

IRSNINSTITUT
DE RADIOPROTECTION
ET DE SÛRETÉ NUCLÉAIRE

Contribution à l'évaluation du risque environnemental associé aux rejets d'uranium dans le bassin versant du Ritord

Rapport DEI/SECRE n° 08-040

K. Beaugelin-Seiller, J. Garnier-Laplace, R. Gilbin, C. Della-Vedova

Demandeur	GEP mines GT2
Référence de la demande	
Numéro de la fiche programme	08D/TOC-002/01 17000035 0010
Processus de rattachement	R5

Contribution à l'évaluation du risque environnemental associé aux rejets d'uranium dans le bassin versant du Ritord

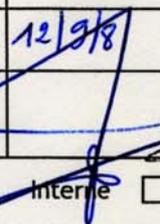
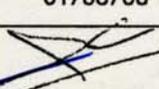
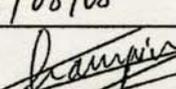
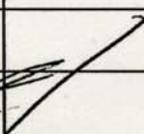
K. Beaugelin-Seiller, J. Garnier-Laplace, R. Gilbin, C. Della-Vedova

Laboratoire de Modélisation Environnementale

DEI/SECRE/2008-040

Levée de la restriction de diffusion le 01 septembre 2009



	Réservé à l'unité		Visas pour diffusion		
	Auteur(s)	Vérificateur	Chef du SECRE	Directeur de la DEI	Directeur Général de l'IRSN *
Noms	K. Beaugelin-Seiller	H. Van den Hove	J. GARNIER-LAPLACE	D. CHAMPION	J. REPUSSARD
Dates	30/07/08	12/9/08	01/08/08	6/08/08	
Signatures					

DIFFUSION : Libre Interne Limitée

*si nécessaire

HISTORIQUE DES MODIFICATIONS

Version	Date	Auteur	Pages ou paragraphes modifiés	Description ou commentaires
V0	20/05/08	K. Beaugelin-Seiller		Émission du document en version projet
	30/07/08	K. Beaugelin-Seiller		Émission du document en version finale (intégration des commentaires du GT2)
V1	01/09/09	K. Beaugelin-Seiller		Modification du statut de diffusion

LISTE DE DIFFUSION

Nom	Organisme
Coordinateurs du GT2 GEP mines pour diffusion dans le groupe	
C. Ringard	IRSN/DRPH/SER/UETP
O. Catelinois	InVS
D. Champion	DEI/Dir
D. Boulaud	DEI/Dir
J.C. Gariel	DEI/Dir
P. Calmon	DEI/SECRE/LME
D. Boust	DEI/SECRE/LRC
R. Gilbin	DEI/SECRE/LRE
D. Gay	DEI/SARG
J.M. Peres	DEI/SESURE

RESUME

Les méthodes (hypothèses, équations, paramètres et choix associés) à la base des travaux d'évaluation du risque aux écosystèmes aquatiques envisagés dans le cadre du GT2 du GEP mines ont été exposées dans un précédent document. Elles sont ici mises en œuvre sur le bassin versant du Ritord, pour déterminer le risque environnemental lié aux rejets d'uranium par les anciennes installations minières. Il s'agit en première approche de diagnostiquer par l'application de la méthode proposée et des données précédemment réunies un éventuel risque chimique et/ou radiologique dû à ces rejets dans la zone d'étude. Le cas échéant, les approches probabilistes décrites dans le document méthodologique seront utilisées pour raffiner l'évaluation du risque potentiel identifié lors du screening.

MOTS-CLES

Risque, screening, uranium, chimiotoxicité, radiotoxicité, résultats, Ritord

SOMMAIRE

1 INTRODUCTION- PRINCIPAUX ÉLÉMENTS DE CONTEXTE	7
2 ÉTAPE DE SCREENING	8
2.1 RAPPELS MÉTHODOLOGIQUES	8
2.1.1 Formulation du problème	9
2.1.2 Analyse des expositions.....	10
2.1.3 Analyse des effets	17
2.1.4 Caractérisation du risque.....	18
2.2 CARACTÉRISATION DÉTERMINISTE DU RISQUE RADIOLOGIQUE CHRONIQUE.....	19
2.2.1 Risque déterministe radiologique chronique total	20
2.2.2 Risque déterministe radiologique chronique ajouté	21
2.2.3 Conclusions sur le risque déterministe radiologique chronique	23
2.2.4 Analyse détaillée des contributions à l'indice de risque déterministe radiologique chronique	23
2.3 CARACTÉRISATION DÉTERMINISTE DU RISQUE CHIMIQUE CHRONIQUE	33
2.3.1 Risque déterministe chimique chronique total	33
2.3.2 Risque déterministe chimique chronique ajouté	34
2.3.3 Conclusions sur le risque déterministe chimique chronique	35
2.3.4 Biodisponibilité et risque chimique	35
2.4 CONCLUSIONS SUR LES MÉTHODES DÉTERMINISTES D'ÉVALUATION DU RISQUE POUR L'ENVIRONNEMENT	38
3 ÉVALUATION PROBABILISTE DU RISQUE CHIMIQUE OU RADIOLOGIQUE... 39	39
3.1 RAPPELS MÉTHODOLOGIQUES	39
3.2 PRINCIPES COMMUNS DE MISE EN OEUVRE	40
3.3 CARACTÉRISATION PROBABILISTE DU RISQUE RADIOLOGIQUE CHRONIQUE	40
3.4 CARACTÉRISATION PROBABILISTE DU RISQUE CHIMIQUE CHRONIQUE	41
4 CONCLUSIONS	42
4.1 ACTIONS PRIORITAIRES À RÉALISER	43
4.1.1 Analyse des expositions.....	43
4.1.2 Recherche de preuves supplémentaires.....	43
4.2 ACTIONS SOUHAITABLES	44
4.2.1 Analyse des effets	44
4.2.2 Caractérisation probabiliste du risque	44
4.3 AUTRES POINTS	44
5 RÉFÉRENCES	44
6 LISTE DES TABLEAUX.....	45
7 LISTE DES FIGURES	47
8 ANNEXE A : CONCENTRATIONS D'EXPOSITION	49
9 ANNEXE B : COEFFICIENTS DE TRANSFERT	51
9.1 RÉFÉRENCES	52
10 ANNEXE C : PNEC POUR LES SUBSTANCES RADIOACTIVES	53

11 ANNEXE D : MÉTHODES STATISTIQUES POUR JEUX DE DONNÉES INCLUANT DES VALEURS NON DÉTECTÉES	54
11.1 MÉTHODE DE KAPLAN-MEIER.....	54
11.1.1 Principe	54
11.1.2 Detailed Example.....	55
11.2 MÉTHODE ROS (REGRESSION ON ORDER STATISTICS)	58
11.2.1 Principe	58
11.2.2 Detailed example.....	60
11.3 REFERENCES	64
12 ANNEXE E : ÉTUDE DE SPÉCIATION COMPLÉMENTAIRE	66
12.1 COMPOSITION IONIQUE AU POINT SR11	66
12.2 CONCENTRATIONS EN URANIUM AU POINT SR11	66
12.3 SPÉCIATION CHIMIQUE DE L'URANIUM AU POINT SR11	67
12.4 SPÉCIATION CHIMIQUE DE L'URANIUM EN FONCTION DE SA CONCENTRATION ET DU PH69	
12.5 RÉFÉRENCES.....	69
13 ANNEXE F : DISTRIBUTIONS TEMPORELLES DE PROBABILITÉ CUMULÉE DES DONNÉES D'EXPOSITION.....	70

1 INTRODUCTION- PRINCIPAUX ÉLÉMENTS DE CONTEXTE

Le Groupe d'Expertise Pluraliste (GEP) créé sur la demande des Ministres chargés de la santé, de l'écologie et de l'industrie et officiellement mis en place le 29 juin 2006, a pour mission d'analyser la problématique des anciennes exploitations uranifères d'AREVA NC en Haute Vienne au regard des impacts sur l'homme et l'environnement. Une analyse préliminaire du volet relatif à l'impact environnemental des sites miniers à l'échelle du bassin versant du Ritord a été réalisée par l'IRSN dans le cadre de l'expertise globale que l'Institut a menée sur le bilan décennal environnemental 1994-2003 produit par AREVA NC (AREVA NC, 2004). Cette analyse a conduit notamment à proposer d'appliquer la méthode d'évaluation du risque environnemental associé aux rejets de substances radioactives mise en place dans le cadre du projet européen ERICA¹ (ERICA, 2007). Dans le contexte d'application attendu par le GEP, il s'agit, sur la base des données existantes de surveillance de l'environnement, de quantifier la probabilité de l'existence d'un risque potentiel sur les écosystèmes aquatiques (cours d'eau, retenues, lacs...) de la Haute Vienne en liaison avec les rejets liquides de toutes natures attribuables à la gestion passée et actuelle des sites miniers par AREVA NC (Établissement de Bessines) (Garnier-Laplace et Beaugelin-Seiller, 2006; IRSN, 2007a).

Dans le cadre du GT2² du GEP, il a été décidé de procéder à l'examen en première approche - ou étape dite de screening- de l'impact écologique (et du risque) potentiel des rejets issus des installations minières du bassin versant du Ritord. La première étape de la méthode graduée retenue pour l'évaluation du risque environnemental associé aux radionucléides dans le cadre du projet ERICA a été adaptée au cas des effluents minières. La démarche proposée et les données associées ont été présentées en 2007 au GT2 (Beaugelin-Seiller et Garnier-Laplace, 2007), qui a suggéré quelques modifications, tracées dans le présent document.

En application de cette première phase méthodologique, il s'agit maintenant de contribuer au diagnostic du bassin versant du Ritord en termes de risque environnemental lié aux rejets d'uranium par les anciennes installations minières présentes dans la zone d'étude. Une première étape de screening est réalisée, afin de balayer le domaine spatial et temporel concerné, et de mettre éventuellement en évidence pour tout ou partie des stations et des années examinées un risque pour l'écosystème aquatique lié aux rejets d'uranium, qu'il soit dû à la chimiotoxicité ou à la radiotoxicité. Pour de tels cas, les méthodes probabilistes présentées dans le document méthodologique sont mises en œuvre afin de confirmer ou non ce risque. Enfin, tout en insistant sur les incertitudes associées aux hypothèses posées, ce diagnostic permet d'étayer et de prioriser les recommandations que le GT2 sera amené à formuler à l'issue de ses travaux quant à la surveillance de l'environnement dans le bassin versant du Ritord. Ses conclusions pourront également supporter l'éventuelle extension de ces recommandations aux autres bassins versants minières de la Division de la Cruzille.

¹ ERICA : Environmental Risk from Ionising Contaminants: Assessment and Management. 6th Framework Programme.

² Ce Groupe de Travail est dédié à l'évaluation des impacts environnemental et sanitaire.

2 ÉTAPE DE SCREENING

2.1 RAPPELS MÉTHODOLOGIQUES

Fondue avec la méthode conventionnelle d'évaluation du risque écologique mise en œuvre pour toute substance chimique rejetée dans l'environnement, l'approche proposée pour les substances radioactives suit l'articulation de la méthode ERICA (ERICA, 2007), méthode graduée dont la première étape d'analyse est un screening. Le principe de ce screening est de proposer une méthode simple permettant de caractériser le risque environnemental associé aux radionucléides sur la base d'hypothèses conservatives et de peu de données d'entrée. L'approche retenue consiste à calculer un indice de risque déterministe en comparant les concentrations d'exposition dans les milieux constitutifs des écosystèmes (ou PEC, Predicted Environmental Concentration) avec les concentrations limites dites sans effet (valeur de référence ou valeur benchmark dite PNEC, Predicted No Effect Concentration) dans ces mêmes milieux, au moyen de leur rapport. A l'instar de la méthode européenne d'évaluation du risque environnemental associé aux substances chimiques décrite dans le guide technique européen ou Technical Guidance Document (EC, 2003), cette approche comprend quatre composantes :

- la formulation du problème, ou identification des dangers, qui vise à réunir toutes les informations disponibles concernant les sources (inventaire qualitatif et quantitatif des contaminants à considérer) et les scénarios de rejets, les cibles à protéger dans les écosystèmes récepteurs, et les relations possibles entre les sources et ces cibles ; cette composante repose sur l'adoption d'un modèle conceptuel simplifié d'écosystème récepteur où tous les milieux ou habitats des organismes vivants sont représentés (i.e., eau, sédiment, berge, air pour un écosystème aquatique continental) et pour lequel une représentation simplifiée de la structure et du fonctionnement est définie par la sélection d'un nombre limité d'organismes dits de référence. Ces organismes sont des représentants d'espèces animales ou végétales, associés à un niveau trophique et à un mode de vie.
- l'analyse des expositions, qui vise à déterminer par la mesure ou le calcul les concentrations auxquelles les cibles définies sont ou peuvent être exposées (PEC) ;
- l'analyse des effets, qui a pour objet la détermination des concentrations prévues sans effet (valeur de référence ou valeur benchmark dite PNEC) par l'examen critique des relations dose-effet associées à chaque contaminant et à chaque espèce ;
- la caractérisation du risque, par la comparaison à l'unité d'un indice déterministe calculé par le rapport des PEC dans les milieux constitutifs des écosystèmes et des PNEC dans ces mêmes milieux.

Cette approche repose sur l'hypothèse de l'additivité des indices de risque calculés pour chaque substance, cohérente avec celle appliquée dans le domaine chimique lorsque plusieurs substances sont présentes : l'indice de risque total pour un milieu au sein d'un écosystème donné résulte de la somme des indices de risque évalués pour chacun des radionucléides dans ce milieu.

Pour chacune des étapes clés de la méthode, les choix arrêtés présentés dans le rapport méthodologique (Beaugelin-Seiller et Garnier-Laplace, 2007) sont rappelés ci-après. Les hypothèses et discussions associées ne sont pas mentionnées, seules les conclusions du document précédemment cité sont reprises. Pour plus de détails quant à la justification des choix présentés, le lecteur est appelé à consulter le document méthodologique. La même approche étant appliquée à l'écotoxicité chimique et radiologique de l'uranium et de ses descendants, de

nombreux points sont communs aux deux aspects dans les rappels méthodologiques et il n'est alors pas spécifié à quelle toxicité ils se rapportent. Lorsqu'une différence existe, elle est mentionnée et le point correspondant est traité sous les deux angles.

2.1.1 FORMULATION DU PROBLÈME

L'échelle spatio-temporelle la plus adaptée au cas d'étude a été fixée à l'année sur le bassin versant du Ritord (excluant de fait le lac de St Pardoux), dont la zone de référence est située en amont de la station SR5 (stations SR1 à SR4, Figure 1).

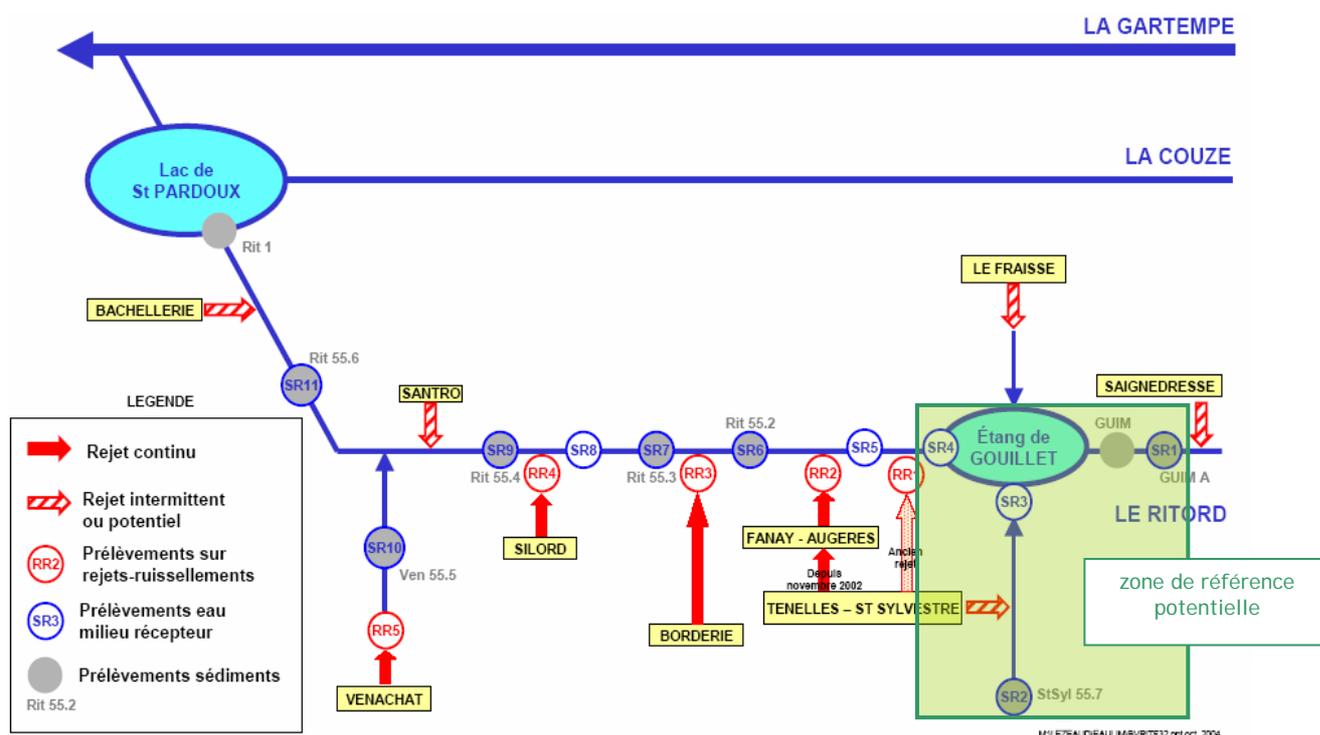


Figure 1 : zone d'étude (bassin versant du Ritord, d'après AREVA NC, 2004)

Le terme-source initialement décrit (Beaugelin-Seiller et Garnier-Laplace, 2007) a été complété pour la partie radioactive de façon à être le plus exhaustif possible. Il comprend maintenant l'intégralité des chaînes principales de filiation des trois isotopes naturels de l'uranium. La composition de chacun des termes-sources considérés pour l'étape de screening est décrite au Tableau 1.

Le modèle conceptuel d'exposition des composantes biologiques de l'écosystème aquatique continental considérées et de leurs interactions, entre elles et avec leur environnement, est décrit par la matrice de transfert et d'exposition présentée à la Figure 2.

Tableau 1 : composition des termes source radioactif et chimique pris en considération

Terme source chimique	Terme source radioactif		
	Élément	Famille de l'U235	Famille de l'U238
U	U	U235	U238
			U234
	Th	Th231	Th234
		Th227	Th230
	Pa	Pa231	Pa234m
	Ac	Ac227	
	Ra	Ra223	Ra226
	Rn	Rn219	Rn222
	Po	Po215	Po218
			Po214
			Po210
	Bi	Bi211	Bi214
			Bi210
	Pb	Pb211	Pb214
			Pb210
	Tl	Tl207	

2.1.2 ANALYSE DES EXPOSITIONS

Les expositions sont caractérisées pour l'étape de screening par les concentrations annuelles maximales, mesurées ou modélisées selon les substances.

2.1.2.1 Détermination des concentrations d'uranium

Concernant l'analyse de l'exposition à l'uranium en tant que toxique chimique, elle se limite aux données de concentrations dans l'eau (PEC mesurées ou extrapolées) Les données mesurées par AREVA NC sont des concentrations massiques d'²³⁸U. Les concentrations massiques de l'élément U leur sont assimilées, ce qui constitue une sous-estimation de ce terme source de l'ordre de 1 % (Tableau 2), inférieure à l'incertitude sur la mesure. De ce fait, aucune correction n'est apportée à ces données.

Tableau 2 : composition isotopique en masse de l'uranium naturel (IRSN, 2001)

	Masse (%)		
	²³⁸ U	²³⁵ U	²³⁴ U
Uranium naturel	99.28	0.72	0.0056

EAU	Transfert direct	Transfert direct	Transfert direct		Transfert direct	Transfert direct	ingestion	ingestion				
SEDIMENT	ingestion		Transfert racinaire	Transfert racinaire								
	Chironome								ingestion			
	ingestion	Algue			ingestion	ingestion						
			Myriophylle									
				Pin								
					Daphnie							
						Anodonte						ingestion
							Éphémère		ingestion	ingestion		
								Gardon/ carpe				
									Perche/ poisson- chat			
										Grenouille	ingestion	
											Canard	
												Rat musqué

Légende : MILIEU D'EXPOSITION

Organisme de référence

Voie de transfert conduisant à une exposition interne

Exposition par irradiation externe au milieu

Exposition par irradiation externe à l'interface des milieux

} Spécificité des radionucléides

Exemple de lecture : le compartiment algue est exposé par voie externe à l'eau et à l'interface sédiment-eau, il est exposé par voie interne en raison du transfert direct de radionucléides à partir de l'eau ; les compartiments chironome, daphnie et anodonte sont exposés par voie interne à la suite d'ingestion d'algues.

