

Maîtrise de biologie des populations et des écosystèmes
Université de Poitiers
U.F.R. Sciences Fondamentales et Appliquées
40 avenue du Recteur Pineau
F-86022 Poitiers Cedex

2001

MISE EN PLACE D'UNE METHODE DE SUIVI DE
L'ENVIRONNEMENT
AUTOUR DU CEA VALDUC, SUR SES REJETS DE TRITIUM,
DANS LE MILIEU AQUATIQUE.

DIESNIS Samuel

Sous la direction de : SAUT Catherine

SEIVA
DRIRE
Parc Technologique
15, 17 avenue Jean Bertin
21000 DIJON

du 22 janvier 2001 au 30 juin 2001

Pour toute diffusion, ce mémoire doit être obligatoirement accompagné de l'attestation de
soutenance

SOMMAIRE

| | |
|---|----|
| INTRODUCTION | 1 |
| I. PRESENTATION DU SITE ET DU RADIOELEMENT | 2 |
| 1. Les rejets de Valduc | 2 |
| 2. Généralités sur le tritium | 3 |
| 3. Le tritium dans l'environnement à Valduc | 4 |
| a) La météo et la géologie | 4 |
| b) Le transfert aux compartiments | 6 |
| c) Comportement du tritium dans les différents milieux | 7 |
| c1) Comportement du tritium dans l'air | 7 |
| c2) Comportement du tritium dans les eaux continentales | 8 |
| c3) Absorption de l'eau tritiée par les végétaux | 8 |
| 4. Les suivis environnementaux déjà existants | 8 |
| II. METHODE DU SUIVI DE L'ENVIRONNEMENT | 9 |
| 1. Le choix de la zone témoin et des sites de suivi | 9 |
| 2. Choix des cours d'eau | 10 |
| 3. Choix des indicateurs | 11 |
| a) Caractéristiques que doivent avoir les indicateurs | 11 |
| b) Etat des lieux | 11 |
| c) Choix des indicateurs | 12 |
| 4. Choix du type d'analyse | 13 |
| 5. Fréquence des analyses pour chaque indicateur | 14 |
| 6. Modes de prélèvements et techniques d'analyses | 14 |
| a) Modes de prélèvements | 14 |
| a1) L'eau | 14 |
| a2) Les sédiments | 14 |
| a21) Le prélèvement | 15 |
| a22) Mesures complémentaires à effectuer sur le terrain | 15 |
| a23) Mesure en laboratoire | 16 |
| a3) Les végétaux | 16 |
| a4) Les poissons | 16 |
| b) Modes de récupération du tritium sous ses différentes formes | 17 |
| c) Méthodes d'analyses | 18 |
| La scintillation | 18 |

| | |
|---|-------|
| La spectrométrie de masse | 19 |
| III . VALIDATION | 19 |
| 1 . Choix des indicateurs et des lieux | 20 |
| 2 . Résultat | 20 |
| a) Mesure de l'eau | 20 |
| b) Mesure du poisson | 20 |
| 3 . Validation statistique | 20 |
| La zone d'étude | 20 |
| Le poisson | 21 |
| IV . CONCLUSION | 21 |
| BIBLIOGRAPHIE | 23 |
| ANNEXES | 24-27 |

INTRODUCTION

Le 29 janvier 1996, à la demande du conseil général de la Côte d'Or, la SEIVA (Structure d'Échange et d'Information sur Valduc) a été créée pour répondre aux attentes de la population, faciliter et régulariser les rencontres. Les membres qui composent cette association sont des élus locaux, des personnes choisies pour leurs compétences (scientifiques, médicales et associatives), ainsi que la direction de Valduc et la presse. Elle est indépendante et effectue tous les ans ses propres analyses en parallèle avec le centre du CEA. Les résultats sont alors comparés et sujets à discussions, puis sont publiés dans la revue *Savoir & Comprendre*. L'une des préoccupations des gens est de savoir si la radioactivité a une influence sur l'environnement. C'est pour répondre à cette question que lors de ce stage, la SEIVA m'a demandé de travailler sur la mise en place d'une méthode de suivi de l'environnement dans le milieu aquatique, autour du CEA Valduc, sur les rejets de tritium. Mon travail pour cette méthode a été de trouver des indicateurs du marquage au tritium, de décrire leur mode de prélèvement et leur protocole d'analyse pour pouvoir connaître l'évolution du tritium dans l'environnement, s'il peut s'accumuler, être mis en réserve et jusqu'où le marquage peut se faire.

Les différents axes de travail ont d'abord été l'étude du site comme la géographie, la géologie et la climatologie, les caractéristiques du radioélément recherché (comportement, transfert...) qui est ici le tritium, puis l'étude des cours d'eau m'a permis de dégager les stations de prélèvement ainsi que les indicateurs représentant les différents compartiments du milieu.

I. PRESENTATION DU SITE ET DU RADIOELEMENT

1. Les rejets de Valduc

Le centre de Valduc a été ouvert en 1957. C'est une installation nucléaire de base secrète (INBS), située sur la commune de Salives à 45 kilomètres au nord-ouest de la ville de Dijon. Le centre appartient au CEA (Commissariat à l'Energie Atomique), et emploie environ 1500 personnes. Les principales activités du site sont des activités de recherche sur les matériaux nucléaires comme l'uranium, le plutonium et le tritium et des activités militaires comme la fabrication des éléments entrant dans la constitution des armes nucléaires françaises formant la force de dissuasion nucléaire, ainsi que le traitement des matières nucléaires constituant ces armes (plutonium, tritium, uranium).

Du fait de ses activités, le centre de Valduc a rejeté et continue à rejeter dans l'environnement des radionucléides sous forme gazeuse. Il n'a pas en effet d'autorisation de rejeter d'effluents liquides. L'émission la plus importante est le tritium (3H).

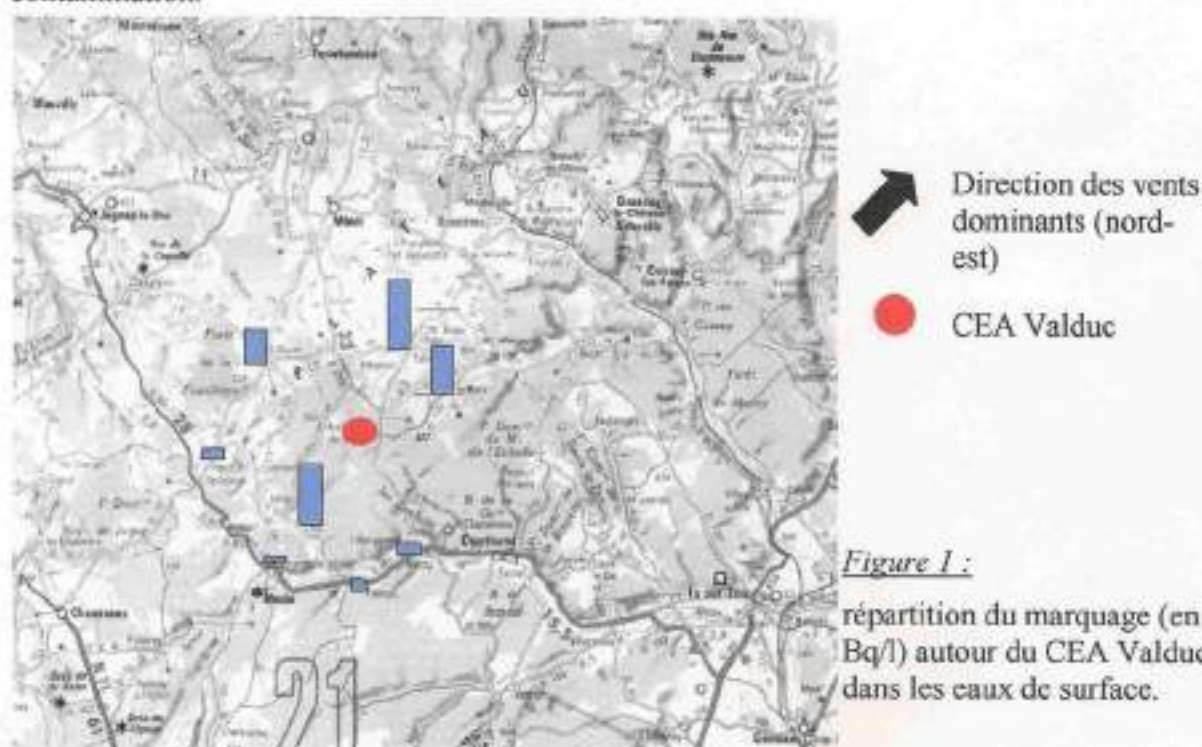
Sur le site, il existe 17 installations nucléaires de base qui sont des bâtiments où est manipulée de la matière nucléaire. Les principales installations présentant un risque de contamination sont un bâtiment exploité par l'IPSN qui comprend deux petits réacteurs de recherche et deux ensembles sous-critiques, un bâtiment de traitement du plutonium et de l'américium, des installations de fabrication de pièces en uranium, un bâtiment de fabrication de pièces en plutonium, un bâtiment de production d'ensemble contenant du tritium, un bâtiment de stockage de matière fissile, une station de traitement des effluents radioactifs, un bâtiment qui comprend deux accélérateurs de particules, des bâtiments d'entreposage des déchets tritiés et un bâtiment d'entreposage des déchets alpha.

Depuis sa création, des pratiques anciennes mais surtout des situations accidentelles peuvent avoir entraîné une contamination de l'environnement (Le Haut Commissaire à l'Energie Atomique, Dossier de synthèse sur la contamination du Centre d'Etudes de Valduc (Côte d'Or), 1998) :

- 1971, un rejet atmosphérique de 37 TBq (TeraBecquerels) de produit de fission (iode, césium).
- 1982, une explosion dans l'installation de bitumage des déchets plutonifères, aujourd'hui arrêtée. Il n'y avait pas eu de dispersion de plutonium hors du bâtiment.

- Plusieurs rejets atmosphériques accidentels de tritium dont un en 1991 avec un rejet de 7300 Ci (27,1 TBq) et en 1994 avec un rejet de 6900 Ci (25,53 TBq) dans l'atmosphère.
- Il a également été procédé entre 1968 et 1975 à des activités de brûlages de déchets tritiés dans une fosse dans l'ancienne ferme de Chatellenot (zone militaire du centre). Lors de ces brûlages, l'activité du tritium de l'air a atteint 1 MBq/m³.

Différentes mesures ont déjà été faites dans le passé par le CEA, l'OPRI et la Seiva, sur de l'eau. Ces résultats (voir figure 1), montrent déjà une certaine orientation de la zone de contamination.

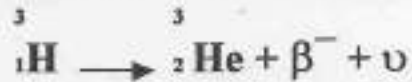


2. Généralités sur le Tritium :

Le tritium est l'isotope radioactif de l'hydrogène. Il est produit par les réactions nucléaires se produisant dans les centrales et par le retraitement. Même stocké, le tritium continue à se répandre dans l'atmosphère par dégazage. Il répond à diverses utilisations, la fabrication d'armes nucléaires, les peintures luminescentes pour les lignes de mire dans les viseurs, il est encore utilisé comme traceur biologique et dans l'industrie horlogère. On l'utilise comme activateur de la fusion nucléaire. Le tritium possède toutes les caractéristiques physiques et chimiques de l'hydrogène. La période de demi-vie du tritium est de 12,35 ans. C'est un émetteur bêta moins (β^-). Son énergie moyenne est de 5,685 KeV et son énergie maximum est

de 18,6 KeV. Il effectue des parcours relativement courts qui sont dans l'eau de 6 µm et de 5 mm dans l'air. Ces courts parcours font que le tritium n'est pas dangereux par exposition externe (Paulin R., Le tritium aspects généraux).

A la fin de sa désintégration le tritium donne de l'hélium en suivant la réaction suivante :



Sur la Terre, les principales origines du tritium sont :

- naturelle : formé dans la haute atmosphère
- les retombées des essais nucléaires atmosphériques
- les rejets de l'industrie nucléaire

Les deux premières origines forment un bruit de fond qui se traduit par une activité de 1 à 6 Bq/l.

Une fois libéré le tritium se présente sous différentes formes :

- la forme gazeuse (HT)
- la forme d'eau tritiée (HTO)
- la forme liée à la matière organique.

3. Le Tritium dans l'environnement à Valduc

a) La météo et la géologie

Le tritium, qui se compose à 30 % de gaz tritié et à 70 % d'eau tritiée se dégage dans l'atmosphère, par une cheminée de 50 mètres de hauteur. Il se disperse de plusieurs façons en fonction de différents facteurs qui sont : les vents, la pluviométrie, la géographie et la géologie.

Le premier facteur, le plus important à Valduc du fait qu'il n'existe que des rejets sous forme gazeuse, est le vent. Le tritium gazeux très léger, s'élève dans l'atmosphère et se disperse. Il n'a donc qu'un très faible impact car peu transformé en eau. L'eau tritiée de l'atmosphère va être emportée par le vent et dispersée sur plusieurs kilomètres dans la direction des vents dominants. On constate dans l'ensemble que les vents sont faibles (0,2 % des vents sont supérieurs à 10 m/s) et ont une direction, influencée par la topographie des lieux, qui est de nord et nord-est (annexe 1). Du fait de cette direction, le panache de dégagement va couvrir principalement une zone située au nord-est de Valduc.

