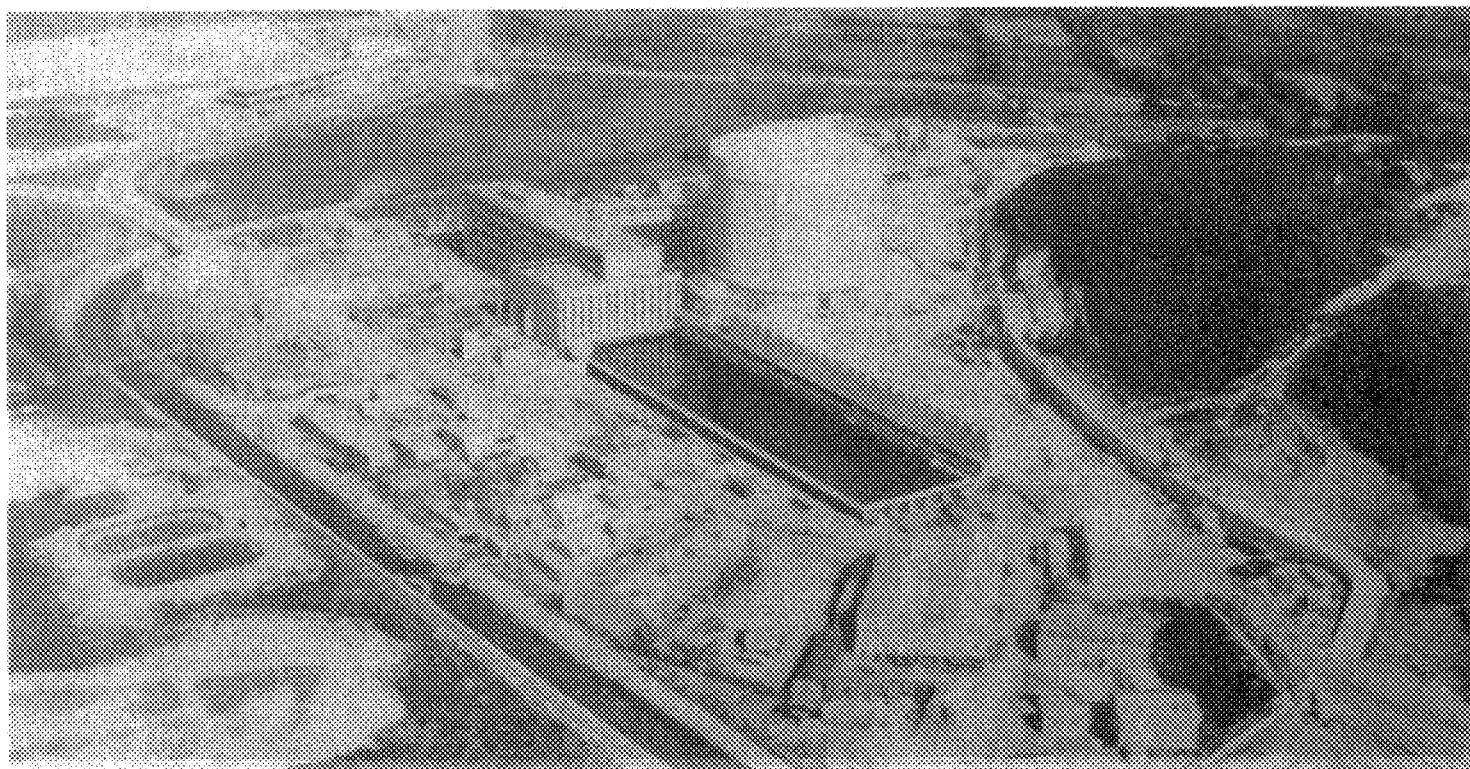


**Premiers résultats & constats**  
**extrait du rapport d'étape**  
**communication du 28 novembre 2006**



**Origine des éléments de la famille de l'uranium-235  
observés dans la rivière l'Ellez à proximité du réacteur  
nucléaire expérimental EL4 en cours de démantèlement  
(Mont d'Arrée - département du Finistère)**

