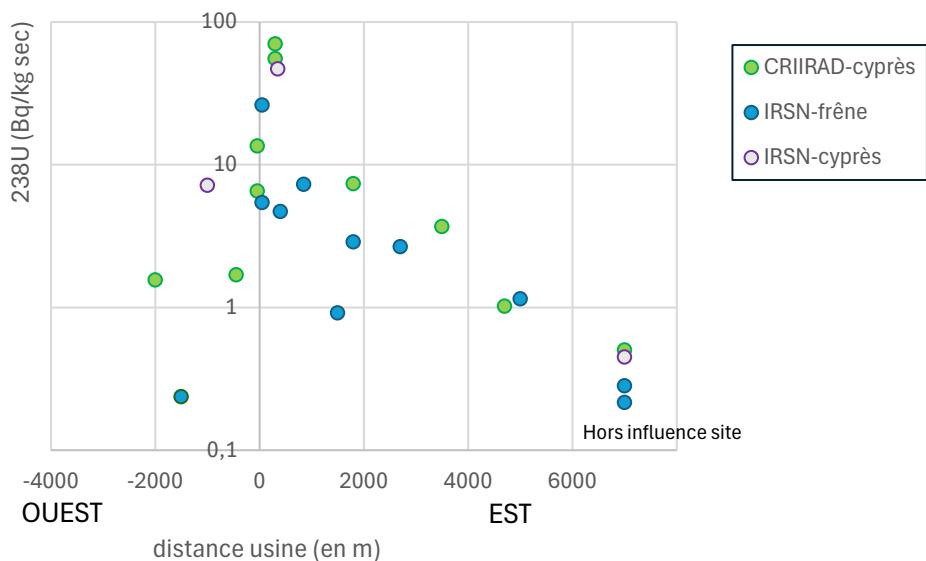
5.1. L'URANIUM

5.1.1. Répartition spatiale des activités massiques de l'uranium 238

Dans ce paragraphe, les activités massiques de ^{238}U sont présentées et discutées en fonction de la distance à l'usine. Les activités massiques des feuilles de frêne sont exprimées en becquerel par kilogramme de matière sèche ($\text{Bq} \cdot \text{kg}^{-1} \text{ sec}$). Les activités massiques des échantillons de denrées végétales sont exprimées en becquerel par kilogramme de matière fraîche ($\text{Bq} \cdot \text{kg}^{-1} \text{ frais}$) ou en becquerel par litre pour le vin ($\text{Bq} \cdot \text{L}^{-1}$). L'ensemble des résultats est présenté dans les tableaux en annexe de ce rapport.

5.1.1.1. Dans les feuilles de frêne

Les activités massiques de ^{238}U dans les feuilles de frêne analysées par l'ASNR dans le cadre de cette étude (points bleus de la Figure 13) varient fortement d'un échantillon à l'autre, notamment en fonction de la distance à l'usine et de l'azimut. La plus élevée est observée à l'est, à proximité immédiate du site : 26 $\text{Bq} \cdot \text{kg}^{-1} \text{ sec}$, à 800 m de l'usine. Cette valeur est de l'ordre de cent fois supérieure à celles observées dans les échantillons prélevés dans la zone non-influencée (ZNI) par les rejets atmosphériques de l'usine où les activités mesurées correspondent au fond radiologique local : 0,2 et 0,3 $\text{Bq} \cdot \text{kg}^{-1} \text{ sec}$ (voir aussi Figure 15). Plus loin à l'est, les valeurs mesurées diminuent progressivement, passant de 26 à 1,2 $\text{Bq} \cdot \text{kg}^{-1} \text{ sec}$ à six kilomètres de l'usine. Cette dernière valeur reste encore 4 à 6 fois supérieure au fond radiologique local de l'uranium dans les feuilles de frêne.



souligner la concordance entre les trois jeux de données et compléter l'image de l'évolution spatiale de l'influence du site tout au long de ce transect ouest-est.

5.1.1.2. Dans les denrées

Comme pour les feuilles de frênes, c'est à l'est du site et plus précisément entre 1000 et 2000 m de l'usine, que les activités massiques en ^{238}U les plus élevées sont observées dans le blé (0,04 à 0,24 $\text{Bq}.\text{kg}^{-1}$ frais) et dans les légumes-feuilles (0,03 à 0,3 $\text{Bq}.\text{kg}^{-1}$ frais) (Figure 14). Ces activités sont de l'ordre de 10 fois à 20 fois supérieures à celles observées en zone non-influencée (Figure 15).

Les activités massiques mesurées dans les fruits (raisin et figue : 0,008 et 0,025 $\text{Bq}.\text{kg}^{-1}$ frais, respectivement) prélevées en zone influencée sont plus faibles que celles du blé et les légumes-feuilles, mais restent 3 à 6 fois supérieures à celles observées dans les échantillons prélevés en zone non-influencée (0,003 $\text{Bq}.\text{kg}^{-1}$ frais). En revanche, dans le vin prélevé dans la zone influencée par les rejets atmosphériques de l'usine de Malvési, l'activité volumique de l' ^{238}U (0,0014 et 0,0030 $\text{Bq}.\text{L}^{-1}$ à l'est et à l'ouest du site, respectivement) est proche de celle du vin prélevé en dehors de l'influence de ces rejets (0,0018 $\text{Bq}.\text{L}^{-1}$).

Enfin, la comparaison des activités massiques entre les échantillons prélevés en zone influencée et ceux prélevés en zone non-influencée n'est plus possible lorsque l'activité massique est trop faible pour être mesurée, comme c'est le cas pour les tomates dont les activités massiques sont inférieures au seuil de décision (< 0,001 $\text{Bq}.\text{kg}^{-1}$ frais), malgré les masses prélevées (5-8 kg) et la performance des moyens métrologiques mis en œuvre.

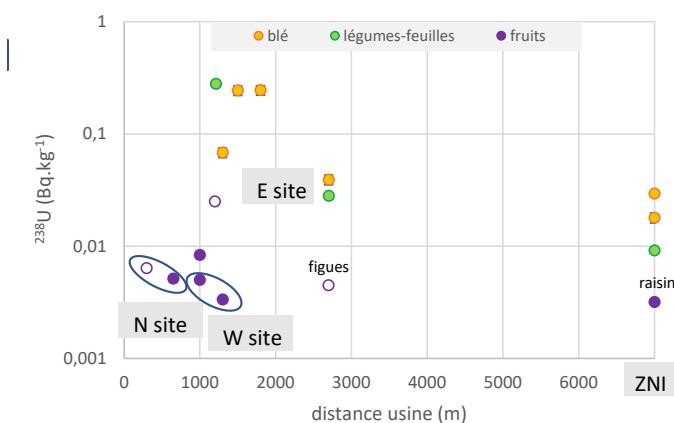


Figure 14 : Activités massiques en ^{238}U mesurées dans les denrées prélevées dans l'environnement du site de Malvési (N, W et E site) en fonction de la distance à l'usine et dans la zone non-influencée par les rejets (ZNI). Cercles « vides » = figue, cercles « pleins » = raisin.

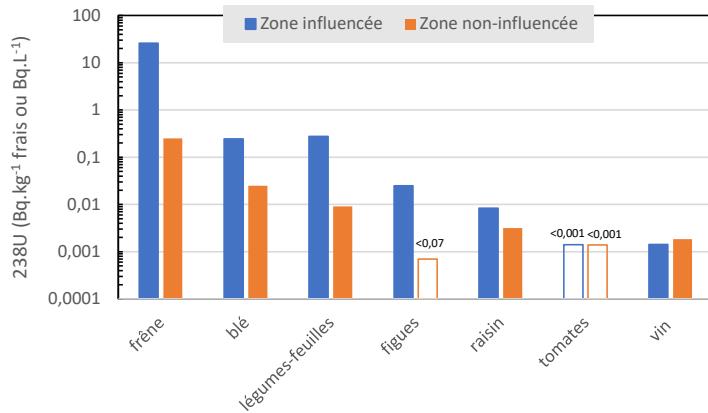


Figure 15 : Activités massiques maximales en ^{238}U mesurées dans les feuilles de frêne et les denrées (activité volumique pour le vin) provenant de la zone influencée comparée à celle de la zone non-influencée par les rejets atmosphériques du site.

5.1.1.3. Tous types de végétaux confondus : le rapport $^{238}\text{U}/^{232}\text{Th}$

Dans les paragraphes précédents, l'influence des rejets d'uranium sur la répartition spatiale des activités massiques mesurées dans l'environnement a été présentée par type d'échantillon en raison de la variabilité liée à la diversité de nature des échantillons prélevés (feuilles d'arbres, légumes-feuilles, fruits, blé...). Une étude complémentaire, présentée en annexe 1, permet de faire apparaître plus clairement la diminution de ces activités massiques (et donc la diminution de l'influence des rejets) avec l'augmentation de la distance au site, tous types de végétaux confondus. Cette étude complémentaire repose sur l'utilisation du rapport d'activité $^{238}\text{U}/^{232}\text{Th}$ dont l'intérêt est de réduire la variabilité inter-espèce.

5.1.2. Comparaison avec les résultats acquis dans d'autres régions françaises

Les activités massiques en ^{238}U les plus élevées mesurées dans les échantillons de feuilles de frêne prélevés dans la zone influencée par les rejets de l'usine de Malvési sont supérieures à celles que l'on observe ailleurs en France. (Figure 16 à gauche). Une valeur similaire a été observée dans l'environnement proche du site de Tricastin (point jaune le plus élevé pour la vallée du Rhône), comme conséquence d'un rejet incidentel d'uranium par une installation de ce site en 2013 [31]. En revanche, les valeurs les plus faibles mesurées dans la zone influencée par l'usine de Malvési sont similaires à celles observées dans d'autres régions, comme en Provence.

Les activités massiques en ^{238}U les plus élevées mesurées dans le blé prélevé à proximité du site de Malvési sont supérieures à celles observées sous l'influence des rejets d'autres sites nucléaires dans l'Isère (influence du site de Romans-sur-Isère) ou dans la vallée du Rhône (influence du site du Tricastin) (Figure 16 à droite), mais sont du même niveau que celle mesurée dans du blé provenant d'une zone granitique riche en uranium située dans la Haute-Vienne ($0,16 \text{ Bq.kg}^{-1}$ frais) [16].

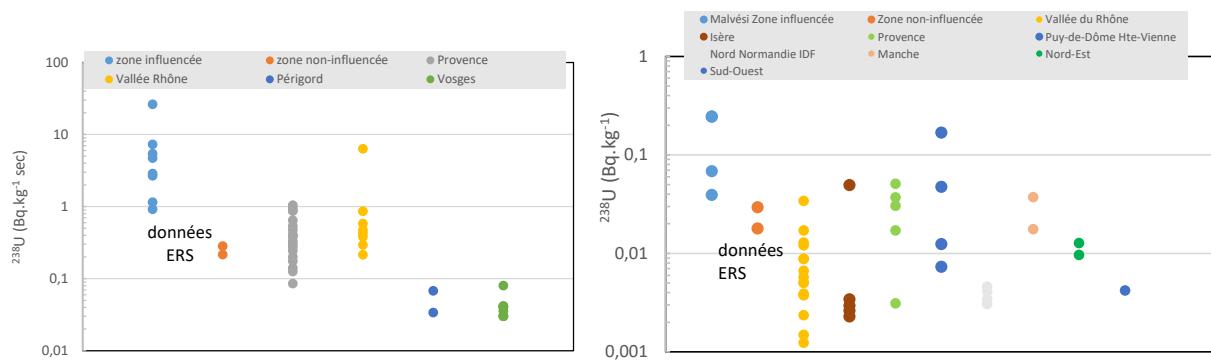


Figure 16 : Activités massiques en ^{238}U dans les feuilles de frêne (à gauche) et dans les épis de blé (à droite) prélevés dans différentes régions françaises par l'ASNR, comparées aux mesures de la présente étude (Malvési zone influencée et zone non-influencée).

L'activité massique d' ^{238}U la plus élevée mesurée dans un échantillon de légumes-feuilles de la zone influencée par les rejets de Malvési ($0,3 \text{ Bq.kg}^{-1}$ frais) est du même niveau que celles observées dans la Vienne et le nord-est (Figure 17 à gauche). En dehors de ce point particulier, les autres activités massiques en ^{238}U des légumes-feuilles prélevés autour de Malvési (zones influencées et non-influencée), comprises entre $0,009$ et $0,05 \text{ Bq.kg}^{-1}$ frais, sont proches des valeurs observées dans d'autres régions, comme dans la vallée du Rhône, en Provence ou en Bretagne. Enfin, certaines des activités massiques issues des zones à haut-niveau de radioactivité naturelle (Haute-Vienne et Saône-et-Loire) sont supérieures d'un ordre de grandeur aux activités massiques mesurées autour du site de Malvési dans le cadre de l'ERS ($> 1 \text{ Bq.kg}^{-1}$ frais).

Les activités massiques en ^{238}U des fruits prélevés dans la zone non-influencée sont similaires à celles des fruits provenant d'autres régions françaises, comme la Vallée du Rhône ou la Guyane (Figure 17 à droite) ($0,001$ à $0,005 \text{ Bq.kg}^{-1}$ frais). Celles des fruits prélevés en zone influencée sont, dans certains cas, légèrement supérieures à ces valeurs. Enfin, l'activité maximale en ^{238}U observée dans les figues prélevées à proximité immédiate du site ($0,02 \text{ Bq.kg}^{-1}$ frais) est inférieure à certaines des mesures provenant de régions de France à haut-niveau de radioactivité naturelle (Aveyron, Hérault et Vendée : jusqu'à $0,07 \text{ Bq.kg}^{-1}$ frais).

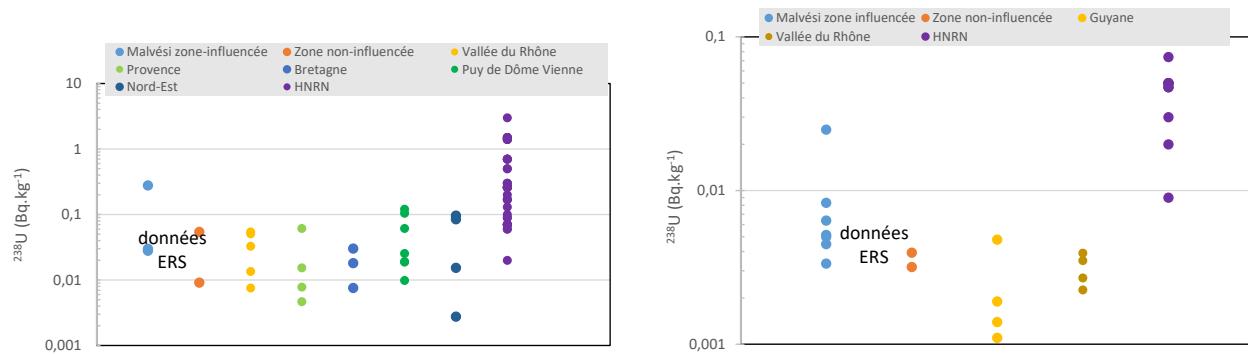


Figure 17 : Activités massiques en ^{238}U dans les légumes-feuilles (gauche) et les fruits (droite) prélevés dans différentes zones du territoire par l'ASNR, notamment dans les zones à haut niveau de radioactivité naturelle (HNRN) comparées à celles mesurées lors de la présente étude (Malvési zone influencée et non-influencée) [11].

5.1.3. Evolution dans le temps des activités massiques d' ^{238}U

Réalisés à différents endroits autour du site de Malvési, les résultats acquis par l'ASNR dans le cadre de la surveillance de l'environnement, dans celui des précédentes études de l'IRSN et dans le cadre de la présente

étude, ont été utilisés pour élaborer la chronique des activités massiques de l'uranium dans les feuilles d'arbres (Figure 18). La figure a été complétée avec les données issues de l'étude des feuilles de cyprès réalisée par la CRIIRAD (2021-2023). Sur cette figure, sont représentées à la fois les évolutions spatiales (plusieurs points d'observation) et les évolutions temporelles sur plus de 15 ans, de l'activité massique en ^{238}U dans le feuillage des cyprès.

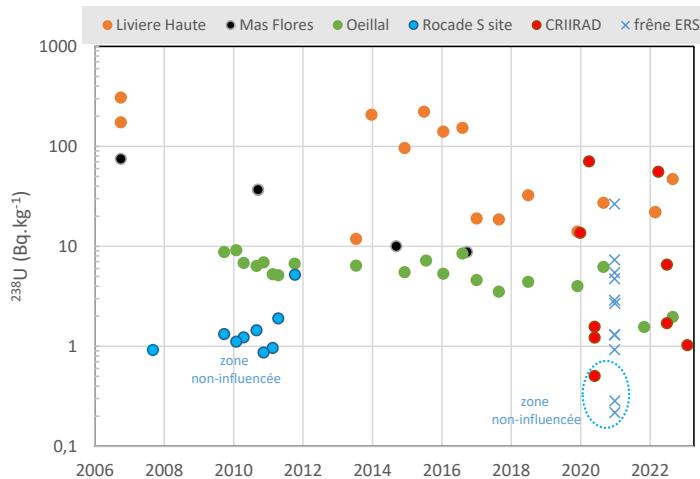


Figure 18 : Evolution temporelle de l'activité massique de l' ^{238}U dans les feuilles de cyprès prélevées entre 2007 et 2023 par l'IRSN et la CRIIRAD et dans les feuilles de frêne prélevées en 2021 (ERS de Malvési) en différents points de prélèvements, dans la zone influencée et dans la zone non-influencée par les rejets atmosphériques de l'usine.

Les activités massiques les plus élevées observées à l'est du site de Malvési (Livièvre-Haute) et au sud-est du site (Mas Flores) ont diminué au fil des années, d'un ordre de grandeur (de 10 fois) environ en 10 ans. A Mas-Flores par exemple, l'activité massique en ^{238}U a diminué de 75 Bq.kg $^{-1}$ sec, en 2007 à 8 Bq.kg $^{-1}$ sec, en 2017.

