

**Dispersion des rejets atmosphériques
tritiés de Valduc :
approche utilisant le marquage
des feuilles de chênes
dans l'environnement du site.**

Françoise Vray, Gilles Salaun

Rapport IRSN/DÉPARTEMENT DE PROTECTION
DE L'ENVIRONNEMENT - SERNAT

mars 2003

Réf. : DPRE / SERNAT / 2003-12

DÉPARTEMENT DE PROTECTION DE L'ENVIRONNEMENT

BP 17, 92262 FONTENAY-AUX-ROSES CEDEX, France - Télécopie : 01.58.35.95.35 - Téléphone : 01.58.35.87.18

Demandeur	Structure d'Échange et d'Information sur VALduc
Référence de la demande	GN/MC/22.05.01
Numéro de la fiche d'action	4018

**Dispersion des rejets atmosphériques tritiés de Valduc :
 approche utilisant le marquage des feuilles de chênes
 dans l'environnement du site.**

IRSN/Département de Protection de l'Environnement
Rapport DPRE / SERNAT / 2003 - 12

	Réservé à l'unité		Visas pour diffusion		
	Auteur(s)	Vérificateur *	Chef d'Unité	Chef du DPRE	Administrateur provisoire de l'IRSN
Noms	F. Vray, G. Salaun	D. LOUVAT	N. LEMAITRE	J.C. BARESCUT	D. QUÉNIART
Dates					
Signatures					

* rapport sous assurance de la qualité

RESUME

À la demande de la SEIVA, quarante échantillons de feuilles de chênes ont été prélevés autour du centre CEA de Valduc, dans le but de cartographier le marquage de l'environnement par les rejets tritiés du site. La collecte a eu lieu en fin de période végétative et les échantillons ont été analysés pour déterminer leur activité en tritium lié à la matière organique. L'exploitation des données ainsi recueillies a permis la détermination de certains paramètres caractérisant le dépôt du tritium émis sous forme HTO pour ce site (vitesse de dépôt de $5 \times 10^{-3} \text{ m s}^{-1}$ et taux de lavage par la pluie de $2 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$). Afin de fournir quelques informations utiles en préalable à une étude d'impact dosimétrique de ce site, un bilan des communes les plus marquées par les rejets est dressé.

MOTS-CLES

Tritium, HTO, dispersion atmosphérique, feuilles de chênes, Valduc

REMERCIEMENTS

Par l'intermédiaire de la SEIVA, les responsables du centre de Valduc m'ont transmis l'ensemble des informations indispensables à la réalisation de cette étude. Je remercie tout particulièrement le Service de Protection contre les Rayonnements qui a procédé à l'extraction et à la mise en forme de ces données.

Roland Tesch (ARC Seibersdorf Research, Vienna) a accepté de réaliser les mesures de tritium lié à la matière organique. Je lui exprime toute ma reconnaissance pour l'intérêt qu'il a porté à ce travail, qui a été au-delà de la simple prestation de service.

Merci enfin à Céline Couvez (DPEA/SECRI) et à Céline Duffa (DPRE/SERNAT/LERCM) qui m'ont transmis les fichiers informatiques indispensables aux représentations cartographiques.

HISTORIQUE DES MODIFICATIONS

Version	Date	Auteur	Pages ou paragraphes modifiés	Description ou commentaires
0	14/03/2003	F. Vray		Émission du document

RELECTURES

Nom	Fonction	Date	Visa
Didier Louvat	Responsable du LERCM	17/03/2003	

DIFFUSION

Destinataires		Nombre d'exemplaires	Commentaires
M. J. REPUSSARD	IRSN/DIR	1	
Mme A. SUGIER	IRSN/DDP	1	
M. D. ROBEAU	IRSN/DDP	1	
M. P. HUBERT	IRSN/DDP	1	
Mme C. LECONTE	IRSN/Pg	1	
M. G. MONCHAUX	IRSN/Pg	1	
Mme S. MARANO	IRSN/CDSN	1	
Mme G. FOURGOUS	IRSN/SFID/BDSN	1	
M. J.C. BARESCUT	DPRE/DIR	1	
M. J. JOLY	DPRE/DIR	1	
M. P. BOUISSET	DPRE/SERNAT/LMRE	1	
M. P. GERMAIN	DPRE/SERNAT/LERFA	1	
M. D. LOUVAT	DPRE/SERNAT/LERCM	5	
Mme S. CHARMASSON	DPRE/SERNAT/LERCM	1	
M. J.L. DE NARDI	DPRE/SERNAT/LESE	1	
M. J.C. GARIEL	DPRE/SERLAB/EC	1	
Mme J. GARNIER-LAPLACE	DPRE/SERLAB/LRE	1	
M. P. SANTUCCI	DPRE/SERLAB/LMODE	1	
M. J.M. PERES	DPRE/SERGD	1	
M. A. DESPRES	DPRE/SERGD/LESTS	1	
M. M. CHAMPION	DPHD/DIR	1	
M. J. BRENOT	DPHD/SEGR/DIR	1	
M. A. RANNOU	DPHD/SDOS/DIR	1	
M. Ph. JAMET	IRSN/Le Vésinet	1	
M. J.L. PASQUIER	IRSN/Le Vésinet	1	
M. G. LINDEN	IRSN/Le Vésinet	1	
Mme N. LEMAITRE	DPRE/SERNAT/DIR	5	
M. R. TESCH	ARC Seibersdorf Res.	1	
M. G. NIQUET	SEIVA	1	
Mme C. SAUT	SEIVA	2	dont un reproductible

SOMMAIRE

1. INTRODUCTION.	5
1.1. Origine de l'étude.	5
1.2. Contexte scientifique.	5
1.3. Périmètre de l'étude.....	6
2. DONNEES SUR LES FEUILLES DE CHENES : METHODES D'ECHANTILLONNAGE, DE TRAITEMENT ET DE MESURE.	6
2.1. Prélèvements.....	6
2.2. Traitement des échantillons.....	7
2.3. Mesures.....	8
3. CALCULS : METHODES ET DONNEES UTILISEES.	9
3.1. Code de calcul de dispersion atmosphérique utilisé.....	9
3.1.1. Rappels sur le code IRSN.....	9
3.1.2. Calculs complémentaires.....	11
3.2. Données météorologiques utilisées.	11
3.3. Activité rejetée au niveau du site.	12
3.4. Prise en compte des conditions aux limites du modèle : calcul de l'activité du tritium dans l'air non liée à l'installation étudiée.	13
4. RESULTATS.	15
4.1. Analyse de la dispersion du tritium dans l'air (sans dépôt).....	15
4.1.1. Objectif et méthodes.....	15
4.1.2. Résultats et discussion.	16
4.2. Etude des paramètres caractéristiques des dépôts sec et humide.....	18
4.3. Cartographie de l'impact.....	21
5. CONCLUSION.....	24
6. LISTE DES ANNEXES	25
7. LISTE DES TABLEAUX.....	25
8. LISTE DES FIGURES	26
9. LISTE DES REFERENCES	26

1. INTRODUCTION.

1.1. Origine de l'étude.

Dans un courrier du 22 mai 2001 adressé au Directeur de l'IPSN, le président de la SEIVA⁽¹⁾, a demandé la réalisation d'une étude localisant « géographiquement les retombées du panache des rejets du CEA / VALDUC », équivalente à celle « effectuée par l'IPSN pour le centre de Marcoule ». Cette demande a reçu une réponse favorable dans le courrier IPSN/Dir/2001-3049 du 19/07/2001. Le SERNAT/LERCM, nommé correspondant technique pour cette mission a soumis à la SEIVA une proposition technique et financière pour une telle étude (Vray & Descamps, 2001 a), laquelle a été approuvée par le demandeur oralement en septembre 2001 et formellement dans le courrier GN/CS/26.09.02 du 26 septembre 2002.

1.2. Contexte scientifique.

L'étude citée dans le courrier SEIVA GN/MC/22.05.01 demandant à l'IPSN d'intervenir autour de VALDUC avait été succinctement présentée en commission environnement SEIVA du 16 mai 2001. Elle portait sur la dispersion du ³H émis par voie atmosphérique en 1991 et 1992 par le centre de retraitement de Marcoule et utilisait conjointement des résultats de mesures de tritium lié à la matière organique de feuilles de chênes collectées en fin de période végétative, c'est-à-dire fin octobre (Descamps *et al.*, 1992 ; 1995 a) et un calcul de dispersion des rejets effectué à l'aide d'un modèle gaussien (Vray & Descamps, 2001 b). La méthodologie appliquée, notamment pour les calculs et la présentation des résultats, servira de référence pour le présent travail.

En commission environnement du 13 mars 2002, différents travaux effectués par le CEA autour de VALDUC ont été rendus publics. Les résultats de mesures de tritium lié à la matière organique de feuilles de chênes obtenus au cours de trois campagnes distinctes (1987, 1988 et 1998) ont ainsi permis de cartographier la dispersion des rejets atmosphériques tritiés du centre par la mesure (Guinois, 2001). Dans le même document, une étude de l'activité en tritium des cernes d'un chêne est également présentée. Elle montre que ce type d'échantillon permet de reconstituer approximativement l'historique des rejets tritiés du centre sur au moins les quinze dernières années, conformément aux observations faites par Descamps *et al.* (1995 b) à l'issue d'une étude similaire conduite autour de Marcoule. Quelques anomalies indiquent néanmoins qu'il serait nécessaire de prendre en compte les variations interrannuelles de la météorologie locale et donc de la dispersion des rejets pour pouvoir retracer très fidèlement les variations en intensité de l'activité rejetée au cours du temps. Les résultats d'une étude d'impact dosimétrique ont également été communiqués à la SEIVA (Guétat & Guinois, 2001). Ce travail, qui a fait suite à l'utilisation des données relatives au site de Valduc dans le cadre d'un exercice international de comparaison de codes de calcul mené sous l'égide de l'Agence Internationale de l'Énergie Atomique (IAEA, 2000), ne sera pas commenté en détail ici, l'analyse d'un tel document constituant un travail à part entière distinct des objectifs de la présente étude.

(1) Structure d'Échange et d'Information sur VALduc – DRIRE Bourgogne – 15-17 av. J.Bertin – BP 16610
21066 DIJON CEDEX

1.3. Périmètre de l'étude.

Le présent document expose uniquement les résultats de la campagne de prélèvement de quarante échantillons de feuilles de chênes réalisée par l'IPSN en septembre 2001 conformément à la proposition technique et financière afférente, dans le but de cartographier le marquage de l'environnement par les rejets tritiés du site. L'activité du tritium lié à la matière organique de feuilles chênes est utilisée comme témoin de ce marquage. La portée de ces résultats sera élargie par leur comparaison à un calcul de dispersion des rejets. Le marquage estimé globalement pour Valduc sera comparé à celui observé autour de Marcoule pour une même intensité de rejet.

Les résultats obtenus antérieurement autour de Valduc et présentés par le CEA à la SEIVA en commission environnement ne seront pas évoqués. En effet, les documents fournis par le CEA ne mentionnent en détail les résultats chiffrés et la localisation exacte des points de prélèvements que pour l'année 1998, ce qui rend inutilisable les données antérieures. Par ailleurs, la comparaison des résultats acquis autour du site en 1998 et en 2001 ne serait possible que si que les données météorologiques détaillées relatives à l'année 1998 étaient fournies, ainsi que les rejets mensuels de chaque émissaire.

Enfin, la SEIVA ayant manifesté un intérêt grandissant en cours d'année 2002 pour la réalisation d'une étude d'impact dosimétrique autour du site, il sera tenu compte de cette préoccupation en s'attachant à déterminer les communes les plus exposées ainsi qu'à affiner les valeurs de certains paramètres intervenant très en amont dans les calculs d'impact (vitesse de dépôt sec, taux de lavage par la pluie).

2. DONNEES SUR LES FEUILLES DE CHENES : METHODES D'ECHANTILLONNAGE, DE TRAITEMENT ET DE MESURE.

2.1. Prélèvements.

La campagne de prélèvement s'est déroulée entre le 26 septembre et le 2 octobre 2001, c'est-à-dire très peu de temps avant la chute des feuilles de chênes dans la région. L'espèce échantillonnée est le chêne sessile (*Quercus petraea*), qui a été préférée à l'espèce localement concurrente, le chêne pédonculé (*Quercus robur*) en raison de sa plus grande abondance dans les zones forestières qui ont constitué l'essentiel des zones prospectées. Au moment des prélèvements, la présence des glands sur les arbres rend impossible la confusion des deux espèces.