*Etude réalisée à la demande de :*

**CIDEN**

**Brest**  
métropole océane  
COMMUNAUTÉ URBAINE

## 1 Les enseignements retirés à ce jour

A l'heure où nous achevons ce rapport d'étape, une année s'est écoulée depuis le démarrage de cette étude, laquelle devait durer au plus quelques mois pour renseigner sur l'origine exacte du phénomène atypique précédemment observé. Nous étions d'autant plus convaincus d'obtenir rapidement un résultat irréfutable qu'existaient des moyens matériels et humains dimensionnés, une synergie, une complémentarité des cultures d'études et enfin une volonté chez tous les acteurs. En conséquence, nous avions prévu de communiquer définitivement lors de la précédente réunion de l'Observatoire du SMA.

Mais il arrive parfois qu'une dimension imprévue s'impose, obligeant à douter de toute conclusion évidente, le temps de consolider les acquis.

Dès le commencement, nous savions que ce travail aurait un caractère original participant à la construction de connaissances nouvelles, car il n'existe aucune publication scientifique, ni même de résultats de surveillance ou de contrôle, qui font état d'observations similaires dans l'environnement et/ou fournissent des informations de compréhension quant au(x) processus artificiel(s) ou naturel(s) pouvant expliquer une telle manifestation radiologique en regard du contexte industriel et géochimique rencontré dans les Monts d'Arrée.

Il existe bien quelques publications traitant des processus naturels concernant les radionucléides étudiés mais uniquement pour le milieu marin comme celle de Nozaki. Y. *et al* (1990) qui s'intéresse aux sédiments déposés au fond de l'océan pacifique.

Très intéressante, si on suspecte une origine artificielle, est la publication de Pasquier JL *et al* (2003) qui relate une contamination ayant eu des conséquences très localisées sur l'environnement et dont la manifestation était similaire à celle observée dans la région. Mais dans ce cas, il n'y avait aucune relation avec l'industrie nucléaire. Cette pollution était la conséquence d'un épisode de l'exode des scientifiques Français à l'aube de la dernière guerre mondiale, emportant avec eux un sel radioactif obtenu par raffinage du minerai d'uranium.

Quant aux contrôles radiologiques effectués dans les écosystèmes du territoire français, on soulignera que le peu (voire l'absence) de données en rapport avec le phénomène observé n'est pas surprenante. Appartenant à la famille naturelle de l'uranium-235 dont la teneur dans les sols est très faible, les radionucléides incriminés ne sont que très rarement détectés<sup>1</sup> hormis dans les écosystèmes perturbés par les activités minières d'extraction de l'uranium.

Par phénomène nous entendons la présence, à certains endroits du bassin versant du réservoir Saint-Herbot, **d'actinium-227 non supporté par ses ascendants de longue période physique que sont l'<sup>235</sup>U (et le <sup>231</sup>Pa)** et qui :

- associé aux particules de sols-berges ou de sédiments entraîne un déséquilibre majeur dans la famille de l'uranium-235 caractérisé par un rapport  $^{227}\text{Ac}/^{235}\text{U}$  pouvant au moins être de 10, conduisant dans ce cas précis à observer des niveaux pour  $^{227}\text{Ac}$ , comme pour chacun de ses fils, voisins de ceux de l'uranium-238. On citera pour illustration, les sols-berges de la station 26E qui contiennent  $223 \pm 11$  Bq/kg sec d' $^{227}\text{Ac}$  ( $^{227}\text{Th}$ ) pour  $272 \pm 15$  Bq/kg sec d' $^{238}\text{U}$  ( $^{234}\text{Th}$ ).
- donne naissance à un flux de  $^{223}\text{Ra}$  en direction des écosystèmes aquatiques qui se caractérise chez les mousses aquatiques du genre *Fontinalis* par un rapport  $^{223}\text{Ra}/^{227}\text{Th}$  compris entre 2 et 8 et des niveaux qui peuvent atteindre un sixième de ceux du  $^{226}\text{Ra}$ , un radionucléide prépondérant. On citera pour illustration les résultats obtenus à la station 14 consécutifs au prélèvement du 25 novembre 2005 et qui sont de  $136 \pm 45$  Bq/kg sec en  $^{223}\text{Ra}$ , de  $25 \pm 14$  Bq/kg sec en  $^{227}\text{Th}$  et, au plus, de  $1571 \pm 198$  Bq/kg sec en  $^{226}\text{Ra}$ .