Figure 2 : matrice d'exposition interne et externe des organismes de référence de l'écosystème aquatique continental

2.1.2.2 Détermination des concentrations des radionucléides

Concernant les radionucléides, les concentrations en ^{226}Ra sont mesurées dans l'eau par AREVA NC, celles en ^{238}U sont obtenues par la conversion des concentrations pondérales d'uranium fournies par l'exploitant (exprimée en $\text{mg }^{238}\text{U/l}$), avec 1 mg d'U/l correspondant à $12,4 \text{ Bq d' }^{238}\text{U/l}$.

Ces deux isotopes servent alors de modèles pour en déduire les concentrations dans l'eau des autres composantes du terme-source radioactif, sur la base de la prise en compte des filiations des isotopes naturels de l'uranium et de diverses hypothèses d'équilibre et de distribution retracées au Tableau 3. Pour ce qui concerne les sédiments, les concentrations en ^{238}U sont déduites de celles de l'eau par application d'une approche déterministe³ de type Kd, sauf lorsque des mesures sont disponibles. Le ratio entre les concentrations mesurées en ^{226}Ra et ^{238}U est ensuite calculé et le 50^{ème} percentile de sa distribution statistique est alors appliqué aux concentrations calculées pour l' ^{238}U pour déterminer les concentrations manquantes en ^{226}Ra . La même démarche est appliquée au ^{210}Pb . Pour les éléments n'ayant fait l'objet d'aucune mesure, les concentrations d'exposition dans les sédiments sont déterminées par application du Kd selon la méthode et les paramètres de l'AIEA (AIEA, 2001).

Tableau 3 : hypothèses de détermination des concentrations des radionucléides dans chacun des milieux considérés

Radionucléide	Eau	Sédiment
^{238}U	Mesure	Mesure ou application du Kd
^{234}Th , $^{234\text{m}}\text{Pa}$, ^{234}U , ^{230}Th	Équilibre avec ^{238}U	Application du Kd
^{226}Ra	Mesure	Mesure ou application du 50 ^{ème} percentile du ratio $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ sur concentration en ^{238}U des sédiments
^{222}Rn		Application du Kd
^{218}Po , ^{214}Pb , ^{214}Bi , ^{214}Po , ^{210}Bi , ^{210}Po		
^{210}Pb	Équilibre avec ^{226}Ra	Mesure ou application du 50 ^{ème} percentile du ratio $^{210}\text{Pb}/^{238}\text{U}$ sur concentration en ^{238}U des sédiments
^{235}U , ^{231}Th , ^{231}Pa , ^{227}Ac , ^{227}Th , ^{223}Ra	Équilibre avec ^{238}U après application du rapport isotopique naturel $^{238}\text{U}/^{235}\text{U}$	Application du Kd
^{219}Rn		
^{215}Po , ^{211}Pb , ^{211}Bi , ^{207}Tl		

2.1.2.3 Validation des hypothèses d'équilibre radioactif

La validité des hypothèses faites concernant les équilibres au sein des chaînes de filiation radioactive est en partie vérifiable à partir de mesures faites dans l'environnement. Un premier exemple de cette approche est illustré par

³ L'approche probabiliste prenant en compte la loi de distribution du Kd n'est pas appliquée au stade du screening, dans la mesure où les concentrations retenues pour l'eau sont les valeurs maximales annuelles. Elle peut l'être ultérieurement.

la Figure 3, relative aux concentrations des familles de l'uranium mesurées dans l'eau prélevée à l'aval de la retenue de Gouillet, alimentant le Ritord, lors de la campagne de prélèvements opérée par la CRIIRAD en 2004 (CRIIRAD, 2004). Il est important de noter que la zone prospectée alors se trouve dans la zone dite de référence pour le screening. Les ruptures éventuelles de chaînes de filiation liées aux anciennes activités minières sont donc susceptibles de ne pas y être visibles. Lors des mesures, neuf radionucléides ont été détectés, soit de manière significative, soit en limite de détection. La comparaison de ces résultats de mesure avec les données théoriques de concentration issues des hypothèses sur les équilibres de filiation apparaît généralement satisfaisante. Les valeurs théoriques, reposant sur des hypothèses choisies pour être conservatives, sont plutôt supérieures ou égales aux mesures, à l'exception du ^{222}Rn , dont la concentration dans l'eau est sous-estimée par l'approche théorique de 3 ordres de grandeur.

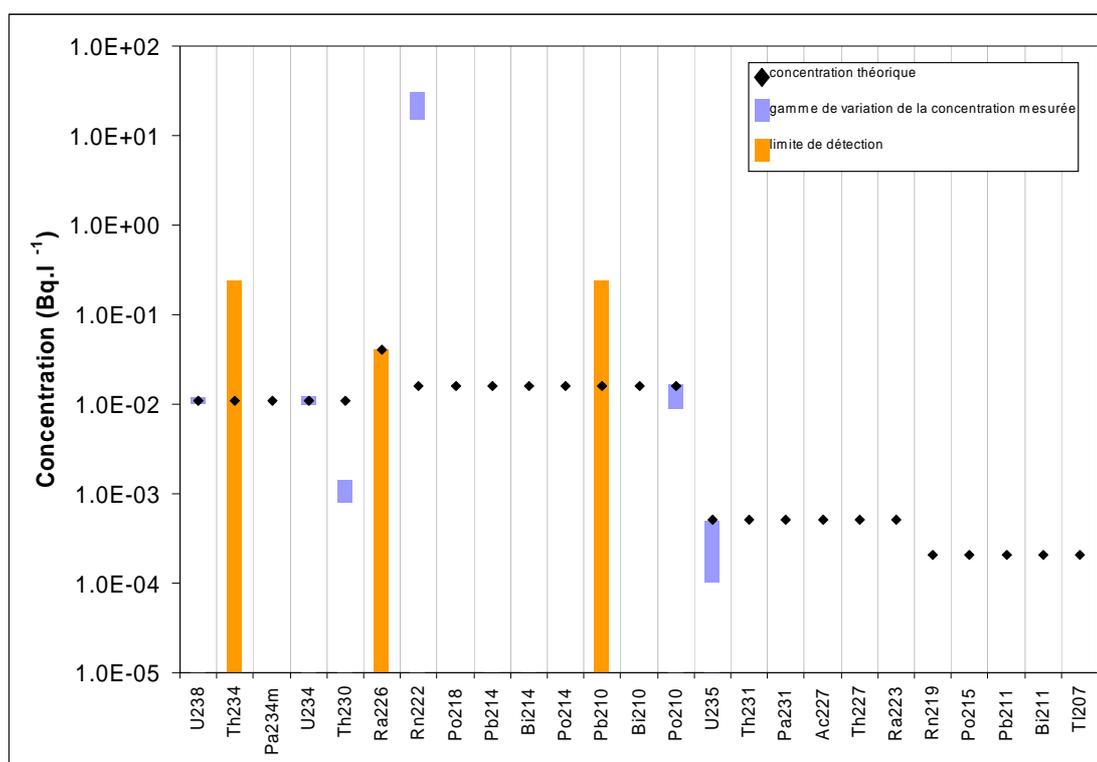


Figure 3 : concentrations d' ^{238}U , ^{235}U , ^{234}U et de leurs descendants dans l'eau du Ritord, à l'aval de l'étang de Gouillet, mesurées (d'après CRIIRAD, 2004) et théoriques, sur la base des hypothèses d'équilibre de filiation du screening.

Afin de vérifier que cette cohérence n'est pas spécifique au compartiment échantillonné, en l'occurrence l'eau, les résultats de mesure obtenus par la CRIIRAD dans son étude de 2004 sur sédiments, plantes et poissons ont été analysés sous le même angle.

Concernant les sédiments, les échantillons correspondent en fait à des terres de berge du Ritord, prélevées en deux stations en aval immédiat de l'étang du Gouillet. La comparaison des résultats de mesure avec les données théoriques de concentration issues des hypothèses sur les équilibres de filiation est présentée à la Figure 4.

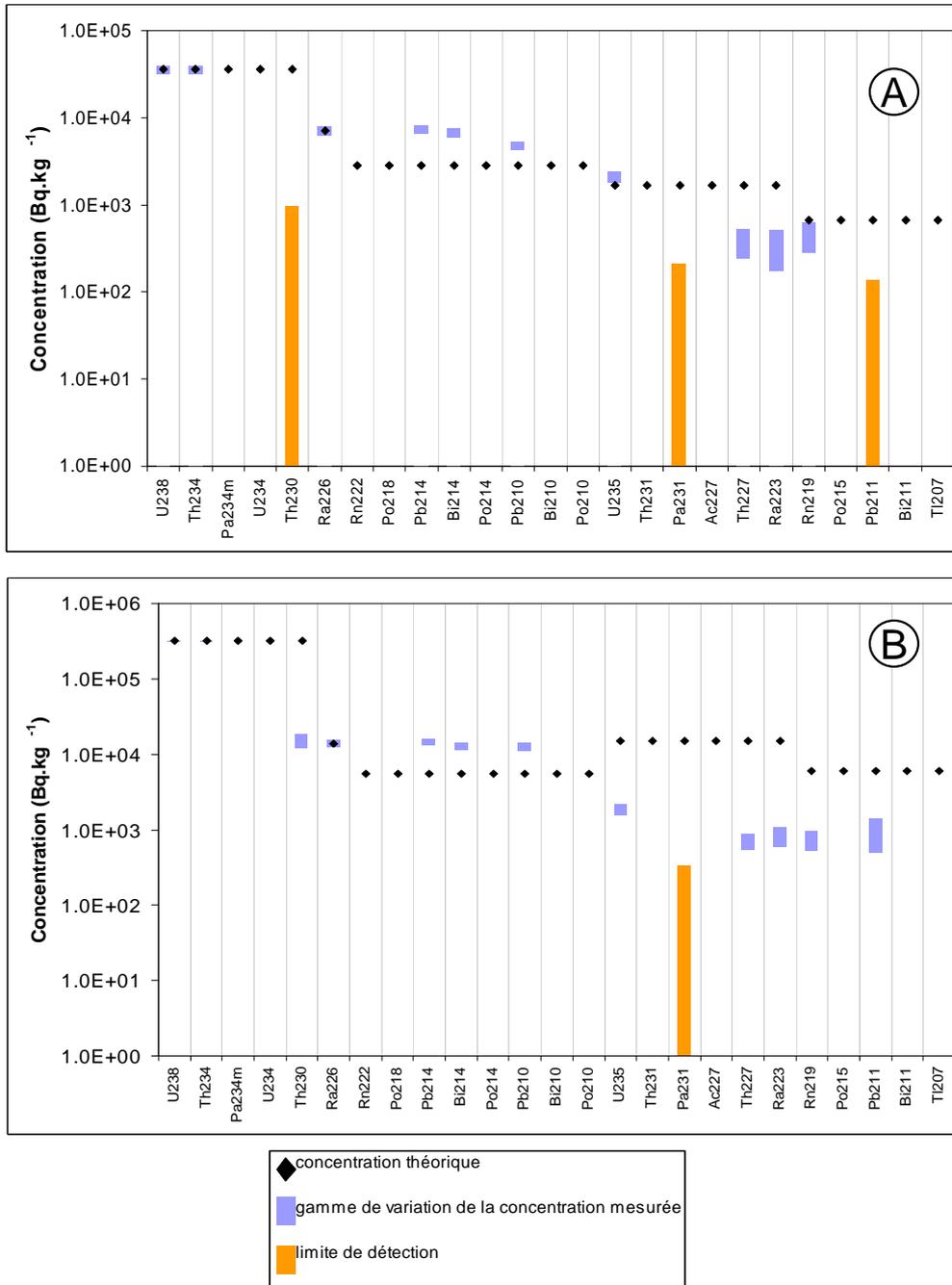


Figure 4 : concentrations d'²³⁸U, ²³⁵U, ²³⁴U et de leurs descendants dans les terres de berge du Ritord, mesurées (d'après CRIIRAD, 2004 ; A : RIT AVG 1 T , B : RIT AVG 2 T) et théoriques, sur la base des hypothèses d'équilibre de filiation du screening.

Si davantage de radionucléides ont fait l'objet d'une mesure supérieure aux limites de détection sur la deuxième station, la tendance qui se dégage pour la comparaison entre concentrations théoriques et mesurées est la même. Les valeurs théoriques sont légèrement inférieures (moins d'un facteur 3) aux résultats de mesure de concentration de la famille de l'²³⁸U. A l'opposé, les concentrations théoriques calculées pour l'isotope 235 de l'uranium et ses descendants semblent plutôt surestimer les concentrations réelles.

Les végétaux aquatiques prélevés par la CRIIRAD en 2004 sont des fontinales, des bryophytes dont le pouvoir concentrateur des radionucléides est bien connu. Quatre relevés sont disponibles concernant les concentrations en uranium et descendants dans ces plantes (Figure 5). Le ^{230}Th apparaît alors toujours surestimé en théorie, comme les descendants de ^{235}U . Les descendants du ^{226}Ra seraient eux plutôt sous-estimés par l'approche théorique. Il est intéressant de noter la remarquable adéquation entre les concentrations extrapolée et mesurée d' ^{235}U . Ces constats sont en bon accord avec ceux faits précédemment pour les sédiments.

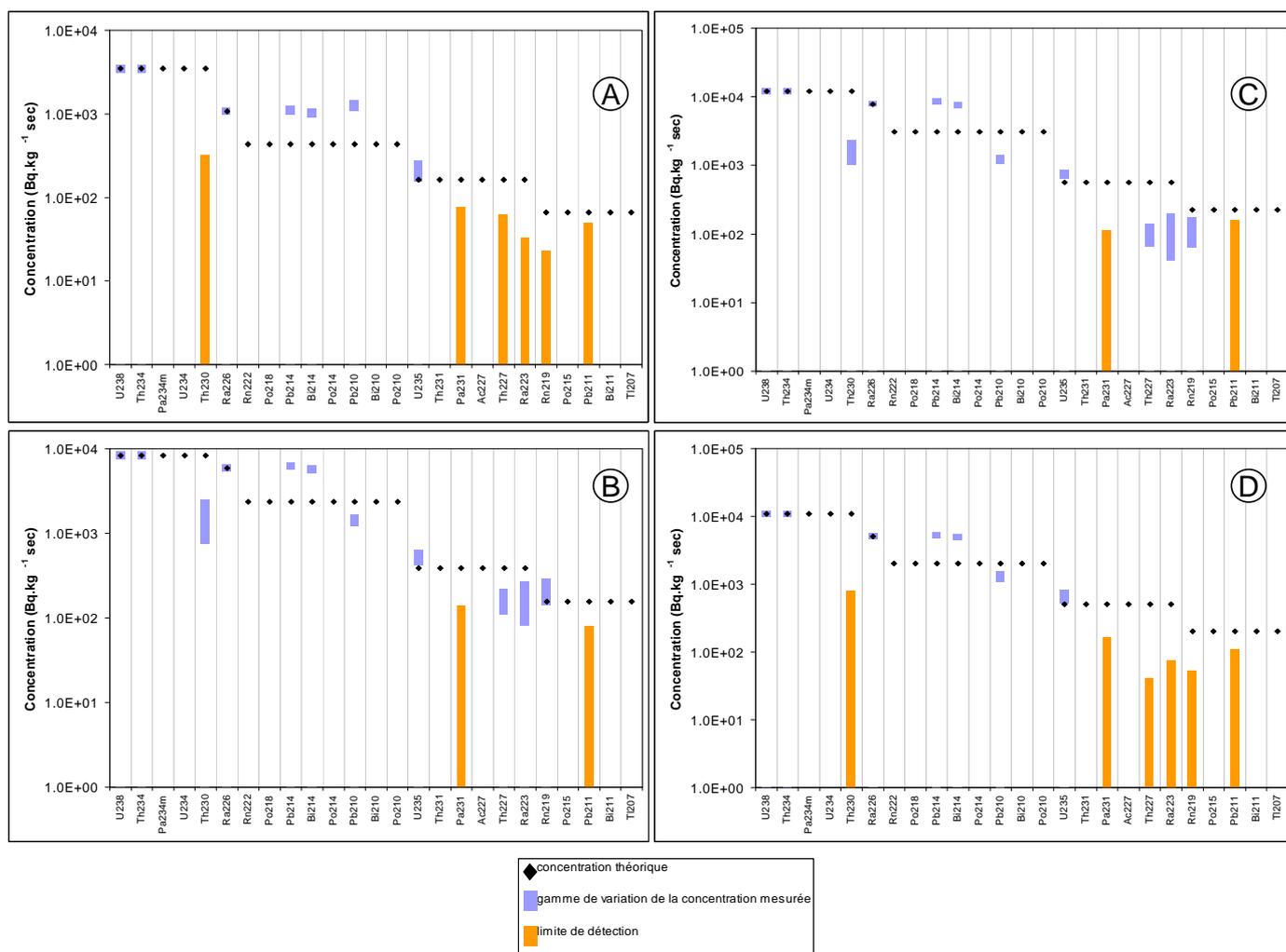


Figure 5 : concentrations d' ^{238}U , ^{235}U , ^{234}U et de leurs descendants dans les fontinales du Ritord, mesurées (d'après CRIIRAD, 2004 ; A : RIT AVG 1 F, B : RIT AVG 4 F, C : RIT AVG 2 F, D : RIT AVG 3 F) et théoriques, sur la base des hypothèses d'équilibre de filiation du screening.

Le dernier compartiment autorisant une comparaison des concentrations théoriques et mesurées des chaînes de l'uranium est celui des poissons, représenté par des gardons prélevés dans la retenue de Gouillet (Figure 6). La plupart des résultats de mesure étant inférieures aux seuils de détection des radionucléides, les données de la CRIIRAD ont été complétées par celles issues des gardons pêchés dans la réserve de l'ancienne mine d'uranium de St Pierre dans le Cantal, en septembre 2006 (IRSN, 2007b). Comme pour les autres compartiments échantillonnés, les hypothèses d'équilibre de filiation faites pour le screening apparaissent alors cohérentes avec les résultats de mesure.

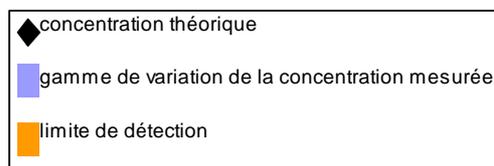
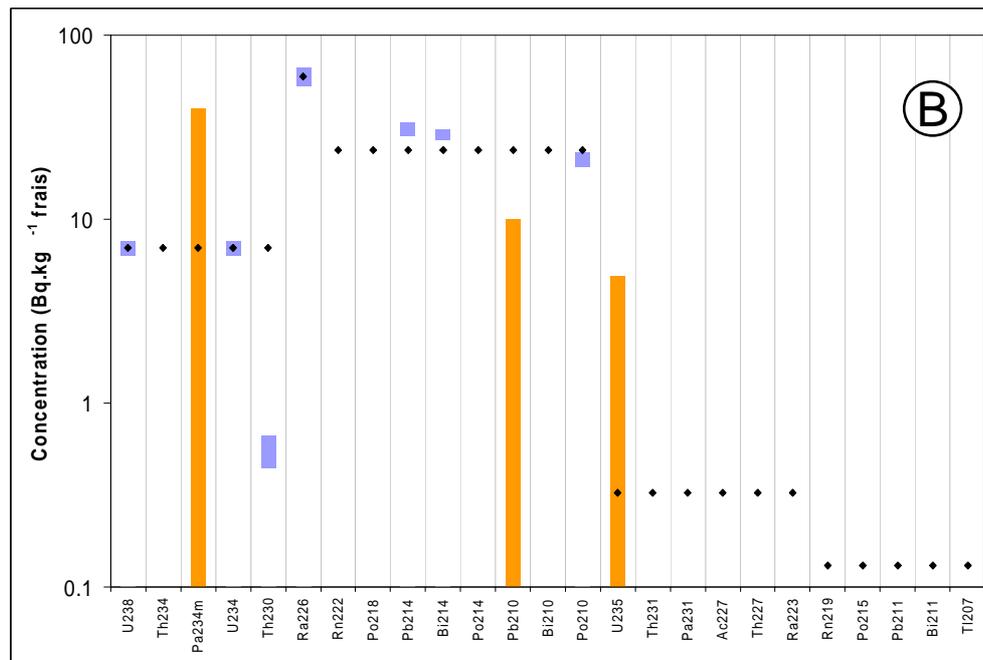
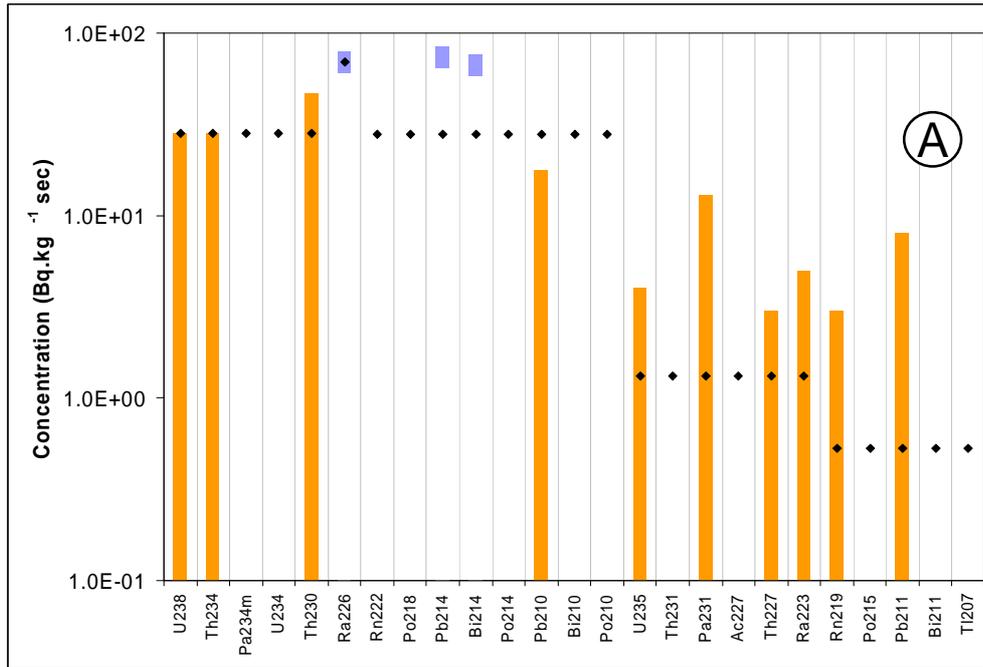


Figure 6 : concentrations en ²³⁸U, ²³⁵U, ²³⁴U et de leurs descendants dans des gardons, mesurées (A : retenue de Gouillet, d'après CRIIRAD, 2004 ; B : réserve de St Pierre, d'après IRSN, 2007b) et théoriques, sur la base des hypothèses d'équilibre de filiation du screening.