Les prélèvements ont été effectués à des hauteurs variant de 3 à 7 mètres de haut. Les feuilles (environ 300 à 500 grammes) ont été isolées des rameaux immédiatement, puis placées dans des sacs plastiques hermétiquement clos lesquels ont été entreposés à l'obscurité puis congelés (-30°C) dès leur arrivée au laboratoire.

Les coordonnées latitude-longitude de chaque point de prélèvement ont été repérées avec exactitude à l'aide d'un récepteur GPS (Global Positioning System), sauf dans le cas où le couvert végétal rendait impossible la localisation des satellites indispensable au système. Dans ce cas, ce sont des repérages sur carte au 25 000^{ième} qui ont été utilisés.

La carte de prélèvement est approximativement conforme à celle prévue sur la proposition technique et financière, la distance maximale entre le point de prélèvement prévu et le point de prélèvement effectif étant de 2 km (400 mètres en moyenne). Ces localisations (Figure 1) respectent les contraintes suivantes :

- pas de prélèvement dans les 4 kilomètres entourant l'émissaire principal de rejets (zone où la validité des modèles de dispersion n'est pas démontrée) ;

- pas de prélèvement au-delà de 16 kilomètres de l'émissaire principal (zone où les données météorologiques relatives au site de Valduc pourraient ne plus être représentatives de la réalité locale, notamment en liaison avec des modifications du relief), sauf dans l'axe du plateau de Langres où les vents sont peu susceptibles de varier en vitesse et en direction ;
- balayage important de la zone 4-16 km autour de l'émissaire principal de rejets (36 prélèvements, répartis par groupes de 6 prélèvements pour une même distance (espacés de 60°) pour les distances 4,5 km, 5,5 km, 7 km, 9 km, 11,5 km et 15 km). Afin d'étudier toutes les directions de la rose des vents, les prélèvements ont été décalés de 20° à chaque changement de distance d'étude.

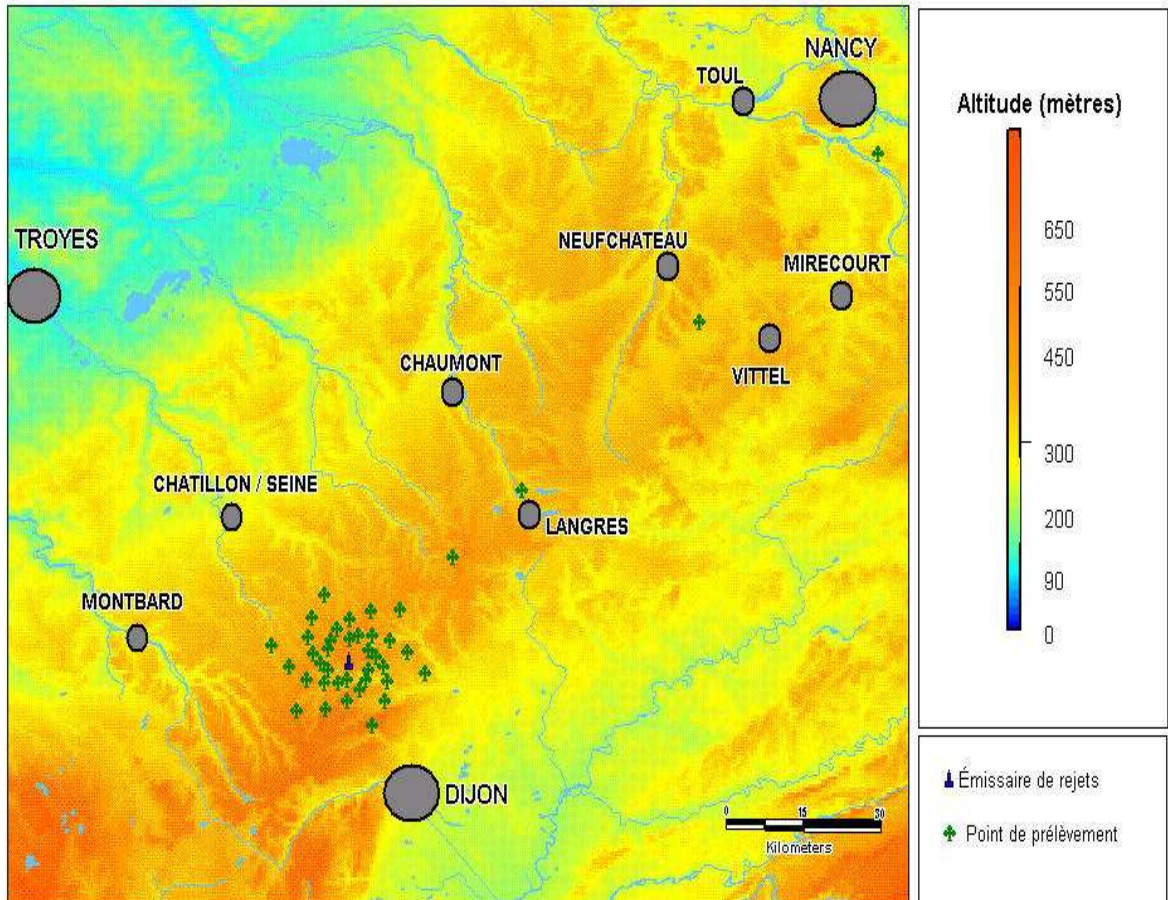


Figure 1– Topographie des environs de Valduc et cartographie des prélèvements.

2.2. Traitement des échantillons.

Les échantillons ont été séchés par lyophilisation (élimination de l'eau par sublimation). Dès leur sortie du congélateur, ils ont été rapidement et grossièrement hachés avant d'être placés dans le lyophilisateur, en favorisant le contact du matériau avec le plateau du lyophilisateur, lequel est régulé en température. La lyophilisation permet un séchage complet de l'échantillon et évite tout problème de fractionnement des différents isotopes

(élimination des isotopes légers préférentiellement aux isotopes lourds). Le cycle de lyophilisation suivi pour les feuilles de chênes est représenté sur la Figure 2.

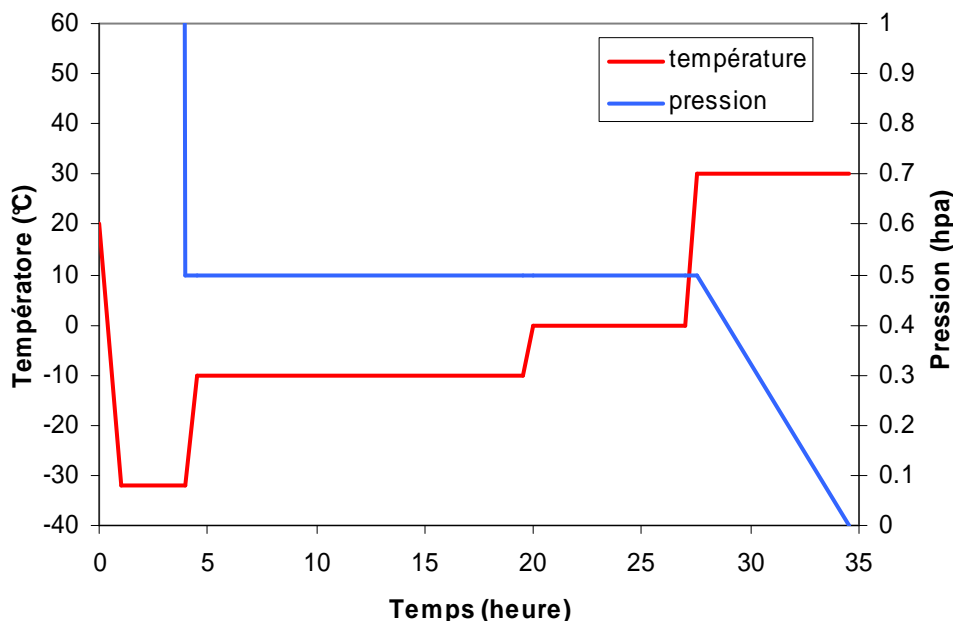


Figure 2 – Évolution temporelle de la température des plateaux et de la pression de l'enceinte de lyophilisation au cours d'un cycle de traitement de feuilles de chênes.

2.3. Mesures.

Les mesures ont été réalisées par un laboratoire situé en Autriche (ARC Seibersdorf Research, Vienna).

Chaque échantillon, de 35 grammes sec environ, subit une combustion dans un tube de quartz sous flux d'oxygène (de qualité 4.8). L'eau dégagée au cours de cette opération est collectée au moyen de pièges froids.

L'eau recueillie subit d'abord une distillation afin d'éliminer les sels formés durant la combustion, puis une filtration sur charbon actif qui permet d'éliminer les résidus de composés organique susceptibles d'interférer ensuite avec le liquide scintillant.

L'eau ainsi purifiée est ensuite mesurée dans un compteur de type QUANTULUS LSC après mélange avec un liquide scintillant (ULTIMA GOLD LLT de PACKARD Bioscience, en proportion 9/14). Le temps de comptage est d'environ 800 minutes et les résultats de mesures sont corrigés des effets de quenching en utilisant un abaque établi par le laboratoire.

L'activité ainsi mesurée est ramenée à la masse d'eau purifiée mesurée et exprimée en Bq l^{-1} d'eau de combustion (en considérant une masse volumique de l'eau égale à 1 kg l^{-1}). L'incertitude accompagnant chaque résultat de mesure est relative au comptage uniquement. Elle est donnée à $\pm 1 \sigma$.

Les résultats sont représentatifs de l'activité du tritium lié à la matière organique des feuilles et de l'activité du tritium échangeable. Seul le tritium libre (présent dans l'eau des feuilles) n'est pas considéré.

3. CALCULS : METHODES ET DONNEES UTILISEES.

3.1. Code de calcul de dispersion atmosphérique utilisé.

3.1.1. Rappels sur le code IRSN.

Le calcul de la dispersion des rejets atmosphériques du site de Valduc a été réalisé à l'aide du code COTRAM2 (Deville-Cavelin *et al.*, 1994). Depuis la fin des années 70, l'IPSN a adopté ce code comme référence sur le plan opérationnel pour les calculs de dispersion de rejets chroniques.

Le modèle utilisé dans COTRAM2 est à « bouffées gaussiennes ». Il permet de distinguer les conditions météorologiques suivantes :

- diffusion faible ;
- diffusion normale, sans précipitations ;
- diffusion normale, avec précipitations.

À chacune de ces trois conditions météorologiques peuvent être associées différentes classes de vitesse du vent. Une fréquence d'occurrence de chaque condition de diffusion ainsi distinguée est prise en compte pour chacun des 18 secteurs de la rose des vents.

À partir de l'équation gaussienne, COTRAM2 détermine des Coefficients de Transfert Atmosphérique (CTA) pour chaque condition météorologique i donnée, et utilise les écarts-types de diffusion de Doury (1976 ; 1981). Il prend en compte, dans le calcul du CTA moyen pour l'ensemble des conditions météorologiques dans le secteur j , la contribution des secteurs adjacents ($j-1$ et $j+1$).

L'activité moyenne du radionucléide étudié, en un point de coordonnées x,y,z , $C_{\text{air}}(x,y,z)$ en Bq m⁻³, est ensuite calculée de la manière suivante :

$$C_{\text{air}}(x,y,z) = Q \cdot \text{CTA}(x,y,z)$$

où Q est le débit de rejet de l'installation, moyen sur la période considérée (en Bq s⁻¹).

Pour le tritium, par défaut, le code considère que la vitesse de dépôt est nulle (avec une telle hypothèse, la contamination des écosystèmes intervient uniquement par mise en équilibre des activités entre l'eau de l'air et l'eau des végétaux par exemple). Cette valeur par défaut peut être modifiée et, dans ce cas, les calculs tiennent compte de l'appauvrissement du panache par les dépôts sec et humide.