Les premières investigations auront été consacrées à préciser les niveaux de la radioactivité le long de l'Ellez depuis sa source jusqu'au réservoir Saint-Herbot, situé à une dizaine de kilomètres en aval. De cette manière, il a été possible d'obtenir une vue d'ensemble. Par la suite, nous avons recherché à préciser la situation au voisinage du site nucléaire des Monts d'Arrée (SMA), notamment à proximité de l'émissaire de rejets des eaux pluviales et de celui, désaffecté, des effluents radioactifs liquides. A cet endroit, plusieurs sondages ont été réalisés le long de l'ancien chenal, sorte de fossé qui assurait la jonction entre la station de traitement des effluents (STE) et l'Ellez. Aujourd'hui nous explorons le milieu purement terrestre du bassin versant de Saint-Herbot, au nord de la ligne d'écoulement de l'Ellez, dans le but de vérifier la pertinence d'une hypothèse naturelle.

Deux supports d'étude ont été privilégiés au cours de ces douze derniers mois : les sédiments, déposés dans le lit des cours d'eau et au fond des lacs ; les mousses aquatiques du genre *Fontinalis*, endogènes et exogènes après immersion durant un certain laps de temps dans l'Ellez à différents endroits. Au voisinage du site nucléaire, l'absence de végétaux aquatiques et de sédiments fins, le contexte physique du chenal, et l'intérêt de cerner les apports par suite d'érosion des sols, nous ont amenés à nous concentrer sur les berges-sols.

La figure en page 6 localise les stations de prélèvements étudiées.

<sup>1</sup> Par spectrométrie gamma, technique d'analyse usuelle.

Au total, près d'une centaine d'échantillons sont mesurés à ce jour par spectrométrie gamma, une méthode d'analyse multi-élémentaire rendant compte des radionucléides émetteurs gamma comme le  $^{137}\text{Cs}$ . Selon l'évolution du questionnement, des analyses spécifiques ont été entreprises comme la détermination du rapport  $^{238}\text{U}/^{235}\text{U}$  par spectrométrie de masse ou le dosage des isotopes du plutonium, de l'uranium et du thorium. Ces analyses avaient pour but d'apprécier les contributions des activités nucléaires du SMA ainsi que les teneurs et déséquilibres des radionucléides caractéristiques des principales familles naturelles ( $^{238}\text{U}$  ;  $^{232}\text{Th}$ ).

**Croisées, ces données permettent de formuler plusieurs constats.**

D'abord, le long de l'Ellez, la situation radiologique est différente entre l'amont et l'aval du barrage de Nestavel. En aval, les teneurs sont plus fortes et il existe des disparités qualitatives ou déséquilibres.

Dans le réservoir Saint-Michel, les sédiments n'affichent aucune particularité radiologique. Les résultats des analyses sont comparables avec ceux obtenus ailleurs, hors des Monts d'Arrée.

Concernant la radioactivité dite « naturelle », la teneur en  $^{238}\text{U}$  varie entre 30 et 40 Bq/kg sec selon les endroits. Il n'existe pas de déséquilibres évidents pour chacune des familles naturelles hormis dans les sédiments superficiels de l'embouchure de l'Ellez. Dans cette pellicule sédimentaire, on observe, pour la famille de l' $^{238}\text{U}$ , un excès en  $^{226}\text{Ra}$  et principalement en  $^{210}\text{Pb}$ . Pour autant, il n'est pas anormal ; de tels excès sont constatés régulièrement ailleurs que dans les Monts d'Arrée.