A la dispersion par les vents s'ajoute la pluviométrie qui accélère le processus de dépôt sur le sol. La concentration en radioélément sera plus élevée sur le sol si le nuage de tritium est

traversé par la pluie, et la portée du nuage se fera sur une moins grande distance (voir figure 2). La pluviométrie d'environ 1000 mm/an, est assez bien répartie sur l'année.

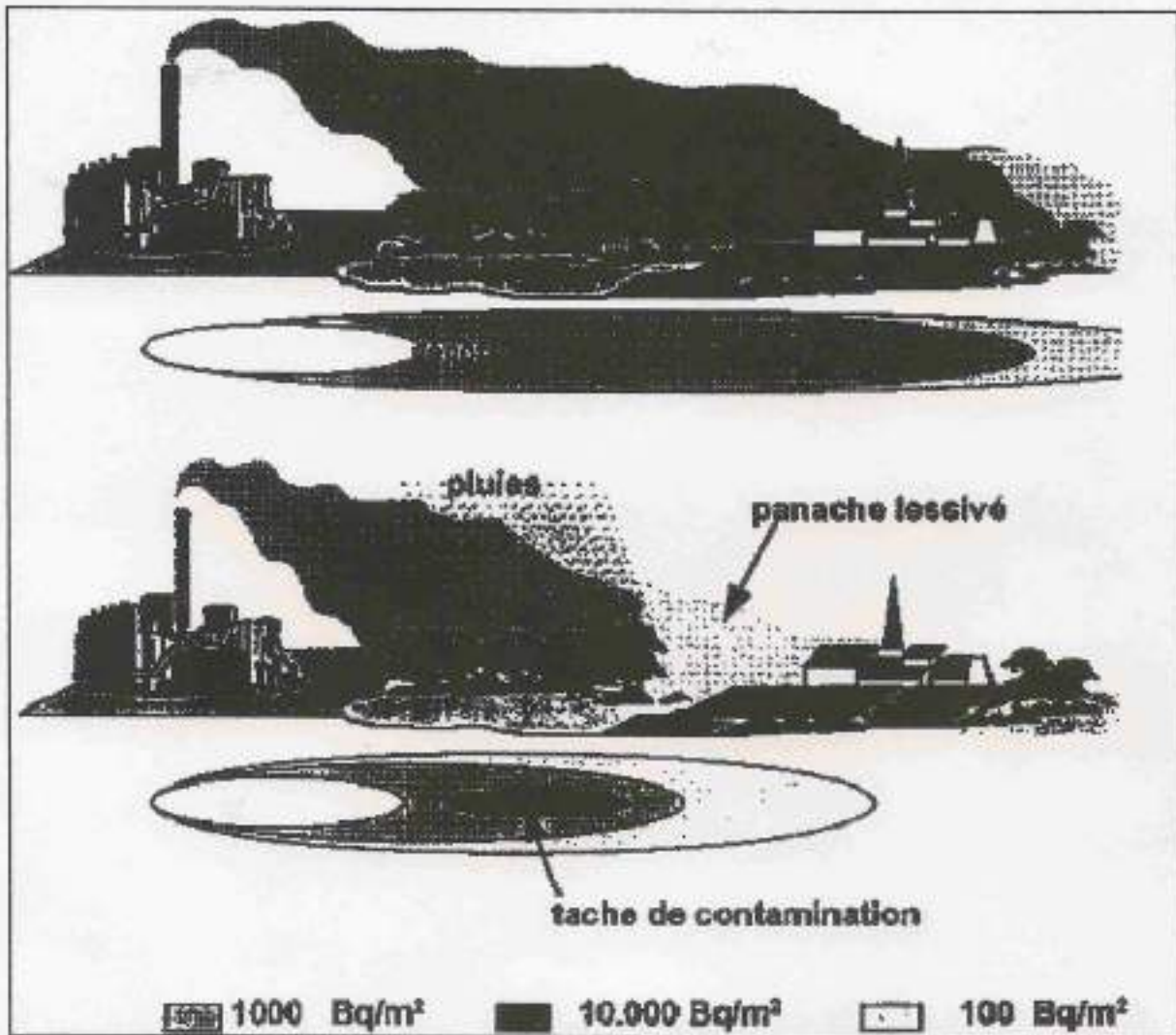


Figure 2 : Influence des facteurs climatiques sur le marquage radioactif par des rejets atmosphériques (Le transfert des radionucléides en eau douce, IPSN CEA-Cadarache).

Après dépôt sur le sol, les radioéléments vont pouvoir suivant la géographie des lieux s'incorporer dans les sols pour intégrer les eaux. Le site de Valduc couvre une superficie de 727 hectares où se succèdent des vallées de direction nord-sud. Il se situe à 450 mètres d'altitude sur une région boisée, située sur la charnière anticlinale du seuil de Bourgogne. L'érosion de terrains constitués de bancs calcaires massifs et de bancs marneux, dans lesquels des failles ont guidé l'établissement du réseau hydrographique, a permis l'infiltration des eaux de pluie légèrement agressives qui a entraîné la formation d'aquifères karstiques avec une circulation souterraine (voir figure 3). Il existe deux nappes distinctes qui s'écoulent vers l'Ignon. L'écoulement vers le bassin versant de la Seine dont la source est à quelques

kilomètres au sud-ouest est très peu probable. La commune de Salives, située au nord va recevoir des traces de radioactivité à cause de la climatologie et des rejets atmosphériques de tritium, qui va se retrouver rapidement dans le cycle hydrologique naturel.

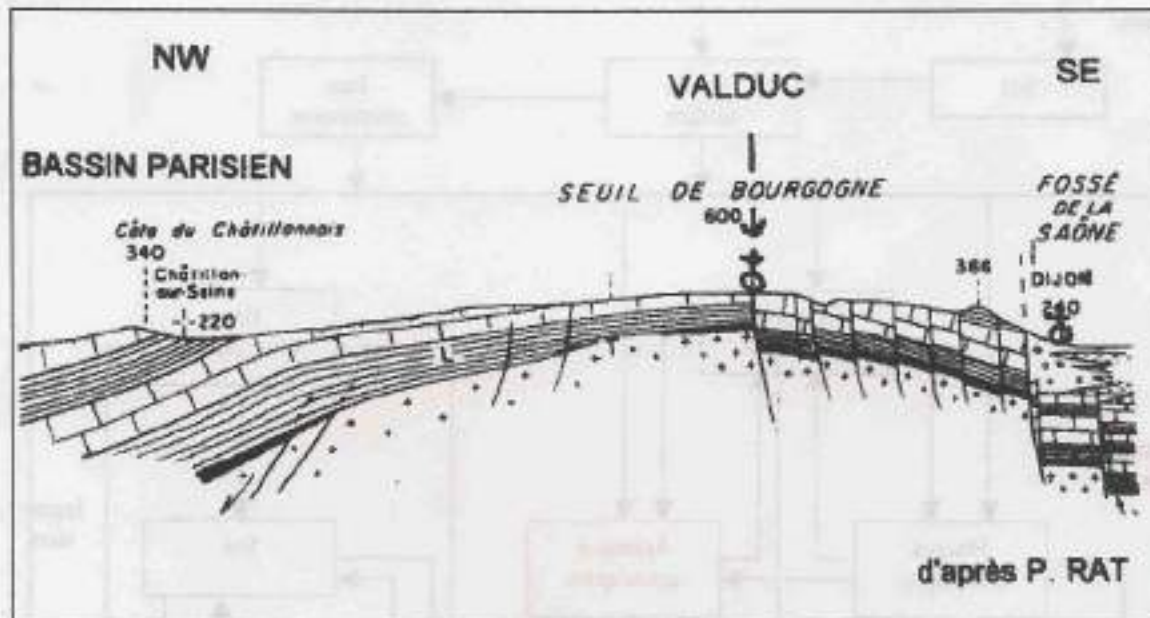


Figure 1: Coupe géologique schématique de la région de Valduc (Savoir & Comprendre spécial juin 1997)

b) Le transfert aux compartiments

Le transport du tritium atmosphérique se fait dans les hautes altitudes au niveau des zones où il existe des discontinuités de la troposphère. Puis il se forme de l'eau tritiée dont les molécules sont ensuite entraînées par les précipitations et s'échangent avec les molécules d'eau légère.

L'incorporation de l'eau tritiée se fait par échange moléculaire. Les eaux des fleuves et des nappes de surface, situées à proximité immédiate d'installations nucléaires particulières comme ici à Valduc peuvent ainsi présenter localement des concentrations de tritium supérieures aux concentrations observées à l'échelle globale.

Dès que le tritium est introduit dans un cours d'eau, il va être distribué dans tous les compartiments constituant ce milieu dont les principaux sont l'eau, les matières en suspension, les sédiments, la faune, la flore.

Compte-tenu des propriétés proches de l'hydrogène, le tritium a plus tendance à se lier à l'eau pour former de l'eau tritiée (HTO).

Cependant différents modes de transferts vont agir comme la dispersion des activités au sein des compartiments, le transfert d'activité entre les compartiments et la décroissance naturelle

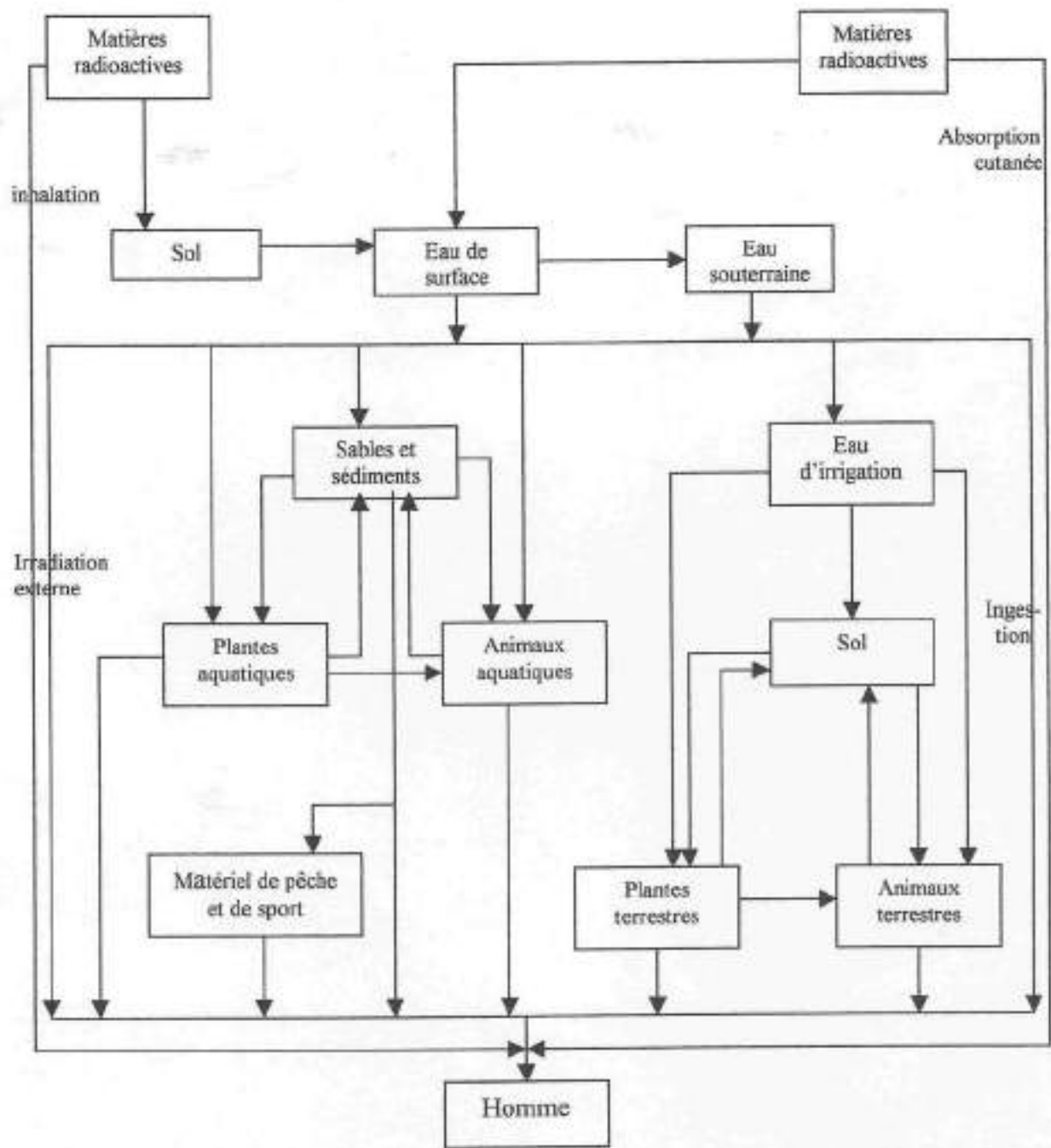


Figure 5 : schéma de transfert du tritium

des activités. Ces différents modes de dispersion vont dépendre du terme source, ici sous forme de rejet gazeux atmosphérique, des caractéristiques hydrauliques, de la dynamique sédimentaire et de la physico-chimie du milieu.

Une fois le tritium déposé à la surface du sol ou de la végétation, il pénètre relativement vite.