Les modèles gaussiens ont un domaine d'application limité. Les rejets d'émissaires situés à grande hauteur posent notamment problème lorsqu'on s'intéresse au champ proche de la source. Dans le cadre des travaux conduits autour de l'installation nucléaire de la Hague, le Groupe Radioécologie Nord Cotentin (1999) propose des corrections à appliquer aux CTA calculés par ce type de codes, pour un émissaire situé à 100 m de haut. Ces corrections, fondées sur des mesures de la radioactivité du ⁸⁵Kr dans l'environnement sont particulièrement importantes en champ proche. Autour de Marcoule, une étude récente (Vauquelin et Lévy, 2000) conduite à l'aide d'un modèle du même type, « gaussien » également, mais utilisant les écarts-types de Pasquill (1962) au lieu de ceux préconisés par Doury, montre également des distorsions (sous-estimations de l'activité du ³H dans l'air) pouvant atteindre un facteur 20 000 (en limite de la clôture sud du site, pour un rejet à 100 m de haut). Au-delà de 1 500 mètres de distance à l'émissaire, les écarts sont nettement moindres, limités à un facteur 6 au maximum. Les travaux réalisés autour de

Marcoule sur les feuilles de chênes (Vray & Descamps, 2001 b) ont montré qu'au-delà de 4,5 km de l'émissaire principal, aucune sous-estimation n'était plus décelable.

C'est le module correspondant à COTRAM2 fonctionnant à l'intérieur du code FOCON qui a été utilisé d'un point de vue pratique. Il permet de prendre en compte au plus quinze classes de vitesse du vent. Si la répartition des conditions de stabilité atmosphérique et de précipitation est inconnue, le code propose des valeurs standard issues d'une étude de la répartition des conditions météorologiques sur 4 sites français et module ainsi les fréquences cumulées pour l'ensemble des conditions de diffusion.

3.1.2. Calculs complémentaires.

Les résultats fournis par COTRAM2 sont données dans l'axe du secteur considéré et pour 9 distances distinctes à chaque exécution du code. Afin de limiter le nombre d'exécutions, les calculs ont été effectués tous les 500 mètres jusqu'à 16000 mètres, puis pour les distances réelles des points de prélèvements pour les 4 sites de collecte les plus éloignés. Afin de connaître le CTA exact en chaque point de prélèvement, il a été procédé à une interpolation linéaire entre le point exact de prélèvement et les 4 points de calculs adjacents fournis par COTRAM2 (interpolation linéaire sur la distance pour les deux axes adjacents, puis interpolation linéaire sur l'angle). Ces interpolations ont une influence très faible puisque les points de collecte ont été localisés près des axes de calculs et à des distances proches des distances de calculs.

3.2. Données météorologiques utilisées.

Des données météorologiques très détaillées ont été fournies par le CEA Valduc. Seul un tel jeu de données permet de disposer d'informations réellement utilisables et adaptées au site.

Les données brutes fournies sont :

- des mesures horaires de vitesses et de direction du vent à 30 mètres et 55 mètres de haut ;
- des hauteurs de pluie précipitées toutes les 10 minutes.

À partir de ces données brutes, des statistiques de la rose des vents locale pour la période mai-septembre (inclus) ont été calculées :

- en considérant l'absence ou la présence de pluie au moment de la mesure des vents ;
- en regroupant les directions des vents par secteurs de 20° et en 5 classes de vitesses. La vitesse moyenne caractéristique de chaque classe a été calculée à partir de chacune des valeurs exactes mesurées pour ce paramètre et pour cette classe.

Ces statistiques ont été établies pour chacune des hauteurs de mesures des caractéristiques des vents. Elles sont présentées en détail en annexe A ainsi que sur la Figure 3.

Seules les informations sur la stabilité de l'atmosphère sont manquantes et seront calculées automatiquement par le code.

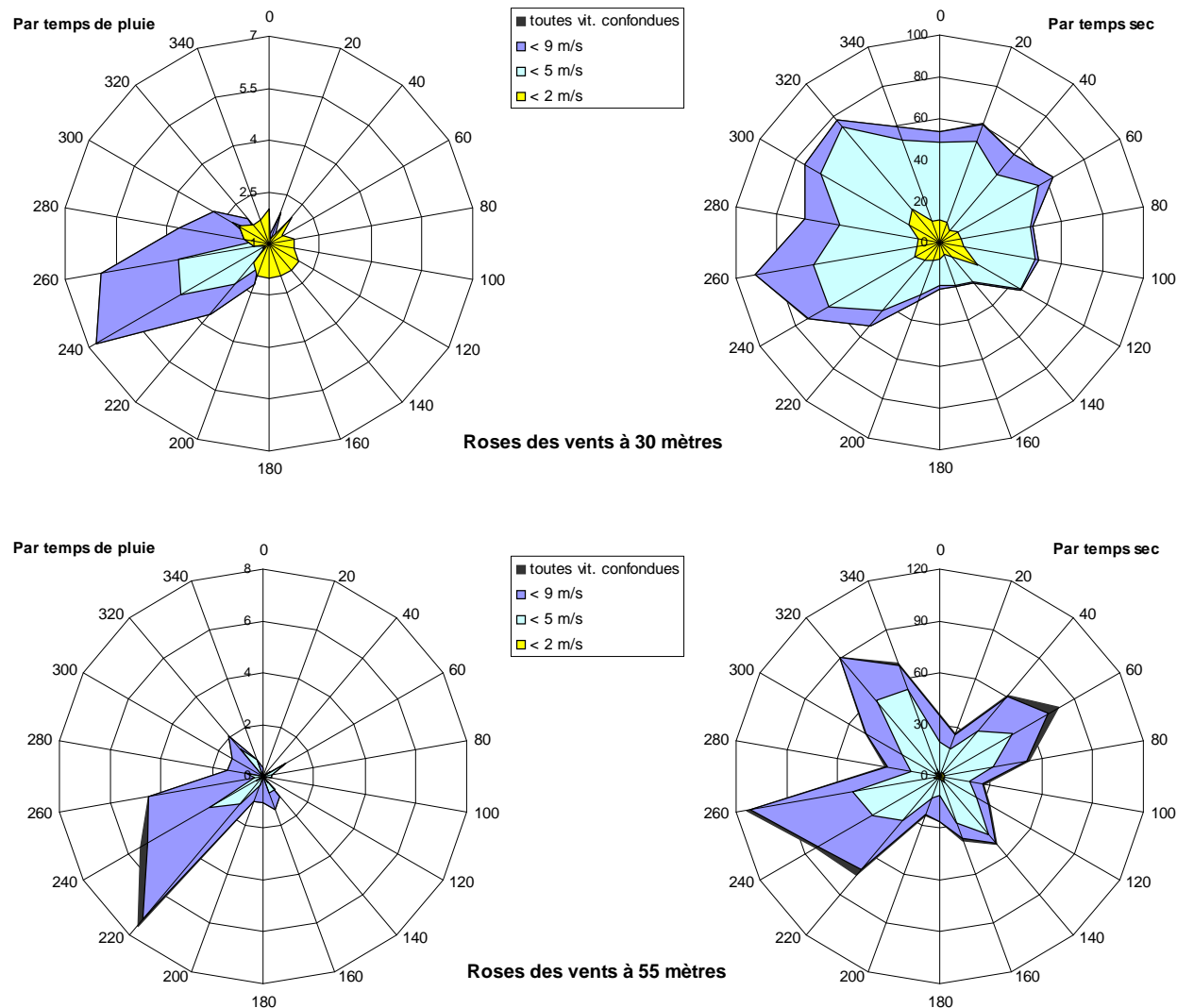


Figure 3 – Roses des vents à Valduc, par temps sec ou humide - Mesures à deux hauteurs distinctes sur la période mai-septembre 2001.

3.3. Activité rejetée au niveau du site.

L'activité rejetée par l'installation considérée est une donnée d'entrée nécessaire pour effectuer les calculs de dispersion. Cette donnée doit être fournie sous la forme d'une valeur moyenne sur la période considérée. Dans le code, elle est utilisée sous la forme d'un débit de rejet (en $Bq s^{-1}$).

Dans les rejets atmosphériques émis par le site de Valduc, le tritium est présent sous au moins deux formes chimiques différentes : HT (hydrogène tritié) et HTO (eau tritiée). C'est cette dernière forme, prédominante dans les rejets (de l'ordre de 75-80% de l'activité rejetée), et elle seule, qui sera prise en compte dans cette étude. En effet, la forme HT n'est pas directement assimilable par les végétaux contrairement à la forme HTO utile aux plantes pour la photosynthèse (Belot *et al.*, 1996). La forme HT ne peut constituer une source de tritium pour les végétaux, que lorsque HT a été oxydé en HTO (au niveau du sol notamment). Ceci se produit par un ensemble de phénomènes complexes dont la cinétique est mal connue. Ces mécanismes seront négligés compte tenu de la faible représentativité de la forme HT dans les rejets.

Le CEA Valduc comprend 5 émissaires de ^3H distincts sur le site, dont les hauteurs sont comprises entre 11,5 et 50 mètres. En fonction de la nature des activités générant les rejets (entreposage des déchets ou process) et de leur localisation, ces cinq émissaires ont été regroupés en deux sources distinctes. La première d'entre elle, nommée « B137 » est un émissaire unique dont la hauteur est de 50 mètres. La seconde, qualifiée de « zone d'entreposage » ou « ZE », correspond au regroupement de 4 émissaires distincts de hauteur comprise entre 11,5 et 49 mètres. Dans le cadre d'un calcul d'impact, il est admis qu'il est possible de représenter différents émissaires par un seul, situé au barycentre de l'ensemble des points de rejets. Pour la source « ZE », la hauteur équivalente de cette source a été calculée en moyennant les hauteurs des émissaires unitaires, chaque hauteur étant pondérée par l'activité rejetée. Cette hauteur équivalente est de 27 mètres. Pour chacune de ces deux sources, des coordonnées latitude-longitude ont été affectées sur la base des informations fournies par le CEA.

Les débits de rejets (moyennes mensuelles et moyenne sur la période) de chaque source sont présentés en Bq s^{-1} dans le Tableau 1.

Tableau 1- Débit de rejet moyen sur un mois ou sur la période étudiée, pour chaque source considérée (Bq s^{-1}).

Période	Zone d'entreposage	Zone de process
Mai	$5,41.10^6$	$4,56.10^6$
Juin	$4,07.10^6$	$4,17.10^6$
Juillet	$6,16.10^6$	$2,58.10^6$
Août	$6,30.10^6$	$2,46.10^6$
Septembre	$3,92.10^6$	$2,39.10^6$
Mai-septembre (moy.)	$5,17.10^6$	$3,23.10^6$

3.4. Prise en compte des conditions aux limites du modèle : calcul de l'activité du tritium dans l'air non liée à l'installation étudiée.

Indépendamment des rejets émis par le site de Valduc, du tritium est présent dans l'air au niveau de tout l'hémisphère nord. Son origine est à la fois naturelle et anthropique, mais issue de sources lointaines et/ou anciennes. Cette activité est diluée dans la stratosphère et relativement homogène sur l'hémisphère nord.

Le calcul de l'activité volumique en tritium de l'air dans l'hémisphère nord a été effectué à l'aide des données proposées dans la banque de données de l'Agence Internationale de l'Énergie Atomique (AIEA) et de l'Organisation Météorologique Mondiale (OMM), construite dans le cadre du programme du Global Network for isotopes in Precipitation (GNIP), librement accessible sur Internet (<http://isohis.iaea.org>). Cette banque de données fournit des résultats de mesures réalisées par le réseau IAEA-OMM, notamment des résultats de mesures de tritium dans l'eau de pluie.

Dans le cadre de l'étude conduite en 1991-1992 autour de Marcoule, les résultats de mesures relatifs à six stations où sont effectuées de telles mesures (relevés mensuels) avaient été étudiés. Ces stations sont celles de Vienne (Autriche), Groningen (Pays-Bas), Grimsel, Guttanen et Locarno (Suisse), Thonon et Marseille (France). Sélectionnées en raison de leur position géographique (proximité de la France, continentalité du climat), ces stations présentent des activités en tritium assez homogène sur la période 1962-1991 (Figure 4), ce qui montre que la variabilité des activités en tritium dans l'eau de pluie varie peu géographiquement à l'échelle de l'Europe occidentale.