S'intéressant aux radionucléides artificiels, il est possible d'avancer que le lac n'a pas été perturbé par les rejets de la troisième boucle de refroidissement du réacteur, tout du moins il n'en n'a pas conservé les stigmates pour les radionucléides étudiés. Du  $^{137}\text{Cs}$  est certes détecté à des concentrations un peu élevées (jusqu'à 32 Bq/kg sec dans les sédiments superficiels) mais ce constat est également valable à des endroits non perturbés comme dans les tourbières de l'embouchure de l'Ellez située à 4km à l'ouest du site. Pour expliquer ces fortes valeurs, il faut conserver à l'esprit, outre le contexte géologique particulier (tourbières du Yeun Ellez), que cette région est l'une des plus « arrosées » de France. Aussi, les dépôts consécutifs aux essais nucléaires atmosphériques et, dans une moindre mesure à l'accident de Tchernobyl, sources de  $^{137}\text{Cs}$ , ont pu être plus importants que dans d'autres endroits.

Ailleurs dans le Roudoudour et le Roudouhir, comme dans l'Elorn, soit à distance du SMA, les quelques données disponibles ne contrastent pas avec celles obtenues pour le réservoir Saint-Michel. Il est intéressant de souligner que les mousses aquatiques témoignent là encore de la présence significative de  $^{137}\text{Cs}$  dans les eaux, ce qui n'est pas le cas sur le bassin Seine-Normandie. L'existence de niveaux de  $^{137}\text{Cs}$  un peu élevés, indépendamment de toutes contributions de la centrale, est donc un trait caractéristique de la région des Monts d'Arrée.

En aval du barrage de Nestavel, la situation radiologique diffère. D'abord, la teneur en uranium est plus importante dans les sédiments comme dans les berges. Pour l'uranium-238, elle va être en moyenne de 100 Bq/kg sec dans les sédiments de Saint-Herbot et atteindre 250 Bq/kg sec à proximité des émissaires du SMA. Pour autant, le rapport  $^{238}\text{U}/^{235}\text{U}$  est normal comme le confirment les mesures par spectrométrie de masse ou gamma (lorsqu'il a été possible de doser précisément l' $^{235}\text{U}$ ). L'uranium mesuré présente donc une qualité « naturelle » ; il ne témoigne pas des déséquilibres attendus lorsqu'il existe un transfert significatif d'uranium lié au combustible nucléaire. Mais concernant les descendants de chacune de ces deux familles, les déséquilibres sont multiples et manifestes. Dans les strates sédimentaires de St-Herbot, on mesure ainsi pour la famille de l'uranium-238 les niveaux suivants (dans la strate 30-32 cm de la carotte BRE-C3) :

238U	234U	230Th	226Ra	210Pb
88,1±3,6	92±3	50,8±3,5	121±10	252±9
Bq/kg sec	Bq/kg sec	Bq/kg sec	Bq/kg sec	Bq/kg sec

De tels résultats témoignent, outre d'un excès en radium-226 et plomb-210 caractéristique à la région étudiée, d'un excès plus particulier en uranium. Mais incontestablement c'est le déséquilibre très net au sein de la famille de l'uranium-235 qui confère un caractère exceptionnel à la situation radiologique rencontrée. Généralement voisin de 1 comme c'est le cas dans le réservoir Saint-Michel, cette fois le rapport  $^{227}\text{Ac}/^{235}\text{U}$  est toujours supérieur à 1 (à quelques exceptions près) et peut même dépasser 10 !

	235U	227Th(=227Ac)	227Ac/235U	238U/235U
St-Herbot, strate 30-32cm carotte BRE-C3	6,3	10,8	1,7	139,9
Exutoire chenal station 23A	2,0	12,9	6,4	137,4
Chenal à proximité STE station 26E	< 22	223	> 10	Non mesuré à ce jour
unité	Bq/kg sec	Bq/kg sec		Référence : 136 à 142

On est donc en présence d'un « enrichissement » en descendants de la famille de l'uranium-235 dans les sédiments, comme dans les berges. Dès lors, on observe des teneurs très significatives en  $^{227}\text{Ac}$ , susceptibles d'être équivalentes à celles de l'uranium-238, un radioélément prépondérant.