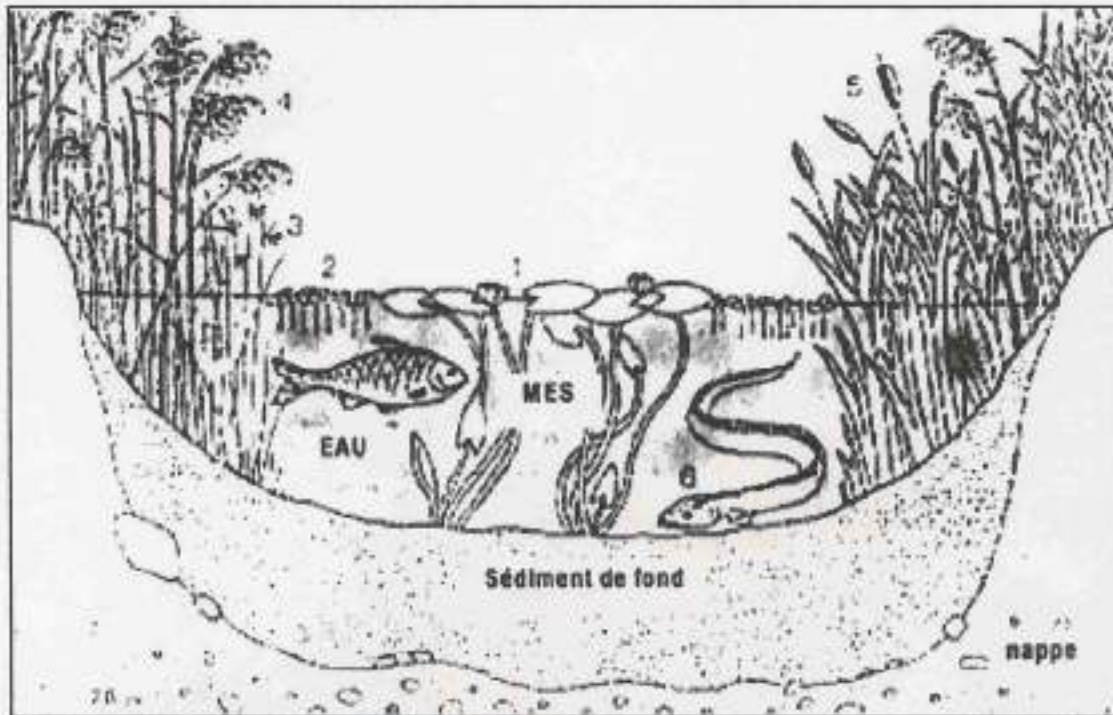


Figure 2 : les différents compartiments du milieu aquatique (Le transfert des radionucléides en eau douce, IPSN CEA-Cadarache)

c) comportement du tritium dans les différents milieux

Figure 5 (voir ci contre) : schéma de transfert du tritium à partir du dégagement de Valduc jusqu'à l'incorporation par l'Homme.

Le tritium se comporte différemment suivant le milieu où il se trouve.

c1) Comportement du tritium dans l'air :

Les formes les plus abondantes sont le tritium gazeux (HT), l'eau tritiée (HTO) et le méthane tritié (CH₃T) qui sont rapidement dispersées. Elles se mélangent aux autres éléments identiques mais non radioactifs. Le tritium gazeux se transforme lentement en eau tritiée en agissant sur les radicaux hydroxydes de l'atmosphère. Le tritium gazeux est également oxydé par le sol pour se transformer en eau tritiée, cette oxydation est plus importante que celle de l'air. Les processus atmosphériques d'élimination du tritium sont appelés dépôt humide ou dépôt sec, selon que les précipitations sont ou non impliquées. Le tritium gazeux et le méthane tritié sont faiblement entraînés par l'eau de pluie à cause de leur faible solubilité.

L'eau tritiée est bien précipitée du fait de sa similitude avec l'eau légère. Les dépôts secs se font sur le sol, la végétation et les eaux de surface (Belot, Roy, Métivier, Le tritium de l'environnement à l'Homme).

c2) Comportement du tritium dans les eaux continentales :

Il se dilue plus ou moins rapidement suivant le courant.

c3) Absorption de l'eau tritiée par les végétaux :

Le tritium gazeux n'est pas absorbé par les végétaux. Au contraire, l'eau tritiée est bien absorbée car elle est très proche de l'eau légère. L'absorption se fait sur les feuilles par diffusion au niveau de la surface foliaire. Les échanges se font par les orifices stomatiques car ils sont beaucoup plus élevés dans la journée que pendant la nuit. Moses et Calvin (1959) ont montré que le tritium pouvait s'incorporer à l'obscurité dans des substances associées au cycle tricarboxylique et à des acides aminés qui en dérivent. L'incorporation du tritium dans certains acides aminés peut être expliquée par l'addition de l'eau tritiée à l'acide fumarique pour donner de l'acide malique, ainsi qu'à la production d'acides glutamiques et aspartiques par amination réductive des acides cétoniques correspondants. L'incorporation de tritium à l'obscurité est donc partie intégrante du renouvellement des substances synthétisées à la lumière et dépend par conséquent de l'activité métabolique du tissu considéré (Belot, Roy, Métivier, Le tritium de l'environnement à l'Homme).

L'environnement peut être exposé au tritium par différentes voies d'incorporation qui sont l'ingestion, l'inhalation et le contact cutané. Bien qu'une peau saine laisse passer le tritium sous forme d'eau tritiée, on peut négliger ce mode de contamination du fait du faible parcours de son rayonnement. Les deux principaux modes de contamination sont l'inhalation et l'ingestion. La dose efficace engagée par unité d'incorporation d'eau tritiée pour un adulte (Publication n° 72 de la Commission Internationale de protection Radiologique) :

Ingestion : $1,8^E-11$ Sv/Bq (Sievert/Becquerel)

Inhalation : $1,8^E-11$ Sv/Bq

4. Les suivis environnementaux déjà existants

La surveillance de l'environnement est assurée par le SPR (Service de Protection des Rayonnements) pour le CEA et par la DDASS pour l'OPRI (Office de Protection des Rayonnements Ionisants (ministère de la santé). Chaque organisme a son propre plan de surveillance.

Sur le plan de suivi de l'environnement du CEA (voir annexe 2), nous pouvons faire quelques critiques. Tout d'abord, le CEA ne mesure que le tritium sous forme d'eau tritiée. Le tritium lié à la matière organique non échangeable n'est pas mesuré, or c'est la part du tritium qui s'accumule le plus. Sur tous les points de prélèvements, seul un point est situé sous les vents dominants : Salives. Mis à part Léry où l'on trouve un très fort marquage, à cause de sa proximité avec le centre, les mesures effectuées par la Seiva montrent bien que la zone de marquage est située en direction nord-est. Or les mesures du CEA de ces suivis sont effectuées dans les autres directions. Enfin le végétal choisi pour effectuer les mesures, qui est de l'herbe, ne subit pas un flux continu d'eau tritiée. On peut également remarquer que tous les points de prélèvements sont situés dans un rayon très proche du centre.

Le plan de surveillance de l'OPRI (voir annexe 2), est aussi soumis aux mêmes critiques : recherche uniquement de l'eau tritiée, points proches du centre et peu de points situés sous les vents dominants. Le seul point utilisé pour l'entrée du tritium dans la chaîne alimentaire est situé au nord du centre et est peu sous l'influence des vents dominants. Cela peut s'expliquer du fait qu'il existe peu d'exploitations autour du CEA.

Ces deux plans de suivi ont pour but d'évaluer l'impact sanitaire du centre de Valduc et de savoir si les doses de radioactivité mesurées à chaque endroit dépassent ou non la norme autorisée. L'OMS recommande de ne pas dépasser 7800 Bq/l pour l'eau de boisson et la directive européenne 98/83 du 3 novembre 1998, relative à la qualité des eaux destinées à la consommation humaine, préconise le respect d'une valeur guide de 100 Bq/l.

II. METHODE DU SUIVI DE L'ENVIRONNEMENT

1. Le choix de la zone témoin et des sites de suivi

A partir de toutes les données évoquées précédemment, nous pouvons limiter notre zone d'étude pour le suivi, à un secteur partant du CEA Valduc et se dirigeant vers nord-est. En effet, cela correspond à l'orientation des vents dominants susceptibles de transporter le tritium et de le déposer, tout comme la géologie qui permet les infiltrations directes dans les cours d'eau proches. Le choix de cette zone est également confirmé par les différentes analyses déjà effectuées qui montrent que les régions les plus contaminées par le tritium sont situées au nord-est.

CARTE DES LIEUX DE PRELEVEMENT DU SUIVI ENVIRONNEMENTAL

- CEA Valduc
- Point de prélèvement d'eau
- Point de prélèvement de mousse
- Point de prélèvement de sédiment
- Point de prélèvement de poisson
- Direction des vents dominants
- N

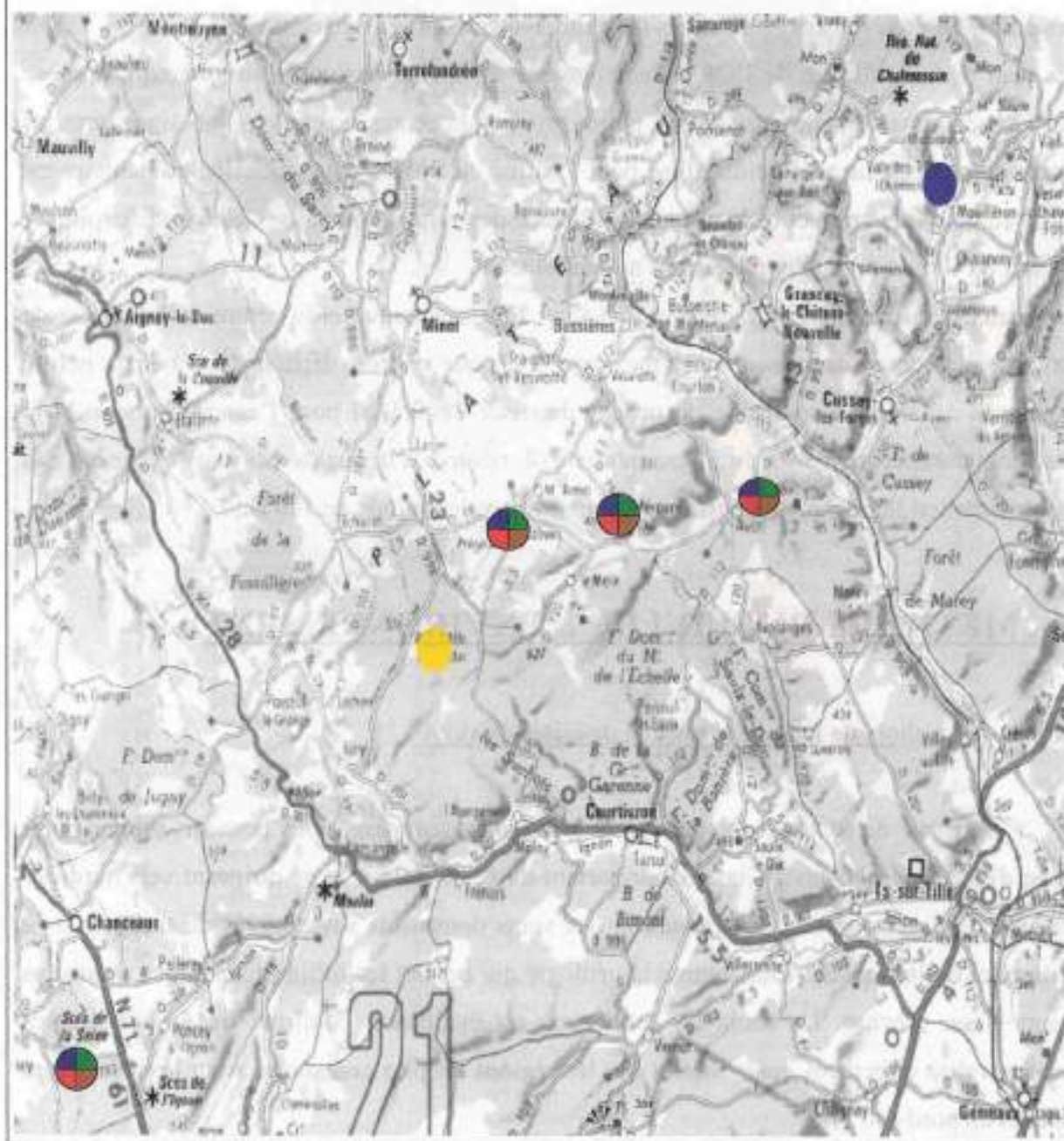


Figure 6 : Carte du suivi

Le fait que le tritium se lie préférentiellement à l'eau, nous amène à penser qu'il serait relativement intéressant d'étudier le milieu aquatique. En effet, de part leurs bassins versants, les rivières vont recevoir une partie des éléments qui pourraient se déposer. Le milieu aquatique a également l'avantage de présenter des bio indicateurs (animaux et végétaux). De plus, l'eau est à l'origine de la chaîne trophique, servant à l'arrosage des cultures, à la pêche, et aux eaux de consommation.

Un autre avantage nous confortant dans ce choix, est que tous les sites nucléaires sont construits à proximité de cours d'eau, car l'eau sert au refroidissement des réacteurs. Comme le tritium est un produit de fission résultant de toute réaction nucléaire, il se retrouve dans l'eau. Ainsi nous obtenons un point de comparaison entre le site de Valduc et les autres installations nucléaires.