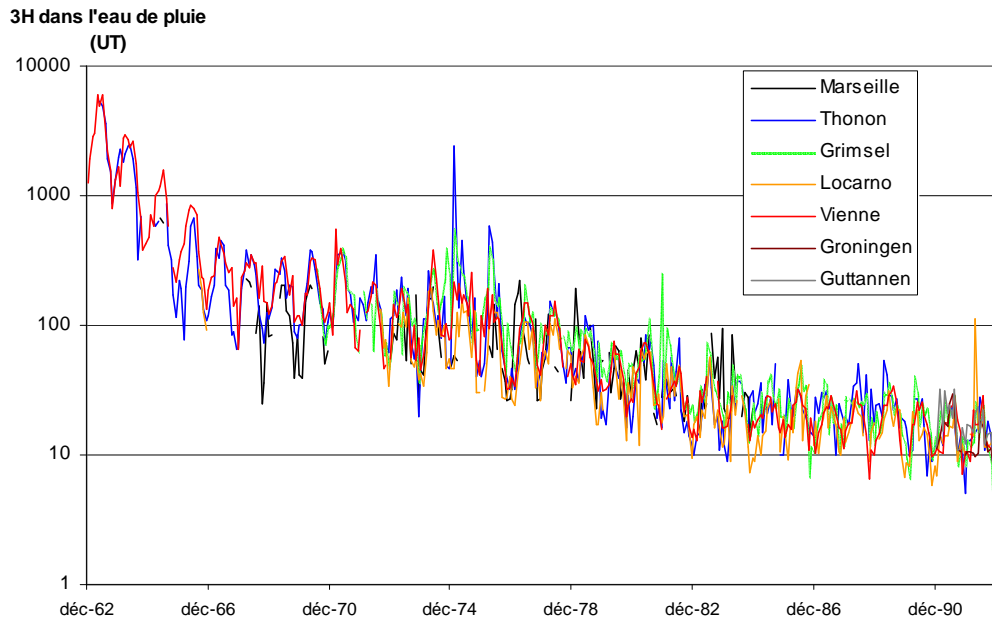


Figure 4 - Activité du tritium dans l'eau de pluie hors rejets d'installations (données AIEA en UT).

Pour l'année 2001, seules les données relatives à la station de Vienne sont disponibles à la date de rédaction de ce document. Par conséquent, l'activité en tritium hors installation a été estimée à l'aide des mesures mensuelles de l'activité du tritium dans l'eau de pluie à Vienne (Tableau 2), fournies en « unités tritium » (UT) et converties en Bq l^{-1} d'eau de pluie ($1 \text{ UT} = 0,118 \text{ Bq l}^{-1}$). La teneur en eau de l'air à Valduc (kg m^{-3}) est ensuite calculée à l'aide des formules usuelles de thermodynamique en condition de non-saturation de l'air en vapeur d'eau en utilisant comme données de base l'humidité relative de l'air (adimensionnelle) et la température (en °C). Ces données météorologiques de base ont été fournies par Météo-France pour la station de Saint-Martin-du-Mont, très voisine de Valduc (Tableau 2).

Tableau 2- Données utilisées pour calculer l'activité en tritium de l'air hors installation en 2001.

	Vienne	Saint-Martin-du-Mont	
	^3H dans l'eau de pluie (UT)	Température (°C)	Hygrométrie (%)
Mai	12,7±0,5	14,0	75,0
Juin	11,5±0,6	14,5	71,8
Juillet	11,2±1,7	15,8	70,5
Août	11,9±1,6	16,7	70,0
Septembre	10,9±0,5	15,6	72,2
Mai-septembre (moy.)	11,7	15,3	71,9

Ces calculs conduisent à l'obtention d'une activité du tritium dans l'air de $2,1 \times 10^{-2} \text{ Bq m}^{-3}$ pour une teneur en eau de l'air de $0,015 \text{ kg m}^{-3}$ (valeurs moyennes sur la période mai-septembre 2001).

4. RESULTATS.

L'ensemble des informations relatives aux échantillons mesurés ainsi que les résultats obtenus est présenté dans l'annexe B.

4.1. Analyse de la dispersion du tritium dans l'air (sans dépôt).

4.1.1. Objectif et méthodes.

Jusqu'au début des années 90, les modèles disponibles de transfert du tritium dans l'environnement adoptaient, pour la plupart, une hypothèse de mise en équilibre des concentrations entre l'eau de l'air et l'eau des composants des écosystèmes. Dans ce but, l'activité du radionucléide était calculée dans l'air en considérant que le tritium ne se déposait pas. Cette modélisation permettait d'estimer principalement l'activité du tritium libre dans les composants des écosystèmes (présent dans l'eau des végétaux par exemple). Le calcul de l'activité du tritium lié à la matière organique pouvait ensuite être conduit en utilisant un taux de conversion entre tritium libre et lié. Aujourd'hui ce type d'approche est encore utilisé pour les études prévisionnelles d'impact de rejets chroniques. Son principal intérêt est de ne pas nécessiter la connaissance d'un nombre élevé de valeurs de paramètres.

En l'absence de calcul de dépôt, la méconnaissance de la répartition des temps de pluie et des temps sec est peu pénalisante, cette répartition influant peu sur la dispersion proprement dite (mais plus sur le dépôt). Dans le cas de l'analyse des résultats de mesures obtenus sur les feuilles de chênes autour de Marcoule en 1991-1992, c'est cette approche qui avait été utilisée, les données météorologiques disponibles pour le site étant de piètre qualité. Ce calcul a donc été également mené dans le cas de Valduc, notamment afin de pouvoir comparer les résultats qui peuvent être obtenus sur les deux sites.

Cette approche conduit à étudier la proportionnalité entre l'activité de l'air et l'activité dans les feuilles de chênes, c'est-à-dire le rapport FE, défini ci-après, qui donne directement la valeur du coefficient de proportionnalité :

$$FE = \frac{[{}^3\text{H}]_{\text{feuilles}}}{[{}^3\text{H}]_{\text{air}}} \quad \text{-E. 1-}$$

$[{}^3\text{H}]_{\text{feuilles}}$ étant exprimée en Bq l⁻¹ d'eau de combustion, résultat brut de la mesure sur les échantillons, $[{}^3\text{H}]_{\text{air}}$ étant exprimée en Bq m⁻³ et calculée au niveau du sol en incluant la valeur de l'activité de l'air ambiant hors installation.

De fait, le calcul de dispersion conduisant à estimer uniquement l'activité du tritium dans l'air due aux rejets, on peut étudier FE à l'aide d'une régression linéaire résumée par l'expression suivante :

$$[{}^3\text{H}]_{\text{feuilles}} = FE \times [{}^3\text{H}]_{\text{air}(\text{rejet})} + \varepsilon \quad \text{-E. 2-}$$

Où $\varepsilon = FE \times [{}^3\text{H}]_{\text{air}(\text{hors rejet})}$.

La comparaison des deux jeux de données (Marcoule et Valduc) nécessite cependant de s'adapter aux différences dans les plans d'échantillonnage utilisés (échantillonnage selon un réseau de mailles carrées sur une surface de 20x64 km² dans le cas de Marcoule, selon la rose des vents dans les 16 km entourant l'émissaire dans le cas de Valduc). Cette adaptation porte principalement sur le fait que le nombre de données disponibles pour les faibles activités dans l'air est très différent : il est très élevé dans le cas de Marcoule, très faible dans le cas de Valduc (seules les quelques données collectées dans l'axe du plateau de Langres correspondent à de faibles activités dans l'air). Pour Marcoule, le nombre

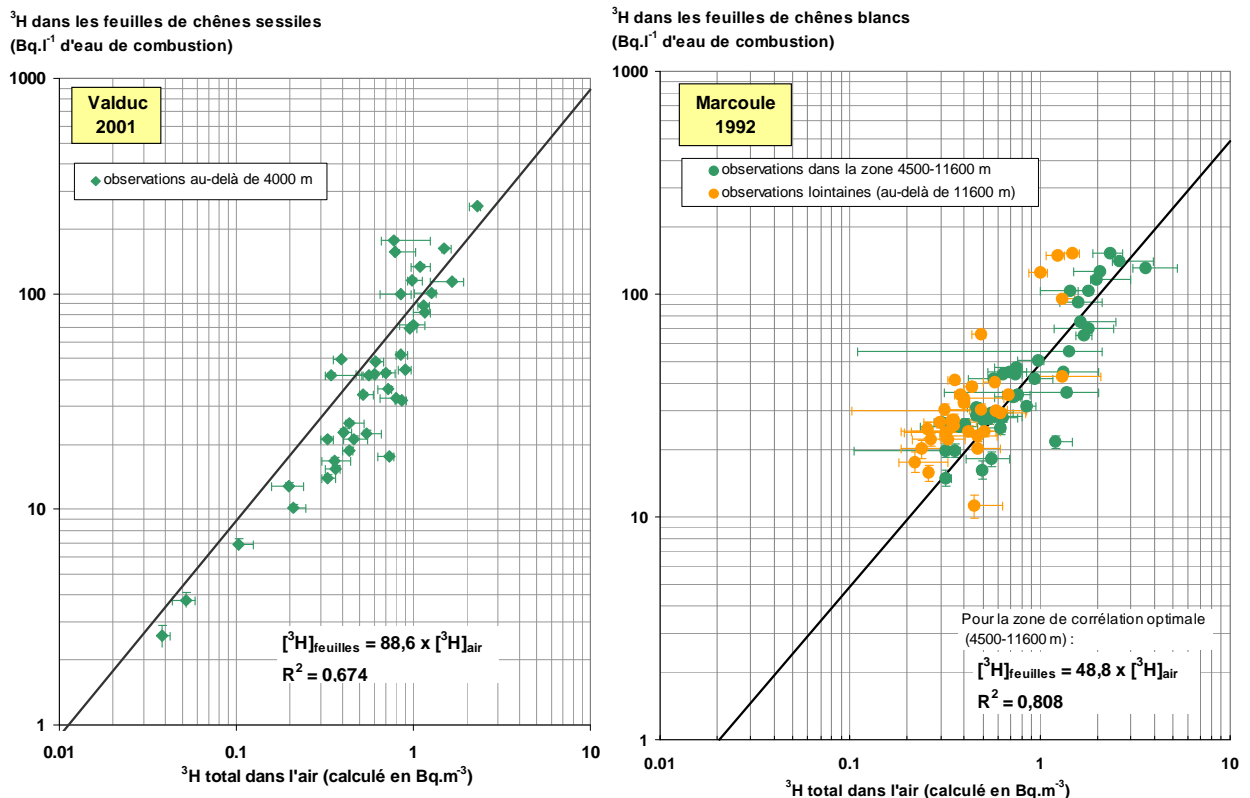
important de données collectées loin du site permet de chercher à estimer l'activité dans les feuilles de chênes non liée aux rejets de l'installation. Pour Valduc, cette estimation est illusoire. Il a donc été choisi de rechercher la valeur de FE pour chacun des deux sites à l'aide de l'expression -E. 1-, en calculant $[^3\text{H}]_{\text{air}}$ par cumul de l'activité dans l'air due aux rejets et de l'activité dans l'air hors rejet (cf. § 3.4, p. 13) et en imposant une ordonnée à l'origine nulle.

L'activité dans l'air hors rejet d'installation est de $2,1 \times 10^{-2} \text{ Bq m}^{-3}$ pour une teneur en eau de l'air de $0,015 \text{ kg m}^{-3}$ à Valduc en 2001 (période mai-septembre) alors qu'elle était de $3,8 \times 10^{-2} \text{ Bq m}^{-3}$ à Marcoule en 1992 (période juin-octobre), pour une teneur en eau de l'air de $0,017 \text{ kg m}^{-3}$.

Pour mémoire, les débits de rejets des deux installations sont assez voisins sur les périodes étudiées ($1,6 \times 10^7 \text{ Bq s}^{-1}$ à Marcoule en 1992 et $8,4 \times 10^6 \text{ Bq s}^{-1}$ à Valduc en 2001).

4.1.2. Résultats et discussion.

Les résultats obtenus sont présentés sur la Figure 5.