Dans l'Ellez, ces radionucléides ne sont pas seulement transportés avec les particules, ils sont également présents dans la colonne d'eau comme en témoigne l'analyse des mousses aquatiques. En aval du barrage de Nestavel, ces végétaux aquatiques sont « marqués » par le  $^{223}\text{Ra}$  à des niveaux supérieurs à ceux de  $^{227}\text{Ac}$  ( $^{227}\text{Th}$ ), le « père ». Pour autant, **les concentrations résiduelles n'entraîne pas un dépassement des critères de potabilité si on se réfère au contrôle effectué sur un échantillon d'eau de l'Ellez prélevé en octobre 2005** (voir tableau suivant).

Critère	Tritium	Alpha global	Bêta global
Mesure (Bq/L)	< 7	< 0,02	0,11±0,05
Référence (arrêté du 12/05/04)	100	0,1	1

Fait troublant à la date d'aujourd'hui, le déséquilibre le plus criant est observé dans l'ancien chenal de rejets des effluents radioactifs, à une dizaine de mètres en aval de la station de traitement des effluents (STE). En amont, notamment à proximité du rejets des eaux pluviales du SMA, il n'en n'est rien. Dans le chenal, il existerait une relation entre les niveaux de  $^{227}\text{Ac}$  et ceux du  $^{137}\text{Cs}$  rejetés par l'installation par le passé : plus il y a de  $^{227}\text{Ac}$ , plus il y a de  $^{137}\text{Cs}$  et par extension de radioactivité artificielle (mais l'inverse n'est pas vrai comme en atteste la station 26A). Tout comme il existerait une relation (pour le moins surprenante) avec le plomb-210, un radionucléide « naturel » provenant de la désintégration du radon exhalé des sols.

Tableau 1 : extrait des résultats des mesures par spectrométrie gamma sur les échantillons de berges-sols prélevés en différents endroits le long de l'ancien chenal de rejets des effluents radioactifs. Les résultats sont exprimés en Bq/kg sec. sources [ACRO] et [LSCE].

	Radionucléides $\beta\text{-}\gamma$ artificiels			Famille de l'uranium-238			Famille de l'uranium-235		
	60Co	108mAg	137Cs	234Th	226Ra	210Pb	235U	227Th	219Rn
					minimal		maximal*		
23C-1	207± 24	1,5± 0,4	543± 64	92± 16	87± 11	361± 45	9,0± 1,6	44± 13	49± 11
23A	9,9± 1,2	-	33,7± 4,0	58± 11	101± 13	154± 20	<b>2,0± 0,3</b>	12,9± 4,0	13,0± 4,0
26A	13,9± 2,0	-	88± 11	43± 20	31,4± 4,7	138± 24	4,5± 1,1	< 7	< 16
26E	2028± 19	39± 3	3735± 13	272± 15	78± 3	2114± 27	22± 2	223± 11	224± 30

(\* ) le résultat indiqué en gras est la teneur réelle en  $^{235}\text{U}$ . Elle est déterminée à partir de la mesure de  $^{238}\text{U}$  par spectrométrie alpha, en tenant compte du rapport des masses  $^{238}\text{U}/^{235}\text{U}$  mesuré.

Parmi les autres constats saillants et d'intérêt pour expliciter l'origine du phénomène, on soulignera le résultat de l'étude des rapports des isotopes du plutonium et des teneurs en américium-241 dans chenal. Celui-ci a révélé l'existence de transferts de transuraniens, donc d'éléments lourds appartenant (normalement) au combustible nucléaire. Si un tel constat est surprenant car il est contradictoire avec les observations faites autour des réacteurs électronucléaires français en cours d'exploitation, conservons à l'esprit le caractère expérimental du réacteur de Brennilis et son époque d'exploitation : aux débuts de l'ère industrielle nucléaire, soit à un moment où le savoir-faire se crée.