2.1.2.4 Prise en considération des seuils de détection

La présence de nombreux résultats de mesure fournis sous la forme « inférieur ou égal au seuil de détection » a été soulignée dans le document méthodologique (Beaugelin-Seiller et Garnier-Laplace, 2007). Il a alors été décidé pour l'étape de screening d'assimiler de façon conservatrice la mesure manquante à la valeur du seuil de détection. Si toutefois, dans une série annuelle, une mesure significative est disponible parmi des seuils de détection, quelle que soit leur valeur, c'est cette mesure qui a été conservée.

La période d'intérêt s'étend de 1993 à 2006, soit plus d'une décennie, au cours de laquelle les méthodes de mesure ont évolué. Ainsi, concernant l'uranium, les seuils de détection indiqués par AREVA NC ont diminué de deux ordres de grandeur (Tableau 4). Cette évolution peut conduire pour les années 1999 à 2005 à une sous-estimation des indices de risque ajoutés, lorsque le bruit de fond est déterminé sur la base du seuil de détection (Tableau 20, Tableau 21). En effet, les concentrations d'exposition ajoutées, obtenues par soustraction du bruit de fond aux concentrations d'exposition mesurées, constituent le numérateur de l'indice de risque ajouté (cf. §.2.1.1).

Tableau 4 : évolution temporelle des seuils de détection pour les éléments mesurés par AREVA NC

	Uranium						Radium		
	²³⁸ U _{dissous}		²³⁸ U _{particulaire}		²³⁸ U _{total} *		²²⁶ Ra _{dissous}	²²⁶ Ra _{particulaire}	²²⁶ Ra _{total} *
	mg/l	Bq/l**	mg/l	Bq/l**	mg/l	Bq/l	Bq/l	Bq/l	Bq/l
1993-1999	0.1	1.24	0.1	1.24	0.2	2.48	0.02	0.02	0.04
2000-2003	0.05	0.62	0.05	0.62	0.05	1.24	0.02	0.02	0.04
2004-2005	0.01	0.12	0.01	0.12	0.02	0.25	0.02	0.02	0.04
2006	0.001	0.01	0.001	0.01	0.002	0.03	0.02	0.02	0.04

* la concentration en élément total (tot) est obtenue par la somme des concentrations des fractions dissoute et particulaire : en termes de seuils de détection pris comme valeurs, cela se traduit par la somme des seuils de détection sur chacune des fractions.

** les seuils de détection en Bq/l sont déduits de ceux en mg/l en appliquant l'activité spécifique de l'uranium (avec $1 \text{ mg } ^{238}\text{U/l} = 12,4 \text{ } ^{238}\text{UBq/l}$)

2.1.3 ANALYSE DES EFFETS

Les résultats de radiotoxicité disponibles dans la littérature ont été utilisés selon l'approche décrite dans le document méthodologique (Beaugelin-Seiller et Garnier-Laplace, 2007) pour construire la distribution de sensibilité des espèces (SSD) de l'écosystème aquatique continental et en déduire le débit de dose en deçà duquel 95 % des espèces d'eau douce sont considérées comme protégées (HDR₅, Hazardous Dose Rate for 5% of species, en µGy/h). Afin d'intégrer les incertitudes sur cet HDR₅, tracées dans le document méthodologique, un facteur de sécurité (SF) de 5 lui a été appliqué et la valeur ainsi obtenue a été arrondie à la puissance de 10 inférieure. La valeur de référence ainsi obtenue, le PNEDR (Predicted No Effect Dose Rate), est présentée dans le Tableau 5.

Cette valeur de PNEDR est alors utilisée pour rétro-calculer selon l'approche donnée dans le document méthodologique la valeur d'une PNEC pour chaque organisme de référence o et chaque radionucléide i, vis à vis de chaque milieu d'intérêt (air - Bq/m³, eau - Bq/l, sédiment - Bq/kg), en appliquant les coefficients de transfert rappelés en annexe B. Pour chaque milieu d'exposition, la valeur finale de la PNEC utilisée pour le calcul de

l'indice de risque correspond alors à la valeur minimale obtenue parmi toutes les PNEC(i,o) propres à ce milieu. Les PNEC ainsi obtenues sont présentées en annexe C.

Une approche similaire (SSD) a été appliquée aux données d'écotoxicité chimique relatives à l'exposition chronique des organismes d'eau douce à l'uranium, pour en déterminer la concentration protégeant 95 % des espèces (dite HC₅, en µg/l) constituant l'écosystème aquatique continental. Du fait de la fiabilité de cette valeur, le facteur de sécurité (SF) minimal de 1 recommandé par le TGD est appliqué à cette HC₅ pour obtenir la PNEC, exposée au Tableau 5.

Tableau 5 : valeurs de référence sans effet pour l'écosystème aquatique continental

	Valeurs de référence chimique			Valeurs de référence radiologique		
	HC ₅ (µg U.l ⁻¹)	SF (s.d.)	PNEC (µg U.l ⁻¹)	HDR ₅ (µGy.h ⁻¹)	SF (s.d.)	PNEDR (µGy.h ⁻¹)
Meilleure estimation	3,2	1	3,2	98	5	10
Intervalle de confiance à 95%	0,57 - 23	Sans objet	Sans objet	23-497	Sans objet	Sans objet

HC₅ : Hazardous Concentration for 5% of species (concentration dangereuse pour 5% des espèces)

SF : Safety Factor (facteur de sécurité)

PNEC : Predicted No Effect Concentration (concentration prédite sans effet)

HDR₅ : Hazardous Dose Rate for 5% of species (débit de dose dangereux pour 5% des espèces)

PNEDR : Predicted No Effect Dose Rate (débit de dose prédit sans effet)

Que ce soit la PNEC chimique ou le PNEDR radiologique, ces valeurs de référence sont à utiliser en incrément vis à vis des bruits de fond (cf. §.4.1.1), elles ne leur sont en aucun cas directement comparables.

2.1.4 CARACTÉRISATION DU RISQUE

Au stade du screening, l'impact d'une substance rejetée dans le milieu aquatique est évalué par le calcul déterministe d'un indice de risque, constitué du rapport PEC/PNEC, en considérant :

- qu'une valeur inférieure à 1 du rapport indique que l'écosystème récepteur n'est pas directement menacé, au niveau d'exposition prévisible à la substance rejetée ;
- qu'une valeur supérieure à 1 de ce rapport correspond à l'existence d'un risque **potentiel** pour tout ou partie de l'écosystème récepteur, en lien direct avec le niveau d'exposition prévisible à la substance.

Pour chaque milieu d'intérêt, noté Medium, de l'écosystème aquatique continental, les indices de risque chronique total $R_{tot,Medium}$ et ajouté $R_{ajout,Medium}$ sont calculés pour chaque année et chaque station en sommant les ratios obtenus pour chaque substance i selon les équations de l'encadré 1.

Si l'indice de risque ajouté demeure inférieur à 1, il peut être conclu que le risque lié à l'exposition d'origine anthropique par le milieu considéré au sein de l'écosystème est négligeable. Sinon, le risque est potentiel et doit être ré-évalué de manière plus raffinée par la réalisation de l'étape 2 de la méthode graduée d'évaluation du risque. L'information issue du screening pourra être utilisée pour justifier de limiter cette étape 2 aux stations et années pour lesquels un indice de risque est apparu supérieur à 1 pour l'un et/ou plusieurs des milieux.

Encadré 1 : jeu d'équations relatif au calcul déterministe des indices de risque

$$R_{tot_medium}(i) = \frac{PEC_{mes_medium}(i)}{PNEC_{medium}(i)} \quad \text{Équation 1}$$

$$R_{ajout_medium}(i) = \frac{PEC_{ajout_medium}(i)}{PNEC_{medium}(i)} = \frac{PEC_{mes_medium}(i) - C_{ref_medium}(i)}{PNEC_{medium}(i)} \quad \text{Équation 2}$$

$$R_{ref_medium}(i) = \frac{C_{ref_medium}(i)}{PNEC_{medium}(i)} \quad \text{Équation 3}$$

$$R_{ajout_medium}(i) = R_{tot_medium}(i) - R_{ref_medium}(i) \quad \text{Équation 4}$$

$$R_{ajout_medium} = \sum_i (R_{tot_medium}(i) - R_{ref_medium}(i)) \quad \text{Équation 5}$$

$$R_{ajout_medium} = \sum_i R_{tot_medium}(i) - \sum_i R_{ref_medium}(i) \quad \text{Équation 6}$$

$$R_{ajout_medium} = R_{tot_medium} - R_{ref_medium} \quad \text{Équation 7}$$

avec :

$R_{tot_medium}(i)$ indice de risque total associé à la concentration totale de la substance i dans le milieu $medium$ (s.d.)

$PEC_{mes_medium}(i)$ concentration mesurée d'exposition à la substance i dans le milieu $medium$ (Bq/l, Bq/kg)

$PNEC_{medium}(i)$ concentration sans effet prévisible sur l'environnement de la substance i dans le milieu $medium$ (Bq/l, Bq/kg)

$R_{ajout_medium}(i)$ indice de risque associé à la concentration ajoutée de la substance i dans le milieu $medium$ par les rejets des anciennes installations minières (s.d.)

$PEC_{ajout_medium}(i)$ concentration ajoutée de la substance i du fait des rejets des anciennes installations minières dans le milieu $medium$ (Bq/l, Bq/kg)

$C_{ref_medium}(i)$ concentration de la substance i dans le milieu $medium$ dans la zone de référence ("bruit de fond" ; Bq/l, Bq/kg)

$R_{ref_medium}(i)$ indice de risque associé la concentration naturelle de la substance i dans le milieu $medium$ (s.d.)

R_{ajout_medium} indice de risque ajouté lié à l'ensemble des rejets chimiques ou radiologiques des anciennes installations minières dans le milieu $medium$ (s.d.)

R_{tot_medium} indice de risque total lié aux substances chimiques ou radioactives présentes dans le milieu $medium$ (s.d.)

La comparaison des deux indices de risques (ajouté et total) permet d'appréhender l'importance de la contribution des rejets miniers aux effets sur l'environnement par rapport aux concentrations mesurées dans le milieu en dehors de toute influence de l'activité anthropique.

2.2 CARACTÉRISATION DÉTERMINISTE DU RISQUE RADIOLOGIQUE CHRONIQUE

Les indices de risque radiologique chronique ajouté et total ont été calculés pour chacun des couples (station, année) selon l'approche décrite précédemment, sur la base des données déterminées pour le rapport méthodologique et rappelées dans le présent document.

2.2.1 RISQUE DÉTERMINISTE RADIOLOGIQUE CHRONIQUE TOTAL

Les indices de risque radiologiques totaux pour l'écosystème du Ritord exposé *via* l'eau sont compris entre 4 et 75 pour la zone de référence, et entre 10 et 243 pour les stations SR5 à SR11 (Tableau 6). Généralement, ce sont les stations SR6 et SR10 qui présentent chaque année les indices de risque ajoutés les plus élevés : le maximum est atteint à la station SR6 en 1994.

Tableau 6 : indice de risque radiologique total pour le compartiment « eau » sur le bassin versant du Ritord, lié à la présence d'uranium et de ses descendants

Station	1993	1994	1995	1996	1997	1998	1999	2000	2001	2002	2003	2004	2005	2006
<i>Zone de référence</i>	75	43	36	36	36	4.4	39	22	24	20	18	7.0	7.0	8.5
SR5	60	49	40	47	47	52	52	35	27	31	22	11	10	12
SR6		243	133	61	55	81	64	57	50	45	48	47	43	37
SR7	109	180	102	55	58	55	59	41	41	38	46	36	23	35
SR8	106	147	76	52	54	48	64							
SR9	98	150	84	49	49	53	106	38	42	38	44	30	28	32
SR10	57	50	61	63	116	104	80	74	67	57	53	45	39	36
SR11	78	120	68	50	52	55	54	37	44	32	33	21	20	18

■ pas de donnée

Pour chacun des couples année/station étudiés, l'indice de risque total pour l'écosystème du Ritord exposé *via* le sédiment est toujours inférieur à 1 (Tableau 7).

Tableau 7 : indice de risque radiologique total pour le compartiment « sédiment » sur le bassin versant du Ritord, lié à la présence d'uranium et de ses descendants

Station	1993	1994	1995	1996	1997	1998	1999	2000	2001	2002	2003	2004	2005	2006
<i>Réf.</i>	4.2E-02	3.8E-02	3.7E-02	3.7E-02	3.7E-02	9.5E-04	3.7E-02	1.9E-02	1.9E-02	1.9E-02	1.6E-02	4.0E-03	4.0E-03	1.5E-03
SR5	8.0E-02	3.8E-02	3.7E-02	3.8E-02	3.8E-02	3.9E-02	3.9E-02	2.4E-02	2.0E-02	2.0E-02	1.9E-02	4.6E-03	4.5E-03	3.0E-03
SR6		1.7E-01	1.2E-01	4.0E-02	3.2E-02	3.6E-02	3.8E-02	3.4E-02	2.8E-02	2.0E-02	2.2E-02	2.3E-02	1.6E-02	1.2E-02
SR7	1.6E-01	2.9E-01	8.5E-02	3.1E-02	3.4E-02	2.9E-02	3.2E-02	2.8E-02	1.9E-02	1.9E-02	2.2E-02	1.8E-02	9.7E-03	1.8E-02
SR8	1.7E-01	2.7E-01	6.8E-02	3.9E-02	3.9E-02	3.8E-02	4.0E-02							
SR9	8.9E-01	5.5E-01	6.4E-02	3.0E-02	3.5E-02	3.3E-02	4.5E-02	3.1E-02	2.4E-02	2.1E-02	2.2E-02	2.1E-02	1.1E-02	1.3E-02
SR10	7.9E-02	7.6E-02	6.3E-02	6.5E-02	6.7E-02	5.9E-02	4.3E-02	4.6E-02	3.4E-02	3.2E-02	2.6E-02	2.5E-02	2.0E-02	1.7E-02
SR11	1.1E-01	1.6E-01	4.0E-02	3.9E-02	4.8E-02	3.2E-02	3.1E-02	2.1E-02	1.9E-02	2.0E-02	1.7E-02	1.4E-02	9.3E-03	9.4E-03

■ pas de donnée

2.2.2 RISQUE DÉTERMINISTE RADIOLOGIQUE CHRONIQUE AJOUTÉ

De 1993 à 2006, le risque radiologique ajouté pour l'écosystème du Ritord sous influence des activités minières lié à l'exposition *via* l'eau est supérieur à 1 pour l'ensemble du cours d'eau, à l'exception des stations SR5 et SR10 en 1993 (Tableau 8). Leur évolution spatio-temporelle est comparable à celle des indices de risque radiologiques totaux ; la valeur maximale de cet indice (200) est ainsi atteinte à la station SR6 en 1994.

Tableau 8 : indice de risque radiologique ajouté pour le compartiment « eau » sur le bassin versant du Ritord, lié aux rejets d'uranium et de ses descendants par les anciennes installations minières

Station	1993	1994	1995	1996	1997	1998	1999	2000	2001	2002	2003	2004	2005	2006
SR5	n.p.*	5.1	4.1	10	10	47	12	13	3.1	11	4.2	4.1	3.1	3.1
SR6		200	97	25	18	77	25	35	26	25	30	40	36	28
SR7	34	136	65	18	22	50	19	19	16	17	29	29	16	27
SR8	31	103	40	15	17	43	25							
SR9	22	106	48	12	12	48	67	16	17	17	26	23	21	23
SR10	n.p.	6.1	24	27	80	99	41	51	43	37	35	38	32	27
SR11	2.4	77	31	14	15	50	14	15	19	12	16	15	13	10

* n.p. (non pertinent) : le résultat, obtenu par différence, n'a pas de sens méthodologique (valeurs négatives) / pas de donnée

De même que pour l'indice de risque radiologique total, quelles que soient la station et l'année, l'indice de risque radiologique ajouté relatif à l'exposition *via* les sédiments de l'écosystème du Ritord est inférieur à 1 (Tableau 9). L'étape de screening conduit donc à éliminer ce milieu d'exposition.

Tableau 9 : indice de risque radiologique ajouté pour le compartiment « sédiment » sur le bassin versant du Ritord, lié aux rejets d'uranium et de ses descendants par les anciennes installations minières

Station	1993	1994	1995	1996	1997	1998	1999	2000	2001	2002	2003	2004	2005	2006
SR5	3.8E-02	7.4E-04	5.9E-04	1.5E-03	1.5E-03	3.8E-02	1.8E-03	4.9E-03	4.4E-04	1.6E-03	2.4E-03	6.0E-04	4.5E-04	1.4E-03
SR6		1.3E-01	8.1E-02	3.5E-03	n.p.*	3.5E-02	1.2E-03	1.5E-02	8.4E-03	1.7E-03	5.1E-03	1.9E-02	1.2E-02	1.0E-02
SR7	1.2E-01	2.5E-01	4.8E-02	n.p.	n.p.	2.8E-02	n.p.	8.8E-03	2.0E-04	3.3E-04	5.8E-03	1.4E-02	5.6E-03	1.7E-02
SR8	1.2E-01	2.4E-01	3.2E-02	2.2E-03	2.5E-03	3.7E-02	3.5E-03							
SR9	8.5E-01	5.1E-01	2.8E-02	n.p.	n.p.	3.2E-02	8.4E-03	1.2E-02	4.4E-03	2.8E-03	5.4E-03	1.7E-02	7.1E-03	1.1E-02
SR10	3.6E-02	3.8E-02	2.6E-02	2.8E-02	3.1E-02	5.8E-02	6.1E-03	2.7E-02	1.4E-02	1.4E-02	9.4E-03	2.1E-02	1.6E-02	1.5E-02
SR11	7.2E-02	1.3E-01	3.6E-03	2.8E-03	1.1E-02	3.1E-02	n.p.	2.1E-03	n.p.	9.9E-04	1.2E-04	9.6E-03	5.3E-03	7.9E-03

* n.p. (non pertinent) : le résultat, obtenu par différence, n'a pas de sens méthodologique/ pas de donnée

La contribution de l'indice de risque ajouté vis à vis du risque total pour l'exposition *via* l'eau est illustrée pour la station 6, de 1993 à 2006 (Figure 7). L'évolution temporelle de ces deux indices reflète bien évidemment celle des concentrations d'exposition. Toutefois, la contribution de l'indice de risque ajouté fluctue au cours de la période d'étude, avec un maximum en 1998. Depuis 2004, elle semble décroître lentement, pour atteindre environ 80% de l'indice de risque total en 2006.