Autour de Valduc, nous trouvons trois rivières qui sont l'Ignon à l'est et les deux bras de la Tille au nord-est. Comme il n'a pas été fait de point zéro, avant la mise en route du site, nous devons prendre un point de référence, qui nous servira de témoin et auquel nous comparerons nos résultats. Ce point témoin doit bien sûr être dans un milieu aquatique et ne doit pas être sous l'influence des émissions de Valduc. A l'ouest du site, se trouve la source de la Seine, qui dans les dernières analyses avait une activité de 6 Bq/l en 1998, ce qui représente le bruit de fond naturel.

2. Choix des cours d'eau

Le choix des cours d'eau pour les points de prélèvements va dépendre de la qualité de l'eau et des facteurs physico-chimiques. Sous la direction des vents dominants, nous avons un cours d'eau : La Tille. Ce cours d'eau a la particularité d'avoir au moins six sources qui se rejoignent au lieu dit Les Forges. On peut choisir trois points de prélèvements sur le bras de la Tille le plus proche du centre de Valduc : Salives à 3 km, Barjon à 6,5 km et Avot à 10 km. Puis sur une autre source de la Tille, nous pouvons choisir un point à Mouilleron à environ 20 km. Ces quatre points forment à peu près une ligne droite sous la direction des vents dominants (voir figure 6). Salives est le point le plus proche du CEA situé sous les vents dominants où l'on trouve un milieu aquatique. Cela va nous permettre d'avoir des mesures de référence nous donnant normalement les valeurs les plus élevées. Barjon est un peu plus en aval et la Tille à cet endroit passe au pied d'une colline, le mont Mercure qui culmine à 470 mètres. Cela peut avoir l'effet d'arrêter les vents et d'entraîner un dépôt des radionucléides. Le choix d'Avot nous permettra de suivre le gradient de diminution du tritium dans

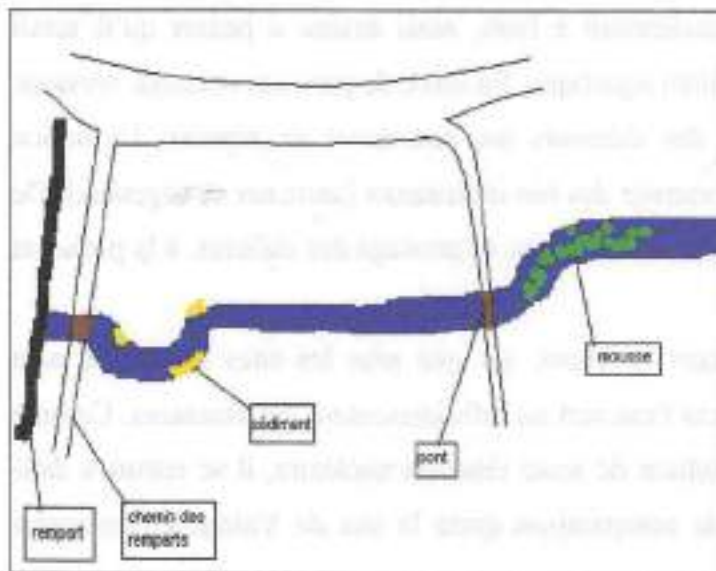


Figure 7a : Station de Salives

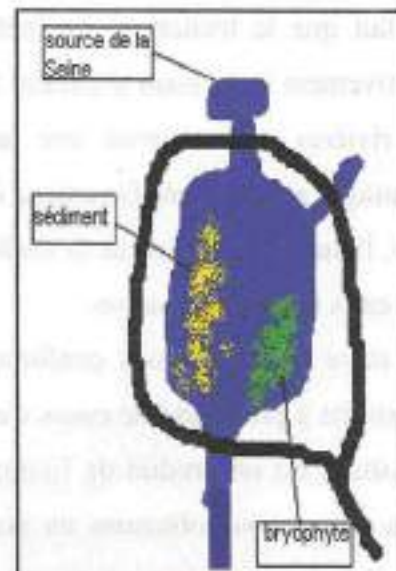


Figure 7d : Station de la Seine

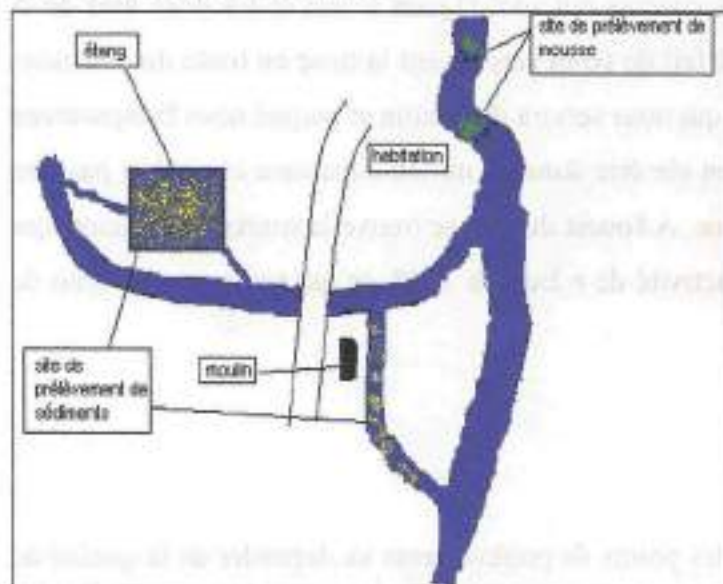


Figure 7b : Station de Barjon

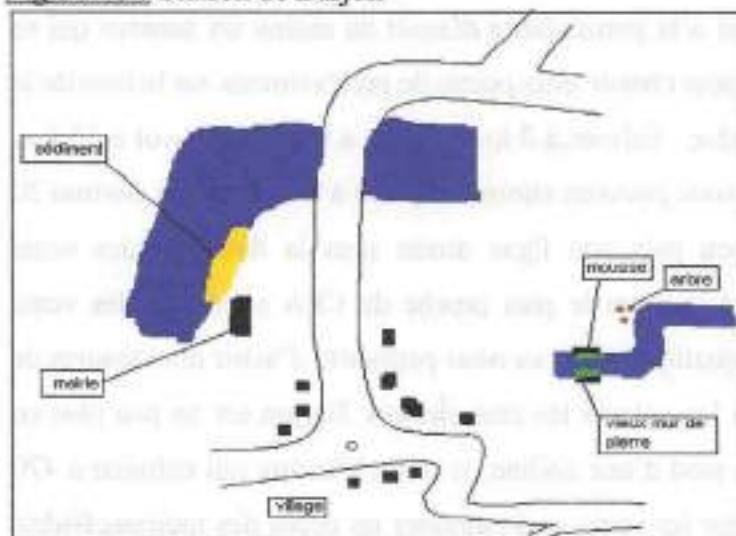


Figure 7c : Station d'Avot

l'écosystème aquatique. De plus il est situé juste avant la confluence des différentes sources de la Tille. Mouilleron va nous permettre de voir si le marquage du tritium est toujours significatif. Il ne subit pas l'apport de tritium par le courant venant de la Tille de Salives, car elle n'a pas la même source. Les différentes stations avec les lieux de prélèvement sont schématisées ci contre par les figures 7a, 7b, 7c, 7d.

La qualité des eaux à ces différents points est relativement comparable (source : Atlas du bassin Rhône-Méditerranée-Corse) : bonne ou assez bonne. La note IBGN étant de 17 avec des groupes indicateurs 7 voire 8 composés de plécoptères (*Leuctridae leuctra* et *Perlodidae isoperla*). Ce sont des milieux stables. Au niveau physico-chimie, ces quatre points peuvent être considérés comme semblables. Le paramètre déclassant pour la qualité des eaux suivant la norme AEP est bactériologique (source : Valorisation des données hydrobiologiques de 1972 à 1996 (DIREN Bourgogne)).

La nature géologique des terrains composant les systèmes aquifères sont des calcaires fissurés. Ce sont les karsts des plateaux de Bourgogne et de Haute Saône formant des eaux souterraines profondes qui sont des ressources délicates à mobiliser. De plus, il a été observé par les analyses de la DIREN une contamination due à des éléments radioactifs, sur la nappe des sources de la Tilles (source : Valorisation des données hydrobiologiques de 1972 à 1996 (DIREN Bourgogne)).

3. Choix des indicateurs

a) Caractéristiques que doivent avoir les indicateurs

Un indicateur, pour être retenu, doit répondre à plusieurs critères :

- Il doit avoir la capacité d'accumuler le tritium
- Il doit avoir une représentativité relativement importante, c'est-à-dire qu'il puisse être prélevé sans effort de recherche, et que son prélèvement n'ait aucun effet sur l'environnement
- Il doit être stable dans le temps pour pouvoir être prélevé au moment choisi
- Il doit être en quantité suffisante pour satisfaire la quantité demandée par le protocole d'analyse
- Il doit avoir une durée de vie dans le milieu assez longue

b) Etat des lieux

Les indices biologiques nous ont fourni des listes faunistiques. On peut remarquer sur ces listes qu'il n'y a pas vraiment d'espèces qui correspondent aux critères évoqués

précédemment. Les macro invertébrés sont trop petits et demandent un effort de prélèvement et de tri trop important pour la détermination taxonomique. De plus il en faudrait une quantité considérable pour atteindre la masse d'échantillon nécessaire pour les analyses. Ils ont aussi une courte durée de vie dans le milieu aquatique et donc ne peuvent pas réellement accumuler le tritium. Les cours d'eau sont classés en première catégorie piscicole, et sont de bonnes rivières à truites. La végétation est également présente sous forme de mousse aquatique.

c) Choix des indicateurs

Le milieu aquatique contient trois compartiments : l'eau, le sédiment composant le fond et la matière vivante sous forme végétale et animale. On va choisir de prendre un élément dans chaque compartiment (eau, sédiment, végétal, animal).

L'eau est le premier choix pour plusieurs raisons, c'est le lieu où le tritium se fixe le plus facilement, c'est le lieu de vie de tous les organismes aquatiques. Elle correspond parfaitement aux critères évoqués (voir paragraphe sur les caractéristiques que doivent avoir les indicateurs). L'eau est facilement échantillonnable, elle est accessible tout le temps et en quantité suffisante et son prélèvement n'a aucun effet sur le milieu.

Comme indicateur animal, nous pouvons choisir les poissons. Ils pourraient accumuler le tritium par contact constant avec l'eau tritiée et l'incorporation serait possible par la respiration branchiale. Leur échantillonnage est rapide par la pêche électrique. La masse d'un seul individu peut être suffisant pour l'analyse et le prélèvement d'un individu n'entraîne pas de déséquilibre dans le milieu. De plus, les poissons sont déjà utilisés comme indicateurs pour mesurer l'accumulation de certains métaux lourds.

Le sédiment correspond au compartiment sur lequel va se déposer la matière organique due à la décomposition des végétaux et des animaux. Il a été observé que les sols dans les premiers centimètres ont une potentialité d'oxydation plus ou moins rapide due aux organismes porteurs de l'enzyme hydrogénase (Sweet et Murphy, 1981). Il permettrait de voir l'accumulation sur une longue période. Plus le sédiment est fin et contient de la matière organique, plus son pouvoir à fixer les radioéléments est élevé. Par cette accumulation de matière morte marquée au tritium, cela pourrait former des poches de réserves qui pourraient être relâchées par une remise en suspension du fait des courants, des crues et des mélanges.

La mousse aquatique semble un bon représentant pour les végétaux. C'est un organisme fixe, donc qui fixera le tritium présent dans le lieu où il vit. Les bryophytes peuvent intégrer et concentrer dans leurs tissus les micro-polluants minéraux et organiques. Elles pourraient donc capter le tritium sous forme d'eau tritiée puis l'accumuler sous forme de tritium lié à la matière organique en position non échangeable par des processus comme la photosynthèse. Or

ici le milieu contient continuellement du tritium. De plus, les résultats de l'activité en tritium autour de la centrale de Fessenheim, confirme notre choix car ces indicateurs sont capables d'accumuler le tritium (voir tableau 1).

| N° LMRE | Nature | Date | Activité ^3H lié à la date de prélèvement | |
|---------|------------------|----------|--|------|
| | | | Bq/l | +/- |
| 983037 | Sédiment | 01/07/98 | 3721 | 96 |
| 983040 | Sédiment | 02/07/98 | 2956 | 75 |
| 983046 | Sédiment | 03/07/98 | 3035 | 78 |
| 983433 | Sédiment | 03/07/98 | 3943 | 100 |
| 983038 | Mousse aquatique | 01/07/98 | 260 | 7 |
| 983039 | Mousse aquatique | 02/07/98 | 180 | 5 |
| 983432 | Poisson | 02/07/98 | 53,43 | 1,38 |
| 983452 | Poisson | 02/07/98 | 35,04 | 0,92 |
| 983470 | Poisson | 02/07/98 | 62,10 | 1,62 |
| 983471 | Poisson | 02/07/98 | 14,20 | 0,39 |

Tableau 1 : Mesure du tritium dans différents éléments du milieu aquatique dans le Rhin site de Fessenheim (M.Fournier, D.Calmet, N.Coreau, A.Maigret : Le mesurage du tritium des échantillons de l'environnement à l'IPSN).

4. Choix du type d'analyse

Dans chaque prélèvement, on trouvera le tritium sous trois formes différentes.