Tableau 2 : Teneurs (Bq/kg sec) des isotopes du plutonium et de  $^{241}\text{Am}$  (et leurs rapports associés) mesurés dans les berges-sols prélevés en trois endroits le long de l'ancien chenal de rejets des effluents radioactifs liquides.

	239+240Pu	238Pu	238Pu / 239+240Pu	241Am	241Am / 239+240Pu
23C1	1,2± 0,2	0,25± 0,10	0,21± 0,09	< 1	-
23A	<b>0,068± 0,006</b>	-	<b>0,15± 0,04</b>	<b>0,057± 0,010</b>	<b>0,85± 0,15</b>
26E	-	-	-	13± 2	-

S'intéressant aux dépôts des radionucléides dans le réservoir Saint-Herbot, on constate l'existence de cet excès en  $^{227}\text{Ac}$  quelque soit la profondeur étudiée. Bien qu'il soit difficile de dater les différentes strates étudiées en raison de l'existence de nombreuses interférences pour l'indicateur de l'échelle de temps employé (le  $^{210}\text{Pb}$ ), il est possible d'avancer que ce phénomène n'est pas récent. **Il existerait depuis au moins 10 ans, peut-être vingt. Et on n'observe pas de variations significatives dans le temps. Les opérations de démantèlement entreprises depuis quelques années ne seraient donc pas à l'origine du phénomène.**

Dans ces mêmes dépôts, on détecte systématiquement du  $^{137}\text{Cs}$  dont les teneurs, comprises entre 29 et 93 Bq/kg sec, croissent avec la profondeur. Dans les sédiments les plus anciens (les plus profonds), la présence de  $^{60}\text{Co}$  indique que les activités passées du SMA ont contribué significativement aux niveaux de la radioactivité artificielle mesurée.

Pour les transuraniens classiques que sont les isotopes du plutonium et l'américium-241, ils sont présents à l'état de traces, voisins d'1 Bq/kg sec au plus. De tels niveaux, ne contrastent pas significativement avec ceux enregistrés à plus grande distance dans des endroits seulement perturbés par les retombées des essais nucléaires atmosphériques.

**D'après les faits rapportés ci-avant, on pourrait croire à une origine artificielle : aux activités nucléaires passées du SMA. Mais il y a un constat, récent, qui force à douter et à faire preuve à ce jour de la plus grande retenue quant à toute interprétation qui paraîtrait trop évidente.**

Souhaitant mieux connaître les niveaux de la radioactivité naturelle des sols du bassin versant de Saint-Herbot, de nouveaux prélèvements ont été réalisés ces 30 derniers jours. Et au détour d'un chemin rural, à 4km du SMA, soit dans un endroit normalement non perturbé par les activités passées de la centrale, le phénomène vient d'être observé. Les résultats suivants témoignent :

238U (234Th)	226Ra min	210Pb	235U	231Pa	227Th (=227Ac)	137Cs
210±9	46±2	497±13	< 14	< 14	54±4	3,1±0,6
Bq/kg sec	Bq/kg sec	Bq/kg sec	Bq/kg sec	Bq/kg sec	Bq/kg sec	Bq/kg sec

Au sein de la famille de l'uranium-235, l'excès en <sup>227</sup>Ac (non supporté) est manifeste. Et cette fois, il n'y a aucune radioactivité artificielle hormis un peu de 137Cs comme on le constate ailleurs sur le territoire français.

Une telle observation « relance » d'abord l'hypothèse d'une origine naturelle, comme des infiltrations d'eaux souterraines qui auraient la particularité d'être « riches » en actinium-227 et se rencontreraient à plusieurs endroits du bassin versant de Saint-Herbot, à commencer sur le site du SMA.

Puis, elle invite à s'interroger sur une possible contribution artificielle d'une autre nature que celle liée à l'utilisation de combustible nucléaire au sein de la centrale et sur l'existence probable de mécanismes complexes de transfert dans l'environnement.