(les barres d'erreur verticales correspondent à l'incertitude sur la mesure de l'activité du ^3H lié à la matière organique des feuilles de chênes. Les barres d'erreurs horizontales représentent uniquement l'incertitude liée à l'interpolation entre deux points de calcul comme évoquée au § 3.1.2, p.11, pas l'incertitude totale sur le calcul.)

Figure 5 - Comparaison des facteurs d'échanges entre l'air et les feuilles de chênes à Marcoule (1992) et Valduc (2001).

Le facteur d'échange entre l'air et les feuilles de chênes est de $89 \pm 12 \text{ m}^3 \text{ l}^{-1}$ (d'eau de combustion) à Valduc en 2001 ($R^2=0,67$, 40 observations) alors qu'il était de $49 \pm 4 \text{ m}^3 \text{ l}^{-1}$ à Marcoule en 1992 ($R^2=0,81$, 44 observations dans la zone 4,5-11,6 km autour de l'émissaire). La différence entre les deux valeurs, qui est voisine d'un facteur deux est donc significative. A activité calculée dans l'air égale, les feuilles de chênes seront globalement

deux fois plus marquées par le tritium dans l'environnement de Valduc qu'elles ne le seraient à Marcoule.

Les facteurs susceptibles d'influer sur la valeur du Facteur d'Échange (FE) « apparent » tel qu'il a été calculé ici sont nombreux. Ils sont listés et leur rôle potentiel est discuté dans les paragraphes qui suivent :

- Nature du rejet : ce facteur pourrait être lié au fait que les rejets HT ne sont pas pris en compte dans ces deux études. Néanmoins, il est à noter qu'à Marcoule en 1992 comme à Valduc en 2001 la proportion de rejets HT/HTO est de l'ordre de 20 à 30%. Ce facteur ne peut donc aucunement expliquer la différence constatée.
- Rythme de rejet : la plupart des approches mécanistes des phénomènes de contamination des végétaux par le tritium utilisent le postulat que le tritium présent dans l'air de nuit est peu ou pas du tout fixé par les végétaux (Barry *et al.*, 1999). Si le rythme des rejets nuit/jour des deux installations n'est pas le même et que ce postulat est admis, une différence d'un facteur deux pourrait apparaître, notamment si les rejets de Valduc sont globalement constants le jour et la nuit alors que ceux de Marcoule ont lieu préférentiellement le jour. Ces hypothèses ne peuvent être vérifiées, la connaissance précise de la répartition des rejets entre la nuit et le jour n'étant pas disponible pour les deux installations.
- Valeurs mesurées dans les feuilles de chênes : les mesures effectuées en 1992 à Marcoule portaient sur le tritium non labile lié à la matière organique alors que les mesures effectuées à Valduc en 2001 portent sur le tritium lié à la matière organique, fraction labile (ou échangeable) incluse. Si certains auteurs (Belot *et al.*, 1996) préconisent l'élimination de la fraction échangeable, aucune démonstration expérimentale quantitative de la nécessité de cette élimination n'a été publiée. Par ailleurs, des méthodes inadaptées d'élimination peuvent être aussi gênantes que la conservation de cette fraction. Il est très vraisemblable que la fraction labile du tritium lié à la matière organique est en équilibre plutôt avec l'eau libre qu'avec la matière organique. Sur 23 échantillons pour lesquels l'eau libre et la matière organique ont été analysés en vue de déterminer une activité en tritium, le rapport entre ces deux activités (^3H lié / ^3H libre) varie de 9×10^{-2} à 5 (Vray & Descamps, 2001 b). Du fait de la variabilité de ce rapport, il est probable que le rapport des activités du ^3H lié à la M.O. sur le ^3H non labile lié à la M.O. est variable. Le fait que les résultats des mesures réalisées en 1992 à Marcoule et en 2001 à Valduc ne portent pas exactement sur la même fraction de tritium présent dans l'échantillon n'est donc pas susceptible d'expliquer la différence observée sur le FE obtenu dans les deux cas.
- Température, ensoleillement et abondance des précipitations : l'ensemble de ces facteurs influencent la croissance des végétaux et donc la quantité de biomasse synthétisée durant la période de croissance. Il est clair que l'ensemble de ces conditions sont très différentes entre les deux sites étudiés. Néanmoins, si la production de biomasse sur la période végétative est de toute évidence plus importante en Bourgogne qu'en Provence, la teneur en tritium de la matière organique ne devrait pas être modifiée par ce paramètre puisque la dilution sera également plus importante. Il est peu probable que ces paramètres influencent le FE d'un facteur voisin de deux.
- Humidité relative : ce paramètre est connu pour jouer un rôle fondamental sur les échanges hydriques entre l'eau du sol, l'air et la plante. Il joue sans aucun doute un rôle dans la fixation du tritium par les plantes si on admet que H_2O et HTO ne sont pas évaporés (ou évapotranspirés) exactement de la même manière, et seulement sous cette hypothèse. Ceci revient à admettre l'importance du fractionnement isotopique, hypothèse généralement peu admise en radioécologie (alors qu'elle est à la base des études climatologiques conduites avec les isotopes stables de l'hydrogène). Il convient de rappeler ici que la différence d'humidité relative entre les deux sites est de l'ordre de 10%. Même si cet écart est de nature à augmenter le FE obtenu à Valduc par rapport à

celui de Marcoule, il semble peu probable que ce facteur suffise à expliquer une différence d'un facteur deux comme celle constatée.

- Fréquence des précipitations : ce paramètre est susceptible de jouer principalement sur le dépôt. Compte tenu du fait qu'aucun des facteurs explicatifs évoqués jusqu'ici ne permet d'expliquer la totalité de l'écart observé entre les deux sites, il convient d'admettre que la prise en compte du dépôt (sec et humide) est sans doute nécessaire. La prise en compte des dépôts permettra également de mieux décrire les phénomènes intervenant loin du site. En effet, l'intégration du phénomène de dépôt dans les calculs modifie également les valeurs estimées de la concentration dans l'air, d'autant plus qu'on s'éloigne de l'émissaire (en raison de l'appauvrissement du panache par le dépôt). Ceci sera donc fait pour Valduc dans le chapitre suivant.

4.2. Etude des paramètres caractéristiques des dépôts sec et humide.

Il n'existe pas de consensus réel sur les valeurs exactes des deux paramètres qui caractérisent le dépôt (vitesse de dépôt sec, V_D en $m s^{-1}$ et taux de lavage par la pluie, N_p en s^{-1}). Néanmoins, l'ordre de grandeur de ces valeurs est connu. La vitesse de dépôt au sol varie de 4×10^{-3} à $2 \times 10^{-2} m s^{-1}$ dans la littérature (Gulden *et al.*, 1990 ; Bunnenberg *et al.*, 1992) et la valeur du taux de lavage est de l'ordre de $10^{-4} s^{-1}$ pour une pluie de $1 mm h^{-1}$ (Chamberlain & Eggleton, 1964 ; Tadmor, 1973 ; Abrol, 1990, Gulden & Raskob, 1992), variable essentiellement en fonction de la taille des gouttes et du temps de contact entre HTO et les gouttes de pluie (Belovodski *et al.*, 1997). Dans leur étude du site de Valduc, Guétat & Guinois (2001) ont utilisé des valeurs de $3 \times 10^{-3} m s^{-1}$ et de $3,6 \times 10^{-4} s^{-1}$ respectivement pour V_D et N_p .

La confrontation des valeurs mesurées dans les feuilles de chêne et des valeurs calculées pour le dépôt par COTRAM2 peut permettre de préciser les valeurs de V_D et de N_p pour le site de Valduc car :

- les roses des vents par temps sec et temps de pluie sont très distinctes ;
- le nombre de points situés à différentes distances de l'émissaire est identique (alors qu'il n'y a pas de forte polarisation des vents) ;
- toute modification de la valeur de chacun des paramètres conduit à une modification du dépôt calculé en chaque point, différente d'un point à un autre. C'est la valeur du coefficient de détermination de la droite qui permet d'apprécier l'adéquation d'un jeu de paramètre : plus R^2 est élevé, plus le couple de paramètre est adapté.

Pour cette étude, on n'étudiera plus la relation évoquée au chapitre précédent entre l'activité de l'air et celle des feuilles de chênes (-E. 1- et -E. 2-, p.15) mais la relation suivante :

$$[{}^3H]_{\text{feuilles}} = FT_G \times D + \varepsilon \quad \text{-E. 3-}$$

Où D est l'activité émise par les installations de Valduc et déposée durant la période de croissance des feuilles (mai-septembre) en $Bq m^{-2}$, FT_G est un facteur de transfert global entre le dépôt et la matière organique des feuilles ($m^2 l^{-1}$ d'eau de combustion) et où $\varepsilon = FT_G \times D_0$ avec D_0 le dépôt du tritium présent dans l'air ambiant, hors installation ($Bq m^{-2}$).

Compte tenu de la forte représentativité des temps secs par rapport aux temps de pluie, c'est la vitesse de dépôt sec qui a été estimée en premier, en choisissant un taux de lavage parmi ceux disponibles dans la bibliographie. Une première série de calculs a donc été effectuée avec un taux de lavage de $1,4 \times 10^{-4} s^{-1}$ issu de Belovodski *et al.* (1997), en faisant varier la vitesse de dépôt sec de 3×10^{-3} à $10^{-2} m s^{-1}$. Pour ces calculs comme pour tous les suivants, l'intensité de la pluie a été fixée à $2 mm h^{-1}$ (valeur par défaut dans COTRAM2). A l'issue des cinq calculs effectués, un optimum a été trouvé pour le coefficient de

détermination de la droite de régression pour $V_D=5 \times 10^{-3} \text{ m s}^{-1}$ (Figure 6 A). Cette valeur est incluse dans la gamme des valeurs couramment utilisées pour ce paramètre et citée précédemment. Il est à noter qu'elle est également identique à celle utilisée le plus couramment pour les dépôts d'aérosols de quelques μm de diamètre aérodynamique (Sehmel, 1980 ; NRPB, 2001).

La valeur de V_D étant ainsi fixée, une optimisation de la valeur du coefficient de la droite de régression a ensuite été recherchée en faisant varier la valeur du taux de lavage par la pluie, de $1,4$ à $3 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$. Un optimum a été obtenu pour $2 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ (Figure 6 B). La prise en compte du dépôt avec ce couple de valeurs pour V_D et N_p permet donc de faire passer la valeur du coefficient de détermination de $0,674$ (pour le calcul de l'activité dans l'air) à $0,744$. Par ailleurs, il est à noter que la droite obtenue décrit parfaitement les valeurs observées loin de l'émissaire (jusqu'à 150 km du site environ, légèrement au sud de Nancy), alors que ces dernières (3 observations pour lesquelles l'activité du ^3H lié à la matière organique des feuilles est inférieure à 10 Bq l^{-1} d'eau de combustion) influent très peu sur les paramètres de la régression linéaire. C'est principalement la valeur conservée pour le taux de lavage par la pluie qui permet cette adéquation comme l'indique les trois graphiques de la Figure 7.

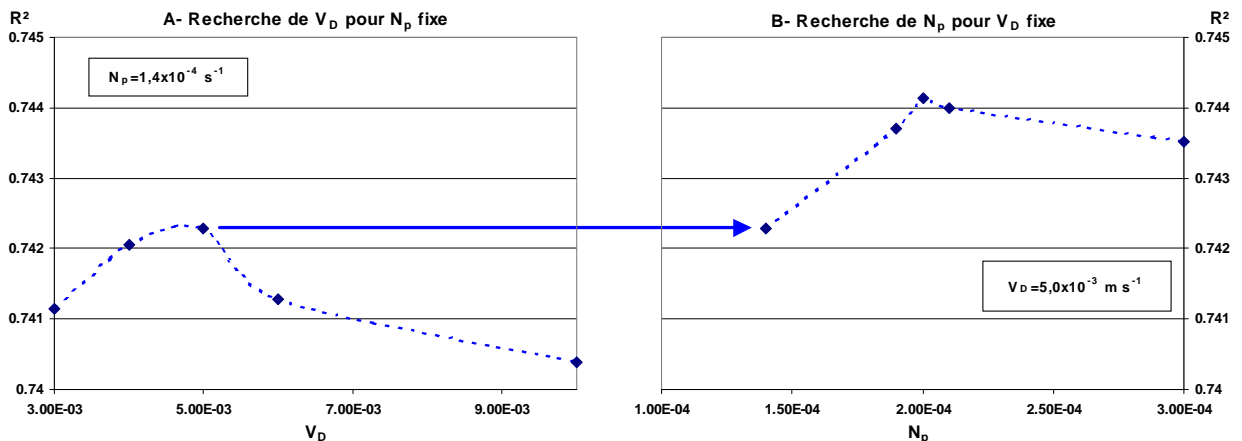


Figure 6 – Variation du coefficient de détermination de la droite de régression $[^3\text{H}]_{\text{feuilles}}=aD + b$ en fonction des valeurs utilisées pour les paramètres caractérisant le dépôt.