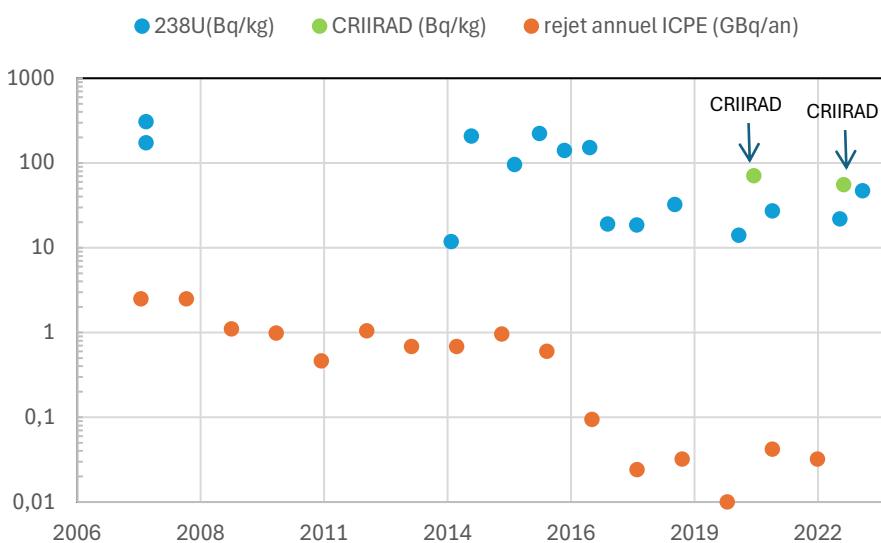


Figure 19 : Evolution temporelle de l'activité massique de l' ^{238}U dans les feuilles de cyprès prélevées entre 2007 et 2023 à Livièvre-Haute, comparée aux rejets atmosphériques annuels des isotopes de l'uranium de l'ICPE de Malvési (2007-2022).

Il en est de même dans le cas du blé dont les activités massiques de l' ^{238}U (Figure 20) sont dix fois plus faibles en 2021 qu'en (2008-2017), passant de quelques $\text{Bq}.\text{kg}^{-1}$ frais à quelques dixièmes de $\text{Bq}.\text{kg}^{-1}$ frais.

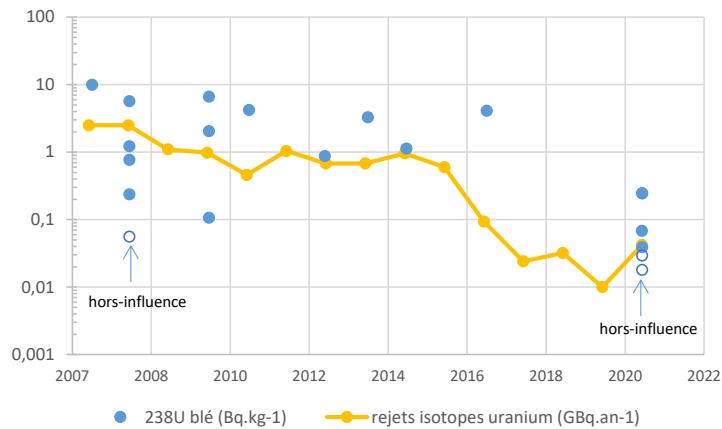


Figure 20 : Evolution temporelle de l'activité massique de l' ^{238}U dans les épis de blé prélevés entre 2007 et 2021 dans la zone influencée par les rejets et en dehors de celle-ci, comparée aux rejets atmosphériques annuels de l'ICPE de Malvési sur la même période. Les différents points de mesures pour les années 2008, 2009 et 2021 (ERS Malvési) correspondent à différents sites de prélèvements et rendent compte de la variabilité spatiale de l' ^{238}U .

Ces diminutions dans le temps des activités massiques en uranium dans les feuilles d'arbre et le blé résultent de la baisse des rejets atmosphériques annuels d'uranium de l'ICPE de Malvési, qui est passée d'une gamme comprise entre 0,6 et 2 $\text{GBq}.\text{an}^{-1}$ pour la période 2008-2017 à une gamme comprise entre 0,02 et 0,04 $\text{GBq}.\text{an}^{-1}$ pour la période 2018-2021.

Cependant, dans les deux cas, la diminution dans le temps d'un ordre de grandeur (de 10 fois) des activités massiques d'uranium mesurées, est moins marquée que la baisse des rejets atmosphériques en uranium qui en est à l'origine et qui est, elle, de deux ordres de grandeur (diminution de 100 fois) durant cette période.

Cette comparaison suggère l'existence d'une source secondaire qui s'ajoute à l'uranium du rejet atmosphérique. Cette source diffuse correspond vraisemblablement à l'uranium présent sur les surfaces du site (bâtiments, routes, digues, enrochements, etc.) et émis dans l'atmosphère par temps sec ou lors de travaux, sous la forme de poussières ou des envols d'embruns des bassins industriels. Cette source secondaire d'uranium devient visible dans l'environnement dans la mesure où le rejet atmosphérique du site est en diminution au fil des années. L'hypothèse de cette source supplémentaire d'uranium est corroborée par les mesures dans le compartiment atmosphérique (voir rapport ERS Malvési « étude radiologique du milieu atmosphérique »). En effet, lors des phases d'arrêt de la production (aucun rejet atmosphérique), l'activité volumique en ^{238}U dans ce compartiment (moyenne 2009-2010 = $6,9 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$) reste supérieure à l'activité en dehors de l'influence des installations (de l'ordre de $0,2 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$) [26]. La précédente étude de l'IRSN a en effet estimé à 20 % la proportion de l'uranium dans l'air issu de la remise en suspension de poussières de sol marquées en uranium et provenant du site ou de son environnement. Cette source secondaire d'uranium dans l'environnement sera caractérisée dans le paragraphe suivant.

Par ailleurs, dans le cas du blé, il convient de mentionner que les activités plus faibles mesurées sur les échantillons de 2021 pourraient également résulter du fait que le point de prélèvement de 2021 est situé à une distance de l'usine plus importante que celle des points de prélèvement antérieur. En effet, jusqu'en 2017, les prélèvements étaient réalisés dans les parcelles situées en bordure immédiate, à l'est du site, c'est-à-dire dans la zone la plus influencée par les rejets atmosphériques (900 m environ de l'usine). Les mesures effectuées sur ces échantillons

étaient donc représentatives des valeurs maximales observées dans l'environnement du site. Après 2017, la culture de ces parcelles a été abandonnée de sorte que les prélèvements les plus proches ont été réalisés dans le secteur de Livièvre-Haute en 2021, à une distance plus importante de l'usine (1500 m environ).

Dans les légumes-feuilles, une diminution de l'activité massique de 0,2 à 0,07 Bq.kg⁻¹ frais est visible pour les prélèvements réalisés entre 2008 et 2013, à 1700 m de l'usine (Figure 21). En revanche, les prélèvements réalisés à 2700 m de l'usine donnent des activités massiques similaires en 2007, puis en 2021 et en 2022 (0,03 Bq.kg⁻¹ frais). L'activité massique mesurée en 2021 est la plus élevée de la chronique (0,3 Bq.kg⁻¹ frais), dans la mesure où ce prélèvement a été réalisé à une plus proche distance de l'usine (1100 m) que les autres points (1500 ou 1700 m).

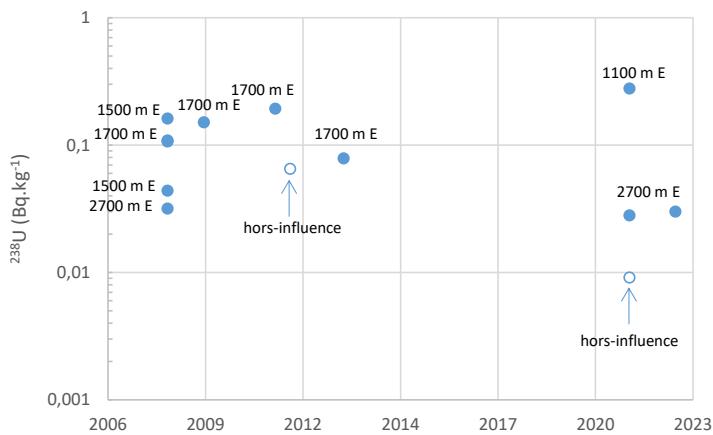


Figure 21 : Evolution temporelle de l'activité massique de l' ^{238}U dans les légumes-feuilles prélevés entre 2007 et 2022 dans la zone influencée par les rejets et en dehors de celle-ci. Distance à l'usine pour les échantillons prélevés dans la zone influencée par les rejets atmosphériques.

La diminution de l'activité de l' ^{238}U dans les feuilles d'arbre et le blé n'est donc pas observée dans les légumes-feuilles. Il est probable que la variabilité des espèces prélevées (scarole, laitue, blette, etc.) masque une partie de la diminution temporelle attendue pour cette matrice.

Dans le raisin et les figues, les activités massiques mesurées en 2021 et en 2023 (0,004 à 0,02 Bq.kg⁻¹ frais) sont plus faibles et plus homogènes que celles mesurées en 2007 (0,004 à 0,15 Bq.kg⁻¹ frais) (Figure 22).

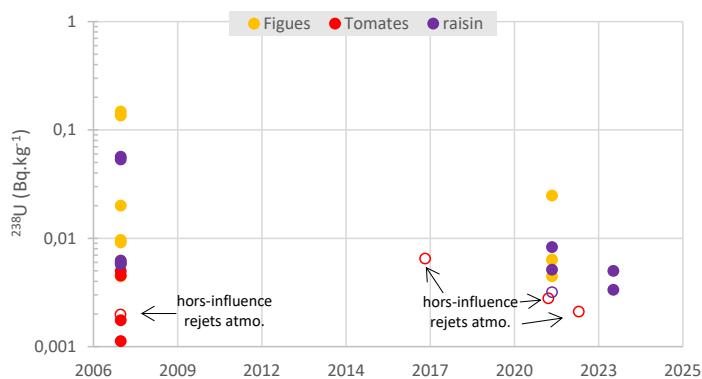


Figure 22 : Evolution temporelle de l'activité massique de l' ^{238}U dans les fruits prélevés entre 2007 et 2023 dans la zone influencée par les rejets atmosphériques et en dehors de l'influence des rejets. Les symboles « ouverts » représentent les prélèvements réalisés en dehors de l'influence des rejets.

5.1.4. Caractérisation et origine de l'uranium mesuré dans l'environnement terrestre du site de Malvési

En complément de l'interprétation des activités massiques de l' ^{238}U faite dans le paragraphe précédent, les rapports des isotopes de l'uranium des végétaux terrestres permettent de caractériser l'origine de ce radionucléide qui peut être : le fond radiologique naturel, les rejets industriels « anciens » et les rejets industriels actuels.

5.1.4.1. Les rapports $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ et $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$

Les figures 23 et 24 montrent que les rapports d'activités isotopiques $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ dans les feuilles d'arbre et les denrées prélevés dans l'environnement du site de Malvési sont proches de 1 ce qui signifie que ces deux radionucléides sont en équilibre séculaire (voir paragraphe 3), caractéristique de l'uranium naturel. Aucune trace d'uranium appauvri ($^{234}\text{U}/^{238}\text{U} < 1$) ou d'uranium enrichi ($^{234}\text{U}/^{238}\text{U} > 1$) n'est observée dans ces échantillons.

Ceci est confirmé par les rapports massiques $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ dans ces mêmes échantillons qui est proche du rapport de l'uranium naturel (0,72 %), compte-tenu de l'incertitude analytique. Aucune trace d'uranium appauvri ($^{235}\text{U}/^{238}\text{U} < 0,72 \%$) ou d'uranium enrichi ($^{235}\text{U}/^{238}\text{U} > 0,72 \%$) n'est mise en évidence dans les végétaux étudiés.

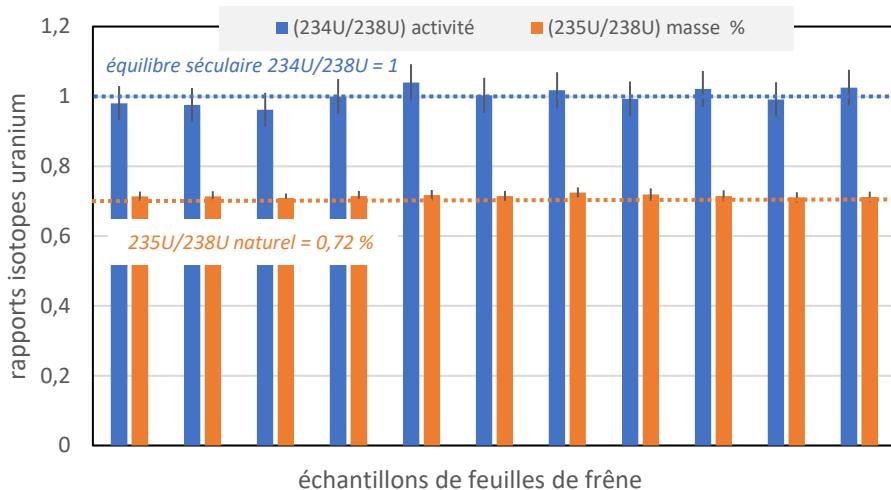


Figure 23 : Rapports $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ et $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ dans les feuilles de frêne.

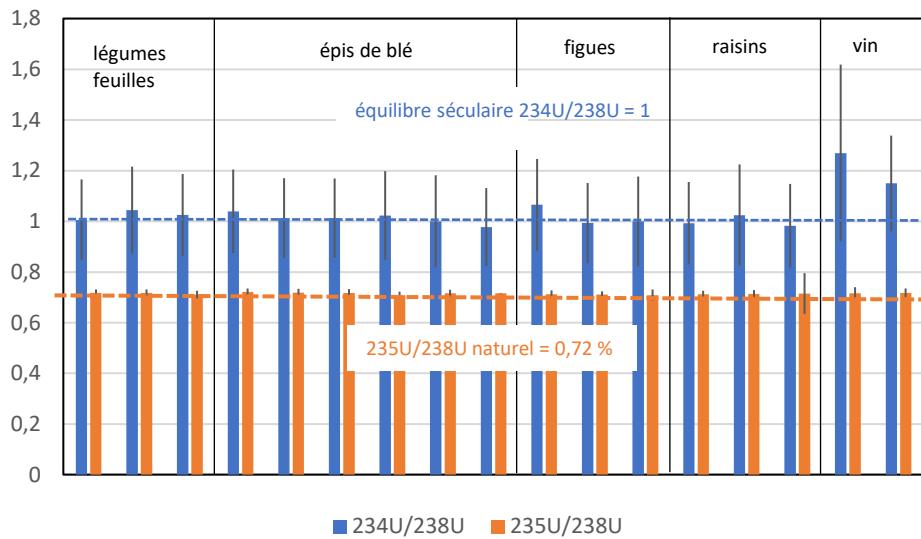


Figure 24 : Rapports $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ et $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ dans les denrées.

5.1.4.2. Le rapport $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$

On rappelle que l'uranium 236 (période : $2,34 \cdot 10^7$ années) est un isotope artificiel de l'uranium qui n'est pas présent naturellement dans l'environnement et qui n'est pas rejeté par l'usine de Malvési. En revanche, ce radionucléide a été produit lors des essais d'armes nucléaires et il est produit par l'activation neutronique de l' ^{235}U dans les réacteurs nucléaires. A ce titre, il figurait parmi les rejets de l'usine de Malvési entre 1960 et 1983, lorsque celle-ci utilisait de l'uranium de retraitement (URT).

L' ^{236}U a été mesuré dans l'ensemble des échantillons de végétaux prélevés dans la zone influencée par les rejets à l'est et au nord du site, à l'exception des tomates et du vin pour lesquels l'activité massique en ^{236}U est inférieure au seuil de décision. Pour les végétaux prélevés dans la zone non-influencée par les rejets de Malvési et ceux prélevés à l'ouest du site, l'activité de ce radionucléide est inférieure au seuil de décision.

En comparaison des rapports $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ et $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$, le rapport $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ des végétaux est plus variable (Figure 25). Les valeurs les plus élevées sont observées à proximité du site, au nord dans les feuilles de frêne (0,00012 et 0,00017 %) et dans un échantillon de figues (0,0004 %). Une autre valeur élevée est observée dans un échantillon de légumes-feuilles prélevé à l'est du site (0,0003 %). Dans les feuilles de frêne prélevées à l'est du site, le rapport $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ est relativement homogène, quelle que soit la distance à l'usine ($5 \cdot 10^{-5}$ %).

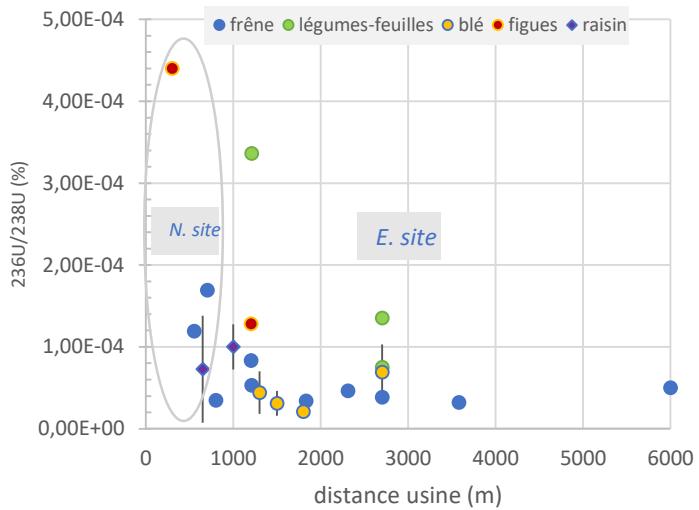


Figure 25 : Rapport $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ des végétaux prélevés dans la zone influencée par les rejets du site (N et E du site) en fonction de la distance à l'usine.

Les traces d' ^{236}U mesurées dans les feuilles des végétaux peuvent provenir soit des bassins d'évaporation, soit des sols situés à proximité immédiate du site et qui sont marqués par les rejets passés, datant de la période au cours de laquelle de l'uranium de retraitement était utilisé [5,12].

Si les rapports isotopiques des radionucléides artificiels provenant de l'URT ne sont pas connus, les rapports $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ et $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ des sols situés en bordure du site ont été mesurés dans les études précédentes ($10^{-3}\%$ et $5,4\%$, respectivement [12]).

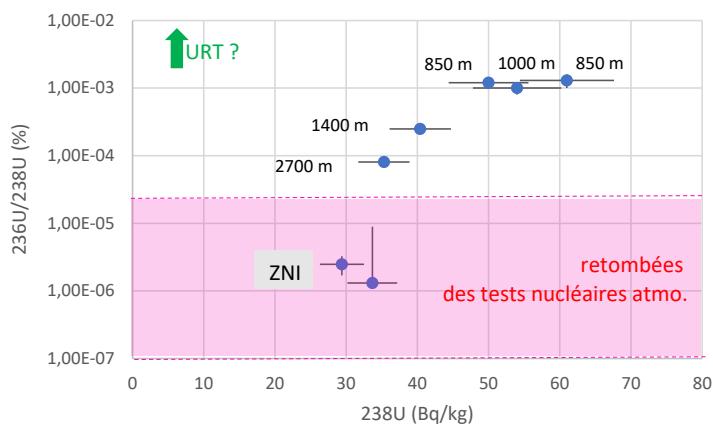


Figure 26 : Variations du rapport $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ en fonction de l'activité massique en ^{238}U des sols et de la distance à l'usine dans la zone influencée par les rejets atmosphériques située à l'est du site et dans la zone non-influencée (ZNI).