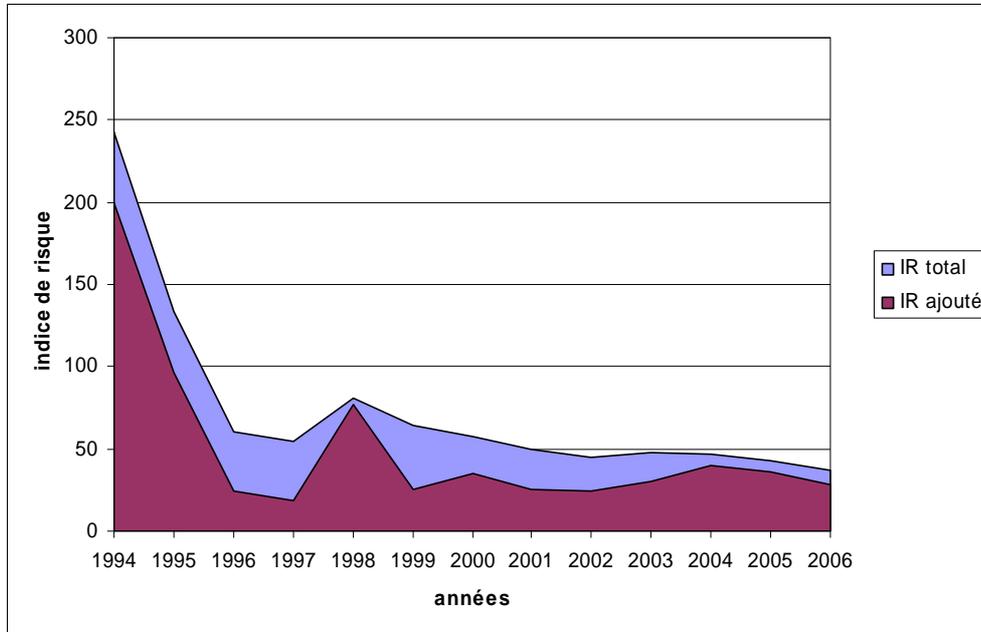


Figure 7 : contribution de l'indice de risque radiologique ajouté vis à vis du risque radiologique total associé au milieu eau pour la station SR6

La contribution de l'indice de risque ajouté vis à vis du risque total pour l'exposition *via* les sédiments pour la station 6 présente de 1993 à 2006 une allure générale similaire à celle observée pour l'exposition *via* l'eau (Figure 8). Elle fluctue toutefois de façon plus marquée, avec toujours un maximum en 1998, pratiquement à nouveau atteint en 2006.

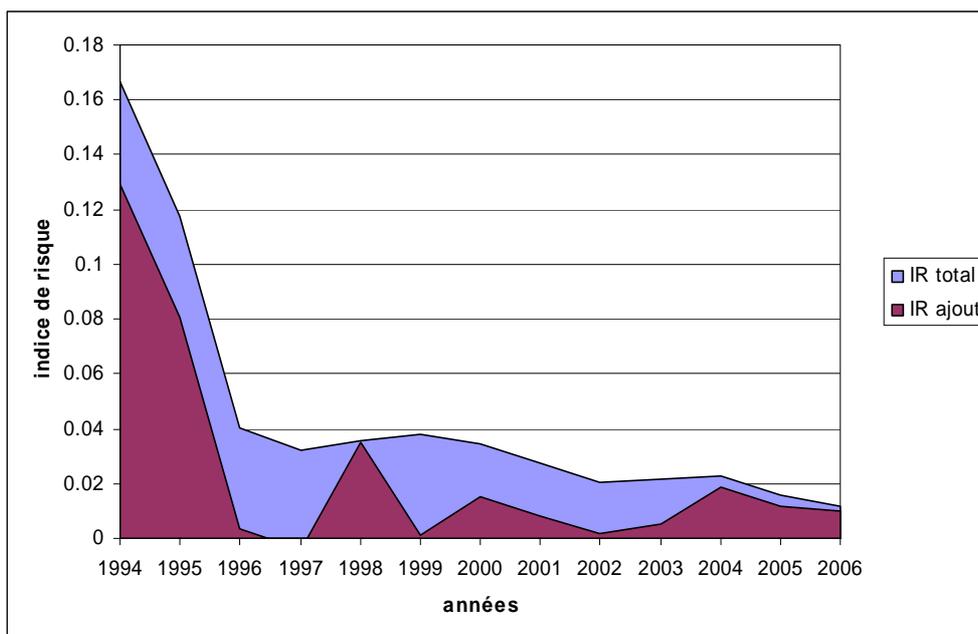


Figure 8 : contribution de l'indice de risque radiologique ajouté vis à vis du risque radiologique total associé au milieu sédiment pour la station SR6

2.2.3 CONCLUSIONS SUR LE RISQUE DÉTERMINISTE RADIOLOGIQUE CHRONIQUE

A l'issue de cette étape de screening, menée sous une approche extrêmement conservatrice, seul l'indice de risque radiologique chronique lié à l'exposition de l'écosystème du Ritord *via* l'eau est supérieur à 1, mais il l'est pour tous les couples (station, année) du domaine d'étude. Le risque ajouté représente en outre de l'ordre de 80 % du risque total. Ces résultats doivent être interprétés comme un signal d'alarme devant conduire au raffinement de cette première approche.

2.2.4 ANALYSE DÉTAILLÉE DES CONTRIBUTIONS À L'INDICE DE RISQUE DÉTERMINISTE RADIOLOGIQUE CHRONIQUE

Dans l'optique d'un raffinement du screening, les contributions en termes de radionucléides, d'organismes et de voies d'exposition ont été explorées à partir des résultats obtenus pour le milieu eau à la station SR6 en 1994, à titre illustratif.

2.2.4.1 Contribution par radionucléides et organismes

Les indices de risque radiologique chronique totaux ont été détaillés pour chaque organisme et chaque radionucléide, en appliquant l'Équation 8 ci-dessous.

$$R_{tot_medium}(i,o) = \frac{PEC_{mes_medium}(i)}{PNEC_{medium}(i,o)} \quad \text{Équation 8}$$

Les organismes présentant alors les indices de risque les plus élevés (Figure 9) sont une plante aquatique (myriophylle), un arthropode (chironome), un microcrustacé (daphnie), un mollusque (anodonte) et un insecte (éphémère), en combinaison avec l'exposition au ^{211}Pb et secondairement à ^{234}U et ^{238}U .

La contribution dominante de l'isotope 211 du plomb, émetteur β pur, laisse supposer une contribution majeure de l'exposition interne, ce qui a été testé au paragraphe suivant.

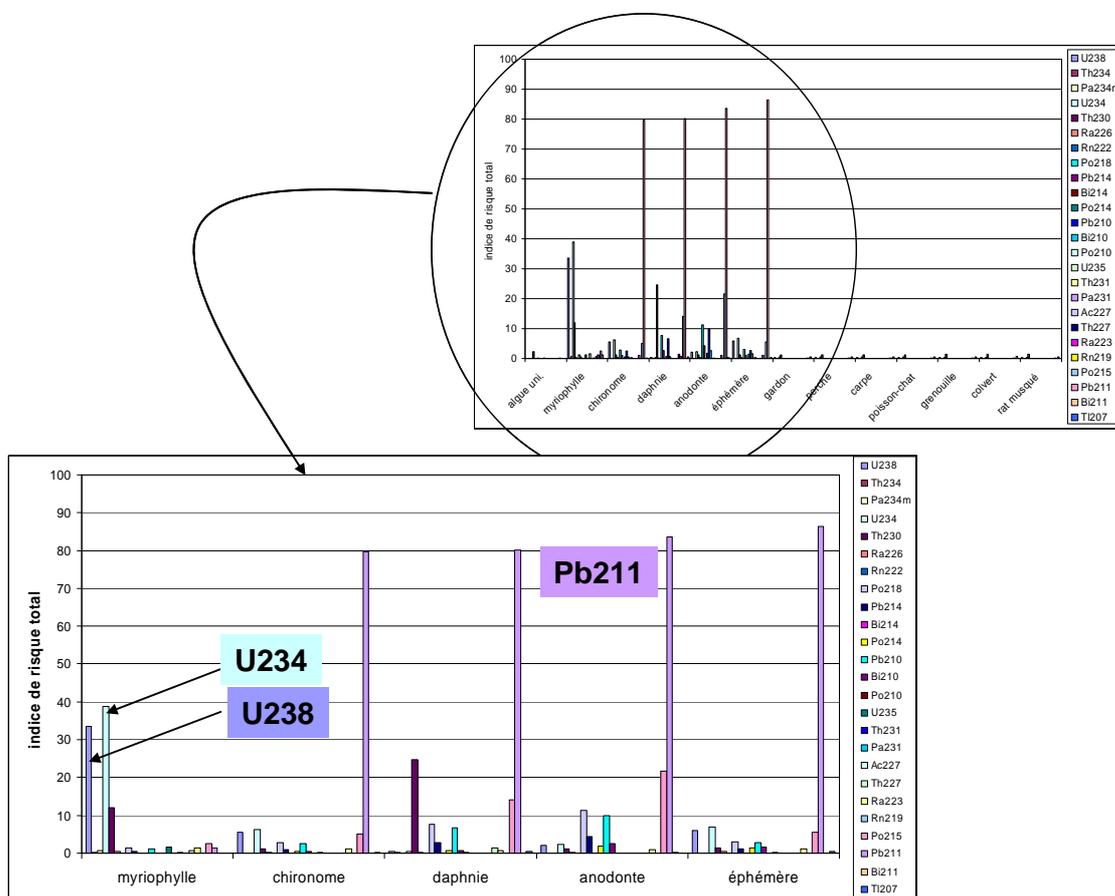


Figure 9 : indices de risque totaux par radionucléide et organisme à la station SR6 en 1994, pour le milieu « eau »

2.2.4.2 Contribution relative exposition interne/exposition externe

Les débits de dose interne et externe ont été calculés pour chaque couple (organisme, radionucléide) à partir des concentrations mesurées ou estimées dans l'eau (valeurs maximales annuelles) à la station SR6 en 1994, en appliquant les formules de l'encadré 2.

Le débit de dose interne représente entre 85 et 100 % du débit de dose interne + externe pour chaque combinaison (organisme, radionucléide) étudiée, à l'exception des couples (algue, Rn) pour lesquels le débit de dose interne contribue à raison de moins de 5 % au débit de dose interne+externe (Figure 10). Considérant le débit de dose total (somme sur les radionucléides), la contribution interne en représente au moins 99 %, cette valeur minimale étant rencontrée pour l'algue (Figure 11).

Encadré 2 : jeu d'équations relatif au calcul des débits de dose

$$PEDR_{eau,ext}(i,o) = DCC_{eau,ext}(i,o) \cdot PEC_{eau}(i) \quad \text{Équation 9}$$

$$PEDR_{eau,int}(i,o) = BCF(i,o) \cdot DCC_{eau,int}(i,o) \cdot PEC_{eau}(i) \quad \text{Équation 10}$$

Avec

$PEDR_{eau,ext}(i,o)$ débit de dose reçu par l'organisme o du fait de son exposition externe au radionucléide i présent dans l'eau ($\mu\text{Gy/h}$)

$DCC_{eau,ext}(i,o)$ coefficient de conversion de dose relatif à l'exposition externe de l'organisme o au radionucléide i présent dans l'eau ($\mu\text{Gy/h}$ par Bq/l)

$PEC_{eau}(i)$ concentration du radionucléide i dans l'eau (Bq/l)

$PEDR_{eau,int}(i,o)$ débit de dose reçu par l'organisme o du fait de son exposition interne au radionucléide i présent dans l'eau ($\mu\text{Gy/h}$)

$BCF(i,o)$ facteur de concentration à partir de l'eau du radionucléide i par l'organisme o (l/kg frais)

$DCC_{eau,int}(i,o)$ coefficient de conversion de dose relatif à l'exposition interne de l'organisme o par internalisation du radionucléide i présent dans l'eau ($\mu\text{Gy/h}$ par Bq/l)

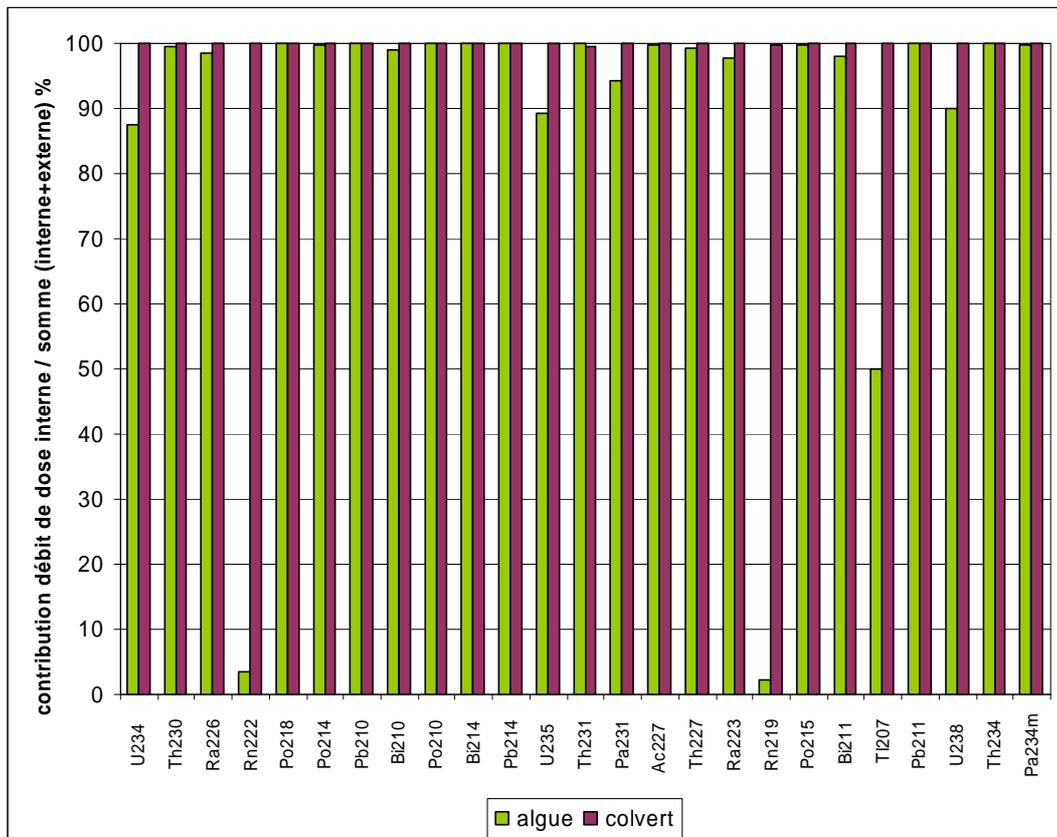


Figure 10 : contribution relative du débit de dose interne au débit de dose interne+externe pour deux organismes, par radionucléide, à la station SR6 en 1994, pour le milieu « eau »

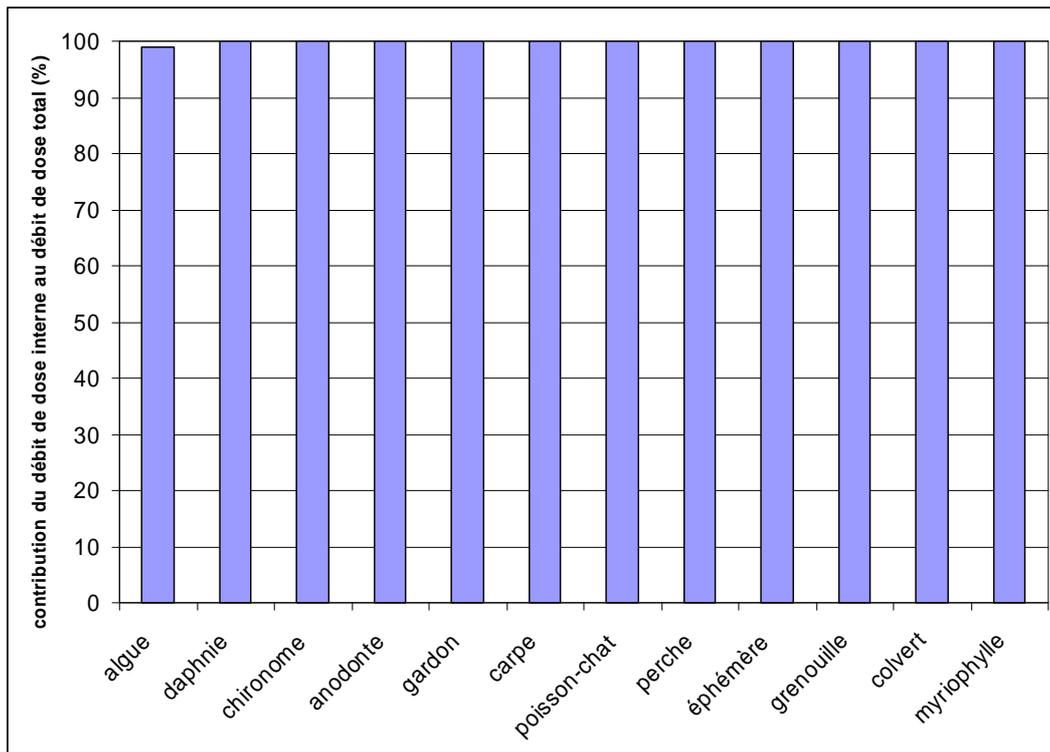


Figure 11 : contribution relative du débit de dose interne au débit de dose total pour tous les organismes à la station SR6 en 1994, pour le milieu « eau »

Du fait de la dominance de l'exposition interne, trois points nécessitent d'être pris en considération. Le premier concerne la représentativité des valeurs de concentration d'exposition retenues pour le screening. Le deuxième se rapporte à la caractérisation de la fraction biodisponible des radionucléides et le dernier est relatif aux valeurs de facteurs de transfert utilisées.

2.2.4.3 Représentativité des concentrations d'exposition

Le processus d'internalisation des radionucléides par les organismes vivants est caractérisé par des cinétiques d'échange (accumulation et élimination), traduites de façon conservatrice à l'étape de screening par une approche à l'équilibre. Toutefois, cet équilibre est censé être représentatif d'un comportement moyen sur un certain temps, et non d'un phénomène instantané. Dans cette optique, l'utilisation des concentrations maximales annuelles instantanées apparaît comme un choix extrêmement pénalisant. Un raffinement pourrait consister à définir une concentration d'exposition mieux adaptée à l'approche choisie (moyenne de plusieurs valeurs mensuelles, voire annuelles). Cette approche se heurte toutefois à nouveau au nombre de valeurs significatives disponibles, la majorité des résultats de mesure étant inférieurs au seuil de détection. Aujourd'hui, des méthodes de traitement statistique de tels jeux de données, incluant ce type de résultats appelés valeurs non détectées, sont disponibles pour déterminer les paramètres caractéristiques de la loi de distribution des données tels médiane, moyenne et écart-type (Helsel, 2005). En fonction de la proportion de valeurs non détectées dans le jeu de données et de la taille de celui-ci, différentes approches sont suggérées (Tableau 10). Ces méthodes, employées dans le cadre des travaux relatifs à la convention OSPAR pour interpréter les évolutions temporelles des concentrations de radionucléides dans l'environnement marin (Fiévet et Della-Védova, 2007), peuvent être adaptées pour les travaux du GT2. Considérant l'année comme référence temporelle, les jeux de données

disponibles comportent au plus 12 mesures mensuelles. Sur la période d'étude du screening, les méthodes applicables sont donc outre les méthodes classiques les approches Kaplan-Meier et ROS (cf. annexe D), le choix étant déterminé pour chaque couple (année, station) par la proportion de valeurs non détectées (Tableau 11 et Tableau 12). Il apparaît ainsi que les jeux de données utilisables pour l'²³⁸U sont rares, y compris avec ce type de méthodes.