Les valeurs obtenues dans le cadre de ce travail ne peuvent être considérées comme valides pour toutes les situations de rejets. Elles sont très vraisemblablement spécifiques au site de Valduc, et c'est sans nul doute les caractéristiques de ce site qui expliquent notamment la vitesse de dépôt sec relativement élevée obtenue. En effet, le temps « sec » correspond à toutes les situations qui ne sont pas des pluies réelles et inclut donc les temps de brumes ou de brouillard, la rosée du matin... situations vraisemblablement très favorables au dépôt et fréquentes dans le cas de Valduc.

Afin de comparer la valeur de FT_G obtenue pour Valduc ($[8,6 \pm 1,7] \times 10^{-4} \text{ m}^2 \text{ l}^{-1}$ d'eau de combustion) avec celle caractérisant le site de Marcoule, il serait nécessaire de reprendre l'ensemble des calculs pour ce site. Une meilleure connaissance de la répartition des temps sec/temps de pluie dans les environs de Marcoule serait donc nécessaire. De plus, il serait également indispensable de rechercher les valeurs de V_D et N_p spécifiques de ce site.

La comparaison des résultats obtenus en 2001 à Valduc avec ceux obtenus précédemment (Guinois, 2001) permettrait de vérifier les résultats obtenus et d'apprécier l'impact de la prise en compte de la fraction labile du tritium dans les mesures. Ceci nécessiterait également de disposer des données météorologiques adaptées sur cette période.

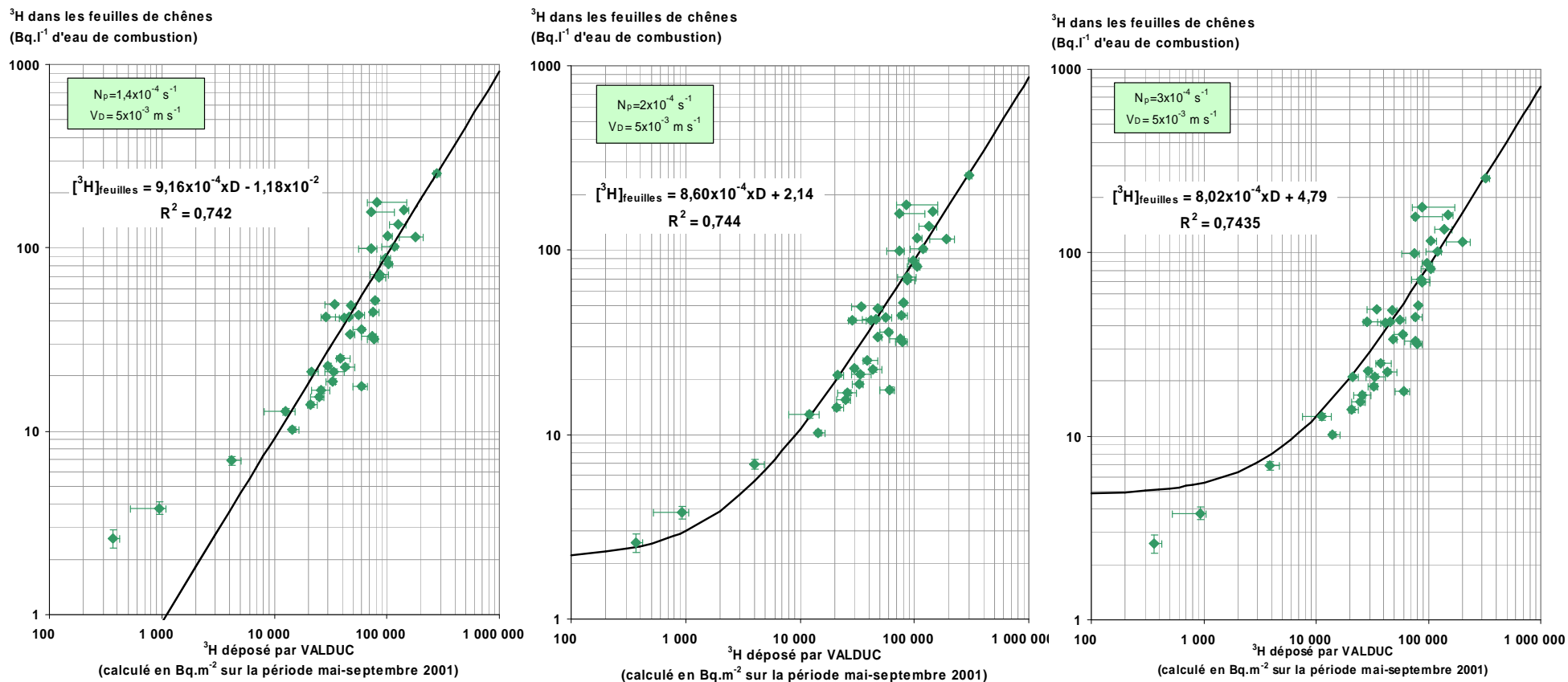


Figure 7 – Calage des paramètres caractéristiques du dépôt de tritium à l'aide des valeurs mesurées dans les feuilles de chênes (activité du ³H lié à la matière organique) : droites de régression du ³H lié à la matière organique en fonction de l'activité déposée entre mai et septembre 2001 pour trois taux de lavage par la pluie différents.

(sur les graphiques ci-dessus, les barres d'erreur verticales correspondent à l'incertitude sur la mesure de l'activité du ³H lié à la matière organique des feuilles de chênes. Les barres d'erreurs horizontales représentent uniquement l'incertitude liée à l'interpolation entre deux points de calcul comme évoquée au § 3.1.2, p.11, pas l'incertitude totale sur le calcul.)

Sur la Figure 9, les zones d'isoconcentrations dans les feuilles de chênes ainsi que les courbes d'isovaleurs de dépôt sont tracées en interpolant entre les points de calcul ou de mesure par une technique de krigeage (Oliver, 1990), en utilisant un modèle circulaire et une portée de 12 à 13 km (au-delà de cette distance, les variations des grandeurs mesurées ou calculées ne sont plus corrélées spatialement). C'est également cette technique qui a été utilisée pour calculer les dépôts moyens et totaux par commune.

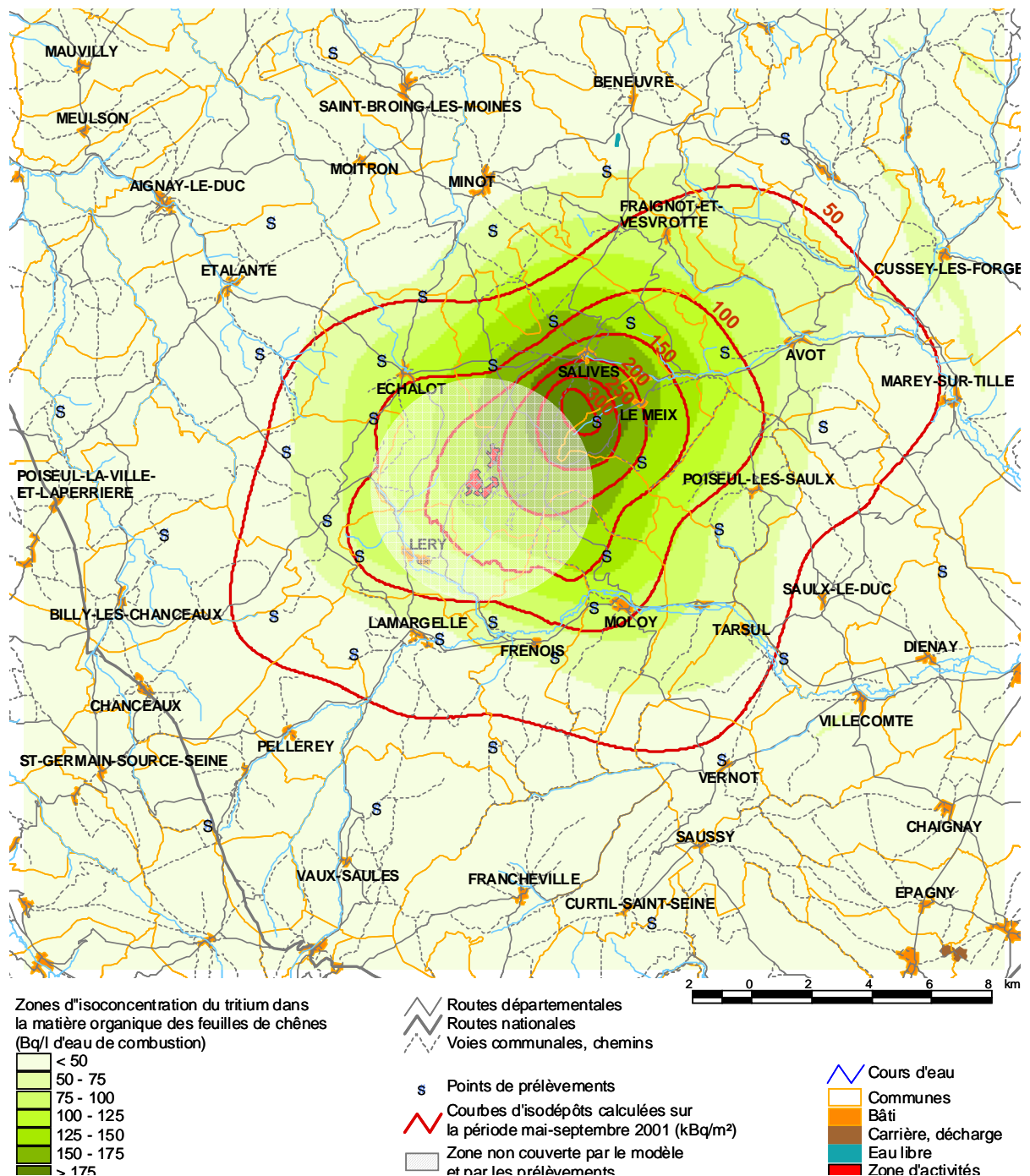


Figure 9 – Cartographie de l'activité du tritium autour de Valduc : dépôts calculés et valeurs mesurées dans la matière organique des feuilles de chênes dans la zone 4-16 km auour du site.

La Figure 9 permet de visualiser l'adéquation globale entre les données calculées et les valeurs mesurées dans les feuilles de chênes, confirmant ainsi les résultats présentés sur la Figure 7, p.20. Comme cela avait été mis en évidence par Guinois (2001), la zone présentant les activités maximales est décalée du point de rejet en direction du nord-est. Dans la présente étude, elle est située près des bourgs de Salives et du Meix, alors que les données de 1988 mais surtout de 1987 et 1998 la situent beaucoup plus près du site. Cette différence est liée à l'absence de prélèvement et de calcul dans les 4 km entourant l'émissaire de rejet principal du site en 2001 (les calculs de dispersion étant hasardeux dans cette zone), mais également aux légères variations interrannuelles des vents. Il est à rappeler ici que le présent travail ne prétend pas décrire correctement les phénomènes intervenant en champ proche des émissaires de rejet. L'absence de connaissance sur les activités réelles du tritium dans cette zone pose peu problème puisqu'aucune habitation et aucune zone cultivée ne peut être recensée dans ce secteur (cf. Figure 8).