L'autre source de l'uranium 236 dans les sols autour de Malvési sont les dépôts atmosphériques consécutifs aux essais atmosphériques d'armes nucléaires effectués entre 1945 et 1980. Les rapports de cette source sont issus d'études de l'IRSN ou à défaut, de la littérature scientifique ($^{236}\text{U}/^{238}\text{U} = 0,6 \cdot 10^{-7}$ à $3,1 \cdot 10^{-5}\%$) [21,27].

En comparaison de ces sources (rejets passés de l'usine et retombées des essais atmosphériques), la contribution des rejets actuels de l'ICPE de Malvési en radionucléides artificiels est négligeable. Par exemple, le rapport

$^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ des concentrat minier est en moyenne de $10^{-8}\%$, nettement plus faible que les valeurs comprises entre $10^{-6}\%$ et $3,1 \cdot 10^{-5}\%$ mesurés autour de Malvési et présentés dans la figure 26 [28,29].

L'analyse des données isotopiques des sols de l'environnement de Malvési met en évidence de fortes variations du rapport $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ en fonction de l'activité massique du sol et de la distance à l'usine (Figure 26) :

- Les activités massiques en ^{238}U ($29\text{-}34 \text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1} \text{ sec}$) et les rapports de masse isotopique les plus faibles ($1\cdot 10^{-6}$ à $2\cdot 10^{-6}\%$), en accord avec les valeurs attendues pour les retombées des essais nucléaires atmosphériques, sont mesurés dans la zone non-influencée par les rejets,
- Les activités massiques et les rapports augmentent quand la distance à l'usine diminue, avec des valeurs maximales en bordure de site (jusqu'à $61 \text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1} \text{ sec}$ à 850 m de l'usine⁹) [5]. L'augmentation du rapport $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ dans les sols de la zone influencée est la conséquence des rejets d'URT enrichi en ^{236}U effectués par le passé.

Ainsi, les données isotopiques montrent que les sols situés à proximité immédiate du site sont marqués par l' ^{236}U provenant de l'URT et les sols plus éloignés du site sont marqués par les retombées des essais d'armes nucléaires.

Cette présence de ^{236}U témoigne donc qu'une partie des autres isotopes de l'uranium 238, 234 et 235 mesurés dans les végétaux autour de Malvési est imputable à cette source ancienne qui s'ajoute à l'uranium provenant des rejets actuels dans l'atmosphère.

En comparaison des sols, le rapport $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ des aérosols mesuré à Livièvre-Haute dans le cadre de l'étude du milieu atmosphérique (rapport à paraître) est plus faible (compris entre $3\cdot 10^{-5}$ et $5\cdot 10^{-5}\%$) (Figure 27). Ces valeurs dans les aérosols s'expliquent par le fait que l'uranium du compartiment atmosphérique est un mélange entre l'uranium rejeté dans l'atmosphère par l'ICPE de Malvési (conversion de l'uranium naturel avec un $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ très faible, de l'ordre de $1\cdot 10^{-8}\%$) et l'uranium du sol, marqué par l' ^{236}U de l'URT (rapport $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ plus élevé, compris entre $8\cdot 0\cdot 10^{-5}$ et $1\cdot 3\cdot 10^{-3}\%$). Ainsi, les rapports $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ des aérosols, comme ceux des végétaux, reflètent la double origine de l'uranium de ces matrices qui provient des rejets atmosphériques de l'ICPE de Malvési mais aussi des sols.

5.2. LE RADIUM 226 ET LE THORIUM 230

Dans ce paragraphe, nous comparons les activités massiques de certains descendants de l' ^{238}U dans les végétaux terrestres (^{230}Th et ^{226}Ra) avec celle de l' ^{238}U . En effet, le ^{226}Ra et le ^{230}Th sont les principales impuretés radiologiques séparées lors de la purification de l'uranium et envoyées vers les bassins industriels du site. La mesure du ^{226}Ra et du ^{230}Th dans l'environnement apporte donc des informations sur l'influence des bassins industriels, sources potentielles d'envol de poussières et d'embruns.

5.2.1. Les feuilles de frênes

Dans les feuilles de frênes, les activités massiques en ^{226}Ra les plus élevées sont observées dans les prélèvements effectués dans la zone influencée à l'est du site (Figure 27). Bien que plus faibles que celles d'uranium 238, les activités maximales de ce radionucléide dans les feuilles prélevées dans cette zone à 800 m du site, sont jusqu'à dix fois supérieures à celles prélevées en zone non-influencée. Cette influence du site sur les activités de radium dans les feuilles de frêne n'est toutefois plus visible au-delà de 2 km.

L'activité massique en ^{230}Th dans les feuilles de frêne est plus faible et plus homogène ($0,2\text{-}0,5 \text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1} \text{ sec}$) que celle du ^{226}Ra , à l'exception de deux échantillons pour lesquels l'activité massique est supérieure à ces valeurs.

⁹ L'activité massique de l' ^{238}U des sols a été multipliée par deux par le cumul des rejets atmosphériques de la conversion de l'uranium depuis le démarriage de cette activité industrielle, en 1959.

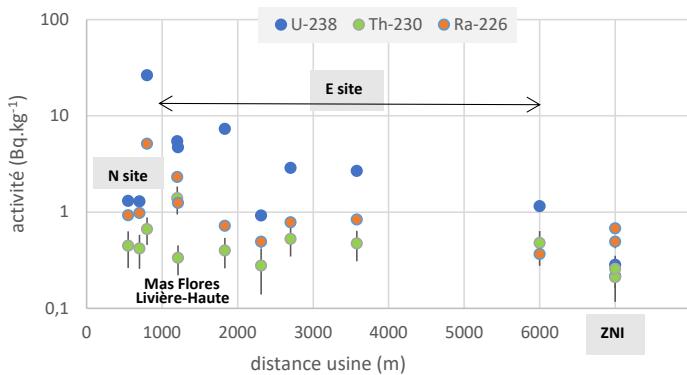


Figure 27 : Activité massique du ^{230}Th et du ^{226}Ra , comparée à celle de l' ^{238}U dans les feuilles de frêne, en fonction de la distance à l'usine dans la zone influencée (N et E du site) et dans la zone non-influencée par les rejets (ZNI).

5.2.2. Les denrées

En comparaison de l' ^{238}U , l'activité massique en ^{226}Ra dans le blé est relativement homogène dans la zone influencée par les rejets du site de Malvési (0,06 à 0,13 Bq.kg $^{-1}$ frais), avec des valeurs du même niveau que celles de la zone non-influencée (0,09 et 0,13 Bq.kg $^{-1}$ frais) (Figure 28-a). Par ailleurs, l'activité massique en ^{230}Th du blé est inférieure au seuil de décision (< 0,01-0,02 Bq.kg $^{-1}$ frais). Les analyses effectuées dans le blé ne révèlent donc pas de ^{226}Ra et de ^{230}Th provenant du site industriel.

Un excès de ^{226}Ra dans les légumes-feuilles est observé dans la zone influencée (0,27 et 0,19 Bq.kg $^{-1}$ frais) par rapport à la zone non-influencée (0,02 Bq.kg $^{-1}$ frais) (Figure 28-b). Rappelons qu'il n'a pas été possible de prélever une espèce identique de légumes-feuilles aux trois points d'observation et qu'une partie de la variabilité observée en ^{226}Ra est probablement liée à cette contrainte. En effet, les intensités respectives du dépôt foliaire des radionucléides présents dans l'atmosphère et du transfert racinaire des radionucléides du sol vont varier d'un légume-feuille à un autre, expliquant une partie de la variabilité en ^{226}Ra observée sur la Figure 28-b. Ainsi, les données acquises ne permettent pas de conclure à une origine industrielle du ^{226}Ra mesuré dans les légumes-feuilles de la zone influencée.

L'activité en ^{230}Th des légumes-feuilles provenant de la zone influencée (0,02 Bq.kg $^{-1}$ frais) est faible et proche de celle de la zone non-influencée (0,01 Bq.kg $^{-1}$ frais) ; le ^{230}Th mesuré dans cette matrice ne provient donc pas du site industriel.

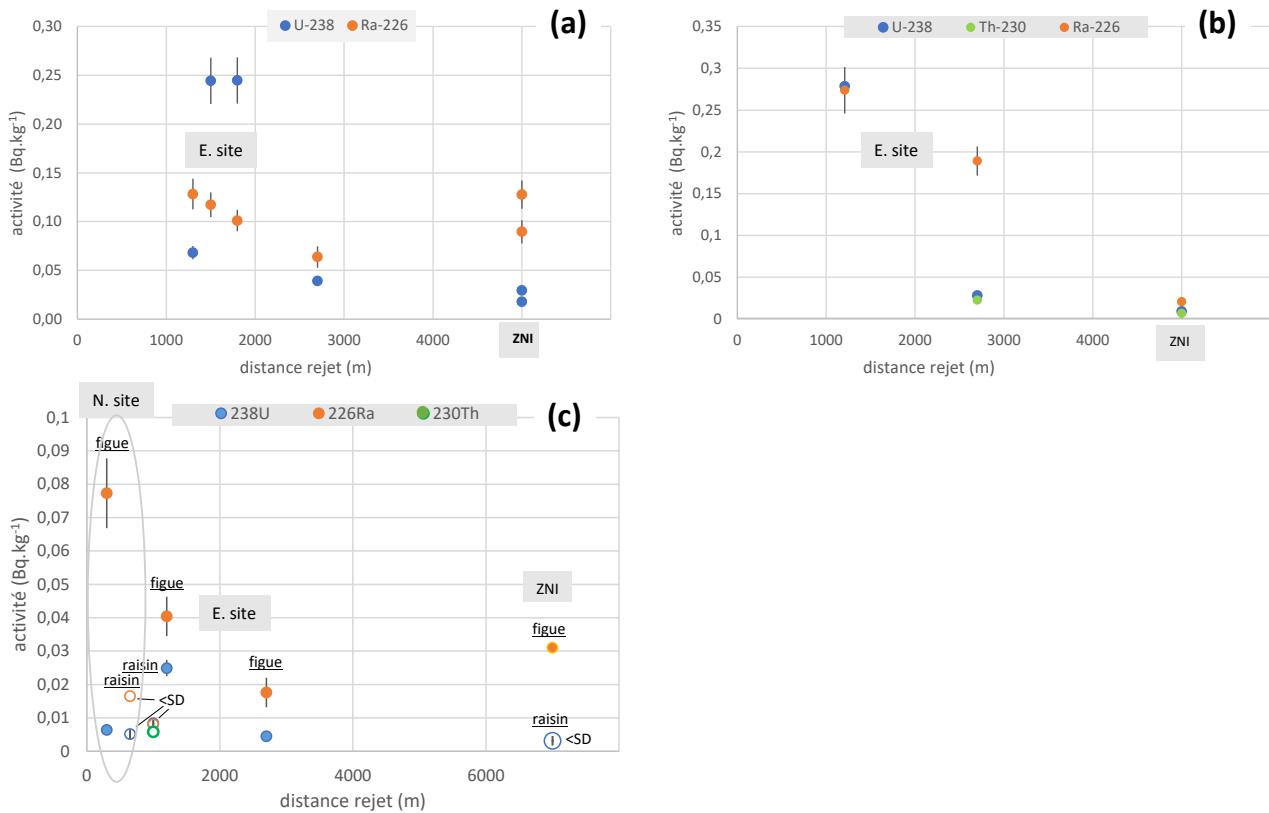


Figure 28 : Activité massique du ^{230}Th et du ^{226}Ra , comparée à celle de l' ^{238}U dans les denrées, en fonction de la distance à l'usine dans la zone influencée (N et E du site) et dans la zone non-influencée par les rejets atmosphériques (ZNI) (a) épis de blé, (b) légumes-feuilles et (c) fruits. Les cercles « ouverts » représentent les activités massiques inférieures au seuil de décision.

Dans un échantillon de figues prélevé au nord du site, l'activité massique en ^{226}Ra est plus élevée que dans la zone non-influencée (0,08 et 0,03 Bq·kg⁻¹ frais, respectivement), révélant une potentielle influence du site dans cet échantillon (Figure 28-c). En revanche, aucune influence en ^{230}Th provenant du site n'est observée dans les fruits (<0,002-0,004 Bq·kg⁻¹ frais), à l'exception d'un échantillon de raisin (0,01 Bq·kg⁻¹ frais).

Les rapports d'activités $^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th}$ des végétaux terrestres permettent de caractériser les principales sources de ce radionucléide : le fond radiologique naturel et les apports du site industriel (Figure 29). Pour la majorité des échantillons prélevés dans l'environnement du site (feuille de frêne, légume-feuille et raisin), le rapport $^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th}$ et l'activité massique en ^{230}Th sont faibles, proches des niveaux observés pour les échantillons prélevés en dehors de l'influence des rejets. Ainsi, les niveaux d'activités en ^{230}Th et les rapports $^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th}$ les plus faibles sont représentatifs du fond radiologique. Par ailleurs, dans deux échantillons de feuilles de frêne prélevés à proximité immédiate du site, le rapport d'activité et l'activité massique augmentent sous l'influence des envols de poussières provenant du site industriel, enrichies en ^{230}Th .

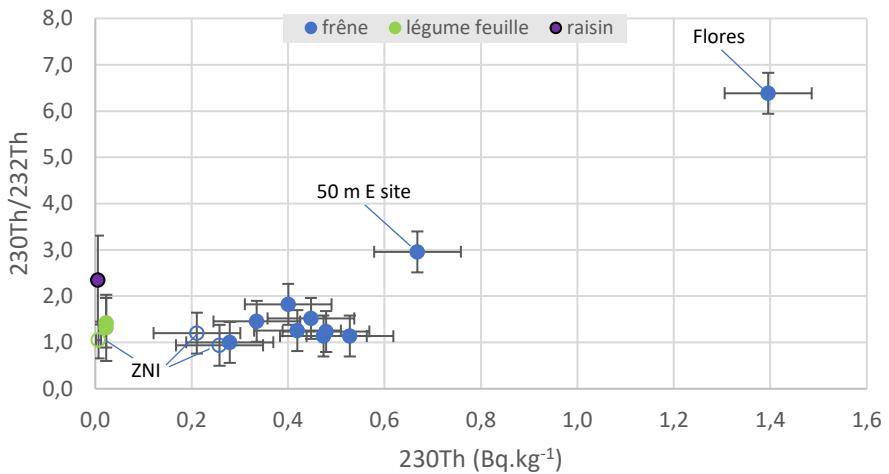


Figure 29 : Variation du rapport $^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th}$ des végétaux terrestres prélevés dans l'environnement du site de Malvési et en dehors de l'influence des rejets atmosphériques (ZNI).

5.3. LES RADIONUCLEIDES ARTIFICIELS

Rappelons qu'aucun radionucléide artificiel n'est rejeté par l'usine de Malvési ; leur présence dans l'environnement du site ne peut provenir que des bassins industriels ou de sols marqués par les rejets passés datant de l'époque durant laquelle de l'uranium de retraitement y était utilisé (1960-1983), ou encore des retombées des essais atmosphériques d'armes nucléaires et de l'accident de Tchernobyl.

5.3.1. Le césium 137

Quelle que soit la distance au site ou la localisation (est du site, nord du site ou zone non-influencée), l'activité massique du ^{137}Cs mesurée dans les feuilles de frêne en 2021-2022 est homogène (0,05 à 0,11 Bq.kg $^{-1}$ sec) (Figure 30), compte-tenu des incertitudes analytiques relativement élevées (20 à 40 %).

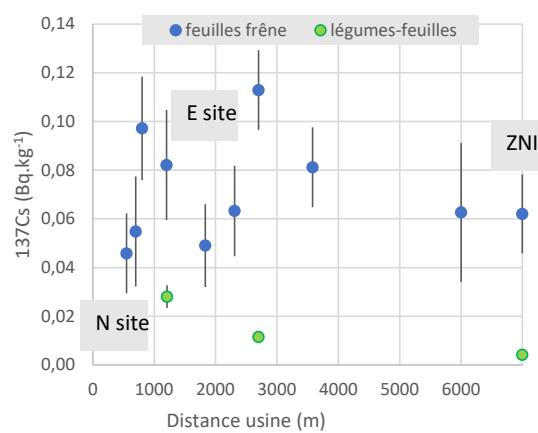


Figure 30 : Activité massique du ^{137}Cs dans les échantillons de végétaux en fonction de la distance à l'usine dans la zone influencée (N et E du site) et dans la zone non-influencée par les rejets (ZNI).

Cette homogénéité de l'activité massique du césium 137 dans les feuilles d'arbre est aussi constatée sur la période 2007-2016 (0,1 à 0,3 Bq.kg⁻¹ sec) à l'exception des prélèvements réalisés en juin 2011, dont les valeurs sont plus élevées (0,3 à 0,6 Bq.kg⁻¹ sec), en relation avec les retombées de l'accident de Fukushima [22,23] qui ont eu lieu en mars 2011 (Figure 31). A cette époque, du ¹³⁴Cs (période radioactive de 2,0 ans) de cette même origine, a également été mesuré dans ces échantillons (0,18 Bq.kg⁻¹ sec). Par ailleurs, l'activité massique en ¹³⁷Cs des feuilles de frêne prélevées dans le cadre de l'ERS en 2021-2022 (0,05 à 0,1 Bq.kg⁻¹ sec) est plus faible que l'activité mesurée les années précédentes, qui concernait essentiellement des feuilles de cyprès. Ainsi, une part des variations observées dans la chronique du ¹³⁷Cs provient donc de l'espèce végétale analysée (feuilles persistantes ou feuilles caduques).

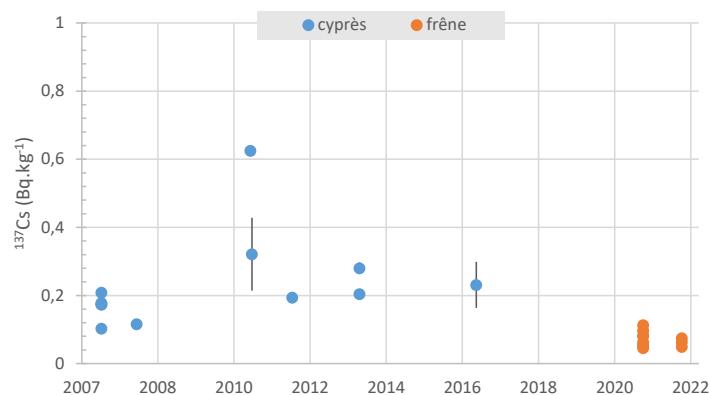


Figure 31 : Activité massique en ¹³⁷Cs dans les feuilles d'arbres entre 2007 et 2021 dans l'environnement terrestre du site de Malvési.