Tableau 10 : méthodes d'estimation des paramètres statistiques classiques d'un jeu de données incluant des valeurs non-détectées

Effectif du jeu de données		
Part de valeurs non détectées	Moins de 50 observations	Plus de 50 observations
Moins de 50 %	Kaplan-Meier	
De 50 à 80 %	Robust ROS (Regression on Order Statistics)	MLE (Maximum Likelihood Estimation)
Plus de 80 %	Pas d'analyse possible	

Tableau 11 : proportion de valeurs non détectées et méthodes d'estimation des paramètres statistiques classiques de la distribution des concentrations en ²²⁶Ra (dissous et particulaire) pour chaque couple (station, année) sur la période 1993-2006 (analyse des résultats de mesure, code couleur issu du Tableau 10)

		1993	1994	1995	1996	1997	1998	1999	2000	2001	2002	2003	2004	2005	2006
SR1	Ra226 dissous								1/0	1/0	1/1	1/0	2/2	2/1	2/0
	Ra226 particulaire								1/1	1/0	1/1	1/0	2/2	2/2	2/1
SR2	Ra226 dissous		1/0	1/1	1/1	1/0		2/0	2/0	2/1	2/0	2/2	2/2	2/2	2/0
	Ra226 particulaire		1/0					2/0	2/0	2/1	2/2	2/1	2/2	2/1	2/1
SR3	Ra226 dissous	1/0	2/0	1/0	1/0	1/0		1/0	1/0	1/0	1/1	1/1	2/1	2/0	2/0
	Ra226 particulaire		1/0	1/1	1/0	1/1		1/1	1/0	1/0	1/1	1/1	2/2	2/2	2/1
SR4	Ra226 dissous							7/0	12/0	12/5	12/8	12/8			
	Ra226 particulaire							7/2	12/5	12/10	12/11	12/12			
SR5	Ra226 dissous	11/0	11/2	11/0	12/0	12/0	12/0	12/0	12/1	12/1	12/2	12/2	12/2	12/2	10/0
	Ra226 particulaire	2/1	11/7	11/9	12/6	12/8	10/3	8/3	12/5	12/9	12/12	12/11	12/12	12/11	10/6
SR6	Ra226 dissous		10/1	11/0	12/0	12/0	12/0	12/0	12/0	12/0	12/0	12/0	12/0	12/0	10/0
	Ra226 particulaire		10/0	11/0	12/0	12/0	10/0	8/0	12/0	12/1	12/0	12/2	12/3	12/4	10/0
SR7	Ra226 dissous	11/0	11/0	11/0	12/0	12/0	12/0	12/0	12/0	12/0	12/0	12/0	12/0	12/0	10/0
	Ra226 particulaire	2/1	11/1	11/2	12/0	12/1	10/0	8/0	12/1	12/4	12/2	12/3	12/6	12/8	10/2
SR8	Ra226 dissous	6/0	11/0	11/1	12/0	12/0	12/0	5/0							
	Ra226 particulaire	2/0	11/2	11/0	12/0	12/0	12/3	5/0							
SR9	Ra226 dissous	6/0	11/0	11/0	12/0	12/0	12/0	12/0	12/0	12/0	12/0	12/0	12/0	12/0	10/0
	Ra226 particulaire	2/0	11/0	11/0	12/1	12/0	12/0	12/1	12/2	12/4	12/3	12/6	12/4	12/9	10/2
SR10	Ra226 dissous	10/0	11/0	11/1	12/0	12/0	12/0	12/0	12/0	12/0	12/0	12/0	12/0	12/0	10/0
	Ra226 particulaire	2/1	11/6	11/5	12/0	12/2	12/3	12/1	12/3	12/4	12/9	12/6	12/11	12/12	10/2
SR11	Ra226 dissous	11/0	11/0	11/0	12/0	12/1	12/0	12/0	12/0	12/0	12/0	12/0	12/0	12/0	10/0
	Ra226 particulaire	2/0	11/1	11/1	12/2	12/1	12/3	12/1	12/3	12/6	12/4	12/7	12/9	12/9	10/1

(nombre total de valeurs/nombre de valeurs non détectées) / cases blanches : méthodes statistiques usuelles applicables (moyenne géométrique)

A titre d'illustration, les concentrations annuelles moyennes et leurs écart-types ont été calculées pour le ²²⁶Ra aux stations SR4 (zone de référence) et SR5, mettant ainsi en œuvre chacune des méthodes en utilisant les applications informatiques associées, accessibles gratuitement. Développées pour le logiciel libre de statistique R (R Development Core Team, 2008), elles sont réunies au sein d'une bibliothèque de procédures dédiée (NADA package - Nondetects And Data Analysis for environmental data), téléchargeable ainsi que le logiciel sur Internet⁴. Les résultats obtenus sont réunis au Tableau 13. Pour une analyse raffinée de l'exposition, la concentration d'intérêt serait la concentration moyenne annuelle de la forme dissoute (cf.§.2.2.4.4). Afin d'illustrer les apports des méthodes NADA dans cette optique, les concentrations annuelles moyennes du ²²⁶Ra sous forme dissoute, calculées par application de ces méthodes, et les intervalles de confiance associés ont été comparés pour la station SR5 aux concentrations annuelles maximales du ²²⁶Ra total, employées lors de l'étape de screening (Figure 12).

Tableau 12 : proportion de valeurs non détectées et méthodes d'estimation des paramètres statistiques classiques de la distribution des concentrations en ²³⁸U (dissous et particulaire) pour chaque couple (station, année) sur la période 1993-2006 (analyse des résultats de mesure, code couleur issu du Tableau 10)

		1993	1994	1995	1996	1997	1998	1999	2000	2001	2002	2003	2004	2005	2006
SR1	U238 dissous								1/1	1/1	1/1	1/1	2/2	2/2	2/2
	U238 particulaire								1/1	1/1	1/1	1/1	2/2	2/2	2/2
SR2	U238 dissous		1/1	1/1	1/1	1/1		2/2	2/2	2/2	2/2	2/1	2/2	2/1	2/1
	U238 particulaire		1/1					2/2	2/2	2/2	2/2	2/1	2/2	2/1	2/1
SR3	U238 dissous	1/1	2/2	1/1	1/1	1/1		1/1	1/1	1/1	1/1	1/1	2/2	2/2	2/0
	U238 particulaire		1/1	1/1	1/1	1/1		1/1	1/1	1/1	1/1	1/1	2/2	2/2	2/0
SR4	U238 dissous							7/7	12/12	12/12	12/12	12/12			
	U238 particulaire							7/7	12/12	12/12	12/12	12/12			
SR5	U238 dissous	11/10	11/11	11/11	12/12	12/12	12/12	12/12	12/11	12/11	12/12	12/12	12/12	12/12	10/1
	U238 particulaire	2/2	11/11	11/11	12/12	12/12	10/10								2/2
SR6	U238 dissous		10/5	11/4	12/11	12/12	12/12	12/10	12/10	12/10	12/12	12/2	12/4	12/3	10/0
	U238 particulaire		10/6	11/11	12/12	12/12	10/10								1/0
SR7	U238 dissous	11/3	11/6	11/6	12/12	12/12	12/12	12/12	12/11	12/12	12/12	12/4	12/6	12/5	10/0
	U238 particulaire	2/2	11/8	11/11	12/12	12/12	10/10								1/0
SR8	U238 dissous	6/3	11/5	11/10	12/12	12/12	12/12	5/5							
	U238 particulaire	1/1	11/7	11/10	12/12	12/12	12/12	5/5							
SR9	U238 dissous	6/3	11/6	11/10	12/12	12/12	12/12	12/12	12/11	12/9	12/12	12/3	12/4	12/3	10/0
	U238 particulaire	1/1	11/8	11/10	12/12	12/12	12/12	5/5							1/0
SR10	U238 dissous	10/9	11/11	11/5	12/6	12/4	12/5	12/8	12/5	12/4	12/8	12/3	12/0	12/1	10/0
	U238 particulaire	1/1	11/11	11/10	12/12	12/12	12/12	5/5							1/0
SR11	U238 dissous	11/7	11/9	11/10	12/11	12/12	12/12	12/12	12/11	12/11	12/12	12/7	12/6	12/8	10/0
	U238 particulaire	1/1	11/10	11/10	12/12	12/12	12/12	12/12	12/12	12/12	12/12	12/12	12/12	12/12	10/0

(nombre total de valeurs/nombre de valeurs non détectées) / cases blanches : méthodes statistiques usuelles applicables (moyenne géométrique)

⁴ <http://cran.r-project.org/>, page consultée le 23 avril 2008

Tableau 13 : concentrations moyennes annuelles en ²²⁶Ra (dissous, particulaire et total) aux stations SR4 et SR5 en fonction des années (code couleur issu du Tableau 10)

Station	Année	Concentration (Bq.l ⁻¹)					
		²²⁶ Ra dissous		²²⁶ Ra particulaire		²²⁶ Ra total	
		moyenne	écart type	moyenne	écart type	moyenne	écart type
SR4	1999	5.00E-02	3.37E-02	2.43E-02	8.14E-03	7.05E-02	4.48E-02
	2000	5.08E-02	4.19E-02	2.58E-02	9.31E-03	6.18E-02	2.78E-02
	2001	3.33E-02	1.94E-02				
	2002	1.37E-02	1.44E-02				
	2003	1.54E-02	8.14E-03				
SR5	1993	1.05E-01	3.80E-02				
				5.60E-02	2.03E-02	1.62E-01	5.68E-02
	1994	4.82E-02	2.89E-02	2.32E-02	1.78E-02	6.49E-02	4.06E-02
	1995	3.64E-02	1.21E-02				
SR5	1996	5.00E-02	3.13E-02	1.73E-02	1.29E-02	5.70E-02	3.54E-02
	1997	8.17E-02	3.07E-02	2.00E-02	0.00E+00	7.87E-02	3.29E-02
	1998	7.83E-02	3.66E-02	3.00E-02	2.90E-02	n.c.	n.c.
				2.81E-02	2.70E-02	1.01E-01	5.07E-02
	1999	6.08E-02	2.50E-02	3.75E-02	2.55E-02	n.c.	n.c.
				3.13E-02	2.40E-02	8.64E-02	5.13E-02
	2000	5.50E-02	3.52E-02	2.58E-02	1.49E-02	7.04E-02	2.82E-02
	2001	4.42E-02	2.07E-02	2.07E-02	8.91E-03	6.15E-02	2.57E-02
	2002	6.17E-02	3.80E-02				
	2003	2.67E-02	7.86E-03				
2004	3.33E-02	1.57E-02					
2005	3.25E-02	1.30E-02					
2006	5.30E-02	1.42E-02	2.06E-02	6.98E-03	8.00E-02	3.71E-17	

cases blanches : moyenne et écart-type géométriques classiques / utilisation de valeurs extrapolées sur la base du ratio ²²⁶Ra dissous/²²⁶Ra particulaire (cf. Beaugelin-Seiller et Garnier-Laplace, 2007)/ n.c. : non calculé

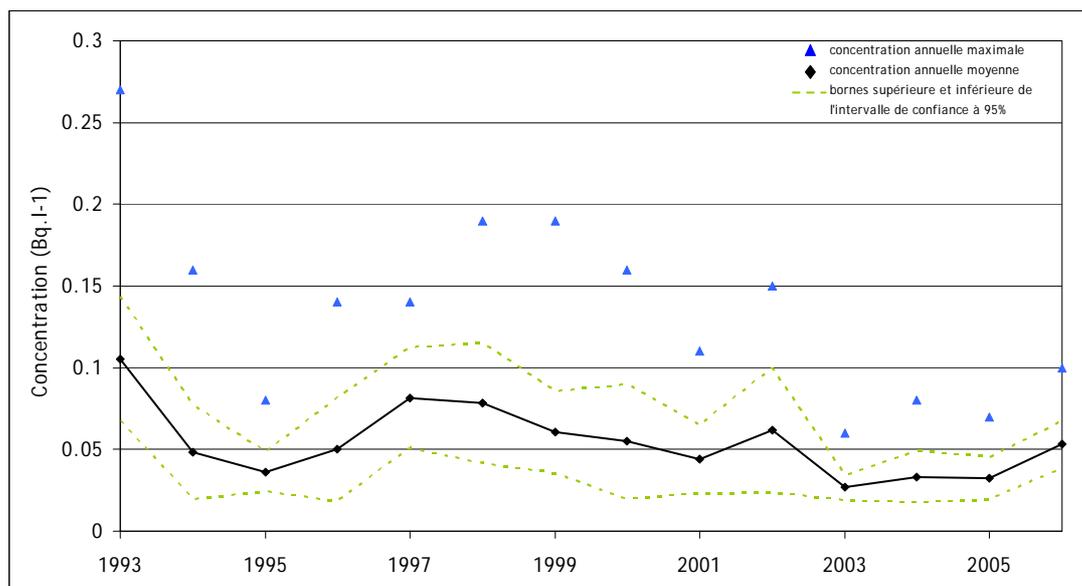


Figure 12 : évolution comparée des concentrations maximales annuelles en ²²⁶Ra total utilisées pour le screening et des concentrations moyennes annuelles en ²²⁶Ra dissous, à la station SR5.

2.2.4.4 Effet de la biodisponibilité

Pour être impliqué dans un transfert biologique, un radionucléide doit être tout d'abord bioaccessible, c'est à dire qu'il doit être « environnementalement » disponible, soit non séquestré dans une matrice environnementale. Sur l'ensemble du radionucléide bioaccessible, sa fraction biodisponible est définie comme la proportion de sa quantité totale ou de sa concentration dans l'environnement potentiellement disponible pour être bioaccumulée par un organisme vivant (biodisponibilité : résultante des interactions entre le polluant étudié et les barrières biologiques de l'organisme). C'est bien évidemment cette fraction seule qui est concernée lors de l'internalisation d'un radionucléide par un organisme. Une première estimation de cette fraction est obtenue en l'assimilant à la fraction dissoute du radionucléide dans l'eau.

Dans le cas du Ritord, la connaissance de la fraction dissoute et particulaire est limitée aux mesures de concentration d' ^{238}U et de ^{226}Ra fournies par AREVA NC. A titre d'illustration de l'effet de la biodisponibilité sur les débits de dose, ceux-ci ont été calculés sur la base de la fraction dissoute et de la concentration totale de ces deux radionucléides, pour les organismes conduisant aux indices de risque les plus élevés à la station SR6 en 1994 (Figure 13).

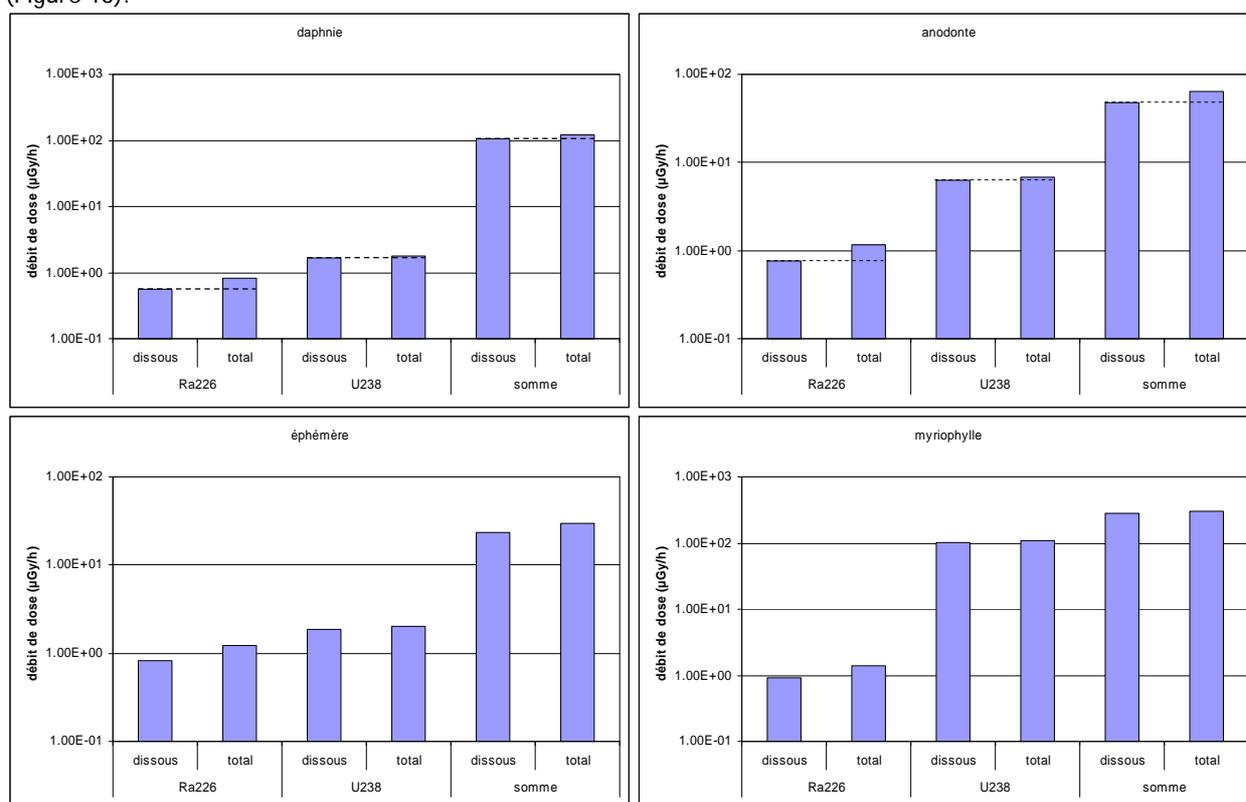


Figure 13 : débits de dose relatifs à la fraction dissoute et à la concentration totale du ^{226}Ra et de ^{238}U dans l'eau pour quatre organismes à la station SR6 en 1994

Le débit de dose total sommé sur ^{226}Ra et ^{238}U , résultant de l'exposition interne à leurs fractions dissoutes, représentent pour les quatre organismes testés de 76 à 92% du débit de dose calculé sur la base de leurs concentrations totales (fraction dissoute et particulaire).

2.2.4.5 Sélection des valeurs de facteur de transfert

Les débits de dose associés à l'exposition interne reposent sur le calcul des concentrations de radionucléides internalisés par les organismes, réalisé à l'étape de screening sur la base d'une approche à l'équilibre utilisant des facteurs de transfert. Les valeurs attribuées à ces paramètres dans le cadre de cette étude sont issues de la littérature ou, en l'absence de données, de la mise en œuvre de méthodes d'extrapolation, l'origine de ces valeurs étant parfaitement tracée dans le document méthodologique. Or la variabilité des facteurs de transfert est aujourd'hui reconnue comme l'une des sources majeures d'incertitude dans les modèles de transfert, ces paramètres présentant couramment des gammes de variation de plusieurs ordres de grandeur, notamment pour le milieu aquatique, en fonction des conditions physico-chimiques de l'environnement. Le poids des conditions locales peut donc s'avérer déterminant dans le choix de la valeur des facteurs de transfert. A titre d'illustration, la comparaison entre les données de la littérature, retenues pour l'étape de screening, et des données site-spécifiques a été entreprise. Ne disposant de mesures de concentration de quelques radionucléides (^{226}Ra , ^{238}U et ^{210}Pb) à la fois que dans un milieu (les sédiments) et un seul type d'organisme (les plantes), et ce pour un certain nombre de couples (station, année), c'est donc le facteur de transfert sédiment-plantes spécifique au Ritord qui a été calculé, en appliquant l'Équation 11.

$FT_{\text{sédiment, plante}}(i) = \frac{C(i, \text{plante})}{C(i, \text{sédiment})}$	Équation 11
Avec	
FT _{sédiment, plante} (i) facteur de transfert du radionucléide i présent dans le sédiment à la plante (s.d.)	
C(i, plante) concentration du radionucléide i dans la plante (Bq.kg ⁻¹ frais)	
C(i, sédiment) concentration du radionucléide i dans le sédiment (Bq.kg ⁻¹ sec)	

La distribution de probabilité cumulée des valeurs de ce facteur de transfert a alors été établie pour les trois radionucléides, pour en déduire le 50^{ème} percentile de la distribution (Figure 14), considéré comme la meilleure estimation possible de ce paramètre *in situ*, et le comparer à la valeur qui lui a été attribuée lors de l'étape méthodologique (Tableau 14). Les valeurs issues de la littérature pour le facteur de transfert sédiment-plante sont en bon accord avec les valeurs spécifiques au Ritord pour l' ^{238}U , et dans une moindre mesure pour le ^{210}Pb (surestimation dans la littérature d'un facteur 4 environ). Par contre, la valeur du facteur de transfert sédiment-plante du ^{226}Ra établie sur le Ritord est 45 fois plus élevée que celle sélectionnée à partir de la littérature, confirmant ainsi l'intérêt de l'utilisation de données site-spécifiques pour une évaluation raffinée du risque radiologique à l'environnement.

Lors des campagnes d'échantillonnage réalisées en 2004, la CRIIRAD avait procédé à la détermination des facteurs de concentration *in situ* pour les gardons pêchés dans les diverses retenues prospectées, dont notamment celle de Gouillet, en amont du Ritord (CRIIRAD, 2004). Ces résultats ont été comparés avec les valeurs retenues pour le screening, et issues de la littérature (Tableau 15). Si là encore, le facteur de transfert eau-poisson de l'uranium apparaît relativement cohérent entre la littérature et le terrain, l'accord est moins bon pour le polonium et le radium. Dans les trois cas, les données de la littérature conduiraient à sous-estimer les concentrations en

radionucléides des poissons, d'un facteur 1,6 (^{238}U) à un facteur 15,6 (^{226}Ra), en considérant que les résultats obtenus sur la retenue de la Cruzille sont extrapolables au Ritord.