Sous cette réserve, les dépôts minimum, maximum, moyen et total par commune ont été calculés pour les quarante-deux communes les plus proches du site. Le détail de ces calculs est présenté en annexe C. La commune présentant la valeur maximale de dépôt (estimée pour une surface de 100x100 m) est celle de Salives sur laquelle une valeur de 321 kBq m⁻² est observée. Celle présentant le dépôt moyen le plus élevé sur l'ensemble de son territoire est Le Meix (202 kBq m⁻²). C'est cependant Salives, dont la surface est plus élevée que celle du Meix (48 km² contre 11 km² environ) qui rassemble le dépôt total le plus important (près de 7 500 GBq). L'ensemble de ces chiffres est donné pour la période mai-septembre 2001, durant laquelle un peu plus de 111 000 GBq ont été rejetés depuis le site. Les quarante-deux communes les plus proches de Valduc ont recueilli environ 39% de l'activité émise durant cette période, les 61% restant étant dispersé sur le reste du territoire (une partie importante dans la zone des 4 km entourant l'émissaire, le reste au-delà de 16 km). Une analyse sommaire de la valeur observée au sud de Nancy, à près de 150 km du site indique que dans ce secteur, l'activité du tritium due à Valduc ne représente plus que 22% de l'activité ambiante (hors rejets d'installation). L'activité « ambiante » (hors rejet) de la matière organique des feuilles de chênes en 2001 dans les conditions climatiques du plateau de Langres est de l'ordre de 2,14 Bq l⁻¹ d'eau de combustion et correspond à une activité dans l'air de 0,021 Bq m⁻³.

5. CONCLUSION.

La présente étude a permis de montrer que les conditions climatiques et/ou les conditions de rejet du site de Valduc étaient, en 2001, légèrement plus pénalisantes que celles rencontrées autour de Marcoule au début des années 1990 en terme d'impact des émissions de tritium sur l'environnement. Ceci peut être partiellement dû à une vitesse de dépôt relativement élevée par temps sec ($5 \times 10^{-3} \text{ m s}^{-1}$), qui pourrait trouver son origine dans la fréquence des périodes de brouillard. Cette valeur, de même que celle du taux de lavage par la pluie ($2 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$), a été estimée par calage du modèle de dispersion sur les résultats de mesures du tritium lié à la matière organique de 40 échantillons de feuilles de chênes collectés en fin de période végétative.

Il serait souhaitable de confirmer l'ensemble de ces résultats en exploitant de la même manière les données acquises antérieurement (en 1987, 1988 et 1998) autour de ce site. Ceci nécessiterait de disposer d'informations aussi détaillées sur les rejets et sur la météorologie locale que celles qui ont servi de support à cette étude (rejets mensuels par émissaire, mesures horaires des vitesses et direction des vents à 30 et 55 mètres, pluviométrie horaire). Un tel travail permettrait en outre d'apporter quelques éléments de réflexion sur l'influence de la prise en compte dans les mesures de tritium lié à la matière organique de la fraction échangeable du tritium.

Ce travail constitue un préliminaire à une étude d'impact telle que s'y intéresse aujourd'hui la SEIVA, puisqu'il peut permettre de cerner les zones d'intérêt qu'il convient de différencier dans le cadre d'une enquête alimentaire par exemple. Si cette étude fournit également quelques valeurs de paramètres adaptés au site de Valduc, ceux impliqués dans le calcul de la dispersion atmosphérique, l'ensemble de la modélisation des transferts de ce radionucléide dans la chaîne alimentaire est encore à définir.

6. LISTE DES ANNEXES

ANNEXE A : FREQUENCE D'OCCURRENCE DES CONDITIONS METEOROLOGIQUES SUR LA PERIODE MAI-SEPTEMBRE 2001.	26
ANNEXE B : CARACTERISTIQUES DES ECHANTILLONS COLLECTES EN 2001 AUTOUR DE VALDUC ET ACTIVITES MESUREES,	26
ANNEXE C : DEPOTS DE TRITIUM DANS LES COMMUNES LES PLUS PROCHES DU CENTRE DE VALDUC SUR LA PERIODE MAI-SEPTEMBRE 2001,	26

7. LISTE DES TABLEAUX

TABLEAU 1- DEBIT DE REJET MOYEN SUR UN MOIS OU SUR LA PERIODE ETUDIEE, POUR CHAQUE SOURCE CONSIDEREE ($Bq\ s^{-1}$).	13
TABLEAU 2- DONNEES UTILISEES POUR CALCULER L'ACTIVITE EN TRITIUM DE L'AIR HORS INSTALLATION EN 2001.....	14

8. LISTE DES FIGURES

FIGURE 1– TOPOGRAPHIE DES ENVIRONS DE VALDUC ET CARTOGRAPHIE DES PRELEVEMENTS.	7
FIGURE 2 – ÉVOLUTION TEMPORELLE DE LA TEMPERATURE DES PLATEAUX ET DE LA PRESSION DE L'ENCEINTE DE LYOPHILISATION AU COURS D'UN CYCLE DE TRAITEMENT DE FEUILLES DE CHENES.	8
FIGURE 3 – ROSES DES VENTS A VALDUC, PAR TEMPS SEC OU HUMIDE - MESURES A DEUX HAUTEURS DISTINCTES SUR LA PERIODE MAI-SEPTEMBRE 2001.	12
FIGURE 4 - ACTIVITE DU TRITIUM DANS L'EAU DE PLUIE HORS REJETS D'INSTALLATIONS (DONNEES AIEA EN UT).	14
FIGURE 5 - COMPARAISON DES FACTEURS D'ÉCHANGES ENTRE L'AIR ET LES FEUILLES DE CHENES A MARCOULE (1992) ET VALDUC (2001).....	16
FIGURE 6 – VARIATION DU COEFFICIENT DE DETERMINATION DE LA DROITE DE REGRESSION $[^3\text{H}]_{\text{FEUILLES}}=aD + b$ EN FONCTION DES VALEURS UTILISEES POUR LES PARAMETRES CARACTERISANT LE DEPOT.	19
FIGURE 7 – CALAGE DES PARAMETRES CARACTERISTIQUES DU DEPOT DE TRITIUM A L'AIDE DES VALEURS MESUREES DANS LES FEUILLES DE CHENES (ACTIVITE DU ^3H LIE A LA MATIERE ORGANIQUE) : DROITES DE REGRESSION DU ^3H LIE A LA MATIERE ORGANIQUE EN FONCTION DE L'ACTIVITE DEPOSEE ENTRE MAI ET SEPTEMBRE 2001 POUR TROIS TAUX DE LAVAGE PAR LA PLUIE DIFFERENTS.	20
FIGURE 8 – OCCUPATION DES SOLS AUTOUR DE VALDUC ET LOCALISATION DES POINTS ET RESULTATS DE MESURES ET DES POINTS DE CALCUL DE LA DISPERSION ATMOSPHERIQUE.	21
FIGURE 9 – CARTOGRAPHIE DE L'ACTIVITE DU TRITIUM AUTOUR DE VALDUC : DEPOTS CALCULES ET VALEURS MESUREES DANS LA MATIERE ORGANIQUE DES FEUILLES DE CHENES DANS LA ZONE 4-16 KM AUOUR DU SITE.	22

9. LISTE DES RÉFÉRENCES

1. Estimation of whashout of tritiated water (HTO) effluent by raindrops.
Bulletin of Radiation Protection, **13**, 23-26, 1990.
ABROL V.
2. Intercomparison of model predictions of tritium concentrations in soil and foods following acute airborne HTO exposure.
Journal of Environmental Radioactivity, **42**, 191-207, 1999.
BARRY P.J., WATKINS B.M., BELOT Y., DAVIS P.A., EDLUND O., GALERIU D., RASKOB W., RUSSEL S. & TOGAWA O.
3. Le tritium, de l'environnement à l'Homme.
Les éditions de physique, Les Ulis, France, collection IPSN, 1996
BELOT Y. – ROY M. – MÉTITIVER J.M.
4. Tritium oxide whash-out by drops.
Journal of Environmental Radioactivity, **36** (2-3), 129-139, 1997.
BELOVODSKI L.F., GAEVOY V.K., GOLUBEV A.V. & KOSHELEVA T.A.
5. Key processes and input parameters for environmental tritium models.
Canadian Fusion Fuels Technology Project,
Report CFFTP G-9032/NET-88-176, 1992.
BUNNENBERG C., TASCHNER M. & OGRAM G.L.
6. Washout of tritiated water vapour by rain.
International Journal of Air and Water Pollution, **8**, 135-149, 1964.
CHAMBERLAIN A.C. & EGGLETON A.E.J.
7. Impact des rejets tritiés atmosphériques de l'usine de Marcoule sur son environnement terrestre. Mesure de l'activité du tritium non labile lié à la matière organique sur des feuilles de chênes.
IPSN/DPEI, Rapport SERE 92/068 (I), 1992
DESCAMPS B. – CARRÈRE D. – LAURENT N.
8. Étude du marquage des feuilles de chêne de l'environnement du site de Marcoule par le tritium contenu dans les rejets atmosphériques ; prélèvements d'octobre 1992. Mesures du tritium non labile lié à la matière organique.
IPSN/DPEI, Rapport SERE 95/022 (P), 1995 (a)
DESCAMPS B. – CARRÈRE D. – LAURENT N.
9. Mesure de l'activité du tritium non labile lié à la matière organique sur les cernes annuels de croissance d'un chêne. Reconstitution de l'historique des rejets atmosphériques de tritium du site de Marcoule pour la période 1967-1992.
IPSN/DPEI, rapport SERE 95/021 (P), 1995 (b)
DESCAMPS B. – CARRÈRE D. – LAURENT N.
10. Description du code COTRAM 2 de calcul de coefficients de transfert atmosphérique moyens.
IPSN/DPEI, note technique SEAC/94/188, 1994
DEVILLE-CAVELIN G. - CRABOL B. - MONFORT M.
11. Une méthode de calcul pratique et générale pour la prévision numérique des pollutions véhiculées par l'atmosphère.
Rapport CEA-R-4280 (Rév. 1), 1976
DOURY A.
12. Le vademecum des transferts atmosphériques.
IPSN/CEA, rapport DSN N°440, 1981
DOURY A.

13. Rapport de synthèse.
Institut de Protection et de Sûreté Nucléaire, Fontenay-aux-Roses, 1999
GROUPE RADIOÉCOLOGIE NORD-COTENTIN.
14. Étude d'impact des rejets atmosphériques tritium du centre de Valduc de 1969 à 1999.
CEA/DIF/DASE/SRCE
Rapport technique SMQ EEX52 RBC RTE QRCE 0017, 2001
GUÉTAT Ph. - GUINOIS G.
15. Comparaison des mesures en tritium organique de 1987, 1988 et 1998.
CEA/DIF/DASE/SRCE
Rapport technique SMQ EEX52 RBC RTE QRCE 016 B, 2001
GUINOIS G.
16. Doses to the public due to accidental tritium releases.
Fusion Technology, **17**, 223-227, 1990.
GULDEN W., RASKOB W. & EDLUND O.
17. Accidental tritium doses based on realistic modelling.
Fusion Technology, **21**, 536-543, 1992.
GULDEN W. & RASKOB W.
18. A test of chronic atmospheric release models using french data.
Draft TECDOC, BIOMASS Theme 3, Tritium Working Group,
Working document BIOMASS/T3TM/WD05, 2000
International Atomic Energy Agency (IAEA).
19. Review of deposition velocity and washout coefficient.
Atmospheric Dispersion Modelling Liaison Committee, Report NRPB-R322, 2001.
National Radiological Protection Board (NRPB).
20. Kriging: a method of interpolation for geographical information systems.
International Journal of Geographic Information Systems, **4** (4), 313-332, 1990.
OLIVER M.A.
21. Atmospheric diffusion.
Van Nostrand Reinhold, London, 1962
PASQUILL R.
22. Particles and gas dry deposition : a review.
Atmospheric Environment, **14**, 983-1011, 1980
SEHMEL G.A.
23. Deposition of ⁸⁵Kr and tritium released from a nuclear fuel reprocessing plant.
Health Physics, **24**, 30-43, 1973.
TADMOR J.
24. Evaluation of a Gaussian-modified dispersion model for atmospheric release from the Marcoule nuclear site.
Environmental Modelling and Assessment, **5**, 75-81, 2000
VAUQUELIN O. – LÉVY F.
25. Proposition technique et financière pour l'évaluation de l'impact des rejets atmosphériques tritiés du site de VALDUC.
IPSN, Rapport DPRE/SERNAT/2001-35, 2001
VRAY F. – DESCAMPS B (a).
26. Utilisation d'un indicateur biologique pour l'évaluation de rejets atmosphériques de tritium dans l'environnement : mise au point méthodologique.
IPSN, Rapport DPRE/SERNAT/2001-23, 2001
VRAY F. – DESCAMPS B (b).