En comparaison des autres zones du territoire français, l'activité massique en ¹³⁷Cs mesurée dans les feuilles de frêne de Malvési fait partie des valeurs les plus faibles (Figure 32). En effet, les activités massiques les plus élevées sont mesurées dans l'est de la France et particulièrement dans le Mercantour : il s'agit des zones du territoire les plus marquées par les retombées en ¹³⁷Cs de l'accident de Tchernobyl.

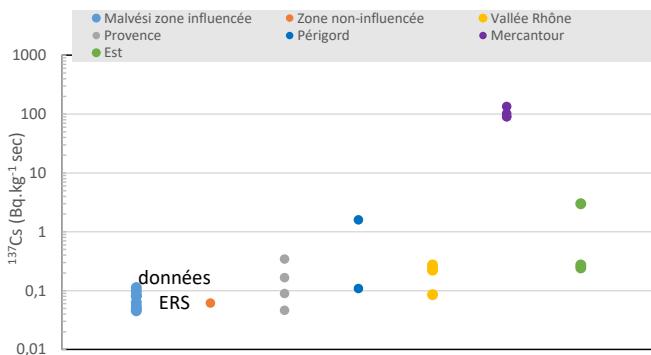


Figure 32 : Activité massique en ¹³⁷Cs dans les feuilles caduques d'arbres prélevées dans différentes zones du territoire par l'ASNR, comparées aux mesures de la présente étude (Malvési et zone non-influencée).

Concernant les denrées, seules les activités massiques de ¹³⁷Cs dans les légumes-feuilles ont pu être mesurées, avec des activités comprises entre 0,004 et 0,03 Bq.kg⁻¹ frais (Figure 30). Comme souligné précédemment,

l'interprétation des activités massiques des légumes-feuilles est limitée par la variabilité des espèces échantillonnées. On peut toutefois noter que si les feuilles de frênes ne sont pas marquées par le ^{137}Cs provenant du site, alors qu'elles sont exposées aux apports atmosphériques pendant plusieurs mois, il est peu probable que les légumes-feuilles, exposés moins longtemps, le soient.

Dans les autres types de denrées, les activités en ^{137}Cs étaient trop faibles pour être mesurées : $<0,005 \text{ Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$ frais pour le blé, $<0,004 \text{ Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$ frais dans les fruits, $<0,001 \text{ Bq} \cdot \text{L}^{-1}$ dans le vin.

5.3.2. Le strontium 90

En comparaison du ^{137}Cs , l'activité massique en ^{90}Sr a été mesurée dans un nombre limité d'échantillons de feuilles de frêne (quatre, au total), mais les incertitudes analytiques sont meilleures (de l'ordre de 13 %) (Figure 33). L'activité massique de ce radionucléide artificiel à proximité du site (0,45 à 0,95 $\text{Bq} \cdot \text{kg}^{-1} \text{ sec}$) est plus faible que celle qui est observée dans la zone non-influencée par les rejets atmosphériques (1,9 $\text{Bq} \cdot \text{kg}^{-1} \text{ sec}$). Les activités en ^{90}Sr mesurées dans les feuilles d'arbre ne mettent donc en évidence aucune trace de ce radionucléide artificiel susceptible de provenir du site industriel.

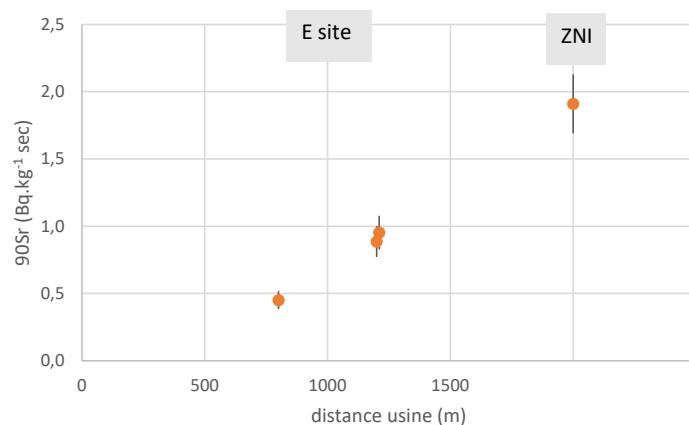


Figure 33 : Activité massique du ^{90}Sr dans les échantillons de feuilles de frêne en fonction de la distance à l'usine dans la zone influencée (E du site) et dans la zone non-influencée par les rejets (ZNI).

En comparaison des autres zones du territoire, l'activité massique en ^{90}Sr mesurée dans les feuilles de frêne de Malvési et dans la zone non-influencée est du même niveau que celle mesurée dans des échantillons provenant du sud-ouest de la France et plus faible que celle des échantillons provenant du département de la Vienne (Figure 34).

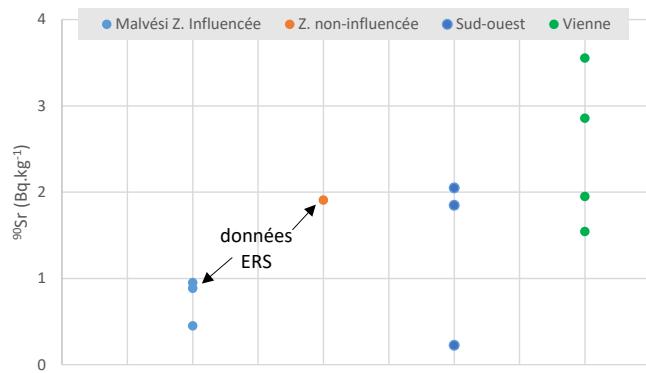


Figure 34 : Activité massique en ^{90}Sr dans les feuilles caduques d'arbres prélevées dans différentes zones du territoire par l'ASNR, comparées aux mesures de la présente étude (Malvési zone influencée et non-influencée).

5.3.3. Le technetium 99

Recherché dans quatre échantillons de feuilles de frêne prélevés dans la zone influencée située à l'est du site, le ^{99}Tc n'a été mesuré que dans un seul échantillon prélevé à proximité immédiate du site ($51 \text{ Bq} \cdot \text{kg}^{-1} \text{ sec}$) (Figure 35), mettant ainsi en évidence l'influence des émissions d'embruns à partir des bassins industriels. Dans les autres échantillons de la zone influencée ainsi que dans la zone non-influencée, l'activité massique de ce radionucléide artificiel est inférieure au seuil de décision. On peut noter que cette activité mesurée en 2021 est plus élevée que celle mesurée en 2008 (feuilles de cyprès) ($13 \text{ Bq} \cdot \text{kg}^{-1} \text{ sec}$), ce qui suggère que les émissions d'embruns à partir des bassins industriels ont été plus importantes en 2021 qu'en 2008.

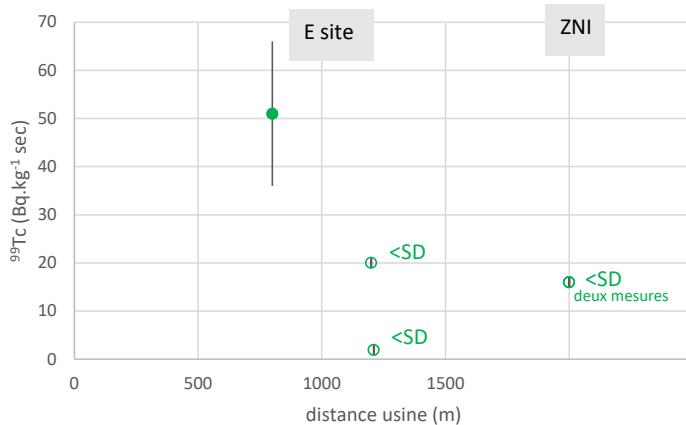


Figure 35 : Activité massique du technétium (^{99}Tc) dans les échantillons de feuilles de frêne, en fonction de la distance à l'usine, dans la zone influencée (E du site) et dans la zone non-influencée par les rejets (ZNI).

5.3.4. Les transuraniens : isotopes du plutonium et américium 241

Quatre mesures de l'activité massique du plutonium dans les feuilles de frêne sont disponibles avec une précision de l'ordre de 10 % (Figure 36). L'activité massique du $^{239+240}\text{Pu}$ la plus élevée est observée en bordure est du site ($0,006 \text{ Bq} \cdot \text{kg}^{-1} \text{ sec}$) ; elle est cinq fois plus élevée que celle de la zone non-influencée par les rejets ($0,001 \text{ Bq} \cdot \text{kg}^{-1} \text{ sec}$). A 1200 m du point de rejet, une activité massique intermédiaire est mesurée en deux points d'observation différents ($0,003 \text{ Bq} \cdot \text{kg}^{-1} \text{ sec}$).

En revanche, aucune influence en transuraniens provenant du site n'est observée dans les denrées étudiées (épis de blé et figue). Dans les épis de blé prélevés à l'est du site, l'activité massique du $^{239+240}\text{Pu}$ (0,00004 à 0,00009 Bq.kg $^{-1}$ frais) est plus faible que celle mesurée dans la zone non-influencée par les rejets (0,00015 Bq.kg $^{-1}$ frais). L'activité massique en plutonium la plus faible est observée dans les figues, bien que prélevées à proximité immédiate du site (0,00002 Bq.kg $^{-1}$ frais).

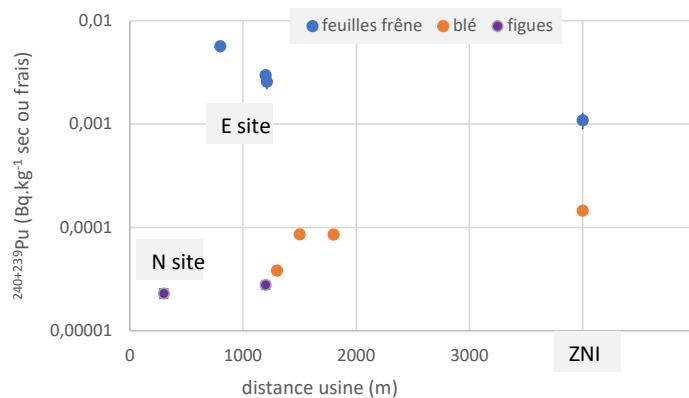


Figure 36 : Activité massique du plutonium ($^{239+240}\text{Pu}$) dans les échantillons de végétaux (feuilles de frêne, épis de blé et figues) en fonction de la distance à l'usine dans la zone influencée (N et E du site) et dans la zone non-influencée par les rejets (ZNI).

Les rapports d'activités des isotopes du plutonium sont étudiés en fonction des activités ajoutées dans les feuilles de frêne pour comprendre quelle est l'origine de ces radionucléides artificiels : retombées globales atmosphériques consécutives aux essais des armes nucléaires et contribution des rejets anciens du site industriel. En effet, la présence de transuraniens dans l'environnement est liée au passé industriel du site de Malvési, en l'occurrence le traitement de l'URT entre 1960 et 1983. En conséquence, les sols à proximité immédiate du site sont marqués par les rejets de cette période (transuraniens et ^{236}U). [5,12]

Les rapports $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ les plus faibles (6,2 et 10,5 %) et les activités massiques les plus élevées ($^{239+240}\text{Pu}$ atteint 0,006 Bq.kg $^{-1}$ sec) sont observés dans les feuilles de frêne prélevées dans la zone influencée située à proximité immédiate du site (Figure 37). Ces rapports $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ sont proches de celui des sols situés à proximité de Malvési, et marqués par les rejets de l'URT ($^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu} = 5\%$, d'après [12]), indiquant la contribution de cette origine dans les activités de ces radionucléides mesurées dans les feuilles de frêne. En comparaison, l'échantillon provenant de la zone non-influencée a un rapport $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ élevé (17 %, identique au rapport des retombées des tests atmosphériques d'armes nucléaires) et une activité massique plus faible que dans la zone influencée ($^{239+240}\text{Pu} = 0,001$ Bq.kg $^{-1}$ sec).

La répartition de l' ^{241}Am dans les végétaux prélevés est similaire à celle du $^{239+240}\text{Pu}$ (Figure 38).

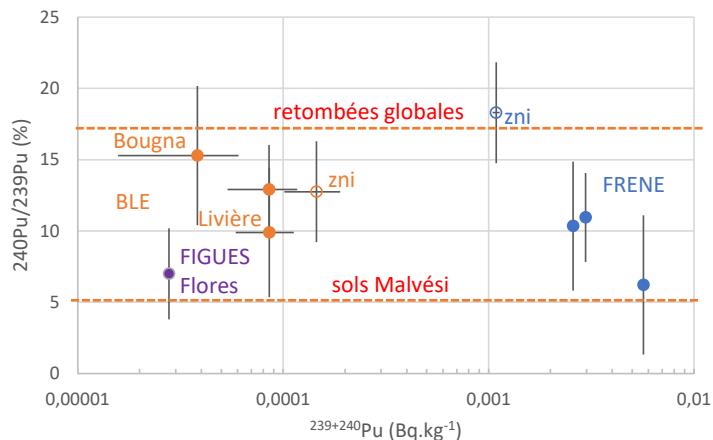


Figure 37 : Rapport $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ des végétaux prélevés dans la zone influencée et dans la zone non-influencée par les rejets du site en fonction de l'activité massique en $^{239+240}\text{Pu}$. Le rapport des retombées globales est donné par la littérature scientifique. Le rapport dans les sols en bordure immédiate de Malvési est issu des travaux de l'IRSN [12]. NB : il n'a pas été possible de quantifier le rapport $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ dans les figues prélevées à l'Oeillal, au nord du site.

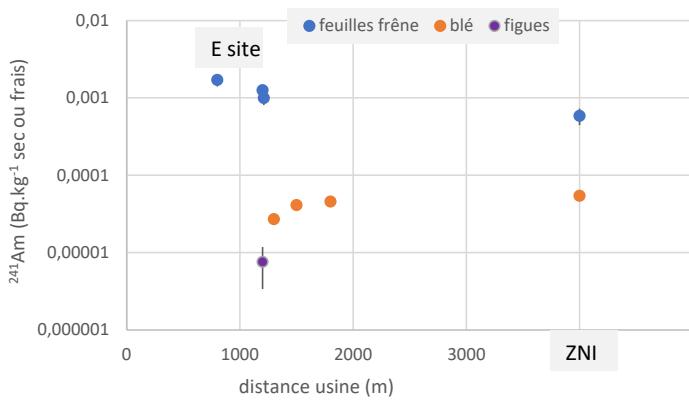


Figure 38 : Activité massique de l' ^{241}Am dans les échantillons de végétaux en fonction de la distance à l'usine dans la zone influencée (est du site) et dans la zone non-influencée par les rejets (ZNI).

Le rapport $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ dans les denrées (épis de blé et figues) varie dans la même gamme que dans les feuilles de frêne. Pour les deux échantillons de feuilles de frêne prélevés dans la zone influencée par les rejets et pour lesquels il a pu être calculé, le rapport $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ ($0,03 \pm 0,02$ et $0,02 \pm 0,02$) est celui des retombées atmosphériques (0,03 d'après [20,21]).

L'incertitude du rapport $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ étant plus élevée dans les denrées, il n'est pas possible de distinguer avec certitude les deux sources potentielles de plutonium (les retombées consécutives aux tirs atmosphériques d'armes nucléaires et les sols de Malvési marqués par les anciens rejets issus du traitement de l'URT). L'activité massique en plutonium des épis de blé est plus élevée dans la zone non-influencée en comparaison de la zone influencée. Ainsi, l'influence du plutonium issue de l'utilisation de l'URT n'est pas mise en évidence dans cette matrice. En revanche, c'est le cas pour l'échantillon de figues prélevé à Mas Flores (bordure SE du site), dont le rapport $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ (6,99 %) est proche du rapport des sols en bordure immédiate de Malvési (5 %).

Comme le rapport $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$, le rapport $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ des feuilles de frêne est très proche de celui des retombées globales, compte-tenu des incertitudes (0,4 d'après [21]) (Figure 39). Pour l'échantillon prélevé 50 m à

l'est du site et qui possède l'activité massique en plutonium la plus élevée ($^{239+240}\text{Pu} = 0,006 \text{ Bq} \cdot \text{kg}^{-1} \text{ sec}$), le rapport $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$, égal à 0,3, traduit un mélange entre les deux sources (essais nucléaires et sols marqués par le traitement de l'URT).

Compte-tenu des incertitudes analytiques, le rapport $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ des denrées (blé et figues) est comparable à celui des retombées globales ($^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu} = 0,4$).

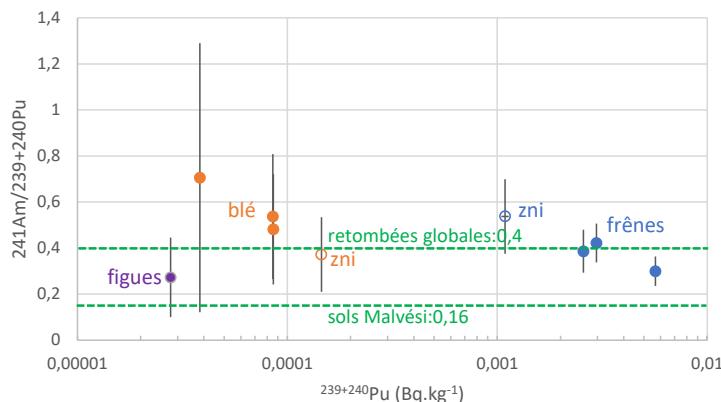


Figure 39 : Rapport $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ des végétaux prélevés dans la zone influencée et dans la zone non-influencée par les rejets du site en fonction de l'activité massique en plutonium $^{239+240}\text{Pu}$. Le rapport des retombées globales et des sols de l'environnement de Malvési sont issus des travaux de l'IRSN [21,12].

La chronique de l'évolution de l'activité massique en plutonium ($^{239+240}\text{Pu}$) dans le blé met en évidence une valeur élevée en 2007 ($0,3 \text{ Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$ frais), lors d'importants travaux de terrassement des bassins B1/B2 (Figure 40). En effet, ces travaux ont été à l'origine de l'envol de poussières qui ont marqué le milieu terrestre sous les vents dominants du site [5]. Cette source de radionucléides explique également l'activité massique élevée de l'uranium dans l'échantillon prélevé en 2007 ($10 \text{ Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$ frais, Figure 20).

Entre 2008 et 2017, l'activité massique du plutonium ($^{239+240}\text{Pu}$) diminue de $0,008$ à $0,0009 \text{ Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$ frais ; elle est encore plus faible en 2021 ($0,00004$ et $0,00009 \text{ Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$ frais).