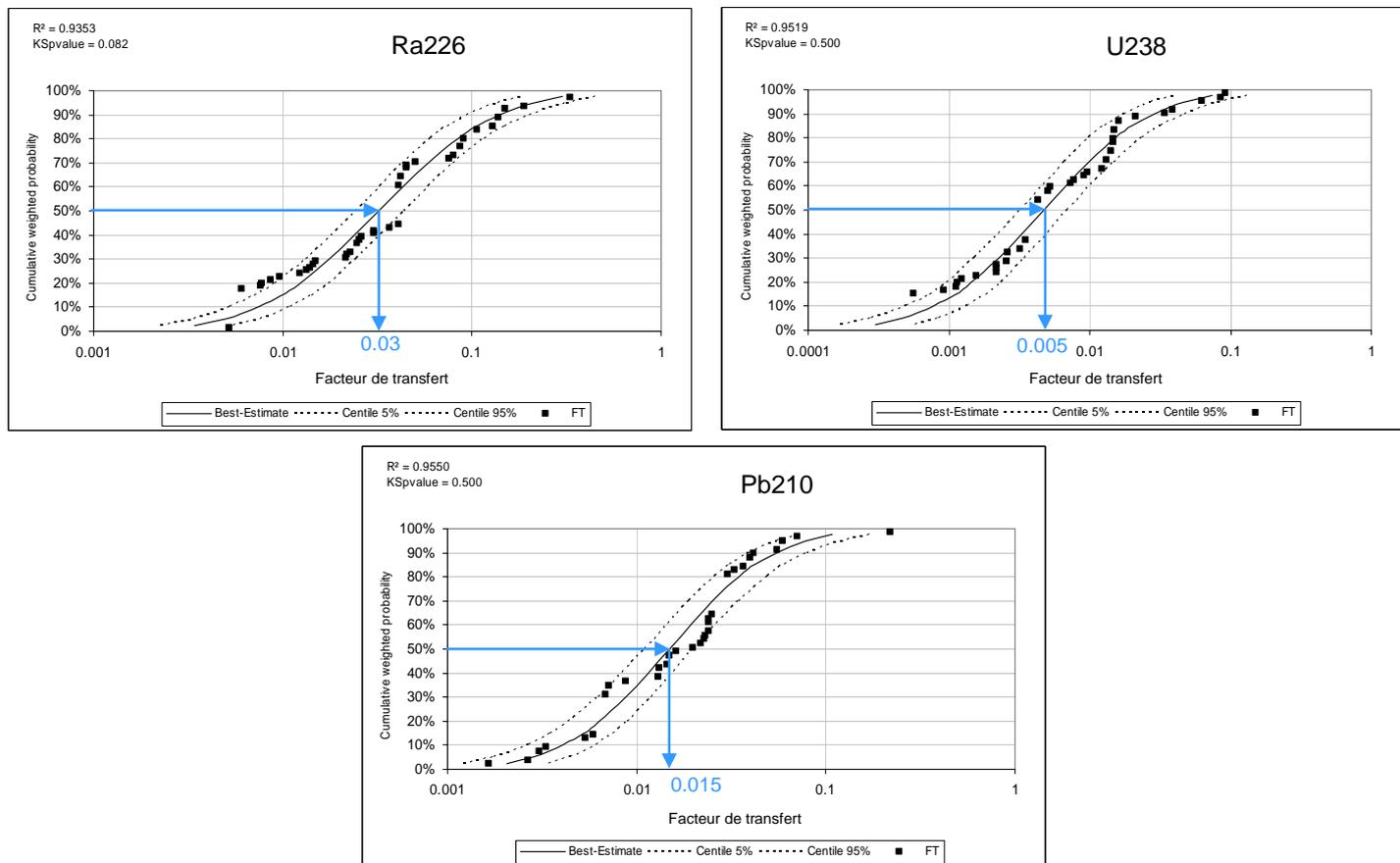


Figure 14 : distributions cumulés de probabilité et meilleure estimation du facteur de transfert sédiment-plante pour le ^{226}Ra , ^{238}U et le ^{210}Pb obtenu *in situ* (données AREVA NC, Ritord)

Tableau 14 : valeurs spécifiques au Ritord et issues de la littérature du facteur de transfert sédiment-plante pour quelques radionucléides (kg/kg frais)

	Facteur de transfert sédiment-plante	
	Valeur spécifique au Ritord [intervalle de confiance à 95%]	Valeur issue de la littérature (Beaugelin-Seiller et Garnier-Laplace, 2007)
^{226}Ra	0.032 [0.022 - 0.046]	0.0007
^{238}U	0.005 [0.003 - 0.008]	0.007
^{210}Pb	0.015 [0.010-0.021]	0.08

Tableau 15 : valeurs *in situ* pour la retenue de Gouillet (CRIIRAD, 2004) et issues de la littérature du facteur de transfert eau-gardons pour quelques radionucléides (l/kg frais)

	Facteur de transfert eau-gardon	
	Valeur <i>in situ</i> (CRIIRAD, 2004)	Valeur issue de la littérature (Beaugelin-Seiller et Garnier-Laplace, 2007)
²²⁶ Ra	Non calculable*	80
²³⁸ U	48	30
²¹⁰ Po	609	240

* données insuffisantes pour déterminer ce paramètre dans la retenue de Gouillet. Il a par contre pu être estimé à 1255 sur la retenue de la Cruzille.

L'intérêt d'utiliser dans une étape de raffinement des données site-spécifique, notamment pour les facteurs de transfert, est donc confirmé sur la base des exemples traités, que ce soit pour les plantes ou pour les poissons.

2.3 CARACTÉRISATION DÉTERMINISTE DU RISQUE CHIMIQUE CHRONIQUE

Comme pour le risque radiologique chronique, les indices de risque chimique chronique ajouté et total ont été calculés pour chacun des couples (station, année) selon l'approche décrite précédemment, sur la base des données déterminées pour le rapport méthodologique et rappelées dans le présent document.

2.3.1 RISQUE DÉTERMINISTE CHIMIQUE CHRONIQUE TOTAL

Les indices de risque chimiques totaux pour l'écosystème du Ritord exposé *via* l'eau sont compris entre 1 et 63 pour la zone de référence, et entre 3 et 423 pour les stations SR5 à SR11 (Tableau 16). Comme pour le risque radiologique, les indices de risque maximaux sont observés de manière générale en 1994, la plus forte valeur étant obtenue à la station SR6.

Tableau 16 : indice de risque chimique total sur le bassin versant du Ritord, lié à la présence d'uranium dans les eaux du Ritord

Station	1993	1994	1995	1996	1997	1998	1999	2000	2001	2002	2003	2004	2005	2006
Zone de référence	63	63	63	63	63	0.6	63	32	32	32	28	6.3	6.3	0.6
SR5	63	63	63	63	63	63	63	38	32	32	32	6.3	6.3	2.6
SR6		423	199	63	63	63	58	53	41	29	29	29	19	14
SR7	130	319	142	63	63	63	63	44	32	32	32	25	13	27
SR8	139	243	117	63	63	63	63							
SR9	133	243	117	63	63	63	63	38	38	32	32	19	14	17
SR10	63	63	79	82	133	117	82	82	63	57	44	38	30	23
SR11	95	142	92	73	63	63	63	35	32	32	32	9.5	7.3	6.0

■ pas de donnée

2.3.2 RISQUE DÉTERMINISTE CHIMIQUE CHRONIQUE AJOUTÉ

L'indice de risque chimique chronique ajouté est pour la plupart des couples (station, année) supérieur à 1 et dans les quelques cas restants nul (Tableau 17). Son évolution spatio-temporelle est comparable à celle des indices de risque chimiques totaux, le maximum est atteint à la station SR6 en 1994.

Tableau 17 : indice de risque chimique ajouté sur le bassin versant du Ritord, lié aux rejets d'uranium par les anciennes installations minières

Station	1993	1994	1995	1996	1997	1998	1999	2000	2001	2002	2003	2004	2005	2006
SR5	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	62	0.00	6.3	0.00	0.00	3.2	0.00	0.00	2.0
SR6		360	136	0.00	0.00	62	n.p.*	21	9.3	n.p.	0.8	23	13	13
SR7	67	256	79	0.00	0.00	62	0.00	13	0.00	0.00	3.2	19	6.9	26
SR8	76	180	53	0.00	0.00	62	0.00							
SR9	69	186	53	0.00	0.00	62	0.00	6.3	6.3	0.00	3.2	13	7.6	16
SR10	0.00	0.00	16	19	69	117	19	50	32	25	16	32	23	23
SR11	32	79	28	9.5	0.00	62	0.00	3.2	0.00	0.00	3.2	3.2	1.0	5.4

* n.p. (non pertinent) : le résultat, obtenu par différence, n'a pas de sens méthodologique / pas de donnée

La contribution de l'indice de risque chimique ajouté vis à vis du risque chimique total a été illustrée pour la station 6, de 1994 à 2006 (Figure 15). L'évolution temporelle de ces deux indices, qui reflète bien évidemment celle des concentrations d'exposition, montre cependant une contribution de l'indice de risque ajouté hautement variable, entre 0 et 95%.

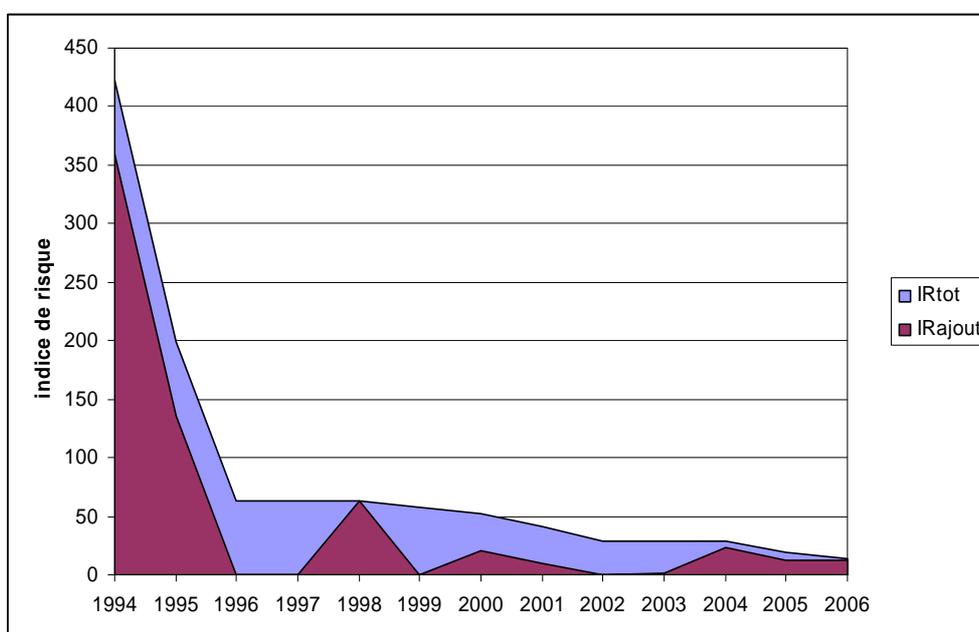


Figure 15 : contribution de l'indice de risque chimique chronique ajouté vis à vis du risque chimique chronique total pour la station SR6

2.3.3 CONCLUSIONS SUR LE RISQUE DÉTERMINISTE CHIMIQUE CHRONIQUE

Le screening, sous les hypothèses fortement conservatives récapitulées au chapitre 1, ne permet d'écarter un risque chimique pour aucune des situations d'exposition considérées, quelles que soient l'année et la station.

2.3.4 BIODISPONIBILITÉ ET RISQUE CHIMIQUE

L'écotoxicité chimique d'une substance est liée principalement à sa fraction biodisponible, assimilable en première approche à sa fraction dissoute. La prise en considération de cette dernière plutôt que de la concentration totale de la substance constitue un premier pas dans le raffinement de l'évaluation du risque chimique. A titre d'illustration, cet effet a été étudié à l'échelle mensuelle pour l'année 2006 (première année où toutes les mesures disponibles sont significatives) sur l'ensemble du Ritord (Figure 16). Dans 85% des cas, l'indice de risque chimique ajouté ainsi calculé sur la base de la fraction dissoute d'uranium est supérieur à 1. Il est à noter que la station SR5 ne présente que des indices inférieurs à 1. Les indices maximaux sont observés sur les stations SR6 et SR10.

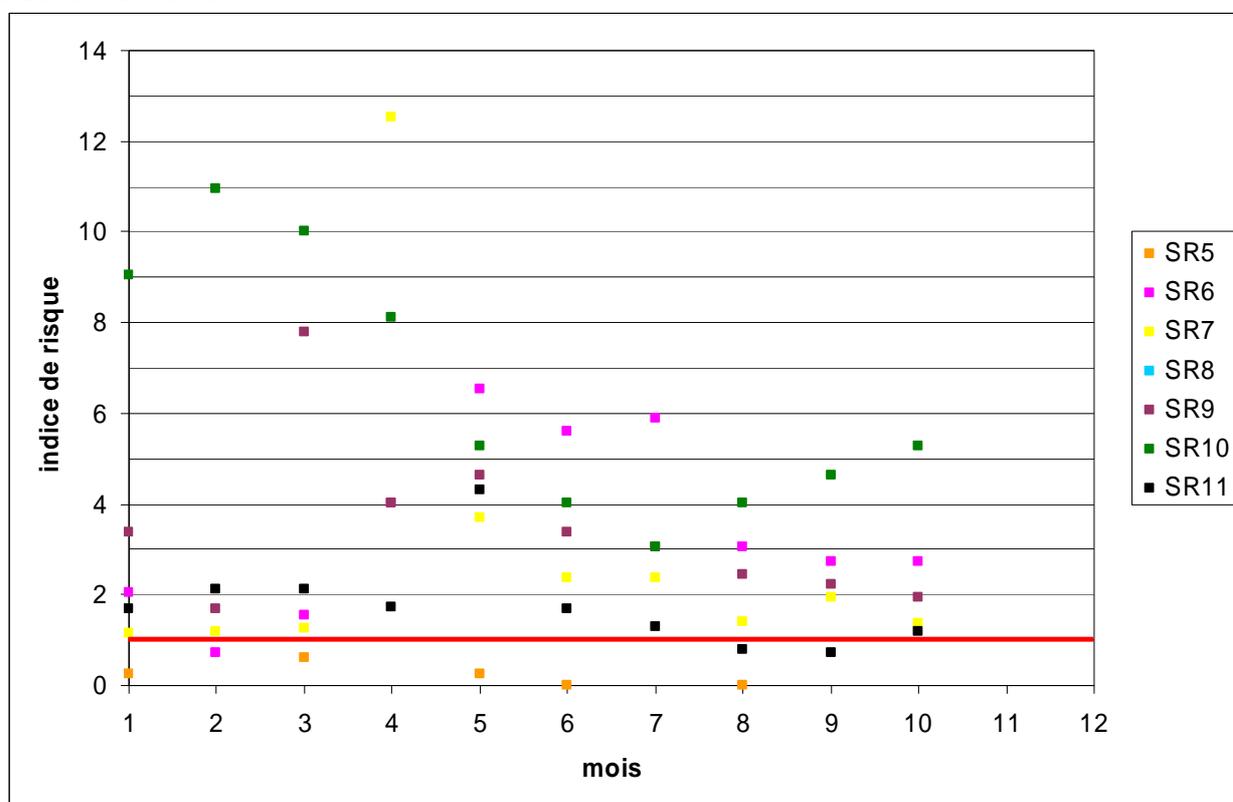


Figure 16 : indice de risque chimique ajouté relatif à l'uranium soluble, calculé mensuellement pour chacune des stations exposées du Ritord en 2006.

Toutefois, caractériser la biodisponibilité d'une substance ne se limite pas à cette première approche. Pour ce faire, il est nécessaire de définir la spéciation de la substance étudiée. A titre d'illustration, l'uranium a été choisi comme support de l'étude de spéciation présentée ci-après.

Tout d'abord, deux types de caractérisation sont à distinguer. La première, de nature physique, correspond effectivement à la distinction entre fractions dissoute et particulaire, le seuil de coupure entre les deux étant formalisé par un diamètre de 0,45 μm (dissous < 0,45 μm < particulaire). La seconde est de nature chimique : en

fonction des conditions environnementales, l'uranium est susceptible de former divers complexes, de biodisponibilité très variée. Ainsi, le modèle dit de l'ion libre, le plus couramment appliqué, ne considère comme forme biodisponible que l'ion uranyle (UO_2^{2+}).

2.3.4.1 Étude de spéciation de 2002

Une étude relative à la spéciation et aux modes de transport de l'uranium (CEMRAD/LSCE/CREGU, 2002) a été demandée en 2002 par arrêté préfectoral à COGEMA. Elle a été réalisée par le CEMRAD (Limoges), le LSCE (Paris) et l'UMR G2R/CREGU (Nancy). Les principales données relatives aux conditions de réalisation sont rappelées ci-dessous, avant l'exposé des conclusions essentielles de l'étude.

2.3.4.1.1 Conditions de réalisation

Concernant le Ritord, deux stations, l'une sur l'étang de Gouillet et l'autre en SR11 (cf. Figure 1), ont été suivies, de février à juin 2001. Des résultats antérieurs, acquis en août 1999, février et novembre 2000, sont repris dans l'étude de 2002. La station de l'étang constitue, comme dans la présente étude, le site de référence.

2.3.4.1.2 Conclusions

Concernant les conditions environnementales, les auteurs concluent à l'absence de variation significative du pH sur la période d'étude, celui-ci ayant été mesuré entre 5,5 et 7,2 sur le Ritord (étang de Gouillet inclus). De même, les auteurs concluent à l'absence de variation saisonnière des concentrations en ions majeurs, sur la base des résultats acquis entre février 1999 et juin 2002.

Concernant la spéciation physique, les résultats présentés dans l'étude de 2002 donnent une fraction particulaire ($\phi > 0,45 \mu\text{m}$) de l'uranium de l'ordre de 50% au niveau de la station SR11, ce qui est cohérent avec les mesures effectuées par AREVA NC. Cette répartition ne serait pas modifiée par les saisons.

Les calculs thermodynamiques réalisés à l'aide du logiciel EQ3NR, pour les huit campagnes d'échantillonnage présentées dans l'étude, donnent comme forme dominante de l'uranium les hydroxydes d'uranyle $\text{UO}_2(\text{OH})_2(\text{aq})$.

2.3.4.2 Compléments

Les conditions environnementales relevées sur le Ritord durant la période d'étude couvrent un domaine plus large que celui identifié en 2002 (Tableau 18). Or la spéciation de l'uranium est fortement conditionnée par l'abondance et la nature des ligands, le pH et l'état redox du milieu. Par ailleurs, l'IRSN/DEI/SECRE possède aujourd'hui une expertise reconnue vis à vis de cette problématique, et a d'ailleurs contribué à la mise à jour de la base de données thermodynamiques associée au code de spéciation JCHESS pour l'uranium (Denison, 2004 ; Denison et Garnier-Laplace, 2005). Une nouvelle étude de spéciation théorique a donc été réalisée sur ces bases, avec deux objectifs : comparer les résultats théoriques obtenus avec les deux codes de calcul et étudier la spéciation de l'uranium au long du Ritord.

Tableau 18 : conditions environnementales sur le Ritord en fonction de la période d'étude

	Étude de spéciation	Screening risque
Durée	08/99 - 08/00 - 11/00 - 02/01 au 06/01	1993-2006
Localisation (stations)	SR11	SR5 à SR11
pH	5,96 - 7,03	4.7 - 7,8
U dissous (mg/l)	0.007 - 0.01	0.005 - 1.24
U total (mg/l)	0.01 - 0.03	0.01 - 1.34

2.3.4.2.1 Comparaison des résultats de spéciation théorique

Le détail de l'étude réalisée est présenté en annexe E (§.1).

Les résultats obtenus avec JCHESS sont cohérents avec ceux produits par EQ3NR (CEMRAD/LSCE/CREGU, 2002) : présence majoritaire d' $\text{UO}_2(\text{OH})_2(\text{aq})$ et, à plus forte concentration, de l'espèce ternaire hydroxycarbonatée.

La présence de complexes phosphatés n'a pas été prise en compte dans les calculs en première approche, contrairement à l'étude CEMRAD/LSCE/CREGU.

2.3.4.2.2 Spéciation de l'uranium sur le Ritord

Afin d'avoir une esquisse de ce que pourrait être la spéciation de l'uranium tout au long du Ritord, et dans l'idée de déterminer un profil type de station associée à une forme chimique dominante de l'uranium, le calcul de spéciation a été étendu à l'ensemble des autres stations, sous un certain nombre d'hypothèses. En effet, les données disponibles pour l'ensemble des stations sur la période du screening sont uniquement le pH et la concentration, dissoute ou totale, en uranium. Dans cette optique, et sous l'hypothèse d'une composition ionique commune des eaux, identique à celle de la station SR11, le diagramme de spéciation théorique de l'uranium en fonction de sa concentration et du pH du milieu a été déterminé (cf. §.12.4). Les points de mesure disponibles sur la période du screening pour chacune des stations SR1 à SR11 ont ensuite été projetés sur ce diagramme (Figure 17). Dans les conditions du calcul, les résultats obtenus ne conduisent pas à associer une forme chimique particulière de l'uranium à une ou plusieurs stations.

2.3.4.3 Conclusions sur la spéciation

Plus que la spéciation chimique au sens thermodynamique, il semble important d'après l'étude de 2002 de considérer la spéciation physique de l'uranium : présent majoritairement en solution dans les eaux d'exhaure, cet élément s'adsorbe progressivement sur des colloïdes et des particules argileuses une fois dans le Ritord, la somme des fractions particulaire et colloïdale atteignant 70 à 95% de l'uranium total. Pour le calcul de risque associé à une concentration totale moyenne d'environ 20 $\mu\text{g/l}$, ceci équivaldrait à considérer une PEC de 1 à 6 $\mu\text{g/L}$ d'uranium dissous.