ANNEXE A : FREQUENCE D'OCCURRENCE DES CONDITIONS METEOROLOGIQUES SUR LA PERIODE MAI-SEPTEMBRE 2001.

Tableau A1 - Fréquence d'observation des conditions météorologiques (en %) à 30 mètres de hauteur durant la période mai-septembre 2001.

Classe de vitesse (en m.s ⁻¹)		Temps de pluie					Temps sec					total
		<0,5	0,5-2	2-5	5-9	>9	<0,5	0,5-2	2-5	5-9	>9	
		Vitesse moy, (m.s ⁻¹)	0,25	1,46	3,68	6,45	9,10	0,25	1,50	3,39	6,02	
Direction d'où vient le vent (°)	0	0	0	0	0,564	0,282	2,257	8,465	37,53	5,079	0	54,18
	20	0	0	0,564	1,411	0	1,693	8,465	41,76	8,465	0,282	62,64
	40	0	0,282	0,282	0	0	1,411	5,926	35,27	12,42	0	55,59
	60	0,282	0,564	0,564	0	0	0,847	8,747	45,43	8,465	0	64,9
	80	0	0,564	0	0	0	0,564	9,876	33,86	1,129	0	45,99
	100	0	0,282	0	0	0	0,564	10,72	35,27	1,975	0	48,81
	120	0	0	0	0	0	2,54	18,91	23,42	0,282	0	45,15
	140	0,282	0	0,282	0,282	0	0,564	8,465	15,52	0,564	0	25,96
	160	0	0,282	0,564	0	0	0	6,208	15,8	0,564	0	23,42
	180	0	0	0	0	0	0,564	7,336	12,98	1,411	0	22,29
	200	0	0,847	0,847	0,564	0	1,129	7,901	17,78	2,822	0	31,88
	220	0	0	2,54	1,129	0	0,564	10,16	31,88	9,594	0,282	56,15
	240	0,282	0,282	3,386	2,822	0	1,129	12,42	47,69	11,85	0,282	80,14
	260	0	0,282	3,386	2,257	0	0,847	10,16	50,79	28,5	0	96,22
	280	0,282	0	1,129	2,257	0	1,693	8,747	38,66	17,21	0	69,98
300	0	0	2,257	0,564	0	2,257	15,24	49,1	8,465	0	77,88	
320	0	0	1,411	0,564	0	1,129	19,47	52,48	3,95	0	79,01	
340	0	0	0,282	0,282	0	1,129	9,876	41,2	7,054	0	59,82	
total	1,13	3,39	17,49	12,70	0,28	20,88	187,10	626,40	129,80	0,85	1000	

**Tableau A2 - Fréquence d'observation des conditions météorologiques (en ‰)
 à 55 mètres de hauteur durant la période mai-septembre 2001,**

Classe de vitesse (en m.s ⁻¹)		Temps de pluie					Temps sec					total
		<0,5	0,5-2	2-5	5-9	>9	<0,5	0,5-2	2-5	5-9	>9	
		Vitesse moy, (m.s ⁻¹)	0,25	1,70	3,50	6,50	9,85	0,25	1,48	3,68	6,34	
Direction d'où vient le vent (°)	0	0	0	0	0,343	0	0	0,685	19,53	15,08	0,685	36,33
	20	0,343	0	0	0	0	0	2,399	14,74	8,568	0,343	26,39
	40	0	0	0	0	0	0	2,742	31,53	26,39	0,685	61,34
	60	0	0,343	0,685	0	0	0	2,399	46,26	23,99	6,511	80,19
	80	0	0	0,343	0	0	0	2,742	28,79	19,53	1,028	52,43
	100	0	0	0,343	0	0	0	3,084	14,05	8,568	0,685	26,73
	120	0	0	0	0	0	0	2,742	22,28	7,197	1,028	33,24
	140	0	0,343	0,343	0,343	0	0	4,112	40,1	6,169	1,371	52,78
	160	0	0	0,685	0,685	0	0,343	2,056	27,07	8,568	1,371	40,78
	180	0	0	0	1,028	0	0	1,714	9,253	15,42	0	27,42
	200	0	0	0,343	0,685	0	0	1,371	11,65	10,62	0,685	25,36
	220	0	0	1,371	5,826	0,343	0	2,399	30,84	37,35	4,798	82,93
	240	0	0,343	2,056	2,742	0,343	0,343	2,056	42,49	37,01	1,371	88,76
	260	0	0	0,343	4,112	0	0	3,77	46,95	59,97	3,084	118,2
	280	0	0	0,685	0,685	0	0	1,371	15,42	14,05	1,371	33,58
	300	0	0	0	1,371	0	0	3,77	21,93	23,99	0,343	51,41
320	0	0	1,371	0,685	0	0	1,714	55,52	32,21	0	91,5	
340	0	0	0,685	0	0	0	4,112	49,69	14,39	1,714	70,6	
total		0,34	1,03	9,25	18,51	0,69	0,69	45,24	528,10	369,10	27,07	1000

ANNEXE B : CARACTERISTIQUES DES ECHANTILLONS COLLECTES EN 2001 AUTOUR DE VALDUC ET ACTIVITES MESUREES,

Date de prélèvement	Commune de localisation du prélèvement	Longitude (°)	Latitude (°)	Poids frais/sec	³ H lié à la M,O, (Bq l ⁻¹ d'E,C.)
26/09/2001	Salives	+4,8766	+47,6144	2,41	157 ± 2
02/10/2001	Le Meix	+4,9223	+47,5967	2,38	254 ± 4
25/09/2001	Moloy	+4,9244	+47,5558	2,24	162 ± 3
25/09/2001	Frénois	+4,8729	+47,5373	2,67	68,7 ± 1,3
01/10/2001	Léry	+4,8152	+47,5581	2,45	81,8 ± 1,5
26/09/2001	Poiseul-la-Grange	+4,8233	+47,5996	2,51	87,7 ± 1,5
02/10/2001	Salives	+4,9043	+47,6269	2,09	177 ± 3
02/10/2001	Le Meix	+4,9417	+47,5839	2,14	115 ± 2
25/09/2001	Moloy	+4,9182	+47,5404	2,19	101 ± 2
01/10/2001	Lamargelle	+4,8494	+47,5329	2,32	32,0 ± 0,9
26/09/2001	Poiseul-la-Grange	+4,8013	+47,5693	2,29	71,3 ± 1,3
26/09/2001	Echalot	+4,8278	+47,6168	2,26	99,2 ± 1,7
27/09/2001	Salives	+4,9386	+47,6254	2,27	134 ± 2
25/09/2001	Poiseul-les-Saulx	+4,9744	+47,5626	2,47	51,9 ± 1,1
25/09/2001	Frénois	+4,9000	+47,5261	2,21	44,4 ± 1,0
01/10/2001	Lamargelle	+4,8113	+47,5288	2,24	17,5 ± 0,6
26/09/2001	Poiseul-la-Grange	+4,7838	+47,5904	2,16	43,0 ± 0,9
26/09/2000	Echalot	+4,8465	+47,6356	2,43	33,9 ± 0,8
27/09/2001	Minot	+4,8785	+47,6548	1,97	49,4 ± 1,1
27/09/2001	Avot	+4,9801	+47,6157	2,15	116 ± 2
25/09/2001	Saulx-le-Duc	+5,0011	+47,5236	2,27	48,4 ± 1,0
25/09/2001	Lamargelle	+4,8715	+47,5000	2,53	22,5 ± 0,7
26/09/2001	Chanceaux	+4,7760	+47,5410	2,15	36,1 ± 0,9
26/09/2001	Etalante	+4,7733	+47,6201	2,18	41,7 ± 0,9
27/09/2001	Beneuvre	+4,9302	+47,6713	2,51	41,8 ± 1,0
27/09/2001	Avelanges	+5,0221	+47,5925	2,31	33,0 ± 0,8
25/09/2001	Vernot	+4,9726	+47,4936	2,20	42,2 ± 1,0
24/09/2001	Vaux-Saules	+4,8186	+47,4823	2,53	18,7 ± 0,6
24/09/2001	Billy-les-Chanceaux	+4,7285	+47,5664	2,31	21,2 ± 0,7
26/09/2001	Etalante	+4,7802	+47,6589	2,32	16,8 ± 0,6
27/09/2001	Grancey-le-Château-Neuve	+5,0098	+47,6791	2,19	25,1 ± 0,7
27/09/2001	Is-sur-Tille	+5,0729	+47,5481	2,13	22,8 ± 0,7
24/09/2001	Val-Suzon	+4,9388	+47,4454	2,38	21,1 ± 0,6
24/09/2001	Poncey-sur-l'ignon	+4,7443	+47,4787	2,33	15,4 ± 0,5
26/09/2001	Orret	+4,6843	+47,6044	2,18	14,0 ± 0,5
27/09/2001	Terrefondrée	+4,8103	+47,7095	2,33	10,2 ± 0,4
02/10/2001	Auberive	+5,1314	+47,7724	2,32	12,8 ± 0,5
28/09/2001	Rolampont	+5,3309	+47,9174	2,19	6,9 ± 0,4
28/09/2001	Beaufremont	+5,7694	+48,2428	2,27	3,8 ± 0,3
28/09/2001	Flavigny-sur-Moselle	+6,2197	+48,5657	2,20	2,6 ± 0,3

ANNEXE C : DEPOTS DE TRITIUM DANS LES COMMUNES LES PLUS PROCHES DU CENTRE DE VALDUC SUR LA PERIODE MAI-SEPTEMBRE 2001,

Calculs effectués avec les paramètres suivants :

Vitesse de dépôt sec : $5 \times 10^{-3} \text{ m s}^{-1}$;
 Taux de lavage par la pluie : $2 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$;
 Intensité de la pluie : 2 mm h^{-1} ,

Commune	Surface (km ²)	Dépôt surfacique (kBq m ⁻²)			Dépôt total sur la commune (GBq)
		Minimum	Moyen	Maximum	
Le Meix	10,7	130	202	311	2167
Salives	48,2	32	155	321	7476
Lery	14,8	86	126	183	1874
Barjon	4,8	100	125	154	594
Moloy	19,5	49	112	221	2186
Poiseul-Les-Saulx	15,2	61	98	151	1491
Echalot	28,2	41	97	181	2729
Avot	21,9	52	82	119	1789
Frenois	22,2	36	78	192	1732
Courtivron	16,0	42	75	131	1205
Poiseul-La-Grange	23,4	42	73	131	1717
Avelanges	6,0	54	68	90	409
Fraignot-Et-Vesvrotte	11,9	29	61	112	722
Courlon	10,0	48	61	77	605
Lamargelle	26,1	33	60	103	1575
Tarsul	9,5	44	56	69	534
Bussières	6,6	29	54	95	357
Busserotte-Et-Montenaille	6,8	33	53	80	356
Saulx-Le-Duc	29,0	29	49	94	1413
Vernot	13,1	33	46	64	598
Pellerey	12,7	31	43	59	550
Chanceaux	21,4	25	41	76	875
Billy-Les-Chanceaux	22,4	25	40	70	906
Grancey-Le-Chateau-Neuve	27,8	29	40	56	1112
Villecomte	16,5	27	36	47	590
Etalante	39,5	21	35	60	1374
Saussy	9,4	27	32	38	299
Oigny	15,0	23	32	44	476
Minot	36,2	14	30	96	1095
Vaux-Saules	28,5	17	30	43	849
Curtil-Saint-Seine	12,3	20	29	43	359
Poncey-Sur-L'ignon	16,9	24	29	38	491
Dienay	15,6	22	27	38	420
Saint-Germain-Source-Seine	8,9	23	25	31	227
Orret	11,5	20	24	28	269
Blessey	7,4	22	23	24	170
Champagny	7,2	19	23	26	162
Moitron	15,7	15	21	33	323
Beneuvre	15,4	15	20	35	311
Duesme	13,3	17	20	24	260
Aignay-Le-Duc	24,7	16	19	25	478
Beaunotte	8,8	16	17	18	145