La première forme est l'eau tritiée qui représente 97 % du tritium. La période biologique de cette forme est de 9,24 jours. La deuxième forme est le tritium organique facilement échangeable. Il s'agit d'un tritium qui se lie sur les molécules à l'intérieur de l'organisme. Il prend la place des atomes d'hydrogène sur des atomes d'oxygène (-OT), des atomes d'azote (-NT) ou des atomes de soufre (-ST). La période biologique de ce tritium est de 22 jours. Il représente environ 3 % du tritium. La troisième forme, le tritium organique non échangeable, est celle qui va mettre le plus de temps à être éliminée par l'organisme. Sa période biologique est de 450 jours (pour l'Homme), ce qui permet une accumulation du tritium à l'intérieur de l'organisme. Ce tritium se forme par la fixation de tritium à la place d'un atome d'hydrogène sur un atome de carbone d'une molécule (-CT). Il n'est pas éliminé simplement dans l'organisme, il doit d'abord subir une dégradation enzymatique (Belot, Roy, Métivier, Le tritium de l'environnement à l'Homme). Le but de ce suivi étant de suivre le marquage du tritium ainsi que son accumulation, nous chercherons le tritium total tout en faisant bien apparaître la quantité des différentes formes dans les résultats.

5. Fréquence des analyses pour chaque indicateur

Compte-tenu de la nature des indicateurs, la fréquence des analyses sera différente pour chacun d'eux. L'analyse sur les sédiments devrait nous permettre de voir une certaine accumulation due au dépôt sur plusieurs années de débris de végétaux de l'environnement. Un prélèvement tous les 5 ans est suffisant. Il faut laisser suffisamment de temps pour permettre un nouveau dépôt.

L'eau en revanche est plus significative de l'instant présent du fait des courants qui diluent le tritium tout au long de la rivière. C'est pour cela qu'un prélèvement au moins tous les ans, permettrait un suivi stable et régulier du marquage de la Tille par le tritium. Ce prélèvement devrait être effectué en période d'étiage. En effet, c'est durant cette période là qu'il y a moins d'eau et donc que le tritium est le moins dilué, contrairement aux périodes de crue.

Pour les poissons et les mousses, ils représentent les deux formes de vie, végétale et animale, présentes dans le milieu aquatique. Ils sont directement soumis à la contamination du milieu. Tout au long de leur vie, ils vont pouvoir ainsi accumuler du tritium. Une analyse tous les 2 ans pourrait permettre de voir l'évolution du marquage au tritium ainsi que son élimination du fait de la période biologique de l'élément.

6. Modes de prélèvements et techniques d'analyses

a) Modes de prélèvements

a1) L'eau :

Le prélèvement des échantillons d'eau se fait manuellement en utilisant un récipient en verre et parfaitement étanche. Avant le prélèvement, le flacon sera rincé avec l'eau du milieu. La quantité à prélever est de 30 à 50 ml. Le prélèvement s'effectuera à mi-profondeur. Le flacon est ensuite mis à l'obscurité et à une température de 6°C. Il devra être envoyé au laboratoire dans les 24 heures.

a2) Les sédiments :

Ils ont la propriété d'intégrer et de concentrer les éléments dissous dans l'eau. Cela permet de détecter plus facilement certains micro-polluants organiques ou métalliques.

Pour le prélèvement, les stations doivent être choisies suivant différents critères :

- les analyses physico-chimiques se faisant sur des fractions fines (<2 mm), il faut chercher ce type de substrat.

Fiche de prélèvement du sédiment :

| | | |
|---|-------------|--------------|
| 1 - Localisation du prélèvement : | | |
| Station | Nom : _____ | Code : _____ |
| Site | Nom : _____ | Code : _____ |
| Si le point de prélèvement est différent du point habituel, le localiser : _____ | | |
| 2 - Date : | | |
| Prélèvement effectué le : _____ à : _____ (h-mn) | | |
| 3 - Hydrologie : | | |
| Du jour : étiage – eaux moyennes – crue – décrue | | |
| La semaine : étiage – eaux moyennes – crue – décrue | | |
| 4 - Conditions de prélèvement : | | |
| Facile – difficile (pourquoi) : _____ _____ | | |
| 5 - Le prélèvement : | | |
| Hauteur d'eau moyenne (m) : _____ | | |
| Type de sédiments : vases – limons – sables – graviers | | |

Fiche de prélèvement des mousses:

| | | |
|--|-------------|--------------|
| 1 - Localisation du prélèvement : | | |
| Station | Nom : _____ | Code : _____ |
| Site | Nom : _____ | Code : _____ |
| 2 - Date : | | |
| Prélèvement effectué le : _____ à : _____ (h-mn) | | |
| 3 - Hydrologie : | | |
| Du jour : étiage – eau moyenne – crue – décrue | | |
| Les semaines précédentes : étiage – eau moyenne – crue – décrue | | |
| 4 - Description du site de prélèvement : | | |
| Substrats géologiques : | | |
| Siliceux – argileux – marnocalcaire – carboné – autre : | | |
| Supports de fixation : | | |
| Cailloux – dalles – racines – artificiel – autre : | | |
| Vitesse moyenne : | | |
| <5cm/s – 5 à 25 cm/s – 25 à 75 cm/s – 75 à 150 cm/s – >150 cm/s | | |
| Luminosité | | |
| Dégagé – assez dégagé – assez couvert – très couvert | | |
| Espèce de mousse prélevée : | | |
| <i>Font. antipyretica</i> – <i>Rhyn. riparioides</i> – <i>Cinc. nigricans</i> – <i>Cinc. Dambicus</i> – <i>Plat. riparioides</i> | | |
| Autres : _____ | | |
| Abondance des mousses : | | |
| Rares – localisées – abondantes – envahissantes | | |
| Etat physiologique : | | |
| couleur verte – pousses récentes – tige dénudée | | |
| Feuilles jaunies – dépôt minéral | | |

Figure 8 : Fiche de prélèvement

-éviter les zones où le courant a une vitesse supérieure à 10 cm/s. A cette vitesse, les particules fines sont transportées.

-on prélèvera, pour les cours d'eau avec des méandres, dans les concavités car les particules se déposent plus à ces endroits ou dans les zones avec beaucoup de végétaux aquatiques car ils ralentissent le courant.

-les sédiments recherchés sont vaso-organiques de couleurs sombres.

a21) Le prélèvement :

Il est recommandé de réaliser au minimum trois prélèvements par site, espacés de quelques mètres. L'épaisseur de sédiment prélevé sera de 2 à 5 cm, soit la couche superficielle pour traduire les phénomènes récents. La quantité de sédiment à prélever doit permettre d'avoir une masse sèche de 1 kg (IPSN, LMRE d'Orsay). Le prélèvement doit se faire en fin d'étiage car cette période permet une meilleure sédimentation. Ne pas oublier de noter les conditions hydrologiques (pluviométrie) des semaines précédentes. En cas de crue, il est préférable de reporter les prélèvements.

Du fait de la faible profondeur des cours d'eau, une drague manuelle (une pelle plastique ou une spatule) sera utilisée. De forme rectangulaire, elle est munie de parois latérales, d'un bec verseur et d'un manche. Il faut la remonter le plus lentement possible. L'eau surnageante, et les éléments atypiques (organismes, débris végétaux et graviers) sont à retirer de l'échantillon (Le prélèvement en rivière, qualité des eaux superficielles, DIREN Centre). Remplir la fiche de prélèvement (voir figure 8 ci-contre).

a22) Mesures complémentaires à effectuer sur le terrain :

Mesure de la température du sédiment : elle se réalise à l'aide d'un appareil électrométrique. La mesure doit être faite dans le sédiment directement dans la rivière. Si cela n'est pas possible, la mesure sera faite dès la remontée du sédiment prélevé. La température est obtenue quand la valeur indiquée est stable.

Mesure du pH : il se mesure à l'aide d'un pH-mètre avec une électrode en verre (norme NF T 90-008 avril 1953), une électrode de référence au calomel-KCl saturé et d'un dispositif potentiométrique. Après l'étalonnage, l'électrode est plongée dans le sédiment. Attendre plusieurs minutes pour que la valeur se stabilise. Si la mesure est pratiquée dans l'échantillon prélevé, il faut vérifier que la température reste constante.

Mesure du potentiel d'oxydoréduction : elle se réalise avec une électrode de platine poli et une électrode de référence. Il varie en fonction des éléments présents, de la température, et du pH. Cette mesure a pour but de connaître l'importance du pouvoir réducteur ou sédiment et le degré d'oxydation de certains ions tels que C, N, P, S, Fe, Mn. Il est

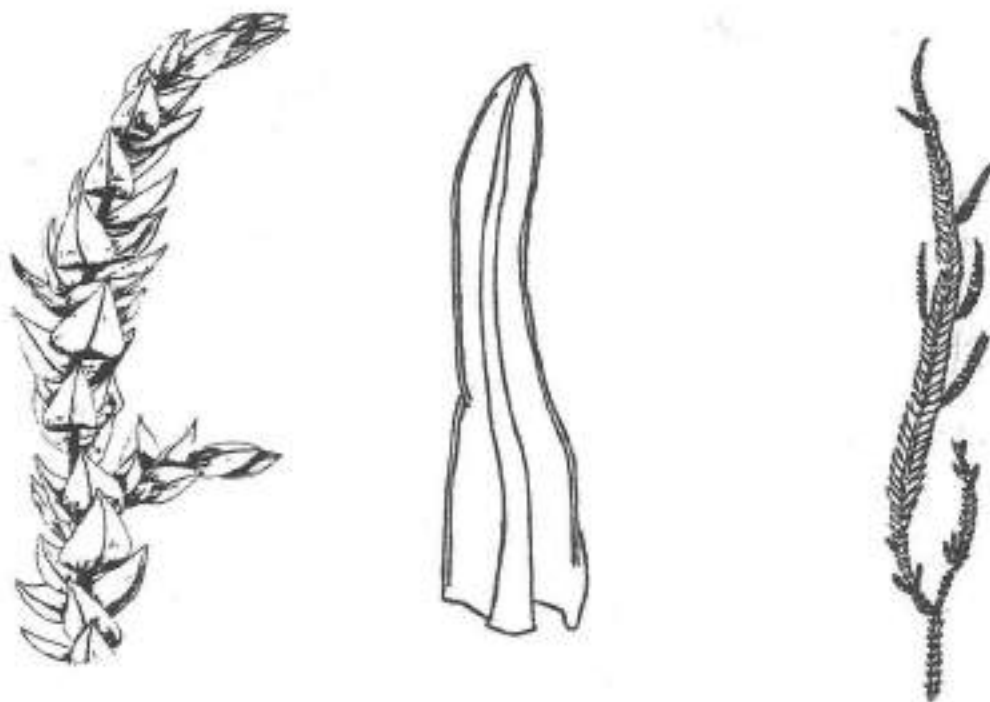


Figure 9 : Platyhypnidium riparioides, Cinclidotus danubicus, Fontinalis antipyretica

préférable d'effectuer cette mesure in situ pour ne pas modifier les équilibres ioniques. Pour la mesure, après l'étalonnage, plonger l'électrode dans la solution.

Mesure du rH (cologarithme de la pression d'équilibre d'hydrogène moléculaire régnant dans un milieu) : il permet de connaître l'aptitude du milieu à être réduit ou oxydé par un autre milieu ou produit déterminé. Il se mesure avec un appareil de même type que pour le pH, le potentiel redox et la température. Entre 0 et 27 le milieu est considéré comme réducteur, entre 27 et 54 comme oxydant. La mesure se fait en plongeant l'électrode dans la solution après étalonnage.