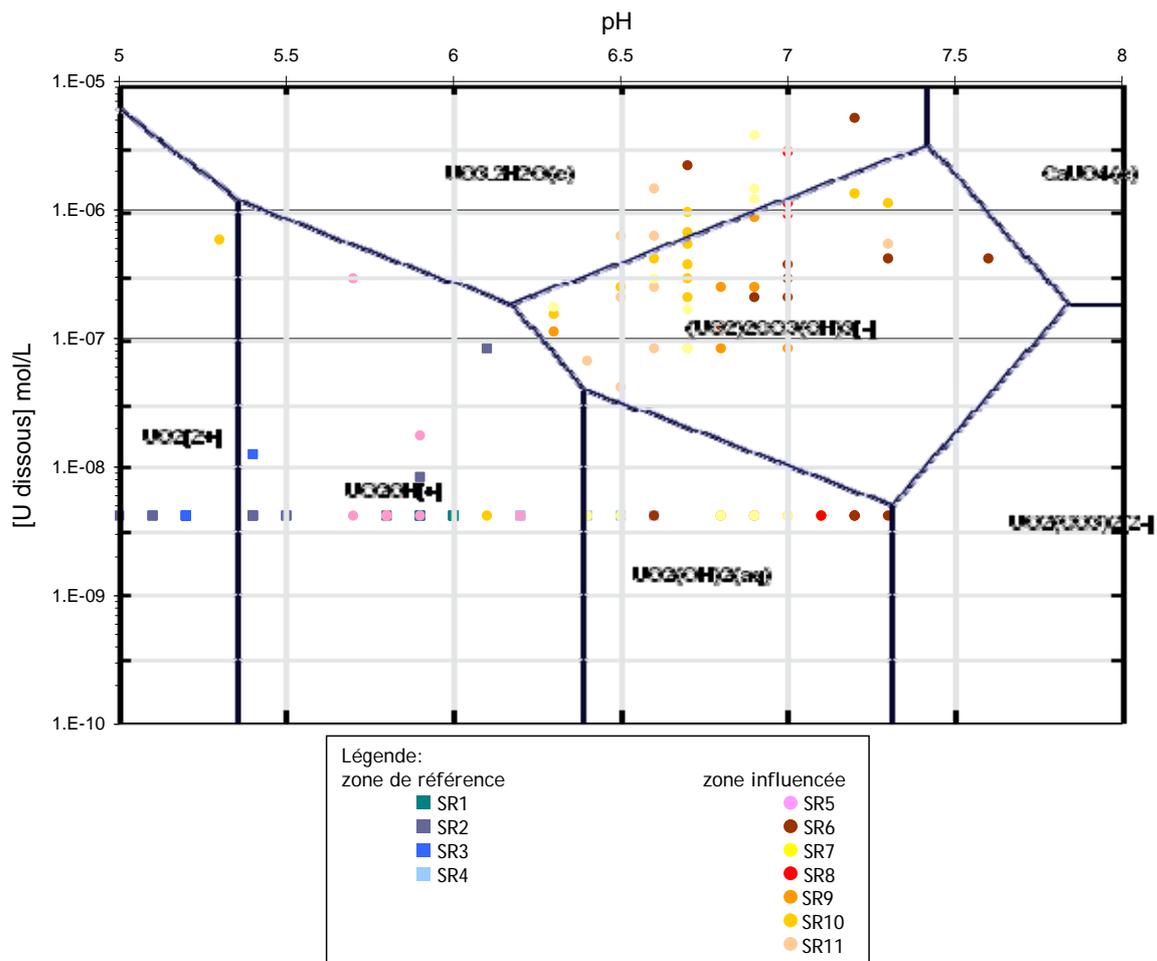


Figure 17 : projection des couples (concentration annuelle maximale en uranium dissous, pH) obtenus pour chaque station sur le diagramme pH-concentration de spéciation de l'uranium, dans les conditions physico-chimiques moyennes du Ritord.

Sous l'hypothèse du modèle de l'ion libre, la forme la plus biodisponible de l'uranium est UO_2^{2+} : les stations pour lesquelles cette forme est majoritaire (donc $pH < 5.4$) sont les plus favorables à un transfert biologique. Certains auteurs (Markich *et al.*, 2000, Denison, 2004 ; Fortin *et al.*, 2007) ont cependant montré que certains complexes, comme UO_2OH^+ , pourraient être considérés comme biodisponibles en milieu aquatique continental. Ainsi, moyennant l'hypothèse que les formes précipitées ne sont pas biodisponibles, il serait possible de définir une zone de biodisponibilité accrue en eau douce, entre pH 5 et 6.4, là où l'ion libre UO_2^{2+} et où le complexe UO_2OH^+ sont majoritaires... sans oublier cependant que l'ion libre est présent sur toutes les stations, même s'il ne l'est qu'à faible concentration.

2.4 CONCLUSIONS SUR LES MÉTHODES DÉTERMINISTES D'ÉVALUATION DU RISQUE POUR L'ENVIRONNEMENT

Des ébauches d'amélioration de l'étape de screening ont été présentées, portant notamment sur les aspects de biodisponibilité des substances incriminées. Toutefois, la détermination du risque a été jusqu'à présent basée uniquement sur l'approche déterministe du quotient de risque. Sous cet angle, et quelles que soient les améliorations proposées, les indices de risque obtenus sont très généralement significatifs. L'étape suivante de

raffinement passe alors par la mise en œuvre de méthodes d'évaluation probabiliste, envisagées dès l'étape méthodologique. Ces traitements sont abordés au chapitre 3.

3 ÉVALUATION PROBABILISTE DU RISQUE CHIMIQUE OU RADIOLOGIQUE

3.1 RAPPELS MÉTHODOLOGIQUES

La caractérisation probabiliste du risque peut se faire selon différentes méthodes, intégrant les informations issues de l'analyse des expositions et de l'analyse des effets, et recensées dans le document méthodologique (Beaugelin-Seiller et Garnier-Laplace, 2007). Dans le cadre de l'évaluation conduite pour le GEP mines, il a été proposé de mettre en œuvre à l'issue du screening, et ce uniquement pour les cas où l'indice de risque ajouté calculé lors de l'étape de screening est supérieur à 1, les méthodes de comparaison des distributions statistiques des données d'effet et d'exposition. Dans cette optique, trois approches sont notamment possibles (Figure 18) : l'étude du recouvrement des densités de probabilité à la fois des concentrations d'exposition et d'effet, la comparaison du 90^{ème} percentile de la probabilité cumulée des concentrations d'exposition avec le 10^{ème} percentile de la probabilité cumulée des concentrations d'effet (EC₁₀ de la SSD), la comparaison du 50^{ème} percentile des probabilités cumulées à la fois des concentrations d'exposition et d'effet (ce dernier correspond à l'EC₅₀ de la SSD).

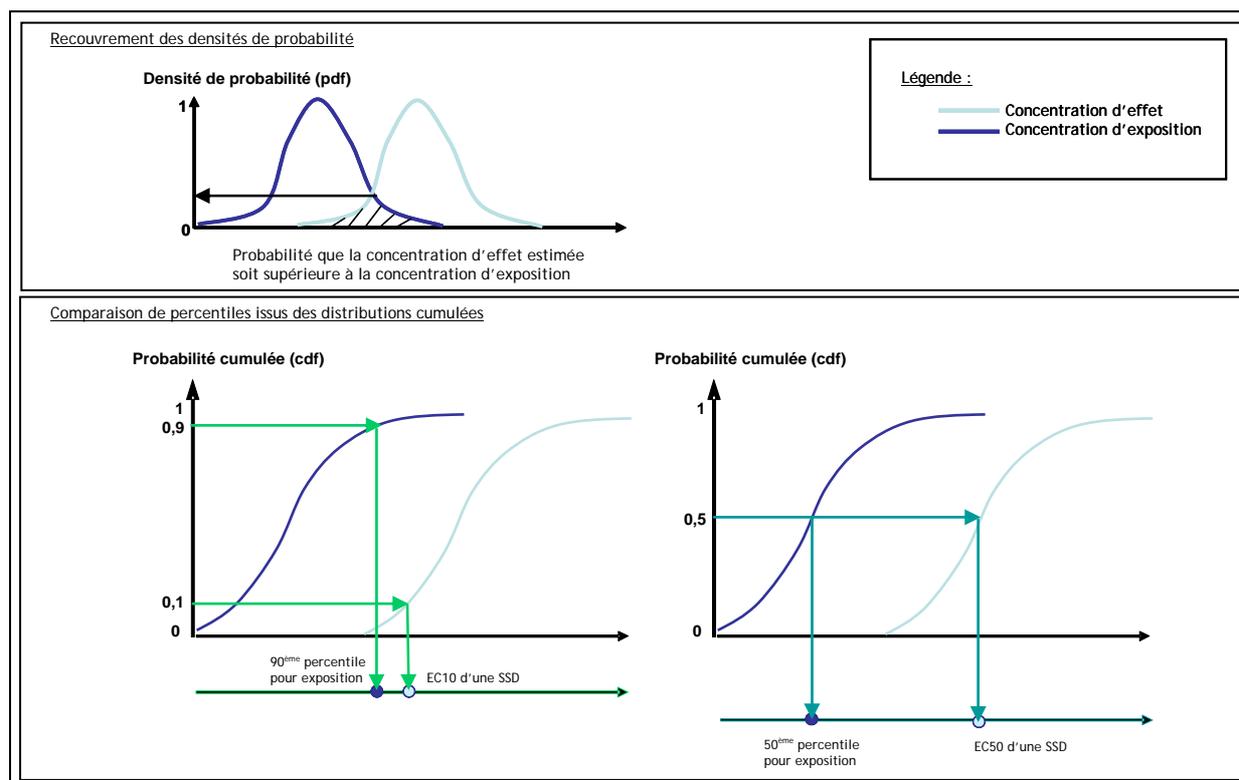


Figure 18 : méthodes de caractérisation du risque par comparaison des distributions des données d'exposition et d'effet (modifié d'après Sergeant, 2002)

3.2 PRINCIPES COMMUNS DE MISE EN OEUVRE

L'évaluation déterministe des risques chimique et radiologique chroniques conduite sous les hypothèses du screening a conduit à identifier chacun des couples (station, année) comme une combinaison à risque pour l'écosystème du Ritord. Pour raffiner cette approche, la comparaison du 90^{ème} percentile de la distribution cumulée de probabilité d'occurrence des données d'exposition avec le 10^{ème} percentile de la probabilité cumulée des données d'effet a été entreprise. Deux hypothèses fortes de l'étape du screening sont revues à cette occasion. Premièrement, il s'agit de prendre en considération chacune des concentrations d'exposition mesurées sur l'année, et non plus seulement la valeur maximale. Cela sous-entend toutefois que des mesures significatives sont disponibles. Deuxièmement, afin de prendre en compte la biodisponibilité des substances, seules leurs fractions dissoutes sont considérées.

Afin de disposer du jeu de données le plus complet possible, l'approche probabiliste a été testée sur l'année 2006, pour laquelle les dix résultats mensuels disponibles pour chacune des stations, relatifs aux concentrations mesurées dissoutes d'uranium et de radium, sont supérieurs aux limites de détection de la méthode de mesure, à une exception près (station SR5, mesure d'uranium en juillet 2006). L'objectif est alors de comparer le 90^{ème} percentile de la distribution temporelle de ces données d'exposition, pour chacune des stations sous influence (SR5 à SR11), au 10^{ème} percentile de la distribution de sensibilité des espèces (SSD, Beaugelin-Seiller et Garnier-Laplace, 2007 ;Tableau 19).

Tableau 19 : 10^{ème} percentile des données d'effet pour l'écosystème aquatique continental

	Chimiotoxicité	Radiotoxicité
	HC ₁₀	HDR ₁₀
	(µg U.l ⁻¹)	(µGy.h ⁻¹)
Meilleure estimation	9.3	245
Intervalle de confiance à 95%	2.1 - 59.5	67 -1033

3.3 CARACTÉRISATION PROBABILISTE DU RISQUE RADIOLOGIQUE CHRONIQUE

Concernant le risque radiologique, du fait de l'expression des effets en termes de dose au sens radiologique, plusieurs types de données peuvent *a priori* servir de support à l'analyse probabiliste : concentrations, débits de dose, indices de risque. En fonction de la donnée choisie, les contraintes de mise en œuvre diffèrent. L'approche la plus simple consiste à calculer, à partir des concentrations mensuelles en ²³⁸U et ²²⁶Ra dissous mesurées en 2006, les débits de dose totaux pour chacun des organismes de référence, en appliquant les hypothèses retenues par ailleurs pour le screening (équilibres de filiation, facteurs de conversion de dose, facteurs de transfert, etc.). En chaque station, le jeu de données est alors constitué pour chaque organisme par la distribution temporelle des débits de dose totaux qu'il a reçu. Il est alors possible de calculer la moyenne géométrique sur l'ensemble de ces organismes, et d'obtenir ainsi un débit de dose total mensuel moyen assorti d'un intervalle de confiance

déterminé par un bootstrap⁵ de 5000 échantillons, qui représente la variabilité inter-spécifique de ce débit de dose. Les 90^{ème} percentiles des distributions temporelles de probabilité cumulée des valeurs moyenne et extrêmes (bornes de l'intervalle de confiance ; annexe F) de ce paramètre sont alors comparés pour chaque station au 10^{ème} percentile de la SSD des données d'effet, assorti de son intervalle de confiance (Figure 19).

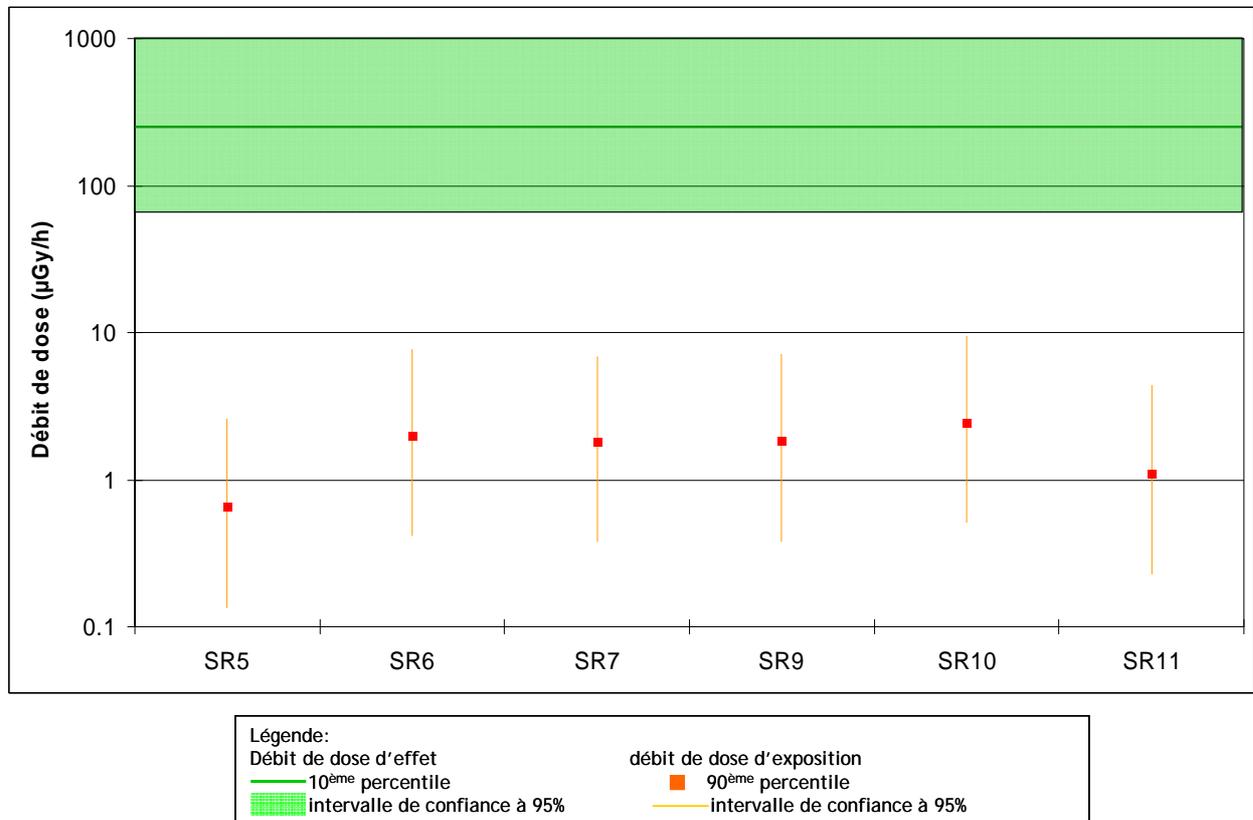


Figure 19 : comparaison des distributions de probabilité cumulée des débits de dose totaux d'exposition (90^{ème} percentile) et des débits de dose d'effet (10^{ème} percentile).

Pour chacune des stations SR5 à SR11, les intervalles de confiance des deux grandeurs étudiées sont totalement dissociés : la borne supérieure de l'intervalle de confiance à 95% du 90^{ème} percentile du débit de dose total d'exposition est inférieure à la borne inférieure de l'intervalle de confiance à 95% du 10^{ème} percentile des débits de dose d'effet. Sur la base des critères choisis, l'interprétation statistique des résultats conduit à conclure que dans 90% des cas d'exposition, ce serait moins de 10% des espèces qui seraient affectées, avec une intensité d'effet de 10%, par leur exposition aux radionucléides pris en considération.

3.4 CARACTÉRISATION PROBABILISTE DU RISQUE CHIMIQUE CHRONIQUE

La même approche que celle développée pour le risque radiologique est appliquée au risque chimique : le 90^{ème} percentile de la distribution temporelle de probabilité cumulée des concentrations d'exposition (U dissous ajouté),

⁵ Méthode non paramétrique d'estimation de toute quantité (médiane, moyenne, écart-type, etc) sur une distribution de probabilité non connue, et de l'incertitude associée, basée sur une succession de ré-échantillonnages.

accompagné de son intervalle de confiance à 95 %, est comparé au 10^{ème} percentile de la distribution de probabilité cumulée des concentrations d'effet, en considérant l'intervalle de confiance à 95 % associé.

Pour chacune des stations SR5 à SR11, l'intervalle de confiance du 90^{ème} percentile de la distribution des concentrations d'exposition (U dissous ajouté) est situé dans celui du 10^{ème} percentile de la distribution des concentrations d'effet (Figure 20). Dans 90% des cas d'exposition, 10% des espèces testées seraient affectées, avec un effet de 10%.

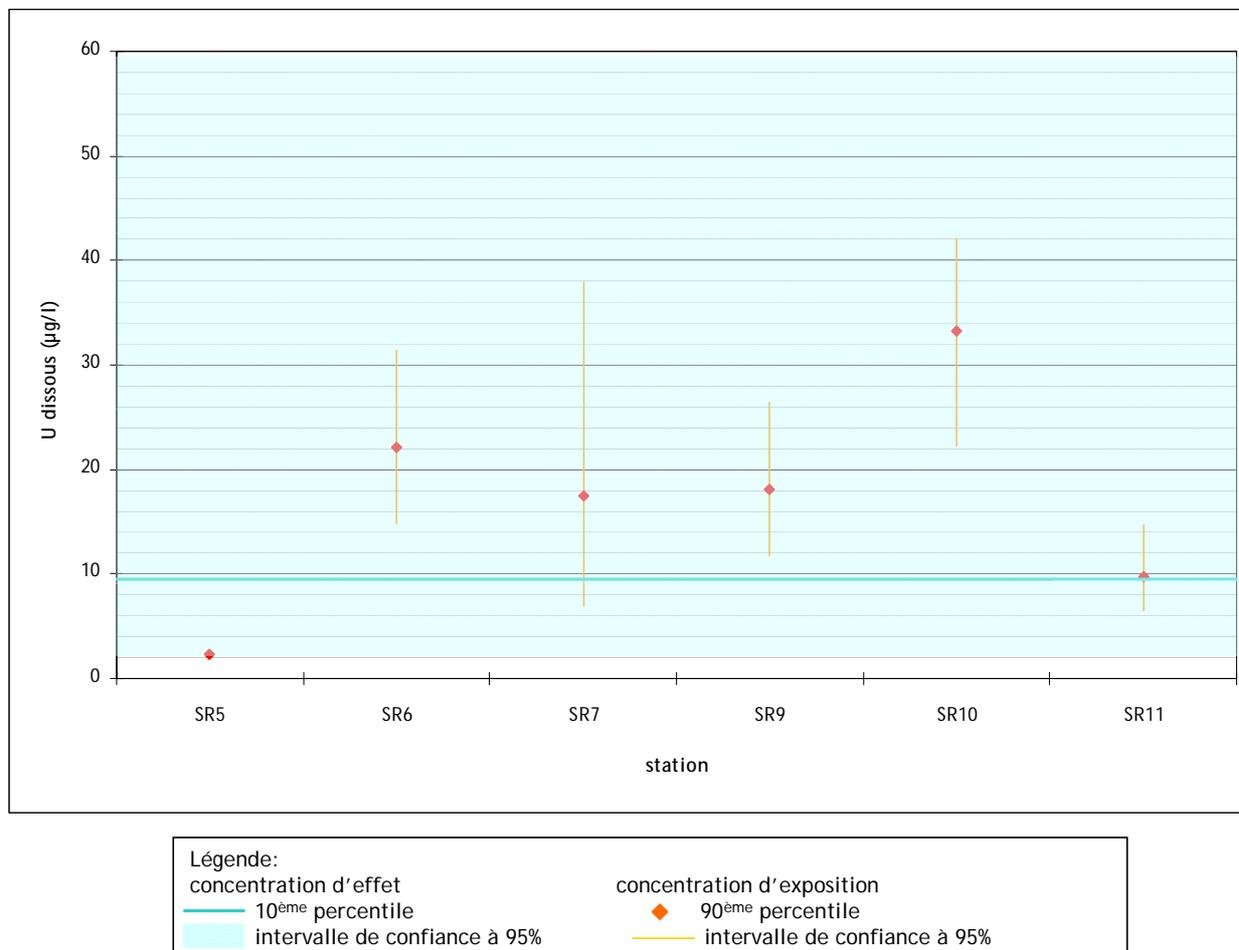


Figure 20 : comparaison des distributions de probabilité cumulée des concentrations d'exposition (U dissous ajouté, 90^{ème} percentile) et des concentrations d'effet (10^{ème} percentile).