**En conséquence il a été décidé de suspendre momentanément toute interprétation, le temps de consolider cette observation qui est incontestablement un rebondissement majeur. Les prochaines investigations y seront consacrées.**

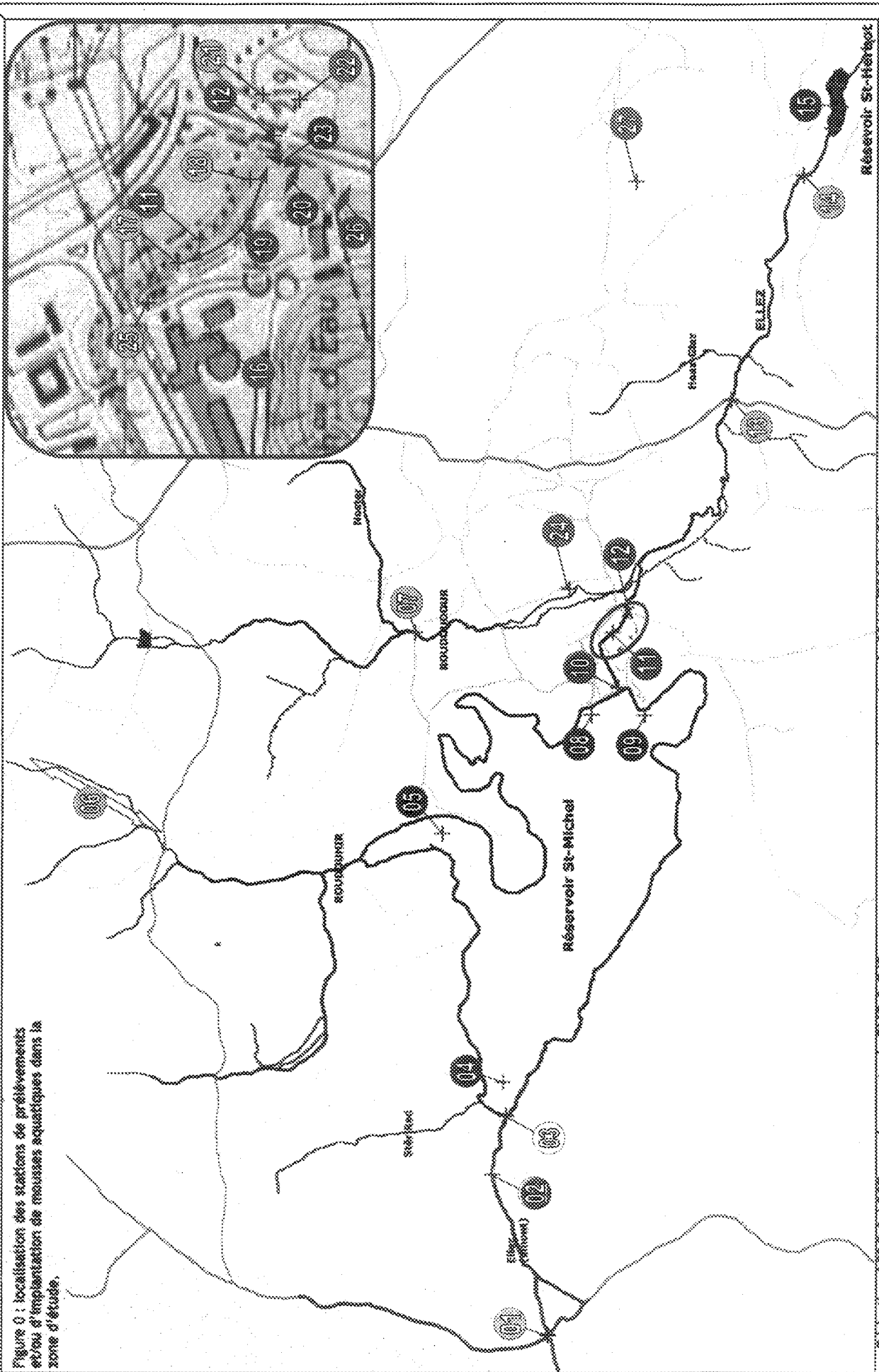
**Il n'en reste pas moins, quelque soit l'origine du phénomène des Monts d'Arrée :**

- que celui-ci prend au moins naissance dans l'emprise du SMA ;
- que les stratégies de mesures de la radioactivité de l'environnement faites à l'échelle du territoire français (et des évaluations sanitaires qui en découlent) ne peuvent faire l'économie des enseignements de cette étude et qu'elles devraient évoluer en conséquence, ne serait-ce que pour fournir des références.