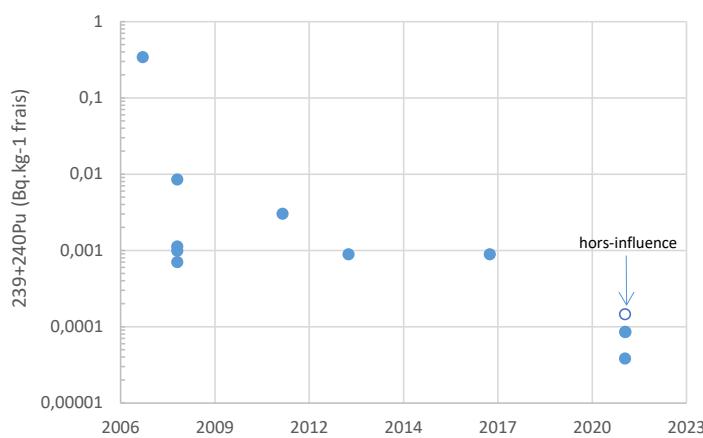


Figure 40 : Evolution temporelle de l'activité massique en plutonium ($^{239+240}\text{Pu}$) dans les épis de blé prélevés entre 2007 et 2021 dans la zone influencée par les rejets atmosphériques et en dehors de l'influence des rejets.

Ainsi, l'activité massique en plutonium des épis de blé est en constante diminution au cours du temps, depuis les travaux d'aménagement des bassins B1/B2 (2004-2007). Les couvertures de ces bassins (couverture stérile, d'abord, puis couverture étanche) empêchent les émissions de poussières chargées de radionucléides dans l'air et, de ce fait, le marquage des végétaux terrestres en plutonium provenant de cette source a aujourd'hui disparu.

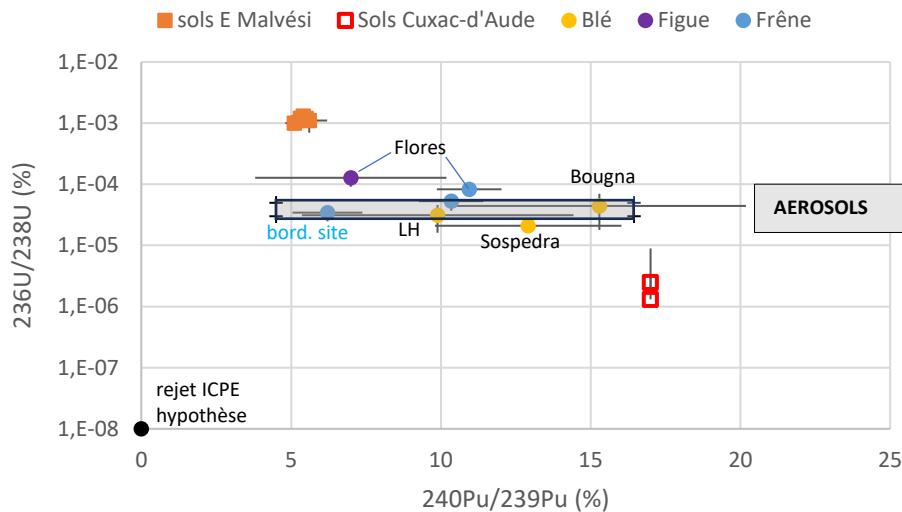


Figure 41 : Rapports $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ et $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ des végétaux prélevés dans la zone influencée par les rejets de Malvési, comparés à ceux des sols, des aérosols et du rejet atmosphérique de l'ICPE de Malvési (hypothèse).

Les rapports isotopiques de masse $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ et $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ des feuilles de frêne sont très proches de ceux des aérosols mesurés à Livièvre-Haute, montrant que le marquage du milieu terrestre par les actinides artificiels provient du compartiment atmosphérique, à savoir du dépôt des aérosols sur les végétaux.

Comme explicité précédemment, les incertitudes du rapport des isotopes du plutonium dans les épis de blé sont trop élevées et, de ce fait, ce rapport ne permet pas d'évaluer avec précision l'influence d'une source par rapport à une autre. Cependant, le rapport $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ de cette matrice est proche du rapport des aérosols, comme les feuilles de frêne et montre que l'uranium mesuré dans le blé provient du dépôt des aérosols.

Ainsi, la comparaison des rapports $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ et $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ des végétaux et des aérosols avec ceux des sources potentielles d'actinides artificiels discutées précédemment, montre que les actinides artificiels mesurés dans les végétaux et les aérosols proviennent en proportion variable des sols marqués par l'URT. Ainsi, dans les feuilles de frêne et les aérosols, la proportion de l'uranium et du plutonium provenant de cette source varie entre 3 et 8 % et entre 40 et 80 %, respectivement¹⁰; le reste provenant des rejets actuels de l'usine ou d'émissions diffuses provenant du site.

¹⁰ Proportions évaluées par des équations de mélange qui tiennent compte des rapports isotopiques mesurés dans l'environnement et des rapports des différentes sources d'actinides artificiels précisées dans le texte.

6. CONCLUSION GENERALE

L'étude radiologique de l'environnement terrestre du site de Malvési, menée par l'ASNR de 2021 à 2023, permet à la fois de déterminer les zones influencées par le site, de quantifier les activités des radionucléides ajoutées dans les végétaux du fait de cette influence et également d'identifier l'origine de ces radionucléides. En effet, ceux-ci peuvent provenir des rejets atmosphériques d'uranium par l'usine ou de la remise en suspension de particules provenant du site (sols et bassins de décantation et d'évaporation) ou encore des sols avoisinants marqués par divers radionucléides naturels et artificiels dont certains peuvent résulter de rejets anciens, datant notamment de la période durant laquelle l'usine utilisait de l'uranium de retraitement (URT de 1960 à 1983).

Les données radiologiques acquises dans le cadre de cette étude ont été analysées en les mettant en perspective, d'une part avec des résultats de mesures provenant d'autres régions de France, et d'autre part avec celles obtenues lors d'études passées au travers de chroniques remontant à 2007. En effet, les rejets atmosphériques d'uranium de l'usine de Malvési ont diminué d'un facteur 80 depuis cette date, ce qui devrait se traduire par une diminution des activités radiologiques observées dans les milieux sous influence.

Les analyses radiologiques mises en œuvre pour cette étude, qui ont permis de mesurer de très faibles niveaux de radioactivité dans les végétaux terrestres prélevés autour du site (feuilles d'arbre, blé, légumes-feuilles ou fruits), montrent que l'influence des rejets atmosphériques d'uranium de l'usine de Malvési est décelable à l'est du site jusqu'à une distance d'au moins six kilomètres dans les feuilles d'arbres et d'environ deux kilomètres dans les denrées. Ainsi, les activités massiques en uranium 238 mesurées dans les feuilles de frêne prélevées à huit cents mètres à l'est de l'usine sont nettement supérieures (deux ordres de grandeur) à celles des feuilles prélevées en zone non-influencée par les rejets. Dans le blé et dans les légumes-feuilles prélevés entre un et deux kilomètres à l'est de l'usine, les activités massiques d'uranium 238 sont supérieures d'un ordre de grandeur à celles observées en zone non-influencée.

Dans le cas des feuilles de frêne, les activités massiques d'uranium mesurées dans les échantillons prélevés en zone influencée sont significativement supérieures à celles observées dans d'autres régions françaises. En revanche, si les activités d'uranium mesurées dans les denrées influencées par les rejets de Malvési sont plus élevées que celles de denrées provenant des grands bassins sédimentaires (Sud-Ouest, Vallée du Rhône...), elles sont du même niveau ou plus faibles que celles observées dans des régions de France dont les sols sont naturellement riches en uranium, comme le Massif-Central.

Si les activités massiques d'uranium 238 mesurées dans les feuilles d'arbre et les denrées produites dans la zone influencée ont diminué depuis 2007 du fait de la baisse des rejets atmosphériques de l'usine, cette diminution est moindre que celle des rejets, suggérant l'existence de sources secondaires diffuses d'uranium. Invisible jusqu'alors, l'influence de ces sources diffuses devient décelable dans l'environnement du fait de la baisse de ces rejets. Elles résultent principalement de la remise en suspension de poussières provenant du site ou de son environnement immédiat (bâtiments, sols, routes, digues, enrochements, etc.) ainsi que de l'envol d'embruns depuis les bassins de décantation, lors d'épisodes de vents forts.

Ces sources secondaires sont aussi à l'origine des traces d'autres radionucléides naturels (thorium 230 et radium 226) et artificiels (uranium 236, césium 137, strontium 90, isotopes du plutonium, américium 241 et technétium 99) mesurées dans les végétaux prélevés autour du site de Malvési. Ces radionucléides peuvent provenir, dans des proportions diverses, soit des rejets passés de l'usine, soit des retombées des essais atmosphériques d'armes nucléaires et de l'accident de Tchernobyl, soit du fond radiologique naturel de l'environnement du site.

Le fait que les activités de strontium 90 et de césium 137 dans les feuilles d'arbre prélevées sous influence du site sont du même niveau que celles mesurées à distance du site, montre que ces émissions sont indécelables. De même, aucune augmentation des activités massiques en isotopes du plutonium ou en américium 241 n'est observée dans les denrées produites localement : blé, figues, légumes-feuilles, raisin, tomates, vin. Depuis la couverture de l'INB ECRIN finalisée en 2020, qui empêche les émissions de poussières chargées de radionucléides dans l'air, l'activité massique en plutonium des épis de blé par exemple, en constante diminution au fil des années, est maintenant du même niveau que celle observée dans d'autres zones du territoire national.

Le technétium 99, provenant des bassins industriels, n'a été mesuré que dans un échantillon de feuilles de frêne en bordure de site ($45 \text{ Bq} \cdot \text{kg}^{-1} \text{ sec}$). De plus, l'étude montre que les très faibles traces d'uranium 236 mesurées dans les différents végétaux, proviendraient de l'envol de poussières depuis les sols marqués par les rejets passés de l'usine. Il en serait de même des isotopes du plutonium mesurés dans les feuilles d'arbre prélevées en bordure de site.

Cette connaissance des activités massiques des radionucléides artificiels et de leurs origines constitue un élément de comparaison utile pour la surveillance des rejets atmosphériques à venir de la future installation TDN.

De plus, les estimations des activités des différents radionucléides ajoutées dans les denrées prélevées dans l'environnement du site de Malvési serviront à calculer les doses résultant de leur ingestion par la population avoisinante, objet d'un rapport spécifique.

7. REFERENCES

- [1]<https://www.irsn.fr/FR/connaissances/Environnement/Etudes-complementaires/Etudes-radiologiques/Sommaire.aspx#.YNsXjrtxeUI>
- [2] Étude radiologique de l'environnement de la centrale nucléaire de Saint-Alban Saint-Maurice ; Synthèse des études atmosphériques rapport IRSN 2021-00649.
- [3] Participation du laboratoire de la CRIIRAD au projet « Vigilance Malvezy » Bilan des actions 2020-2021 Rapport d'activité CRIIRAD n°22-04 (rapport d'étape).
- [4] IRSN/DEI/SESURE 2008-20, 2008. Etude radioécologique de l'environnement du site de Malvési (société COMURHEX), 67 p.
- [5] IRSN/DEI/SESURE 2009-17, Bilan radioécologique de l'environnement du site de Malvési 32 p.
- [6] IRSN/PRP-ENV/SESURE 2013-10, Étude des niveaux d'activité dans l'air à proximité des installations Comurhex de Malvési, 104 p.
- [7] Rapport d'information du site Orano de Malvési - Orano Malvési 2022 77 p.
- [8] <https://inventaire.andra.fr/site/malvesi-bassins>
- [9] <https://inventaire.andra.fr/site/malvesi-ecrin>
- [10] <http://mesure-radioactivite.fr/>
- [11] Bilan de l'état radiologique de l'environnement français 2021-2023 – IRSN 335 p.
- [12] Pourcelot L., Boulet B., Le Corre C., Loyen J., Fayolle C., Tournieux D., Van Hecke W., Martinez B., Petit J. (2011) Isotopic evidences of natural uranium and spent fuel uranium releases in the environment, *Journal of Environmental Monitoring*, 13, 355-361.
- [13]https://www.irsn.fr/sites/default/files/documents/larecherche/publications-documentation/publications_documentation/bdd_publi/dei/secre/Uranium_Unat_v1.pdf
- [14] Ph. Vidal (1994) Géochimie, Dunod Géosciences, 190 p.
- [15] Ielsch G., Cuney M., Buscail F., Rossi F., Leon A., Cushing M.E. (2017) Estimation and mapping of uranium content of geological units in France, *Journal of Environmental Radioactivity*, 166, 210 – 219.
- [16] Jeambrun M., Pourcelot L., Mercat C., Boulet B., Pelt E., Chabaux F., Cagnat X., Gauthier-Lafaye F. (2012) Contribution of uranium, thorium and decay products in soil, water and atmospheric particles, to the activity concentration in lettuce and wheat samples, *Journal of Environmental Monitoring*, 14, 2902-2912.
- [17] Rihs S., Prunier J., Thien B., Lemarchand D., Pierret M.-C., Chabaux F. (2011) Using short-lived nuclides of the U- and Th-series to probe the kinetics of colloid migration in forested soils, *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 75 (23), 7707-7724.
- [18] Prunier J., Chabaux F., Stille P., Gangloff S., Pierret M.C., Viville D., Aubert A. (2015) Geochemical and isotopic (Sr, U) monitoring of soil solutions from the Strengbach catchment (Vosges mountains, France): Evidence for recent weathering evolution, *Chemical Geology*, 417, 289-305.
- [19] Chabaux F., Stille P., Prunier J., Gangloff S., Lemarchand D., Morvan G., Négrel J., Pelt E., Pierret M.-C., Rihs S., Schmitt A.-D., Trémolières M., Viville D. (2019) Plant-soil-water interactions: Implications from U-Th-Ra isotope analysis in soils, soil solutions and vegetation (Strengbach CZO, France), *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 259, 188-210.
- [20] Duffa C. (2001) - Répartition du plutonium et de l'américium dans l'environnement terrestre de la Basse-Vallée du Rhône, Thèse Univ. Aix-Marseille III, 179 p.
- [21] Constat radiologique « rémanence de la radioactivité d'origine artificielle » Rapport de mission 2016 Institut de radioprotection et de Sûreté Nucléaire IRSN, 127 p.

- [22] Masson O. et al. (2011) Tracking of airborne radionuclides from the damaged Fukushima Dai-Ichi nuclear reactors by european networks, *Environmental Science and Technology*, 45, 7670-7677.
- [23] Parache V., Pourcelot L., Roussel-Debet S., Orjollet D., Leblanc F., Soria C., Gurriaran R., Renaud Ph., Masson O. (2011) Transfer of ^{131}I from Fukushima to the vegetation and milk in France, *Environmental Science and Technology*, 45, 9998-10003.
- [24] Pourcelot, L., Louvat, D., Gauthier-Lafaye, F., Stille, P. (2003) Formation of radioactivity enriched soils in mountain areas. *Journal of Environmental Radioactivity*, 68, 215.
- [25] Cuvier A., Pourcelot L., Probst A., Prunier J., Le Roux G. (2016) Trace elements and Pb isotopes in soils and sediments impacted by uranium mining, *the Science of the Total Environment*, 566-567, 238-249.
- [26] Masson O., Pourcelot L., Boulet B., Cagnat X., Videau G. (2015) Environmental releases from fuel cycle facility: Part 1: Radionuclide resuspension vs. stack releases on ambient airborne uranium and thorium levels, *Journal of Environmental Radioactivity*, 141, pp. 146-152.
- [27] Bu W., Zheng J., Ketterer M.E., Hu S., Uchida S., Wang X. (2017) Development and application of mass spectrometric techniques for ultra-trace determination of ^{236}U in environmental samples-A review, *Analytica Chimica Acta*, 995, 1-20.
- [28] Wilcken K.M., Fifield L.K., Barrows T.T., Tims S.G., Gladkis L.G. (2008) Nucleogenic ^{36}Cl , ^{236}U and ^{239}Pu in uranium ores, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, 266 (16), 3614-3624.
- [29] Jaegler H., Gourgiotis A., Steier P., Golser R., Diez O., Cazala C. (2020) Pushing Limits of ICP-MS/MS for the Determination of Ultralow $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ Isotope Ratios, *Analytical Chemistry*, 92 (11), 7869-7876.
- [30] <https://www.criirad.org/04-12-2024-usine-orano-de-malvesi-de-luranium-detecte-a-plus-de-4-kilometres/>
- [31] IRSN/DEI/SESURE 2014-37 Marquage des végétaux consécutifs au rejet accidentel provenant de l'installation W AREVA-NC Tricastin octobre 2013, 18 p.

ANNEXE 1. ETUDE COMPLEMENTAIRE DE L'INFLUENCE DES REJETS D'URANIUM DE L'USINE DE MALVESI SUR LES VEGETAUX TERRESTRES PRELEVES DANS SON ENVIRONNEMENT PAR LE RAPPORT D'ACTIVITES ISOTOPHIQUES $^{238}\text{U}/^{232}\text{Th}$

Dans le paragraphe 4.3, il a été montré que les activités massiques en ^{238}U étaient globalement plus élevées dans les végétaux prélevés dans la zone influencée en comparaison de la zone non-influencée. Toutefois, la variabilité liée à la diversité de nature des échantillons prélevés (feuilles d'arbres, légumes-feuilles, blé...) empêche de faire apparaître clairement la diminution de ces activités massiques (et donc la diminution de l'influence des rejets) avec l'augmentation de la distance au site. L'intérêt du rapport d'activité $^{238}\text{U}/^{232}\text{Th}$ est de réduire la part de variabilité liée au fait d'avoir prélevé des espèces différentes. Ainsi, à 2700 m à l'est du site de Malvési, l'activité massique de l'uranium 238 dans les végétaux varie sur trois ordres de grandeur dont une grande partie est due aux différentes espèces prélevées, alors que le rapport $^{238}\text{U}/^{232}\text{Th}$ ne varie que d'un facteur 3 environ. De même, dans cette même direction à 1200 m de l'usine, le rapport $^{238}\text{U}/^{232}\text{Th}$ varie d'un facteur 3 alors que l'activité massique en ^{238}U varie de deux ordres de grandeur. C'est ce que montre la Figure 42.