Toutes ces mesures vont permettre de savoir si le sédiment analysé va pouvoir transformer du HT en HTO comme le fait le sol.

a23) Mesure en laboratoire :

La granulométrie doit être mesurée pour permettre une comparaison entre les différents sédiments ainsi que le pourcentage de matière organique contenu dans le sédiment prélevé pour la comparaison des échantillons. Les particules les plus fines ont tendance à fixer davantage de radioactivité que les particules les plus grosses. Cette mesure semble importante puisqu'on recherche le tritium lié à la matière organique.

a3) Les végétaux :

Les bryophytes seront recherchées sur des supports durs et stables (blocs, piliers de pont...). Des espèces comme *Fontinalis antipyretica*, *Platyhypnidium riparioides* ou *Cinclidotus* (figure 9 ci contre) peuvent être utilisées. Le prélèvement se fera de préférence au début de l'étiage (juin, juillet). Il faut éviter la fin de l'étiage car les échanges entre les mousses et l'eau sont réduits. On peut prélever une seule espèce, mais également faire un mélange de plusieurs. L'échantillonnage des végétaux se fait en les ramassant à la main. La quantité brute doit permettre l'obtention d'une quantité sèche de 160 g (IPSN LMRE d'Orsay). L'échantillon récolté est lavé très soigneusement dans l'eau de la rivière pour éliminer le maximum d'impuretés (sables, algues, faunes...) et égoutté. Il est préférable de le mettre directement dans le récipient où il sera traité, sinon il devra être placé au congélateur dans un conteneur étanche. Cela permettra d'éviter la décomposition et les contaminations croisées par l'intermédiaire de l'air. Le transfert de ces échantillons congelés dans le dispositif d'extraction du tritium se fait après les avoir ramenés à température ambiante dans un dessiccateur. Ce dernier permet d'éviter la condensation indésirable d'une vapeur d'eau atmosphérique sur l'échantillon. Lors de l'échantillonnage, ne pas oublier de remplir la fiche de prélèvement (voir figure 8).

a4) Les poissons :

Le prélèvement des poissons se fait par pêche électrique, qui sera assurée par le Conseil Supérieur de la Pêche. Après avoir été mis dans du formol, les échantillons seront congelés dans des sacs de plastique alimentaire avant d'être envoyés au laboratoire. La quantité minimum à prélever doit être suffisante pour obtenir une quantité minimale sèche de 100 g.

b) Modes de récupération du tritium sous ses différentes formes

Pour le tritium contenu dans le sol et les plantes, nous devons d'abord extraire l'eau libre et le tritium facilement échangeable. On utilise pour cela la distillation azéotrope (Kim et Baumgärtner, 1991). Il faut un ballon à distiller et un tube récepteur de Dean-Stark. L'échantillon est placé en présence de cyclohexane qui possède les mêmes caractéristiques azéotropiques soit un point d'ébullition de 69,8 °C et 8,5 % de vapeur d'eau. Il n'existe pas d'échange de tritium entre le cyclohexane et la vapeur d'eau. Après quelques heures de distillation, le distillat est recueilli dans le tube récepteur où les deux phases sont séparées. L'eau ainsi distillée ne contient aucun constituant pouvant interférer avec le liquide du scintillateur utilisé pour la mesure du tritium. Le cyclohexane résiduel est éliminé par distillation sous vide à 70 °C dans un évaporateur rotatif. Pour extraire le tritium organique facilement échangeable, on rajoute de l'eau sans tritium et on redistille. Le cyclohexane est de nouveau éliminé et l'on obtient ainsi un échantillon sec qui pourra être brûlé pour séparer le tritium organique non échangeable. L'eau tritiée recueillie dans le tube récepteur de l'appareil à distiller est couverte d'une couche d'hydrocarbure plus légère qui empêche tout échange de tritium avec la vapeur d'eau de l'atmosphère du laboratoire.

L'extraction du tritium lié à la matière organique se fait après avoir extrait le tritium échangeable et l'eau libre. Il reste ce que l'on appelle le tritium lié à la matière organique en position non échangeable. Il est extrait de l'échantillon sec par combustion. Il existe deux méthodes que l'on choisira selon la masse de l'échantillon.

La première méthode utilise un tube de combustion en quartz alimenté en oxygène et dont la partie terminale, en aval de l'écoulement des gaz, est remplie d'un catalyseur composé par exemple de fils de CuO chauffés à 800 °C. Attention, pour que la combustion de l'échantillon ne soit pas explosive, il faut que l'échantillon soit pyrolysé progressivement sous une atmosphère pauvre en oxygène ou même inerte. Les gaz de pyrolyse sont ensuite brûlés sous oxygène dans la partie du four où se trouve le catalyseur. L'échantillon est chauffé de l'extérieur du tube à combustion par un brûleur à gaz ou un four électrique mobile qui est déplacé en sens contraire du courant d'oxygène. L'eau de combustion est recueillie dans un

piège refroidi par un mélange de carboglace et de méthanol. Puis elle sera purifiée par distillation en présence de HMnO_4 et de Na_2O_2 pour enlever les contaminants organiques et minéraux indésirables. Cette méthode est longue mais elle permet de brûler des échantillons de masse relativement importante de l'ordre de quelques dizaines de grammes.

La deuxième méthode utilise la combustion dans une bombe de Parr. L'échantillon sous forme sèche est pulvérisé puis comprimé sous la forme d'une pastille de 15 g au maximum. Elle est introduite dans la bombe où elle est brûlée sous 3,1 Mpa d'oxygène (Moghissi *et al.*, 1975). L'eau de combustion extraite sous vide est condensée dans deux pièges froids refroidis avec de l'azote liquide. Cette méthode est rapide (environ 1 heure), donne de l'eau qui généralement peut être comptée sans purification, on peut traiter 4 échantillons en parallèle. Par contre la masse des végétaux est limitée à 15 g de matière sèche (Belot, Roy, Métivier, Le tritium de l'environnement à l'Homme).

c) Méthodes d'analyses

La scintillation :

C'est le moyen le plus utilisé pour mesurer le tritium. Le principe est que le tritium émet des rayonnements bêtas moins qui vont exciter un liquide scintillant. Cette excitation va entraîner une émission de photons qui seront comptés. Cela nous donne l'activité en tritium de la solution. Deux éléments sont importants :

- l'enrichissement électrolytique.
- flacons de comptage et liquide scintillant.

-l'enrichissement électrolytique :

Cette méthode est basée sur le fait que le tritium se dégage à la cathode plus lentement que l'hydrogène léger. L'analyse d'un échantillon de 0,5 l se fait après distillation en présence d'entraîneurs pour éviter le passage d'éléments indésirables dans le distillat. 100 ml de ce distillat final sont transférés dans une cellule électrolytique et réduits à 5ml par électrolyse en présence de peroxyde de sodium. Un courant initial de 10 A passe à travers 10 cellules placées en série pendant une dizaine d'heures. L'électrolyse rejette des gaz en dehors de l'installation dans un espace qui devra être bien ventilé. La fraction du tritium initial récupérée dans les concentrations finales est comprise entre 0,75 et 0,9, les 5 ml résiduels seront analysés par scintillation liquide.

-flacons de comptage et liquide scintillant :

La capacité standard des flacons est de 20 ml. Ils peuvent être en verre, polyéthylène, polyéthylène téflonné (flacon à faible diffusion), et téflon. D'après Schönhofer (1995), les flacons de polyéthylène avec un enduit intérieur de téflon forment un bon compromis. Ils ne

sont pas affectés par la diffusion du solvant, présentent un bon bruit de fond et une bonne efficacité. Les liquides scintillants sont maintenant choisis de façon à être biodégradables pour être envoyés dans les décharges de produits non dangereux tout en étant adaptés au comptage à bas niveau. Nous pourrions utiliser l'Optiphase Hisafe 3 (LKB Wallac) ou le Quickszint 400 (Zinsser). Tous les deux permettent le mélange dans les proportions de 8 ml d'eau pour 12 ml de liquide scintillant. L'étalonnage se fera par la méthode de l'étalon interne, en ajoutant une quantité connue de solution étalonnée à des échantillons types.

La spectrométrie de masse :

Méthode inventée par Clarke *et al.* en 1976. Un échantillon de quelques dizaines de ml est préalablement dégazé puis stocké dans une ampoule en verre scellée à la flamme. Après une période d'attente de quelques semaines à quelques mois, les gaz dissous sont admis dans un spectromètre de masse à double faisceau fonctionnant à régime statique et spécialement adapté à la mesure de ^3He et ^4He dans de petits échantillons d'hélium. La quantité de ^3He attribuable à la décroissance du tritium est obtenue en tenant compte de la contribution de l'hélium atmosphérique dissous dans le verre de l'ampoule et relâché dans l'eau lorsque l'ampoule est scellée à la flamme, ainsi que des blancs de raies du spectromètre. Si on a des échantillons de 40 ml stockés pendant 6 mois, la limite de détection est de 0,012 Bq/l. cette limite peut être améliorée en augmentant le volume de l'échantillon et en utilisant un spectromètre de masse d'une plus grande sensibilité.

III. VALIDATION

La particularité du CEA Valduc étant de ne rejeter que des radionucléides de façon exclusivement atmosphérique, nous devons savoir si les indicateurs choisis, qui sont valables pour d'autres endroits où les rejets se font directement dans le milieu aquatique, sont aussi valables pour Valduc. C'est pourquoi nous allons regarder ces indicateurs pour répondre aux questions suivantes :

- La zone d'étude est-elle bien choisie ?
- La distance maximale de l'étude est-elle suffisante ?
- Le sédiment accumule-t-il bien le tritium ?
- La mousse aquatique accumule-t-elle bien le tritium ?
- Le poisson accumule-t-il bien le tritium ?

1. Choix des indicateurs et des lieux

Le protocole est proposé par le laboratoire qui est chargé de faire les analyses. Il devrait être sensiblement identique à celui proposé précédemment. Le lieu de prélèvements est Salives pour les sédiments, les poissons et les mousses. Compte tenu des conditions climatiques qui ont entraîné de fortes pluies avec des inondations, les mesures de validation n'ont pas pu être toutes effectuées. En effet le tritium s'est retrouvé trop dilué par rapport à d'habitude. Le devis pour le reste de la validation est présenté dans l'annexe 4.

2. Résultat

Certaines mesures ont été effectuées avant les inondations. Les résultats obtenus permettent de faire la validation sur quelques hypothèses.

a) Mesure de l'eau :

| Lieu de prélèvement | Nature du prélèvement | Résultat En Bq/l |
|---------------------|-----------------------|------------------|
| Salives | Eau de rivière | 54,4 |
| Source de la Seine | Eau de rivière | 6 |

Source : Mesure du CEA Valduc (moyenne 2000)

b) Mesure du poisson :

| Lieu de Prélèvement | Espèce de Poisson | Tritium total Bq/kg de matière fraîche |
|---------------------|-------------------|--|
| Salives | Loche franche | 15,4 |

Source : Campagne d'analyse SEIVA/CEA Valduc (1999).

3. Validation statistique

Nous allons utiliser le test statistique du X^2 pour valider ou non nos résultats. Ce test simple va nous permettre de voir si les résultats trouvés ont une valeur significative par rapport à la valeur de référence. Il se calcul par la formule suivante :

$$X^2_{obs} = \sum \frac{(\text{valeur observée} - \text{valeur théorique})^2}{\text{valeur théorique}}$$

EVALUATION DU TRANSFERT A L'HOMME PAR INGESTION

| Nourriture | Quantité consommée par an | Activité | Dose |
|------------|---------------------------|-----------------------|-------------|
| Eau | 0,5m ³ | 0,05Bq/m ³ | 4,90E-13Sv |
| Poisson | 15,00kg | 15,40Bq/kg | 4,16E-09Sv |
| Végétaux | 200,00kg | 471,00Bq/kg | 1,70E-06Sv |
| total | | | 1,70E-06Sv |
| LAD=5mSv | | | 1,70E-03mSv |

Tableau 2 : Exemple de calcul de la dose reçue par an pour un habitant vivant à Salives en prenant comme hypothèses qu'il ne mange que des poissons de la rivière (en 1999), que des végétaux (lichen en 2000) situés autour du centre et qu'il ne boit que de l'eau de la rivière (en 2000). (Chiffres d'activités donnés par les résultats d'analyses de la Seiva).

LAD : Limite Annuelle de Dose.

Voici les conclusions :

- La zone d'étude :

La valeur de p pour 1 ddl est de $1,6^E-4$ ce qui est très inférieur au seuil choisi de 0,05. Les valeurs sont donc différentes. L'activité en tritium dans la zone choisie est très supérieure à l'activité hors zone d'étude donc nous pouvons considérer que le choix de la zone d'étude est validé. La dispersion des rejets gazeux est bien sous l'influence des vents.

- Le poisson :

Les résultats des tests sur les poissons avec 1 ddl nous donnent une valeur de p égale à $2,5^E-3$. Par rapport au seuil de confiance de 0,05 l'hypothèse disant que les valeurs sont identiques, est rejetée. L'activité de l'eau est donc supérieure à celle des poissons. Dans ce cas, le choix des poissons comme bioaccumulateur et bioindicateur n'est pas validé.

IV. CONCLUSION

Comme le choix des poissons ne s'est pas révélé bon, et qu'il serait bien de garder les quatre compartiments pour le suivi, on pourrait utiliser les macroinvertébrés benthiques comme les chironomes qui vivent dans les sédiments. L'échantillonnage serait alors beaucoup plus difficile à effectuer à cause de la reconnaissance taxonomique.

Le choix de la zone d'étude sous les vents dominants est validé, cependant il ne faut pas oublier la nature du sol qui est calcaire, permettant la formation de nappes souterraines. Une fois ce plan de suivi mis en place, on pourrait le compléter par des prélèvements dans les nappes souterraines. On pourra aussi effectuer une recherche sur les indicateurs choisis des autres radioéléments (plutonium, uranium...) émis par le centre.

Cette méthode utilise les mêmes indicateurs que ceux qui ont été choisis pour la synthèse des connaissances sur la radioécologie du Rhône de décembre 1992. Cela va permettre de pouvoir effectuer quelques comparaisons sur le marquage retrouvé dans l'environnement.

D'autres indicateurs pourraient être testés, des cernes d'arbres de la ripisylve présenteraient l'avantage d'avoir un organisme faisant la transition air-eau et leur âge est facile à déterminer. Pour les échantillons reflétant une accumulation, il faut tenir compte de la période radioactive (12,34 ans) pour pouvoir avoir une idée de la quantité de tritium incorporée pour essayer de faire le calcul de dose reçue initialement. En extrapolant, nous pourrions aussi faire un calcul de la dose ingérée par un homme ne buvant que de l'eau de la rivière, ne mangeant que les poissons et les végétaux de la rivière. Cela nous donnerait l'hypothèse la plus critique de

l'irradiation reçue. Sur le tableau 2, le calcul a été réalisé et donne une irradiation annuelle de $9,74 \cdot 10^{-5}$ mSv pour une limite de 5 mSv.