Enfin, il faut être conscient que vouloir élucider un jour l'hypothèse artificielle (si tel est le cas) et expliciter alors le dénominateur commun entre les observations faites dans l'ancien chenal de rejets et à 4km du site en milieu terrestre, nécessitera d'avoir accès à des informations relatives aux activités de recherche du site des Monts d'Arrée, à la nature des remblais et matériaux, au désenvasement du réservoir St-Herbot, etc.

Etude réalisée par :  
le Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement [LSCE]  
l'Association pour le Contrôle de la Radioactivité dans l'Ouest [ACRO]

Figure 0 : localisation des stations de prélèvements et/ou d'implantation de mousses aquatiques dans la zone d'étude.



## 2 Informations générales sur l'uranium

L'uranium est un élément trace de la composition féro-magnésienne du manteau. La remontée de ces matériaux mantelliques au niveau de la croûte terrestre permet à l'uranium de faire partie des principaux constituants radioactifs naturels de la surface terrestre.

La teneur moyenne de l'uranium est de 3 à 4 ppm par kg de roches. Cependant, cette valeur peut être assez fluctuante en fonction de la roche étudiée. Pour illustration, l'uranium se retrouve dans les phosphates à une teneur pouvant atteindre 350 ppm par kilogramme.

L'uranium se trouve essentiellement dans les roches et sédiments d'origine endogène tel que les granites.

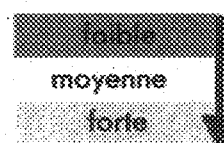
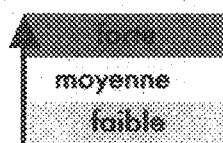
Dans le milieu naturel, les roches contiennent plusieurs isotopes de l'uranium. Le plus abondant est l'238U (99.275%) puis dans une plus faible proportion l'235U (0.719%) et enfin l'234U (0.0057%).

Chaque élément appartenant à ces familles engendre, par désintégration alpha ou bêta, un radionucléide dit fils qui aura une période physique et des propriétés chimiques différentes. Libérés individuellement dans l'environnement, tous ces radionucléides n'auront donc pas le même devenir.

La famille de l'235U comprend 11 radionucléides principaux. Cette filiation se termine par un isotope stable du plomb qu'est le <sup>207</sup>Pb. Les éléments de cette famille devraient avoir en général une teneur (ou activité massique) 21,5 fois moins élevée que celle de leurs homologues appartenant à la chaîne de l'238U. Mais à la date d'aujourd'hui, il existe très peu de résultats de mesure pour garantir ce postulat, quel que soit l'endroit et le compartiment étudié.

Elément	Famille de l'235U	Famille de l'238U
Uranium	U-235 7,0E8 a	U-238 4,5E9 a      U-234 2,4E5 a
Protactinium	Pa-231 3,3E4 a	Pa-234m 1,2 min
Thorium	Th-231 75,9 h      Th-227 18,7 j	Th-232 14,1 j      Th-230 75400 a
Actinium	Ac-227 21,8 a	
Radium	Ra-223 11,4 j	Ra-226 1600 a
Francium		
Radon	Rn-219 3,96 s	Rn-222 3,8 j
Astato		
Polonium	Po-215 1,9 ms	Po-218 3,1 min      Po-214 164 µs      Po-210 138 j
Bismuth	Bi-211 2,1 min	Bi-214 19,9 min      Bi-210 5,0 j
Plomb	Pb-211 36,7 min      Pb-207 stable	Pb-214 26,8 min      Pb-210 22,3 a      Pb-206 stable
Thallium	Tl-207 4,8 min	

réactivité vis à vis des  
particules



solubilité