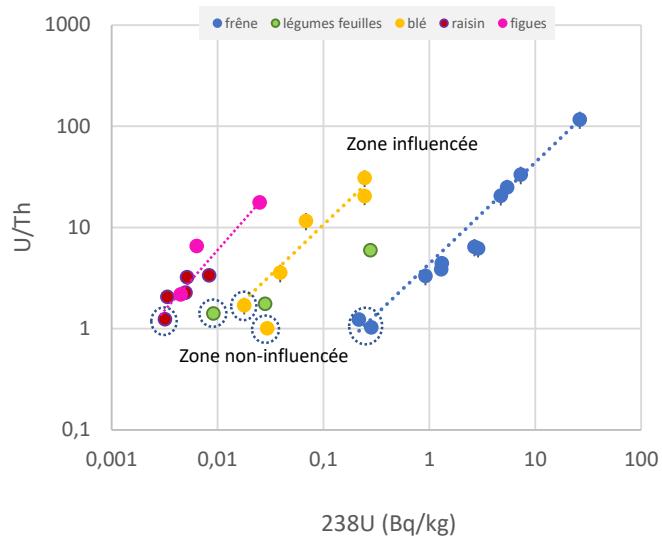


Figure 42 : Variation du rapport $^{238}\text{U}/^{232}\text{Th}$ dans les végétaux en fonction de l'activité massique en ^{238}U dans les denrées (en $\text{Bq}.\text{kg}^{-1}$ frais) et les feuilles de frêne (en $\text{Bq}.\text{kg}^{-1}$ sec).

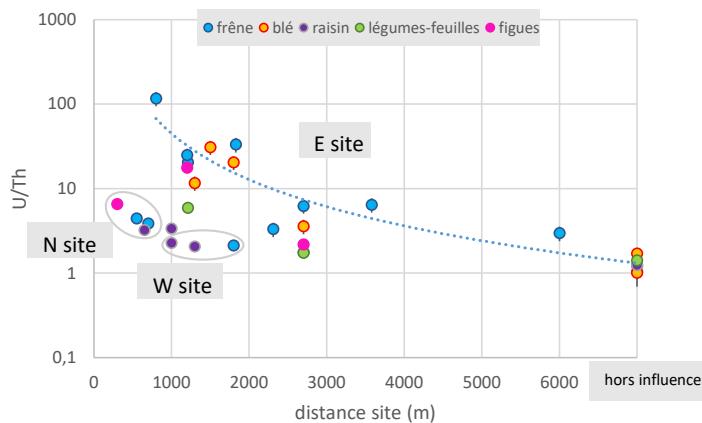


Figure 43 : Variation du rapport $^{238}\text{U}/^{232}\text{Th}$ dans les végétaux en fonction de la distance à l'usine. La ligne pointillée représente la tendance de l'évolution du rapport $^{238}\text{U}/^{232}\text{Th}$ des feuilles de frêne à l'est du site.

Le rapport $^{238}\text{U}/^{232}\text{Th}$ constitue ainsi un indicateur inter-espèce de l'uranium ajouté par le rejet atmosphérique dans les végétaux terrestres situés à l'est du site de Malvési. L'analyse met en effet en évidence l'augmentation de ce rapport dans la zone influencée par les rejets du site de Malvési ($^{238}\text{U}/^{232}\text{Th}$ proche de 100) signifiant que la proportion de l'uranium déposée sur les plantes par rapport à la zone-non influencée ($^{238}\text{U}/^{232}\text{Th}$ proche de 1) augmente quand la distance à l'usine diminue (Figure 43).

Enfin, au nord et à l'ouest du site l'impact du rejet atmosphérique de l'uranium est beaucoup plus faible que dans la zone située à l'est du site. En effet, le rapport U/Th des végétaux prélevés au nord du site est multiplié par un facteur trois à six, par rapport aux végétaux de la zone de référence. A l'ouest du site, le rapport des végétaux ($^{238}\text{U}/^{232}\text{Th}$ de 2,1 à 2,3) est très proche de celui de la zone non-influencée.

L'uranium mesuré dans l'environnement des sites de l'amont du cycle du combustible a deux origines potentielles : il s'agit d'une part de l'uranium dérivé du fond radiologique, naturellement présent dans les plantes terrestres à l'état de trace et de l'uranium potentiellement ajouté dans le milieu par le site industriel, d'autre part. Les activités massiques en uranium des végétaux prélevés dans l'environnement du site de Malvési, montrent que la contribution de l'uranium issu du rejet est très variable, en fonction de la distance à l'usine et d'une matrice végétale à une autre (Paragraphes 4.4 et 4.5). Bien que moins de données soient disponibles pour la zone non-influencée, la contribution en uranium du fond radiologique est homogène.

Dans l'hypothèse où le ^{232}Th représente la source des radionucléides naturels issus du fond radiologique dans les végétaux, la normalisation des activités massiques en ^{238}U par le ^{232}Th permet d'évaluer les apports en uranium du rejet industriel, par rapport à l'uranium issu du fond radiologique (zone non-influencée). Ce raisonnement revient à calculer le facteur d'enrichissement (FE) d'un échantillon de végétaux défini par l'équation [1] :

$$FE = \frac{\frac{^{238}\text{U}}{^{232}\text{Th}}_{ech}}{\frac{^{238}\text{U}}{^{232}\text{Th}}_{ZNI}} \quad [1]$$

Dans l'équation [1], les activités massiques en ^{232}Th et en ^{238}U d'un échantillon (ech) sont normalisées par rapport aux activités de ces radionucléides dans la zone non-influencée (ZNI), représentative du fond radiologique. Le calcul du facteur d'enrichissement par double-normalisation, par rapport à un élément représentant le fond radiologique (le ^{232}Th) et par rapport à l'uranium issu du fond radiologique (zone non-influencée), est couramment employé dans les études pour évaluer les apports anthropiques [25,26].

Ainsi, le facteur d'enrichissement d'un échantillon permet d'évaluer l'uranium ajouté par le rejet industriel par rapport à l'uranium qui dérive du fond radiologique :

- Si $FE \gg 1$, l'uranium ajouté par la source industrielle est en excès par rapport à l'uranium du fond radiologique,
- Si FE est proche de 1, il n'y a pas d'uranium ajouté au fond radiologique,
- Si $FE \ll 1$, il y a un déficit en uranium par rapport au fond radiologique ou un excès de thorium.

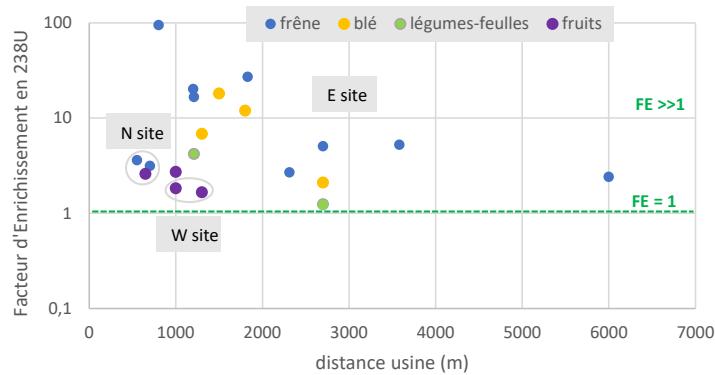


Figure 44 : Facteur d'enrichissement de l'uranium dans les feuilles de frêne et les denrées prélevés dans la zone influencée par le rejet atmosphérique, à l'est, à l'ouest et au nord du site en fonction de la distance à l'usine.

Ainsi, le rapport maximal observé dans les feuilles de frêne de la zone influencée (800 m de l'usine) montre que l'activité massique en ^{238}U est multipliée par 100, en comparaison de la zone non-influencée, sous l'effet du rejet atmosphérique de l'usine (Figure 44). Dans le blé (1600 m environ de l'usine), l'activité massique en ^{238}U est multipliée par 20-30 par rapport à la zone non-influencée. Le facteur d'enrichissement des légumes-feuilles et du raisin¹¹ est bien inférieur à celui des feuilles de frêne pour des distances à l'usine comparables, ce qui confirme que les quantités d'uranium ajoutées dans ces matrices sont plus faibles.

Ainsi, le calcul du facteur d'enrichissement des échantillons de végétaux montre un excès de l'uranium issus du rejet à l'est du site, bien visible jusqu'à 2000 m de l'usine dans cette direction, principalement dans les feuilles d'arbre et dans les épis de blé.

¹¹ Les données acquises n'ont pas permis d'évaluer de facteur d'enrichissement pour les autres denrées locales (figues, vin, tomates).

ANNEXE 2. RESULTATS DES ANALYSES RADIOLOGIQUES DES VEGETAUX

Tableau 10 : Activité massique des isotopes du thorium et de l'uranium des feuilles de frêne prélevées en 2021 (en $Bq.kg^{-1}$ sec).

Prélèvement	Localisation	Espèce	Commune	Date	Th-230	Th-232	U-234	U-235	U-236	U-238
MF21MAL39-23	limite E site	Frêne	Narbonne	27/09/2021	0,7±0,2	0,2±0,04	26±3	1,2±0,1	0,002±0,0006	26±2,7
MF21MAL39-24	Livièvre-Haute	Frêne	Narbonne	27/09/2021	0,3±0,1	0,2±0,04	4,6±0,6	0,2±0,02	0,0005±0,0002	4,7±0,5
MF21MAL39-25	Mas Flores	Frêne	Narbonne	27/09/2021	1,4±0,5	0,2±0,04	5,2±0,6	0,2±0,03	0,0008±0,0003	5,4±0,5
MF21MAL39-26	Sospedra	Frêne	Narbonne	28/09/2021	0,4±0,1	0,2±0,04	7,3±0,9	0,3±0,03	0,0005±0,0002	7,3±0,8
MF21MAL39-27	Boutes	Frêne	Narbonne	28/09/2021	0,3±0,1	0,3±0,05	1,0±0,1	0,04±0,00	0,0001±0,00003	0,9±0,1
MF21MAL39-28	Gourgasse	Frêne	Narbonne	28/09/2021	0,5±0,2	0,5±0,07	2,9±0,4	0,1±0,01	0,0002±0,00006	2,9±0,3
MF21MAL39-33	Petit-Condom	Frêne	Narbonne	29/09/2021	0,5±0,2	0,4±0,07	2,7±0,3	0,1±0,01	0,0002±0,00006	2,7±0,3
MF21MAL39-32	Cuxac-d'Aude	Frêne	Cuxac-d'Aude	29/09/2021	0,3±0,1	0,3±0,04	0,3±0,04	0,01±0,001	<0,00001	0,3±0,03
MF21MAL39-31	Cuxac-d'Aude	Frêne	Cuxac-d'Aude	29/09/2021	0,2±0,1	0,2±0,03	0,2±0,03	0,01±0,001	<8,2E-06	0,2±0,02
MF21MAL39-29	Malvési N	Frêne	Narbonne	28/09/2021	0,4±0,2	0,3±0,05	1,3±0,15	0,06±0,006	0,0004±0,0001	1,3±0,1
MF21MAL39-30	Montlaures	Frêne	Narbonne	28/09/2021	0,4±0,2	0,3±0,05	1,3±0,16	0,06±0,007	0,0003±9,8E-05	1,3±0,1

Tableau 11 : Activité massique des isotopes du thorium et de l'uranium des feuilles de frêne prélevées en 2022 et 2023 (en $Bq.kg^{-1} sec$).

Prélèvement	Localisation	Espèce	Commune	Date	Th-230	Th-232	U-234	U-235	U-236	U-238
MF22MAL40-6	Limite Est du site	Frêne	Narbonne	04/10/2022	0,7±0,2	0,2±0,03	14±1,8	0,6±0,06	0,003±0,0009	14±1,5
MF22MAL40-7	Mas Flores	Frêne	Narbonne	04/10/2022	2,5±1,0	2,7±0,4	2,7±0,4	0,1±0,01	0,0005±0,0001	2,8±0,3
MF22MAL40-8	petit condom	Frêne	Narbonne	04/10/2022	0,6±0,2	0,4±0,06	2,0±0,3	0,09±0,01	0,000159±4,86E-05	2,0±0,2
MF22MAL40-9	Canal de Grand Vigne	Frêne	Narbonne	15/09/2022	0,5±0,2	0,4±0,1	1,2±0,2	0,1±0,0	0,00011±0,00003	1,2±0,1
MF23MAL41-36	Taille-vent	Arbres	Narbonne	09/10/2023	<0,08	0,1±0,02	0,25±0,04	0,01±0,001	<0,0001	0,2±0,02

Tableau 12 : Activité massique des isotopes du thorium et de l'uranium des denrées prélevées en 2021, 2022 et 2023 (en Bq.kg⁻¹ frais).

Prélèvement	Nature	Espèce	Commune	Lieu-dit	Date	Th-230	Th-232	U-234	U-235	U-236	U-238
MF22MAL37-4	Légumes	Blette	Narbonne	Gourgasse	15/09/2022	0,02±0,01	0,02±0,005	0,03±0,004	0,0014±0,0001	0,000004±0,000001	0,03±0,003
MF21MAL22-7	Légumes	Blette	Narbonne	Gourgasse	02/06/2021	0,02±0,01	0,02±0,003	0,03±0,003	0,0013±0,0001	0,000007±0,000002	0,03±0,003
MF21MAL22-8	Légumes	Laitue	Cuxac-d'Aude		02/06/2021	0,007±0,002	0,006±0,001	0,01±0,001	0,0004±0,0004		< 0,000008
MF21MAL29-11	Légumes	Salades	Narbonne	Livière Haute	02/06/2021	<0,032	0,05±0,008	0,3±0,03	0,013±0,001	0,0002±0,000056	0,3±0,03
MF21MAL30-12	Légumes	Tomate	Narbonne	Gourgasse	27/07/2021	<0,008	<0,0002	< 0,002	<0,00007	< 0,00001	<0,0014
MF21MAL30-13	Légumes	Tomate	Cuxac-d'Aude		27/07/2021	<0,006	<0,0002	< 0,001	<0,00006	< 0,00001	<0,0014
MF21MAL22-1	Céréales	Blé	Narbonne	Bougna	01/06/2021	<0,016	0,006±0,001	0,071±0,009	0,003±0,0003	0,000006±0,000002	0,07±0,007
MF21MAL22-2	Céréales	Blé	Narbonne	Livière Haute	02/06/2021	<0,010	0,008±0,001	0,2±0,030	0,011±0,001	0,000015±0,000006	0,24±0,02
MF21MAL22-3	Céréales	Blé	Narbonne	Sospedra	02/06/2021	<0,011	0,01±0,002	0,2±0,030	0,011±0,001	0,000010±0,000003	0,24±0,02
MF21MAL22-4	Céréales	Blé	Narbonne	Gourgasse	02/06/2021	<0,013	0,01±0,002	0,040±0,005	0,0018±0,0002	0,000005±0,000002	0,04±0,004
MF21MAL22-6	Céréales	Blé	Cuxac-d'Aude		02/06/2021	<0,014	0,01±0,002	0,018±0,003	0,0008±0,0008		<0,000002
MF21MAL22-5	Céréales	Blé	Cuxac-d'Aude		02/06/2021	<0,019	0,03±0,005	0,029±0,004	0,001±0,0001		<0,000001
MF21MAL36-14	Fruits	Figuier	Narbonne	L'Oeillal	07/09/2021	<0,003	0,001±0,0002	0,007±0,001	0,0003±0,00003	0,000005±0,000003	0,006±0,0006
MF21MAL36-18	Fruits	Figuier	Cuxac-d'Aude		07/09/2021	<0,002	0,001±0,0001	<0,001	<0,00003	<0,000004	<0,0007
MF21MAL36-15	Fruits	Figuier	Narbonne	Mas-Flores	07/09/2021	<0,004	0,001±0,0002	0,025±0,003	0,0011±0,0001	0,000006±0,000002	0,025±0,0024
MF21MAL36-20	Fruits	Figuier	Narbonne	Gourgasse	08/09/2021	<0,004	0,002±0,0003	0,0045±0,001	0,0002±0,00002		<0,000001
MF21MAL36-16	Fruits	Vigne	Narbonne	Bougna	07/09/2021	0,006±0,002	0,002±0,0004	0,008±0,001	0,0004±0,00004	0,000002±0,000001	0,008±0,001
MF21MAL36-17	Fruits	Vigne	Narbonne	Montlaures	07/09/2021	<0,002	0,002±0,0003	0,005±0,001	0,0002±0,00002	0,000001±0,000004	0,005±0,0005

MF23MAL36-4	Fruits	Vigne	Narbonne	W site	05/09/2023	<0,004	0,002±0,0003	0,003±0,001	0,0002±0,00002	<0,0000029	0,003±0,0004
MF23MAL36-5	Fruits	Vigne	Narbonne	W site	05/09/2023	<0,003	0,002±0,0004	0,005±0,001	0,0002±0,00002	<0,0000047	0,005±0,0005
MF21MAL36-19	Fruits	Vigne	Cuxac-d'Aude		08/09/2021	<0,002	0,003±0,0004	0,003±0,0004	0,0001±0,00001	<0,0000004	0,003±0,0003

Tableau 13 : Activité volumique des isotopes du thorium et de l'uranium dans le vin prélevées entre 2021 et 2023 (en Bq.L⁻¹).

Prélèvement	Espèce	Commune	Date	Th-230	Th-232	U-234	U-235	U-236	U-238
F21MAL46-38	Vin rosé	Narbonne	16/11/2021	<0,001	0,0003±0,0005	0,002±0,0005	0,00007±0,000007	<0,00000022	0,0014±0,0001
F22MAL49-12	Vin rouge	Cuxac-d'Aude	09/12/2022	<0,0005	<0,00005	0,002±0,0003	0,00009±0,000009	<0,00000004	0,0018±0,0002
F23MAL48-41	Vin rouge	Narbonne	30/11/2023	<0,001	<0,0001	0,003±0,0005	0,00013±0,00001	<0,000002	0,0030±0,0003

Tableau 14 : Activité massique des émetteurs gamma naturels des végétaux terrestres prélevés en 2021.