Les rejets atmosphériques de tritium par le CEA Valduc ont très nettement diminué depuis les années 1975. Cela est dû notamment aux efforts faits ainsi qu'à la réglementation qui n'a cessé de diminuer les autorisations de rejet. C'est sûrement pour cela que les activités retrouvées maintenant sont moins significatives. Cependant, on peut se demander si l'accumulation de ces faibles doses pendant plusieurs années, peut avoir des effets sur l'environnement et l'Homme.

Pour mesurer réellement l'impact du CEA Valduc sur l'environnement, on pourrait faire des analyses complémentaires sur des organismes qui ont bien accumulé le tritium :

Des études génétiques sur les organismes et même sur les cellules de la lignée germinale (ovule, spermatozoïde, spore...) qui sont les plus sensibles aux radiations, pourraient peut être montrer des anomalies qui ne se traduiraient que par une baisse de la fécondité car les gamètes anormaux ne seraient pas viables et cela entraînerait la baisse du nombre d'individus dans le milieu (Bertin M., Les effets biologiques des rayonnements ionisants, p. 122-127).

Il serait nécessaire de réaliser une comparaison de la taille d'individu ou d'organe entre des organismes autour de Valduc et d'autres sous l'influence d'aucune installation nucléaire.

Pour étudier le temps de transfert, la période biologique des mousses, on pourrait réaliser des analyses sur des mousses dans un lieu où le marquage est fort, prendre d'autres mousses le même jour et les replanter dans un lieu non marqué. Des mesures seront ensuite faites à des intervalles de temps réguliers (toutes les semaines). Des expériences analogues de transfert ont déjà été réalisées pour des métaux lourds comme le zinc, le cadmium et le plomb (André B., Comparaison de deux traceurs de la pollution métallique des cours d'eau : les bryophytes et les sédiments, p.23, septembre 1985, Agence de bassin rhône-méditerranée-corse).

BIBLIOGRAPHIE

Agence de l'eau, Atlas du bassin Rhône-Méditerranée-Corse.

André B., Comparaison de deux traceurs de la pollution métallique des cours d'eau : les bryophytes et les sédiments, Agence de bassin Rhône-Méditerranée-Corse, 1986.

Angelier E., Ecologie des eaux courantes.

Belot, Y. (1996). Comportement du tritium dans l'environnement. In : Le tritium, de l'environnement à l'Homme, Institut de Protection et de Sécurité Nucléaire, coordinateurs Y. Belot, M. Roy et H. Métivier, les éditions de physique.

Belot Y., Tritium in plants : a review, Institut de Protection et de Sécurité Nucléaire.

Bertin M., Les effets biologiques des rayonnements ionisants, 1989.

Boyer P., Le transfert des radionucléides en eau douce, IPSN CEA-Cadarache.

Centre technique du génie rural des eaux et des forêts, Etude des sédiments méthodes de prélèvement et d'analyses pratiquées au laboratoire de sédimentologie, 1980.

Comité de bassin, Synthèse des connaissances sur la radioécologie du Rhône, 1992.

DIREN, Le prélèvement en rivière qualité des eaux superficielles, janvier 1999.

DIREN, Valorisation des données hydrobiologiques de 1972 à 1996.

Fournier M., Calmet D., Coreau N., Maigret N., Le mesurage du tritium des échantillons de l'environnement à l'IPSN, Institut de Protection et de Sécurité Nucléaire.

Le Haut Commissaire à l'Energie Atomique, Dossier de synthèse sur la contamination du Centre d'Etudes de Valduc (Côte d'Or), 1998.

Murphy C., 1984, The relationship between tritiated water activities in air, vegetation and soil under steady-state conditions.

Paulin R., Le tritium aspects généraux.

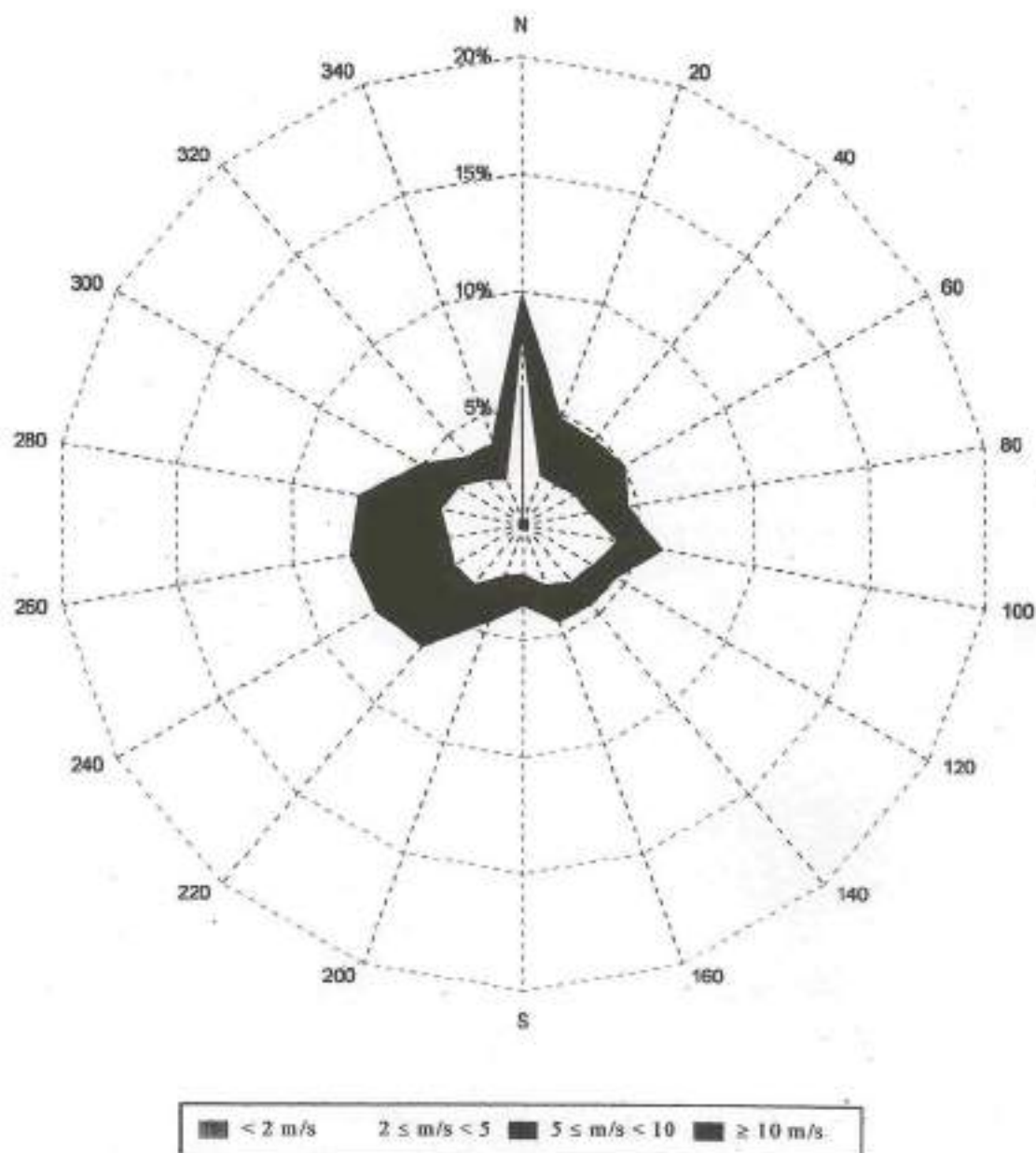
Résultat de l'OPRI, du CEA Valduc et de la Seiva.

Savoir & comprendre N°1 à 11.

SFEN, Environnement Energie Santé, juin 1997.

Tort V., Lefaure C., Linden G., Herbelet J., 1997, Le tritium dans le milieu aquatique et le risque associé.

**Fréquence des vents à 30 mètres (alt. 520 m)
du 01/01/1995 au 31/12/1999**



Temps calme : 2,88 %

Nombre d'observations : 38772 sur 43800 en théorie

PLAN DE CONTROLE EXISTANT EFFECTUE PAR LE CEA ET PAR L'OPRI

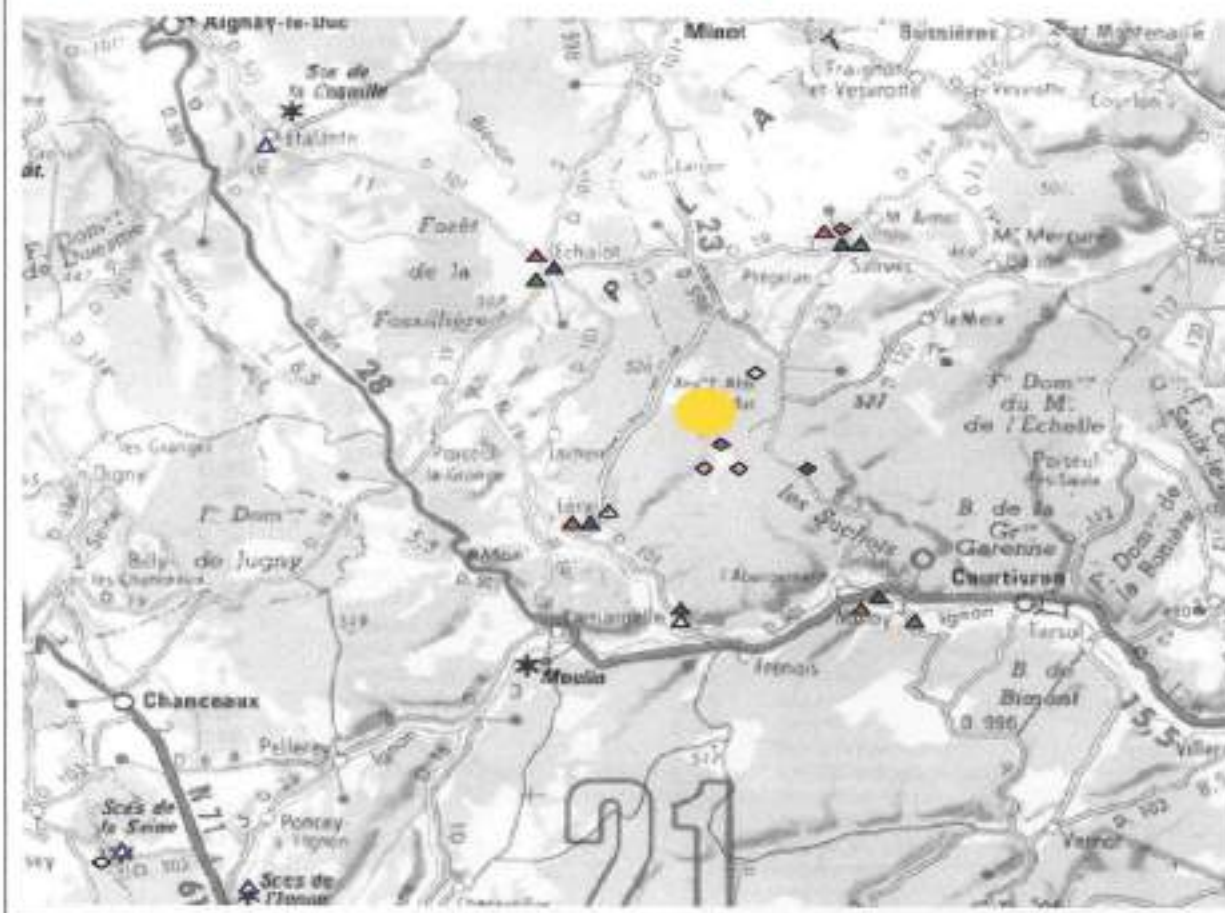
● CEA Valduc

Plan de surveillance du CEA :

- ▲ eau de surface
- △ eau de source
- △ eau de consommation
- ▲ atmosphérique
- △ lait de vache
- ▲ végétaux

Plan de surveillance de l'OPRI :

- ◆ eau de surface
- ◇ eau de consommation
- ◆ eau souterraine
- ◆ eau usée
- ◇ lait de vache
- ◆ atmosphérique



Annexe 2 : plan des suivis de l'environnement déjà existant (CEA et OPRI).

Annexe 3

Devis pour les analyses nécessaires pour la validation de la méthode :

| type d'analyse | laboratoire | prix unitaire HT en Frs | limite de détection |
|-------------------------|-------------|-------------------------|---------------------|
| mesure d'eau tritiée | SUBATECH | 500 | 5-6 Bq/l |
| mesure sur une mousse: | | | |
| T libre | LMRE | 2253 | 1-1,5 Bq/l |
| T lié | LMRE | 4586 | 1-1,5 Bq/l |
| mesure sur le sédiment: | | | |
| T libre | LMRE | 2253 | 1-1,5 Bq/l |
| T lié | LMRE | 4586 | 1-1,5 Bq/l |
| Total HT (Frs) | | 14178 | |
| Total TTC (Frs) | | 16 956,89 | |

Tableau de calcul du test statistique du X^2 :

validation de la zone étudiée

| | HTO(Bq/l) | valeur théo |
|--------------------|-----------|-------------|
| salives | 54,4 | 33,9456 |
| source de la Seine | 8 | 4,992 |
| total | 62,4 | |

hypothèse: Les valeurs trouvées sont identiques
test du X^2 : $p=0,00016991$

les valeurs sont différentes

Conclusion:

La quantité de tritium retrouvée à Salives est très significativement supérieure à celle retrouvée à la source de la Seine. Le choix de la zone d'étude est validée.

validation des poissons comme indicateur

| | tritium total | valeur théo |
|----------------|---------------|-------------|
| poisson(Bq/kg) | 15,4 | 10,7492 |
| eau(Bq/l) | 54,4 | 37,9712 |
| total | 69,8 | |

hypothèse: Les valeurs trouvées sont identiques
test du X^2 : $p=0,00252775$

les valeurs sont différentes

Conclusion:

Il y a moins de tritium dans les poissons que dans l'eau. L'indicateur n'est pas validé.