Prélèvement	Commune	Date de prélèvement	Nature	Espèce	Fraction	⁴⁰ K	Famille du ²³² Th				⁷ Be	Unité	
							²²⁸ Ac	²³⁴ Th	^{234m} Pa	²²⁶ Ra	²¹⁰ Pb		
MF21MAL22-10	Cuxac-d'Aude	02/06/2021	Sols	Sol de céréale	< 2 mm	392±31	30,1±2,4	28,6±3,6	26±12	34±5	34±7	≤ 1,0	Bq.kg ⁻¹ sec
MF21MAL22-9	Narbonne	02/06/2021	Sols	Sol de céréale	< 2 mm	432±33	32,8±2,5	41,6±4,8	38±12	39±7	41±7	≤ 1,1	Bq.kg ⁻¹ sec
MF21MAL22-1	Narbonne	01/06/2021	Céréales	Blé non identifié <i>Triticum sp.</i>	Épis	182±16	0,257±0,030	≤ 0,30	≤ 2,2	0,13±0,02	2,13±0,30	≤ 0,11	Bq.kg ⁻¹ sec
MF21MAL22-2	Narbonne	02/06/2021	Céréales	Blé non identifié <i>Triticum sp.</i>	Épis	184±14	0,268±0,028	0,514±0,080	≤ 1,7	0,12±0,01	4,69±0,63	0,261±0,045	Bq.kg ⁻¹ sec
MF21MAL22-3	Narbonne	02/06/2021	Céréales	Blé non identifié <i>Triticum sp.</i>	Épis	180±14	0,206±0,022	0,465±0,082	≤ 2,2	0,10±0,01	5,44±0,70	0,380±0,047	Bq.kg ⁻¹ sec
MF21MAL22-4	Narbonne	02/06/2021	Céréales	Blé non identifié <i>Triticum sp.</i>	Épis	223±17	0,194±0,032	≤ 0,22	≤ 2,7	0,06±0,01	4,41±0,59	0,311±0,063	Bq.kg ⁻¹ sec
MF21MAL22-5	Cuxac-d'Aude	02/06/2021	Céréales	Blé non identifié <i>Triticum sp.</i>	Épis	153±12	0,205±0,022	≤ 0,100	≤ 1,5	0,09±0,01	6,44±0,81	0,358±0,047	Bq.kg ⁻¹ sec
MF21MAL22-6	Cuxac-d'Aude	02/06/2021	Céréales	Blé non identifié <i>Triticum sp.</i>	Épis	153±12	0,243±0,026	≤ 0,14	≤ 1,8	0,13±0,01	4,01±0,52	0,258±0,040	Bq.kg ⁻¹ sec
MF21MAL36-14	Narbonne	07/09/2021	Fruits	Figuier <i>Ficus carica</i>	Fruits	112,8±8,4	≤ 0,033	≤ 0,052	≤ 0,94	0,08±0,01	0,094±0,036	≤ 0,046	Bq.kg ⁻¹ frais

Prélèvement	Commune	Date de prélevement	Nature	Espèce	Fraction	^{40}K	Famille du ^{232}Th	Famille de l' ^{238}U				Unité	
								^{228}Ac	^{234}Th	^{234m}Pa	^{226}Ra	^{210}Pb	
MF21MAL36-15	Narbonne	07/09/2021	Fruits	Figuer <i>Ficus carica</i>	Fruits	$82,5\pm5,9$	$\leq 0,022$	$\leq 0,032$	$\leq 0,51$	$0,04\pm0,01$	$0,144\pm0,029$	$0,029\pm0,010$	$\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ frais
MF21MAL36-18	Cuxac-d'Aude	07/09/2021	Fruits	Figuer <i>Ficus carica</i>	Fruits	148 ± 11	$\leq 0,038$	$\leq 0,071$	$\leq 1,3$	$0,03\pm0,01$	$0,196\pm0,052$	$\leq 0,044$	$\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ frais
MF21MAL36-20	Narbonne	08/09/2021	Fruits	Figuer <i>Ficus carica</i>	Fruits	$75,5\pm5,9$	$\leq 0,018$	$\leq 0,032$	$\leq 0,59$	$0,02\pm0,007$	$0,070\pm0,021$	$\leq 0,021$	$\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ frais
MF21MAL36-16	Narbonne	07/09/2021	Fruits	Vigne commune <i>Vitis vinifera</i>	Fruit entier (sans pédoncule)	$55,1\pm4,0$	$\leq 0,013$	$\leq 0,028$	$\leq 0,40$	$0,01\pm0,005$	$0,084\pm0,022$	$\leq 0,015$	$\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ frais
MF21MAL36-17	Narbonne	07/09/2021	Fruits	Vigne commune <i>Vitis vinifera</i>	Fruit entier (sans pédoncule)	$66,0\pm5,1$	$\leq 0,015$	$\leq 0,032$	$\leq 0,44$	$0,02\pm0,007$	$0,090\pm0,025$	$\leq 0,018$	$\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ frais
MF21MAL36-19	Cuxac-d'Aude	08/09/2021	Fruits	Vigne commune <i>Vitis vinifera</i>	Fruit entier (sans pédoncule)	$73,1\pm5,7$	$\leq 0,016$	$\leq 0,035$	$\leq 0,57$	$\leq 0,01$	$0,070\pm0,026$	$\leq 0,020$	$\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ frais
MF21MAL22-7	Narbonne	02/06/2021	Légumes	Blette <i>Beta vulgaris ssp. vulgaris</i>	Feuilles annuelles	$96,1\pm7,9$	$0,177\pm0,014$	$\leq 0,054$	$\leq 0,69$	$0,19\pm0,02$	$0,80\pm0,14$	$0,046\pm0,016$	$\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ frais
MF21MAL22-8	Cuxac-d'Aude	02/06/2021	Légumes	Laitue <i>Lactuca sativa</i>	Feuilles annuelles	$67,2\pm4,7$	$0,0202\pm0,0040$	$\leq 0,026$	$\leq 0,34$	$0,02\pm0,003$	$0,269\pm0,040$	$0,0215\pm0,0074$	$\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ frais
MF21MAL29-11	Narbonne	20/07/2021	Légumes	Salades	Entier	199 ± 16	$0,237\pm0,021$	$0,223\pm0,051$	$\leq 1,2$	$0,27\pm0,03$	$0,88\pm0,12$	$0,107\pm0,026$	$\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ frais
MF21MAL30-12	Narbonne	27/07/2021	Légumes	Tomate <i>Solanum lycopersicum</i>	Entier	$62,2\pm4,6$	$\leq 0,014$	$\leq 0,028$	$\leq 0,44$	$\leq 0,005$	$\leq 0,035$	$\leq 0,016$	$\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ frais
MF21MAL30-13	Cuxac-d'Aude	27/07/2021	Légumes	Tomate <i>Solanum lycopersicum</i>	Entier	$59,6\pm4,5$	$\leq 0,017$	$\leq 0,036$	$\leq 0,60$	$\leq 0,007$	$\leq 0,046$	$\leq 0,020$	$\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ frais
MF21MAL39-23	Narbonne	27/09/2021	Arbres	Frêne	Feuilles annuelles	270 ± 20	$0,486\pm0,071$	$24,7\pm2,2$	$23,0\pm3,9$	$5,1\pm0,4$	$42,5\pm5,1$	$4,66\pm0,40$	$\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ sec
MF21MAL39-24	Narbonne	27/09/2021	Arbres	Frêne	Feuilles annuelles	386 ± 29	$0,817\pm0,084$	$4,42\pm0,47$	$5,5\pm3,0$	$1,2\pm0,1$	$34,1\pm4,3$	$3,62\pm0,32$	$\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ sec
MF21MAL39-25	Narbonne	27/09/2021	Arbres	Frêne	Feuilles annuelles	328 ± 26	$0,739\pm0,092$	$5,03\pm0,51$	$\leq 6,2$	$2,3\pm0,2$	$44,1\pm6,2$	$5,05\pm0,42$	$\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ sec
MF21MAL39-26	Narbonne	28/09/2021	Arbres	Frêne	Feuilles annuelles	444 ± 33	$0,460\pm0,060$	$7,91\pm0,70$	$\leq 9,0$	$0,72\pm0,08$	$39,8\pm4,7$	$4,75\pm0,39$	$\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ sec
MF21MAL39-27	Narbonne	28/09/2021	Arbres	Frêne	Feuilles annuelles	448 ± 34	$0,586\pm0,074$	$0,96\pm0,19$	$\leq 5,6$	$0,49\pm0,07$	$41,9\pm5,6$	$4,51\pm0,36$	$\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ sec
MF21MAL39-28	Narbonne	28/09/2021	Arbres	Frêne	Feuilles annuelles	396 ± 30	$0,619\pm0,073$	$2,91\pm0,32$	$\leq 8,2$	$0,78\pm0,08$	$51,9\pm6,4$	$5,89\pm0,45$	$\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ sec
MF21MAL39-29	Narbonne	28/09/2021	Arbres	Frêne	Feuilles annuelles	442 ± 33	$1,01\pm0,11$	$1,52\pm0,33$	$\leq 6,4$	$0,98\pm0,12$	$58,0\pm6,4$	$7,31\pm0,64$	$\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ sec
MF21MAL39-30	Narbonne	28/09/2021	Arbres	Frêne	Feuilles annuelles	343 ± 25	$0,600\pm0,076$	$1,33\pm0,22$	$\leq 4,5$	$0,93\pm0,10$	$44,6\pm5,1$	$4,46\pm0,37$	$\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ sec
MF21MAL39-31	Cuxac-d'Aude	29/09/2021	Arbres	Frêne	Feuilles annuelles	490 ± 36	$0,410\pm0,059$	$\leq 0,34$	$\leq 4,8$	$0,49\pm0,07$	$24,6\pm3,3$	$2,45\pm0,23$	$\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ sec
MF21MAL39-32	Cuxac-d'Aude	29/09/2021	Arbres	Frêne	Feuilles annuelles	381 ± 29	$0,707\pm0,076$	$0,31\pm0,16$	$\leq 4,1$	$0,68\pm0,07$	$42,0\pm4,8$	$6,68\pm0,57$	$\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ sec
MF21MAL39-33	Narbonne	29/09/2021	Arbres	Frêne	Feuilles annuelles	242 ± 18	$0,782\pm0,077$	$2,70\pm0,30$	$\leq 4,5$	$0,84\pm0,09$	$56,0\pm7,7$	$8,69\pm0,68$	$\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ sec

Tableau 15: Activité massique des émetteurs gamma naturels des végétaux prélevés en 2022.

Prélèvement	Commune	Date de prélevement	Nature	Espèce	Fraction	Qualité	Frais/Sec	Date de mesure	^{40}K	Famille du ^{232}Th	Famille de l' ^{238}U				^{7}Be	Unité
											^{228}Ac	^{234}Th	$^{234\text{m}}\text{Pa}$	^{226}Ra	^{210}Pb	
MF22MAL37-4	Narbonne	15/09/2022	Légumes	Blette <i>Beta vulgaris ssp. vulgaris</i>	Entier	Cendre	16,32	24/01/2023	70,1±5,3	0,205±0,027	≤ 0,067	≤ 0,73	0,15±0,02	0,78±0,12	1,125±0,091	Bq.kg ⁻¹ frais
MF22MAL40-6	Narbonne	04/10/2022	Arbres	Frêne	Feuilles annuelles	Cendre	2,57	20/01/2023	278±21	0,291±0,085	13,8±1,2	11,9±2,5	6,1±0,6	45,1±5,6	46,9±3,7	Bq.kg ⁻¹ sec
MF22MAL40-7	Narbonne	04/10/2022	Arbres	Frêne	Feuilles annuelles	Cendre	2,50	20/01/2023	371±28	0,648±0,076	3,23±0,36	4,7±2,4	1,5±0,1	35,1±2,8	28,1±2,3	Bq.kg ⁻¹ sec
MF22MAL40-9	Narbonne	04/10/2022	Arbres	Frêne	Feuilles annuelles	Cendre	2,52	20/01/2023	383±29	0,38±0,17	1,25±0,29	≤ 9,2	0,37±0,09	42,4±4,4	41,7±3,4	Bq.kg ⁻¹ sec

Tableau 16 : Activité massique des émetteurs gamma artificiels des végétaux prélevés en 2021.

prélèvement	Commune	Date de prélevement	Nature	Espèce	Fraction	Frais/Sec	^{134}Cs	^{137}Cs	^{57}Co	^{58}Co	^{60}Co	$^{110\text{m}}\text{Ag}$	^{54}Mn	^{124}Sb	^{125}Sb	^{241}Am	^{106}Rh	$^{108\text{m}}\text{Ag}$	$^{123\text{m}}\text{Te}$	^{65}Zn	Unité
F21MAL22-10	Cuxac-d'Aude	02/06/2021	Sols	Sol de céréale	< 2 mm	1,04	≤ 0,15	1,51±0,17	≤ 0,070	≤ 0,15	≤ 0,21	≤ 0,20	≤ 0,19	≤ 0,14	≤ 0,43	≤ 0,20	≤ 1,5	≤ 0,23	≤ 0,090	≤ 0,35	Bq.kg ⁻¹ sec
F21MAL22-9	Narbonne	02/06/2021	Sols	Sol de céréale	< 2 mm	1,06	≤ 0,15	2,44±0,23	≤ 0,070	≤ 0,14	≤ 0,18	≤ 0,20	≤ 0,18	≤ 0,13	≤ 0,45	≤ 0,22	≤ 1,5	≤ 0,23	≤ 0,090	≤ 0,34	Bq.kg ⁻¹ sec
F21MAL22-1	Narbonne	01/06/2021	Céréales	Blé non identifié <i>Triticum sp.</i>	Épis	1,94	≤ 0,013	≤ 0,014	≤ 0,0052	≤ 0,014	≤ 0,022	≤ 0,017	≤ 0,014	≤ 0,012	≤ 0,030	≤ 0,017	≤ 0,13	≤ 0,019	≤ 0,0061	≤ 0,044	Bq.kg ⁻¹ sec
F21MAL22-2	Narbonne	02/06/2021	Céréales	Blé non identifié <i>Triticum sp.</i>	Épis	2,19	≤ 0,011	≤ 0,012	≤ 0,0042	≤ 0,013	≤ 0,017	≤ 0,014	≤ 0,012	≤ 0,0097	≤ 0,024	≤ 0,012	≤ 0,11	≤ 0,016	≤ 0,0049	≤ 0,038	Bq.kg ⁻¹ sec
F21MAL22-3	Narbonne	02/06/2021	Céréales	Blé non identifié <i>Triticum sp.</i>	Épis	2,00	≤ 0,0085	0,0120±0,0051	≤ 0,0035	≤ 0,010	≤ 0,014	≤ 0,011	≤ 0,0098	≤ 0,0079	≤ 0,022	≤ 0,012	≤ 0,085	≤ 0,013	≤ 0,0041	≤ 0,032	Bq.kg ⁻¹ sec
F21MAL22-4	Narbonne	02/06/2021	Céréales	Blé non identifié <i>Triticum sp.</i>	Épis	2,47	≤ 0,014	≤ 0,015	≤ 0,0059	≤ 0,017	≤ 0,027	≤ 0,018	≤ 0,017	≤ 0,014	≤ 0,036	≤ 0,019	≤ 0,14	≤ 0,023	≤ 0,0068	≤ 0,054	Bq.kg ⁻¹ sec
F21MAL22-5	Cuxac-d'Aude	02/06/2021	Céréales	Blé non identifié <i>Triticum sp.</i>	Épis	1,84	≤ 0,0087	≤ 0,0087	≤ 0,0034	≤ 0,0100	≤ 0,014	≤ 0,012	≤ 0,0096	≤ 0,0081	≤ 0,022	≤ 0,011	≤ 0,087	≤ 0,013	≤ 0,0040	≤ 0,031	Bq.kg ⁻¹ sec
F21MAL22-6	Cuxac-d'Aude	02/06/2021	Céréales	Blé non identifié	Épis	1,79	≤ 0,0088	≤ 0,0096	≤ 0,0037	≤ 0,011	≤ 0,015	≤ 0,012	≤ 0,010	≤ 0,0085	≤ 0,022	≤ 0,0099	≤ 0,092	≤ 0,014	≤ 0,0044	≤ 0,033	Bq.kg ⁻¹ sec

prélèvement	Commune	Date de prélèvement	Nature	Espèce	Fraction	Frais/Sec	¹³⁴ Cs	¹³⁷ Cs	⁵⁷ Co	⁵⁸ Co	⁶⁰ Co	^{110m} Ag	⁵⁴ Mn	¹²⁴ Sb	¹²⁵ Sb	²⁴¹ Am	¹⁰⁶ Rh	^{108m} Ag	^{123m} Te	⁶⁵ Zn	Unité
<i>Triticum sp.</i>																					
F21MAL36-14	Narbonne	07/09/2021	Fruits	Figuier <i>Ficus carica</i>	Fruits	3,23	≤ 0,0051	≤ 0,0073	≤ 0,0021	≤ 0,0063	≤ 0,0094	≤ 0,0073	≤ 0,0063	≤ 0,0047	≤ 0,013	≤ 0,0063	≤ 0,052	≤ 0,0084	≤ 0,0024	≤ 0,020	Bq.kg ⁻¹ frais
F21MAL36-15	Narbonne	07/09/2021	Fruits	Figuier <i>Ficus carica</i>	Fruits	4,75	≤ 0,0030	≤ 0,0051	≤ 0,0012	≤ 0,0036	≤ 0,0051	≤ 0,0040	≤ 0,0035	≤ 0,0028	≤ 0,0067	≤ 0,0035	≤ 0,030	≤ 0,0042	≤ 0,0013	≤ 0,012	Bq.kg ⁻¹ frais
F21MAL36-18	Cuxac-d'Aude	07/09/2021	Fruits	Figuier <i>Ficus carica</i>	Fruits	2,41	≤ 0,0069	≤ 0,0071	≤ 0,0028	≤ 0,0085	≤ 0,013	≤ 0,0099	≤ 0,0085	≤ 0,0064	≤ 0,016	≤ 0,0085	≤ 0,071	≤ 0,011	≤ 0,0032	≤ 0,027	Bq.kg ⁻¹ frais
F21MAL36-20	Narbonne	08/09/2021	Fruits	Figuier <i>Ficus carica</i>	Fruits	4,76	≤ 0,0031	≤ 0,0044	≤ 0,0012	≤ 0,0037	≤ 0,0059	≤ 0,0044	≤ 0,0036	≤ 0,0029	≤ 0,0073	≤ 0,0035	≤ 0,032	≤ 0,0051	≤ 0,0015	≤ 0,012	Bq.kg ⁻¹ frais
F21MAL36-16	Narbonne	07/09/2021	Fruits	Vigne commune <i>Vitis vinifera</i>	Fruit (sans pédoncule)	4,98	≤ 0,0024	≤ 0,0025	≤ 0,00098	≤ 0,0029	≤ 0,0040	≤ 0,0029	≤ 0,0028	≤ 0,0022	≤ 0,0057	≤ 0,0034	≤ 0,024	≤ 0,0034	≤ 0,0011	≤ 0,0086	Bq.kg ⁻¹ frais
F21MAL36-17	Narbonne	07/09/2021	Fruits	Vigne commune <i>Vitis vinifera</i>	Fruit (sans pédoncule)	4,16	≤ 0,0028	≤ 0,0028	≤ 0,0011	≤ 0,0031	≤ 0,0044	≤ 0,0038	≤ 0,0031	≤ 0,0025	≤ 0,0070	≤ 0,0038	≤ 0,029	≤ 0,0038	≤ 0,0013	≤ 0,010	Bq.kg ⁻¹ frais
F21MAL36-19	Cuxac-d'Aude	08/09/2021	Fruits	Vigne commune <i>Vitis vinifera</i>	Fruit (sans pédoncule)	4,06	≤ 0,0031	≤ 0,0035	≤ 0,0013	≤ 0,0035	≤ 0,0057	≤ 0,0043	≤ 0,0035	≤ 0,0028	≤ 0,0078	≤ 0,0043	≤ 0,043	≤ 0,0050	≤ 0,0014	≤ 0,011	Bq.kg ⁻¹ frais
F21MAL22-7	Narbonne	02/06/2021	Légumes	Blette <i>Beta vulgaris ssp. vulgaris</i>	Feuilles annuelles	16,80	≤ 0,0041	0,0115±0,0025	≤ 0,0017	≤ 0,0047	≤ 0,0066	≤ 0,0055	≤ 0,0046	≤ 0,0038	≤ 0,011	≤ 0,0058	≤ 0,043	≤ 0,0061	≤ 0,0020	≤ 0,014	Bq.kg ⁻¹ frais
F21MAL22-8	Cuxac-d'Aude	02/06/2021	Légumes	Laïtue <i>Lactuca sativa</i>	Feuilles annuelles	26,98	≤ 0,0021	0,0042±0,0010	≤ 0,00087	≤ 0,0026	≤ 0,0034	≤ 0,0028	≤ 0,0024	≤ 0,0019	≤ 0,0054	≤ 0,0028	≤ 0,022	≤ 0,0032	≤ 0,0010	≤ 0,0081	Bq.kg ⁻¹ frais
F21MAL29-11	Narbonne	20/07/2021	Légumes	Salades	Entier	9,34	≤ 0,0067	0,0281±0,0046	≤ 0,0030	≤ 0,0081	≤ 0,012	≤ 0,0090	≤ 0,0079	≤ 0,0063	≤ 0,016	≤ 0,0100	≤ 0,070	≤ 0,010	≤ 0,0035	≤ 0,026	Bq.kg ⁻¹ frais
F21MAL30-12	Narbonne	27/07/2021	Légumes	Tomate <i>Solanum lycopersicum</i>	Entier	19,19	≤ 0,0026	≤ 0,0032	≤ 0,0010	≤ 0,0030	≤ 0,0043	≤ 0,0035	≤ 0,0029	≤ 0,0024	≤ 0,0060	≤ 0,0031	≤ 0,026	≤ 0,0039	≤ 0,0012	≤ 0,0090	Bq.kg ⁻¹ frais
MF21MAL30-13	Cuxac-d'Aude	27/07/2021	Légumes	Tomate <i>Solanum lycopersicum</i>	Entier	19,78	≤ 0,0033	≤ 0,0034	≤ 0,0013	≤ 0,0039	≤ 0,0060	≤ 0,0043	≤ 0,0038	≤ 0,0030	≤ 0,0080	≤ 0,0040	≤ 0,033	≤ 0,0050	≤ 0,0015	≤ 0,012	Bq.kg ⁻¹ frais
F21MAL39-23	Narbonne	27/09/2021	Arbres	Frêne	Feuilles annuelles	2,60	≤ 0,029	0,097±0,021	≤ 0,013	≤ 0,031	≤ 0,045	≤ 0,037	≤ 0,032	≤ 0,027	≤ 0,081	≤ 0,040	≤ 0,29	≤ 0,045	≤ 0,015	≤ 0,091	Bq.kg ⁻¹ sec
F21MAL39-24	Narbonne	27/09/2021	Arbres	Frêne	Feuilles annuelles	2,48	≤ 0,030	≤ 0,035	≤ 0,013	≤ 0,036	≤ 0,049	≤ 0,040	≤ 0,035	≤ 0,028	≤ 0,073	≤ 0,041	≤ 0,30	≤ 0,045	≤ 0,015	≤ 0,10	Bq.kg ⁻¹ sec
F21MAL39-25	Narbonne	27/09/2021	Arbres	Frêne	Feuilles annuelles	2,45	≤ 0,034	0,082±0,023	≤ 0,014	≤ 0,039	≤ 0,051	≤ 0,045	≤ 0,038	≤ 0,032	≤ 0,092	≤ 0,039	≤ 0,34	≤ 0,051	≤ 0,017	≤ 0,11	Bq.kg ⁻¹ sec
F21MAL39-26	Narbonne	28/09/2021	Arbres	Frêne	Feuilles annuelles	2,68	≤ 0,029	0,049±0,017	≤ 0,012	≤ 0,032	≤ 0,045	≤ 0,038	≤ 0,032	≤ 0,026	≤ 0,070	≤ 0,036	≤ 0,28	≤ 0,042	≤ 0,014	≤ 0,10	Bq.kg ⁻¹ sec
MF21MAL39-27	Narbonne	28/09/2021	Arbres	Frêne	Feuilles annuelles	2,63	≤ 0,030	0,063±0,019	≤ 0,012	≤ 0,034	≤ 0,056	≤ 0,039	≤ 0,033	≤ 0,027	≤ 0,074	≤ 0,033	≤ 0,30	≤ 0,046	≤ 0,014	≤ 0,11	Bq.kg ⁻¹ sec

prélèvement	Commune	Date de prélèvement	Nature	Espèce	Fraction	Frais/Sec	^{134}Cs	^{137}Cs	^{57}Co	^{58}Co	^{60}Co	$^{110\text{m}}\text{Ag}$	^{54}Mn	^{124}Sb	^{125}Sb	^{241}Am	^{106}Rh	$^{108\text{m}}\text{Ag}$	$^{123\text{m}}\text{Te}$	^{65}Zn	Unité	
F21MAL39-28	Narbonne	28/09/2021	Arbres	Frêne	Feuilles annuelles	2,50	$\leq 0,026$	$0,113\pm 0,016$	$\leq 0,011$	$\leq 0,031$	$\leq 0,046$	$\leq 0,036$	$\leq 0,031$	$\leq 0,025$	$\leq 0,064$	$\leq 0,031$	$\leq 0,27$	$\leq 0,041$	$\leq 0,015$	$\leq 0,10$	Bq.kg ⁻¹ sec	
F21MAL39-29	Narbonne	28/09/2021	Arbres	Frêne	Feuilles annuelles	2,30	$\leq 0,038$	$0,055\pm 0,023$	$\leq 0,015$	$\leq 0,041$	$\leq 0,054$	$\leq 0,049$	$\leq 0,042$	$\leq 0,034$	$\leq 0,097$	$\leq 0,046$	$\leq 0,37$	$\leq 0,054$	$\leq 0,017$	$\leq 0,13$	Bq.kg ⁻¹ sec	
F21MAL39-30	Narbonne	28/09/2021	Arbres	Frêne	Feuilles annuelles	2,51	$\leq 0,026$	$0,046\pm 0,016$	$\leq 0,011$	$\leq 0,031$	$\leq 0,043$	$\leq 0,034$	$\leq 0,029$	$\leq 0,024$	$\leq 0,065$	$\leq 0,033$	$\leq 0,26$	$\leq 0,039$	$\leq 0,012$	$\leq 0,098$	Bq.kg ⁻¹ sec	
F21MAL39-31	Cuxac-d'Aude	29/09/2021	Arbres	Frêne	Feuilles annuelles	2,22	$\leq 0,029$	$\leq 0,029$		$\leq 0,012$	$\leq 0,033$	$\leq 0,049$	$\leq 0,037$	$\leq 0,033$	$\leq 0,027$	$\leq 0,070$	$\leq 0,036$	$\leq 0,30$	$\leq 0,043$	$\leq 0,014$	$\leq 0,094$	Bq.kg ⁻¹ sec
MF21MAL39-32	Cuxac-d'Aude	29/09/2021	Arbres	Frêne	Feuilles annuelles	2,37	$\leq 0,024$	$0,062\pm 0,016$	$\leq 0,011$	$\leq 0,029$	$\leq 0,041$	$\leq 0,032$	$\leq 0,028$	$\leq 0,023$	$\leq 0,057$	$\leq 0,032$	$\leq 0,25$	$\leq 0,036$	$\leq 0,012$	$\leq 0,086$	Bq.kg ⁻¹ sec	
F21MAL39-33	Narbonne	29/09/2021	Arbres	Frêne	Feuilles annuelles	2,36	$\leq 0,023$	$0,081\pm 0,016$	$\leq 0,0097$	$\leq 0,026$	$\leq 0,040$	$\leq 0,032$	$\leq 0,031$	$\leq 0,022$	$\leq 0,058$	$\leq 0,026$	$\leq 0,23$	$\leq 0,037$	$\leq 0,012$	$\leq 0,077$	Bq.kg ⁻¹ sec	

Tableau 17 : Activité massique des émetteurs gamma artificiels des végétaux prélevés en 2022.

Prélèvement	Commune	Date de prélèvement	Nature	Espèce	Fraction	^{134}Cs	^{137}Cs	^{57}Co	^{58}Co	^{60}Co	$^{110\text{m}}\text{Ag}$	^{54}Mn	^{124}Sb	^{125}Sb	^{241}Am	^{106}Rh	$^{108\text{m}}\text{Ag}$	$^{123\text{m}}\text{Te}$	^{65}Zn	Unité
F22MAL37-4	Narbonne	15/09/2022	Légumes	Blette <i>Beta vulgaris</i> <i>ssp. vulgaris</i>	Entier	$\leq 0,0041$	$\leq 0,0046$	$\leq 0,0017$	$\leq 0,0049$	$\leq 0,0070$	$\leq 0,0055$	$\leq 0,0047$	$\leq 0,0038$	$\leq 0,011$	$\leq 0,0046$	$\leq 0,043$	$\leq 0,0064$	$\leq 0,0020$	$\leq 0,015$	Bq.kg ⁻¹ frais
F22MAL40-6	Narbonne	04/10/2022	Arbres	Frêne	Entier	$\leq 0,023$	$0,074\pm 0,016$	$\leq 0,010$	$\leq 0,026$	$\leq 0,037$	$\leq 0,030$	$\leq 0,025$	$\leq 0,022$	$\leq 0,066$	$\leq 0,033$	$\leq 0,23$	$\leq 0,035$	$\leq 0,013$	$\leq 0,075$	Bq.kg ⁻¹ sec
F22MAL40-7	Narbonne	04/10/2022	Arbres	Frêne	Entier	$\leq 0,027$	$0,050\pm 0,016$	$\leq 0,011$	$\leq 0,029$	$\leq 0,040$	$\leq 0,034$	$\leq 0,030$	$\leq 0,024$	$\leq 0,067$	$\leq 0,033$	$\leq 0,26$	$\leq 0,039$	$\leq 0,013$	$\leq 0,086$	Bq.kg ⁻¹ sec
F22MAL40-9	Narbonne	04/10/2022	Arbres	Frêne	Entier	$\leq 0,046$	$0,063\pm 0,029$	$\leq 0,019$	$\leq 0,055$	$\leq 0,083$	$\leq 0,064$	$\leq 0,055$	$\leq 0,042$	$\leq 0,12$	$\leq 0,045$	$\leq 0,46$	$\leq 0,074$	$\leq 0,024$	$\leq 0,16$	Bq.kg ⁻¹ sec

Tableau 18 : Activité massique des émetteurs gamma artificiels des végétaux prélevés en 2023.

Prélèvement	Commune	Date de prélèvement	Nature	Espèce	Fraction	Frais/Sec	^{134}Cs	^{137}Cs	^{57}Co	^{58}Co	^{60}Co	$^{110\text{m}}\text{Ag}$	^{54}Mn	^{124}Sb	^{125}Sb	^{241}Am	^{106}Rh	$^{108\text{m}}\text{Ag}$	$^{123\text{m}}\text{Te}$	^{65}Zn	Unité
F23MAL36-4	Narbonne	05/09/2023	Fruits	Vigne commune <i>Vitis vinifera</i>	Fruit (sans pédoncule)	4,05	$\leq 0,0037 \leq 0,0038$	$\leq 0,0014 \leq 0,0043 \leq 0,0062 \leq 0,0051 \leq 0,0043 \leq 0,0034 \leq 0,0082 \leq 0,0040 \leq 0,037 \leq 0,0052 \leq 0,0016 \leq 0,013$ Bq.kg ⁻¹ frais													
F23MAL36-5	Narbonne	05/09/2023	Fruits	Vigne commune <i>Vitis vinifera</i>	Fruit (sans pédoncule)	3,61	$\leq 0,0043 \leq 0,0044$	$\leq 0,0017 \leq 0,0053 \leq 0,0079 \leq 0,0057 \leq 0,0050 \leq 0,0040 \leq 0,010 \leq 0,0047 \leq 0,044 \leq 0,0068 \leq 0,0019 \leq 0,017$ Bq.kg ⁻¹ frais													
F23MAL41-37	Narbonne	10/10/2023	Arbres	Frêne	Entier	3,49	$\leq 0,029$	$0,082 \pm 0,021$	$\leq 0,013$	$\leq 0,034$	$\leq 0,047$	$\leq 0,037$	$\leq 0,034$	$\leq 0,027$	$\leq 0,070$	$\leq 0,039$	$\leq 0,31$	$\leq 0,042$	$\leq 0,016$	$\leq 0,10$	Bq.kg ⁻¹ sec

Tableau 19 : Activité massique en ^{99}Tc des végétaux terrestres prélevés en 2021 (en Bq.kg⁻¹ sec).

Prélèvement	Commune	Date de prélèvement	Nature	Espèce	Fraction	^{99}Tc	Unité
F21MAL39-23	Narbonne	27/09/2021	Arbres	Frêne	Feuilles annuelles	51 ± 15	Bq.kg ⁻¹ sec
F21MAL39-24	Narbonne	27/09/2021	Arbres	Frêne	Feuilles annuelles	$\leq 1,9$	Bq.kg ⁻¹ sec
F21MAL39-31	Cuxac-d'Aude	29/09/2021	Arbres	Frêne	Feuilles annuelles	≤ 16	Bq.kg ⁻¹ sec
F21MAL39-32	Cuxac-d'Aude	29/09/2021	Arbres	Frêne	Feuilles annuelles	≤ 16	Bq.kg ⁻¹ sec
F21MAL46-37	Narbonne	16/11/2021	Arbres	Frêne	Feuilles annuelles	≤ 20	Bq.kg ⁻¹ sec

Tableau 20 : Activité massique en ^{99}Sr des végétaux terrestres prélevés en 2021 et 2022 (en Bq.kg⁻¹ sec).

Prélèvement	Commune	Date de prélèvement	Nature	Espèce	Fraction	^{90}Sr	Unité
F21MAL39-24	Narbonne	27/09/2021	Arbres	Frêne	Feuilles annuelles	$0,95 \pm 0,13$	Bq.kg ⁻¹ sec
F21MAL39-32	Cuxac-d'Aude	29/09/2021	Arbres	Frêne	Feuilles annuelles	$1,91 \pm 0,22$	Bq.kg ⁻¹ sec
F22MAL40-6	Narbonne	04/10/2022	Arbres	Frêne	Feuilles annuelles	$0,451 \pm 0,066$	Bq.kg ⁻¹ sec
F22MAL40-7	Narbonne	04/10/2022	Arbres	Frêne	Feuilles annuelles	$0,89 \pm 0,11$	Bq.kg ⁻¹ sec

Tableau 21 : Activité massique et rapports d'activités des transuraniens dans les végétaux terrestres prélevés en 2021.

Prélèvement	Commune	Date de prélevement	Nature	Espèce	Fraction	^{238}Pu	$^{239+240}\text{Pu}$	^{241}Am	Unité	$^{238}\text{Pu} / ^{239+240}\text{Pu}$	$^{241}\text{Am} / ^{239+240}\text{Pu}$	Unité
F21MAL22-1	Narbonne	01/06/2021	Céréales	Blé non identifié <i>Triticum sp.</i>	Épis	$\leq 0,013$	$0,074 \pm 0,044$	$0,052 \pm 0,030$	mBq/kg sec	-	$0,71 \pm 0,58$	Sans unité
F21MAL22-2	Narbonne	02/06/2021	Céréales	Blé non identifié <i>Triticum sp.</i>	Épis	$\leq 0,011$	$0,188 \pm 0,059$	$0,090 \pm 0,035$	mBq/kg sec	-	$0,48 \pm 0,24$	Sans unité
F21MAL22-3	Narbonne	02/06/2021	Céréales	Blé non identifié <i>Triticum sp.</i>	Épis	$\leq 0,015$	$0,171 \pm 0,063$	$0,092 \pm 0,032$	mBq/kg sec	-	$0,54 \pm 0,27$	Sans unité
F21MAL22-5	Cuxac-d'Aude	02/06/2021	Céréales	Blé non identifié <i>Triticum sp.</i>	Épis	$\leq 0,014$	$0,268 \pm 0,081$	$0,100 \pm 0,031$	mBq/kg sec	-	$0,37 \pm 0,16$	Sans unité
F21MAL36-14	Narbonne	07/09/2021	Fruits	Figuier <i>Ficus carica</i>	Fruits	$\leq 0,0019$	$0,0230 \pm 0,0084$	$\leq 0,0031$	mBq/kg sec	-	-	Sans unité
F21MAL36-15	Narbonne	07/09/2021	Fruits	Figuier <i>Ficus carica</i>	Fruits	$\leq 0,0015$	$0,0278 \pm 0,0084$	$0,0076 \pm 0,0042$	mBq/kg sec	-	$0,27 \pm 0,17$	Sans unité
F21MAL39-23	Narbonne	27/09/2021	Arbres	Frêne	Feuilles annuelles	$0,15 \pm 0,10$	$5,67 \pm 0,71$	$1,70 \pm 0,29$	mBq/kg sec	$0,027 \pm 0,018$	$0,3 \pm 0,064$	Sans unité
F21MAL39-24	Narbonne	27/09/2021	Arbres	Frêne	Feuilles annuelles	$\leq 0,063$	$2,58 \pm 0,39$	$0,99 \pm 0,19$	mBq/kg sec	-	$0,386 \pm 0,093$	Sans unité
F21MAL39-25	Narbonne	27/09/2021	Arbres	Frêne	Feuilles annuelles	$0,072 \pm 0,051$	$2,97 \pm 0,34$	$1,25 \pm 0,21$	mBq/kg sec	$0,024 \pm 0,018$	$0,422 \pm 0,084$	Sans unité
F21MAL39-31	Cuxac-d'Aude	29/09/2021	Arbres	Frêne	Feuilles annuelles	$\leq 0,055$	$1,09 \pm 0,20$	$0,59 \pm 0,14$	mBq/kg sec	-	$0,54 \pm 0,16$	Sans unité

Attention, saut de page pour la quatrième de couverture sous ce texte. Ne pas supprimer.

Saut de section

Siège social :
15 rue Louis Lejeune
92120 Montrouge

Adresse postale :
BP 17 - 92262
Fontenay-aux-Roses cedex

Divisions territoriales :
asnr.fr/nous-contacter

info@asnr.fr
Tél. : 01 58 35 88 88

asnr.fr