Annexe 1 : Présentation des indicateurs retenus pour le suivi. Intérêt, ce qu'il apporte, prélèvement nécessaire pour leur validation.

| Indicateur | Pourquoi ? | Intérêt | Ce que l'on veut vérifier | Prélèvement | Prix HT | Résultat |
|------------|--|---|--|---|---|---|
| EAU | L'eau est l'élément dominant du milieu étudié. De plus, les propriétés chimiques du tritium font qu'il se fixera de préférence à l'eau. | -97% du tritium est sous forme d'eau tritié. -Sert comme eau de consommation. -Sert à l'arrosage des cultures. -le milieu aquatique est un milieu de vie et peut être au début de la chaîne alimentaire. | -On veut valider le choix de la zone d'étude. Le marquage est-il plus important sous les vents dominants ? | -1 prélèvement à Moulleron qui est situé à environ 20 km du centre sur la Tille. On peut noter que cette partie de la Tille ne reçoit pas les eaux qui passent à Salives. | Eau tritiée -500Fr (SUBATECH) limite de détection: 5-6 Bq/l | S'il n'y a plus de tritium à Moulleron, l'hypothèse est vérifiée. |
| | | | On veut vérifier si le sédiment accumule ou non le tritium. | -1 prélèvement de sédiment à Salives. Mesure du tritium libre et du tritium lié, du pH, de la T, du rH, du potentiel redox, du % de matière organique et de la granulométrie. | Tritium libre : 2253Fr Tritium lié : 4586Fr (LMRE Orsay) | Validé si la quantité de tritium retrouvée est significativement supérieure aux valeurs détectées dans l'eau. |
| SEDIMENT | Il est présent sous tout le fond de la rivière. Il accumulerait le tritium lié à la matière organique par la décomposition des plantes et des animaux. Plus le sédiment est fin et contient de la matière organique, plus sa capacité à fixer les radionucléides augmente. | Le sédiment sert de substrat au végétal et aux organismes benthiques. Il pourrait accumuler du marquage du passé. | | | | |

| | | | | | | |
|-----------------------------|---|--|--|---|---|---|
| <p>MOUSSE AQUATIQUE</p> | <p>Les mousses sont des organismes aquatiques, photosynthétiques et fixes. La mousse subit un apport continu de tritium du fait du marquage de l'eau.</p> | <p>Par la photosynthèse, la mousse va incorporer une partie du tritium libre dans la matière organique qui a une période biologique beaucoup plus longue dans l'organisme que le tritium libre. C'est aussi le premier maillon de la chaîne alimentaire. Fixée au substrat, elle accumule le tritium sur le lieu où elle est présente.</p> | <p>On veut vérifier si la mousse est un bon indicateur. Pour cela, elle doit contenir plus de tritium que l'eau. Elle pourra être également comparée aux mesures faites sur d'autres végétaux comme l'herbe.</p> | <p>1 prélèvement de mousse à Salives pour mesurer le tritium libre et le tritium lié.</p> | <p>Tritium libre : 2253Fr Tritium lié : 4586Fr (LMRE Orsay)</p> | <p>Validé si la quantité de tritium retrouvée est plus importante que dans l'eau. → Si vrai, bon indicateur. Si la mousse a accumulé plus que l'herbe → Si vrai, meilleur indicateur que l'herbe.</p> |
| <p>POISSON</p> | <p>Le poisson est un maillon de la chaîne alimentaire. Il vit dans le milieu marqué au tritium et il est susceptible de manger des organismes.</p> | <p>Du fait de sa respiration branchiale, de son milieu de vie, de sa nourriture, le poisson pourrait accumuler durant sa vie une quantité significative de tritium.</p> | <p>On veut vérifier si le poisson est un bon accumulateur de tritium.</p> | <p>1 prélèvement de poisson à Salives pour mesurer le tritium total.</p> | <p>Mesure déjà effectuée lors de la campagne de tritium de 1999.</p> | <p>Le test statistique montre que la quantité de tritium dans les poissons est inférieure à celle de l'eau. Le choix des poissons comme indicateurs n'est pas validé.</p> |

Mots clés :

Tritium, Eau, Sédiment, Bryophyte, Poisson, Radioactivité.

Résumé :

Le tritium dégagé dans l'atmosphère par le CEA Valduc, par ses activités, va marquer tout l'environnement mais principalement le milieu aquatique du fait des propriétés chimiques du tritium. Il sera d'abord réalisé une étude de la géologie, de la géographie et du climat du site. Le plan de suivi de l'environnement proposé dans ce document, propose de suivre le marquage dans le milieu aquatique situé sous les vents dominants. Il propose différentes stations qui permettront de suivre le tritium, de trouver des bio indicateurs et de répondre à différentes questions : le tritium s'accumule-t-il ? Jusqu'où va l'influence du site ? Ces indicateurs devront accumuler une grande quantité de tritium et pourront ainsi permettre d'essayer de connaître s'il a des effets sur ces organismes. Les indicateurs utilisés reflètent les différents compartiments du milieu que sont l'eau, le sédiment, les bryophytes pour la végétation et les poissons pour la faune. A cause de la spécificité de Valduc qui ne peut faire que des rejets atmosphériques car le centre n'a pas d'autorisation de rejets liquides, les indicateurs devront être validés avant de pouvoir être réellement utilisés pour le suivi de l'environnement. Certaines hypothèses ont été validées mais à cause des pluies importantes, entraînant de fortes crues, les autres mesures n'ont pas pu être réalisées.

Fichier servant à la méthode de suivi de l'environnement :

Evaluation de dose.xls

Validation calcul.xls

Protocole de prélèvement pour la validation du suivi de l.doc

Proposition pour compléter le suivi.doc

Présentation des résultats.xls

Annexe E : Quelques critères végétatifs d'identification et écologie des espèces de bryophytes rencontrées dans le bassin Rhône-Méditerranée

Position systématique : Embranchement : Bryophytes
Classe : Musci
Sous-classe : Bryidae

1/ Fontinalis antipyretica : (AUGIER, 1966 ; EMPAIN, 1974, 1978)



Identification :

- Longues tiges (20 à 100 cm)
- Feuilles sans nervure, sur 3 rangs, entières
- Feuilles pliées en long suivant la partie moyenne

Ecologie :

- Très répandue dans les eaux courantes de l'hémisphère nord
- Tolère de forts courants
- Peu résistante à la dessiccation prolongée (immersion : de - 20 à 0 cm)
- Peu résistante à la pollution organique

2/ Platyhypnidium riparioides (AUGIER, 1966 ; EMPAIN, 1984)



Identification :

- Plante raide, vert olive plus ou moins foncé
- Tige primaire 4 - 15 cm
- Rameaux dressés, peu divisés
- Feuilles ventruës avec une nervure, finement dentelées

Ecologie :

- Très ubiquiste dans l'hémisphère nord (plus abondant que Fo.an. dans les petits cours d'eau)
- Large fourchette d'environnements chimiques, mais préférence pour le calcaire
- Très tolérant à la pollution organique
- Maximum de répartition pour une immersion de - 20 à 0 cm mais large amplitude écologique en ce qui concerne la fréquence d'émergence

3/ Amblystegium riparium

Identification :

- Ressemble à Pl.ri. mais les feuilles ne sont pas dentées
- Extrémité des feuilles effilées

Ecologie :

- Souvent sur support sableux

4/ Cinclidotus (LAMBINON et EMPAIN 1973, EMPAIN 1974)

Identification du genre :

- Tige souvent dressée, rameaux dressés et parallèles à la tige
- Feuilles à marge épaisse (pluriassiale)
- Forme touffes vert noirâtre

Cin. aquaticus

- Tiges raides, flottantes de 8 à 25 cm
- Feuilles longues et étroites courbées en faux d'un côté

Ecologie :

- Stations rhéophiles
- Presque constamment immergées



Cin. nigricans

- Marge des feuilles amincie à la base du limbe et à son sommet
- La plus grande largeur de la feuille au-dessus de la partie médiane

Ecologie :

- Immersion : entre - 20 et 0 cm
- Supporte mal la dessiccation
- Sensible à la pollution organique



Cin. danubicus

- La plus grande largeur de la feuille au-dessous de la partie médiane
- Les deux bords de la feuille sont parallèles sur une longueur importante



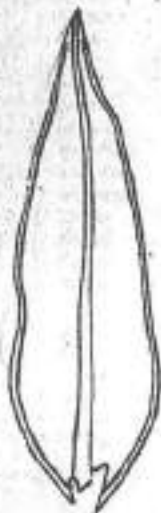
Ecologie :

- Supporte mal la dessiccation
- En général très immergée (entre - 20 et 0 cm)
- Espèce très théophile

épaisseur

Cin. fontinaloides

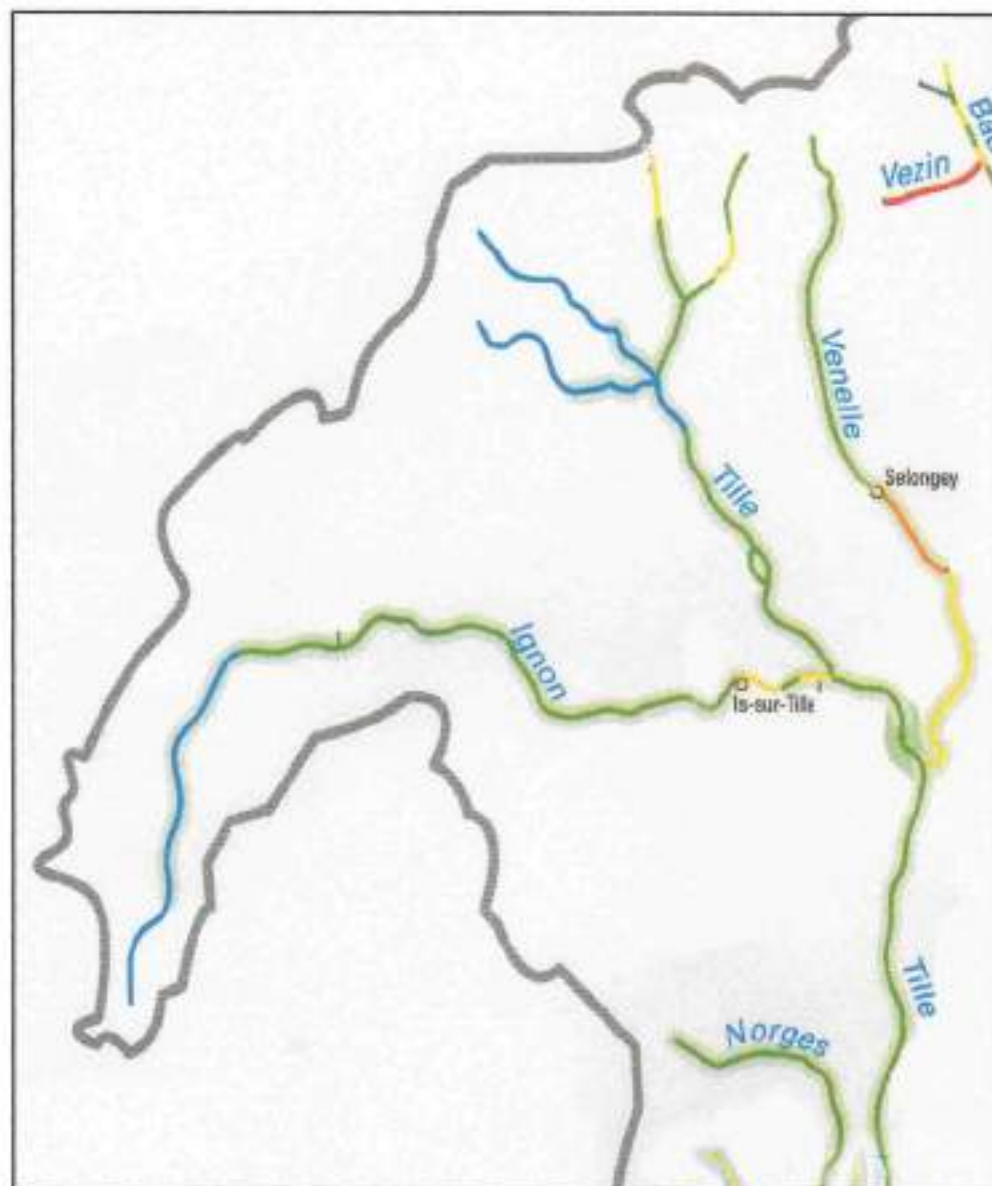
- Les feuilles sèches ont une forme de tire-bouchon
- La marge des feuilles est épaisse à la base du limbe et à son sommet
- La plus grande largeur de la feuille au-dessous de la partie médiane



Ecologie :

- Peu immergé (émersion prolongée)
- Peu sensible à la pollution

QUALITE DES EAUX SUPERFICIELLES



- Bonne
- Asscz Bonne
- Médiocre
- Mauvaise
- Hors-classe