4 CONCLUSIONS

Les résultats du screening présentés dans ce document constituent une contribution à l'évaluation du risque environnemental associé aux rejets d'uranium dans le bassin versant du Ritord. Toutefois, un certain nombre de questions reste en suspens, qui sont à l'origine des recommandations formulées par le GT2 et présentées ci-après. Celles-ci ont essentiellement trait à l'aspect chimique du problème, l'approche probabiliste ayant montré sur 2006 que dans 90% des cas d'exposition, ce serait moins de 10% des espèces qui seraient affectées, avec une intensité d'effet de 10%, par leur exposition aux radionucléides pris en considération

Les recommandations sont exposées par ordre de priorité en termes d'actions complémentaires souhaitées par le GT2.

4.1 ACTIONS PRIORITAIRES À RÉALISER

4.1.1 ANALYSE DES EXPOSITIONS

La manière dont le bruit de fond a été caractérisé lors de l'étape de screening n'est pas satisfaisante, la zone de référence retenue ayant pu être temporairement sous influence des rejets miniers. Par ailleurs, les données disponibles sur cette zone sont relativement pauvres, et des extrapolations ont été nécessaires pour compléter le jeu de données.

La connaissance du bruit de fond permettrait de prendre en compte le phénomène potentiel d'adaptation des organismes à cette concentration « naturelle » (ou concentration du milieu non influencé, ou concentration bruit de fond), en appliquant l'approche de la PNEC cumulée. Elle consiste, sous cette hypothèse d'adaptation à la concentration naturelle, à autoriser l'addition de celle-ci et de la PNEC, quelle que soit sa méthode de calcul, pour obtenir une « PNEC cumulée ». Cela sous-entend que la biodisponibilité de la substance est la même pour les deux conditions (PNEC et bruit de fond). Mais cette approche n'est correcte que si :

- la PNEC a été déterminée pour une concentration naturelle du milieu nulle en substance d'intérêt (les données d'écotoxicité utilisées sont telles que le bruit de fond en a été soustrait) ;
- la PEC intègre la concentration naturelle (concentration mesurée dans l'environnement).

L'ensemble de l'approche testée est basé sur la description d'un écosystème aquatique continental théorique. La caractérisation de la faune et de la flore du site induirait un gain de représentativité conséquent pour une charge de travail *a priori* relativement faible, en raison de l'existence d'associations locales de protection des milieux aquatiques et du réseau Natura 2000.

Les calculs relatifs à la radiotoxicité de l'uranium reposent sur des hypothèses d'équilibre au sein des familles radioactives des isotopes 235 et 238 de l'uranium. Si l'existence de quelques mesures des descendants de ces radionucléides ont montré que ces hypothèses n'étaient pas déraisonnables, il apparaît cependant indispensable de les valider plus avant, au regard de leurs poids dans la détermination des conditions d'exposition des organismes.

4.1.2 RECHERCHE DE PREUVES SUPPLÉMENTAIRES

L'évaluation du risque environnemental telle qu'abordée dans ce document constitue une approche théorique du problème. Ses conclusions ne peuvent que se trouver renforcées par la recherche de preuves supplémentaires, *via* une surveillance écologique du milieu dont la mise en œuvre (stratégie, nature et fréquence des échantillonnages, etc.) devrait être définie pour répondre aux besoins de l'évaluation du risque. Cette surveillance devrait également intégrer l'existence possible de processus d'adaptation/acclimatation des populations *in situ*.

4.2 ACTIONS SOUHAITABLES

4.2.1 ANALYSE DES EFFETS

La détermination de la PNEC chimique réalisée dans le cadre du screening s'appuie sur l'ensemble des données disponibles dans la littérature, indifféremment de leur représentativité vis à vis des conditions spécifiques au site. Ces données pourraient être re-travaillées sur la base de la spéciation de l'uranium, et éventuellement de la caractérisation de la faune et de la flore locales, pour aboutir à une PNEC propre au contexte du Ritord.

4.2.2 CARACTÉRISATION PROBABILISTE DU RISQUE

L'approche probabiliste présentée fait appel aux quantiles 90 et 10 respectivement des distributions de probabilité cumulée des données d'exposition et d'effet. Cette sélection arbitraire n'est pas sans influence sur le résultat de la comparaison. Une étude de sensibilité pourrait être réalisée en faisant varier ces percentiles, de manière à estimer les conséquences de ce choix d'expert.

4.3 AUTRES POINTS

L'abaissement attendu des seuils de détection des méthodes de mesure devrait répondre à deux points problématiques mis en évidence lors du screening :

- la détermination de concentrations représentatives à l'échelle de l'année pour l'approche déterministe (objectif : remplacer le maximum annuel par une valeur plus représentative en termes d'exposition chronique) ;
- l'acquisition en nombre suffisant de mesures significatives pour l'approche probabiliste (objectif : disposer d'un nombre suffisant de données pour leur traitement statistique).

Enfin, il a été montré une différence considérable entre les valeurs des facteurs de transfert issus de la littérature et celles déterminées *in situ* pour quelques couples (radionucléide, compartiment). Ce paramètre joue sur la quantité de radionucléide internalisé, et donc au final sur le débit de dose d'exposition prévisible. Il constitue donc une piste de raffinement du screening potentiellement significative. Toutefois, l'approche probabiliste révèle sur l'année 2006 que dans 90% des cas d'exposition, ce serait moins de 10% des espèces qui seraient affectées, avec une intensité d'effet de 10%, par leur exposition aux radionucléides pris en considération

5 RÉFÉRENCES

AIEA (2001). Generic Models for Use in Assessing the Impact of Discharges of Radioactive Substances to the Environment. Safety Reports Series n°19, International Atomic Energy Agency, Vienne, 216 p.

AREVA NC (2004). *Etablissement de Bessines: Bilan décennal environnemental 1994-2003*. COGEMA Bessines, CESAAM: 205 p.

Beaugelin-Seiller K et Garnier-Laplace J (2007). Méthode d'évaluation du risque environnemental associé aux rejets de substances radioactives - Adaptation au cas des sites miniers de Haute Vienne. IRSN, rapport DEI/SECRE/07-35, 76 p.

CEMRAD/LSCE/CREGU (2002). Étude de la spéciation et des modes de transport de l'uranium en milieu naturel sur le secteur du Ritord. Rapport final, 108 p. +annexes.

CRIIRAD (2004). Assistance technique pour la préparation du dossier soumis à enquête publique concernant les retenues de la Crouzille et de Gouillet. Rapport CRIIRADn°04-26 V4, 65 p.

Denison FH (2004) Uranium (VI) speciation: modelling, uncertainty and relevance to bioavailability models. Application to uranium uptake by the gills of a freshwater bivalve. PhD Thesis. Université d'Aix-Marseille 1.

Denison FH et Garnier-Laplace J (2005). The effects of database parameter uncertainty on uranium(VI) equilibrium calculations, *Geochim. Cosmochim. Ac.* 69(9) : 2183-2191.

EC (2003). *Technical guidance document in support of Commission Directive 93/67/EEC on risk assessment for new notified substances and Commission Regulation (EC) No 1488/94 on risk assessment for existing substances, Directive 98/8/EC of the European Parliament and of the Council concerning the placing of biocidal products on the market. Part II.* Luxembourg, Office for Official Publication of the European Communities.

ERICA (2007). *D-ERICA: An integrated approach to the assessment and management of environmental risk from ionising radiation. Final Deliverable*, European Commission, 6th Framework, Contract N°FI6R-CT-2003-508847. Beresford, N., Brown, J., Copplestone, D., Garnier-Laplace, J., Howard, B., Larsson, C.M., Oughton, D., Pröhl, G., Zinger, I. (Eds).

Fiévet B et Della-Védova C (2007). French proposal for dealing with non-detects data in the scope of OSPAR periodic evaluations of radionuclide concentrations changes in the marine environment. IRSN, rapport DEI/SECRE/07-050, 46 p.

Fortin C, Denison FH, Garnier-Laplace J (2007) Metal-phytoplankton interactions: modeling the effect of competing ions (H⁺, Ca²⁺, and Mg²⁺) on uranium uptake. *Environ. Toxicol. Chem./ SETAC*, 26 (2):242-248.

Garnier-Laplace J et Beaugelin-Seiller K. (2006). *Examen critique des informations relatives à l'impact écologique des sites miniers sur le bassin versant du Ritord et le lac de Saint-Pardoux: étape préliminaire.* IRSN, rapport DEI/SECRE/06-26, 13 p.

Helsel D (2005). *Nondetects And Data Analysis - Statistics for Censored Environmental Data.* Collection "Statistics in Practice", Eds John Wiley & Sons, Hoboken, New Jersey. ISBN 0-471-67173-8.

IRSN (2001). *L'uranium, de l'environnement à l'Homme.* Coordinateur : H. Métivier, Collection IPSN, éditions EDP Sciences, Les Ulis, 340 p.

IRSN (2007a). *Expertise globale du bilan décennal environnemental d'AREVA NC Première partie: stockage de Bellemeuse et impact environnemental à l'échelle du bassin versant du Ritord.* IRSN, rapport DEI/2007-01, 179 p.

IRSN (2007b). *Campagne d'investigations complémentaires sur l'ancien site minier de St Pierre (Cantal). Volet 2 de l'expertise relative à l'état radiologique du site.* IRSN, rapport DEI/SARG/2007-025, 102 p.

Markich SJ, Brown PL, Jeffree RA, Lim RP (2000). Valve movement responses of *Vesunio angasi* (Bivalvia: Hyriidae) to manganese and uranium: An exception to the free ion activity model. *Aquat. Toxicol.* 51(2) : 155-175.

R Development Core Team (2008). *R : A Language and Environment for Statistical Computing.* R Foundation for Statistical Computing, Vienna, Austria. ISBN 3-900051-07-0 (<http://www.R-project.org>).

Sergeant, A. (2002) *Ecological risk assessment: history and fundamentals.* In *Human and Ecological Risk Assessment: theory and practice*(Ed, Paustenbach, D.) John Wiley & Sons, Inc., New-York, pp. 369-442

6 LISTE DES TABLEAUX

Tableau 1 : composition des termes source radioactif et chimique pris en considération	10
Tableau 2 : composition isotopique en masse de l'uranium naturel (IRSN, 2001)	10
Tableau 3 : hypothèses de détermination des concentrations des radionucléides dans chacun des milieux considérés	12
Tableau 4 : évolution temporelle des seuils de détection pour les éléments mesurés par AREVA NC.....	17
Tableau 5 : valeurs de référence sans effet pour l'écosystème aquatique continental	18

Tableau 6 : indice de risque radiologique total pour le compartiment « eau » sur le bassin versant du Ritord, lié à la présence d'uranium et de ses descendants	20
Tableau 7 : indice de risque radiologique total pour le compartiment « sédiment » sur le bassin versant du Ritord, lié à la présence d'uranium et de ses descendants	20
Tableau 8 : indice de risque radiologique ajouté pour le compartiment « eau » sur le bassin versant du Ritord, lié aux rejets d'uranium et de ses descendants par les anciennes installations minières	21
Tableau 9 : indice de risque radiologique ajouté pour le compartiment « sédiment » sur le bassin versant du Ritord, lié aux rejets d'uranium et de ses descendants par les anciennes installations minières.....	21
Tableau 10 : méthodes d'estimation des paramètres statistiques classiques d'un jeu de données incluant des valeurs non-détectées	27
Tableau 11 : proportion de valeurs non détectées et méthodes d'estimation des paramètres statistiques classiques de la distribution des concentrations en ²²⁶ Ra (dissous et particulaire) pour chaque couple (station, année) sur la période 1993-2006 (analyse des résultats de mesure, code couleur issu du Tableau 10).....	27
Tableau 12 : proportion de valeurs non détectées et méthodes d'estimation des paramètres statistiques classiques de la distribution des concentrations en ²³⁸ U (dissous et particulaire) pour chaque couple (station, année) sur la période 1993-2006 (analyse des résultats de mesure, code couleur issu du Tableau 10).....	28
Tableau 13 : concentrations moyennes annuelles en ²²⁶ Ra (dissous, particulaire et total) aux stations SR4 et SR5 en fonction des années (code couleur issu du Tableau 10).....	29
Tableau 14 : valeurs spécifiques au Ritord et issues de la littérature du facteur de transfert sédiment- plante pour quelques radionucléides (kg/kg frais).....	32
Tableau 15 : valeurs <i>in situ</i> pour la retenue de Gouillet (CRIIRAD, 2004) et issues de la littérature du facteur de transfert eau-gardons pour quelques radionucléides (l/kg frais)	33
Tableau 16 : indice de risque chimique total sur le bassin versant du Ritord, lié à la présence d'uranium dans les eaux du Ritord	33
Tableau 17 : indice de risque chimique ajouté sur le bassin versant du Ritord, lié aux rejets d'uranium par les anciennes installations minières	34
Tableau 18 : conditions environnementales sur le Ritord en fonction de la période d'étude	37
Tableau 19 : 10 ^{ème} percentile des données d'effet pour l'écosystème aquatique continental	40
Tableau 20 : concentrations annuelles maximales totales calculées dans l'eau du Ritord (Bq.l ⁻¹) pour les éléments en équilibre avec U238 (d'après les mesures en mg ²³⁸ U/l fournies par AREVA NC).....	49
Tableau 21 : concentrations annuelles maximales totales mesurées dans l'eau du Ritord (Bq.l ⁻¹) pour les éléments en équilibre avec Ra226 (données AREVA NC)	49
Tableau 22 : concentrations annuelles maximales totales calculées dans l'eau du Ritord (Bq.l ⁻¹) pour les éléments en équilibre avec U235	49
Tableau 23 : concentrations annuelles maximales en U238 mesurées ou calculées dans les sédiments du Ritord (Bq.kg ⁻¹ frais)	50
Tableau 24 : concentrations annuelles maximales en Ra226 mesurées ou calculées dans les sédiments du Ritord (Bq.kg ⁻¹ frais)	50
Tableau 25 : concentrations annuelles maximales en Pb210 mesurées ou calculées dans les sédiments du Ritord (Bq.kg ⁻¹ frais)	50

Tableau 26 : synthèse des facteurs de transfert en milieu aquatique continental	51
Tableau 27 : valeurs des concentrations sans effet (PNEC) vis-à-vis du risque d'écotoxicité radiologique chronique, obtenues par rétro-calcul à partir de la valeur benchmark de 10 µGy/h, sans pondération des DCC. L'organisme de référence à l'origine de la valeur minimale obtenue est indiqué entre parenthèses.	53
Table 28 : the Oahu dataset	56
Table 29 : computation of Kaplan-Meier survival probabilities for the Oahu dataset (n=24).	56
Table 30 : summary statistics using Kaplan-Meier for the multiply censored Oahu data	58
Table 31 : Oahu dataset	61
Table 32 : computation of plotting position for both detects and nondetects data.....	62
Table 33 : computation of the normal quantiles of the detect plotting positions	63
Table 34 : estimation of the nondetect concentrations.....	63
Table 35 : computation of summary statistics.....	64
Tableau 36 : composition ionique moyenne des eaux à la station SR11 (mg/l)	66
Tableau 37 : concentrations en uranium à la station SR11 et répartition par taille. Les points non mesurés (*) sont estimés pour une répartition 50% colloïdale et 10% dissoute.....	67
Tableau 38 : spéciation chimique de l'uranium pour une composition ionique moyenne du point SR11 (pH=6.6, [U]=23 µg/L - espèces >0.1%, soit >99.9% des espèces présentes)	68

7 LISTE DES FIGURES

Figure 1 : zone d'étude (bassin versant du Ritord, d'après AREVA NC, 2004)	9
Figure 2 : matrice d'exposition interne et externe des organismes de référence de l'écosystème aquatique continental	11
Figure 3 : concentrations d' ²³⁸ U, ²³⁵ U, ²³⁴ U et de leurs descendants dans l'eau du Ritord, à l'aval de l'étang de Gouillet, mesurées (d'après CRIIRAD, 2004) et théoriques, sur la base des hypothèses d'équilibre de filiation du screening.	13
Figure 4 : concentrations d' ²³⁸ U, ²³⁵ U, ²³⁴ U et de leurs descendants dans les terres de berge du Ritord, mesurées (d'après CRIIRAD, 2004 ; A : RIT AVG 1 T, B : RIT AVG 2 T) et théoriques, sur la base des hypothèses d'équilibre de filiation du screening.	14
Figure 5 : concentrations d' ²³⁸ U, ²³⁵ U, ²³⁴ U et de leurs descendants dans les fontinales du Ritord, mesurées (d'après CRIIRAD, 2004 ; A : RIT AVG 1 F, B : RIT AVG 4 F, C : RIT AVG 2 F, D : RIT AVG 3 F) et théoriques, sur la base des hypothèses d'équilibre de filiation du screening.	15
Figure 6 : concentrations en ²³⁸ U, ²³⁵ U, ²³⁴ U et de leurs descendants dans des gardons, mesurées (A : retenue de Gouillet, d'après CRIIRAD, 2004 ; B : réserve de St Pierre, d'après IRSN, 2007b) et théoriques, sur la base des hypothèses d'équilibre de filiation du screening.	16
Figure 7 : contribution de l'indice de risque radiologique ajouté vis à vis du risque radiologique total associé au milieu eau pour la station SR6	22
Figure 8 : contribution de l'indice de risque radiologique ajouté vis à vis du risque radiologique total associé au milieu sédiment pour la station SR6.....	23

Figure 9 : indices de risque totaux par radionucléide et organisme à la station SR6 en 1994, pour le milieu « eau »	24
Figure 10 : contribution relative du débit de dose interne au débit de dose interne+externe pour deux organismes, par radionucléide, à la station SR6 en 1994, pour le milieu « eau »	25
Figure 11 : contribution relative du débit de dose interne au débit de dose total pour tous les organismes à la station SR6 en 1994, pour le milieu « eau »	26
Figure 12 : évolution comparée des concentrations maximales annuelles en ²²⁶ Ra total utilisées pour le screening et des concentrations moyennes annuelles en ²²⁶ Ra dissous, à la station SR5.	29
Figure 13 : débits de dose relatifs à la fraction dissoute et à la concentration totale du ²²⁶ Ra et de l' ²³⁸ U dans l'eau pour quatre organismes à la station SR6 en 1994	30
Figure 14 : distributions cumulés de probabilité et meilleure estimation du facteur de transfert sédiment- plante pour le ²²⁶ Ra, l' ²³⁸ U et le ²¹⁰ Pb obtenu <i>in situ</i> (données AREVA NC, Ritord)	32
Figure 15 : contribution de l'indice de risque chimique chronique ajouté vis à vis du risque chimique chronique total pour la station SR6	34
Figure 16 : indice de risque chimique ajouté relatif à l'uranium soluble, calculé mensuellement pour chacune des stations exposées du Ritord en 2006.	35
Figure 17 : projection des couples (concentration annuelle maximale en uranium dissous, pH) obtenus pour chaque station sur le diagramme pH-concentration de spéciation de l'uranium, dans les conditions physico-chimiques moyennes du Ritord.	38
Figure 18 : méthodes de caractérisation du risque par comparaison des distributions des données d'exposition et d'effet (modifié d'après Sergeant, 2002)	39
Figure 19 : comparaison des distributions de probabilité cumulée des débits de dose totaux d'exposition (90 ^{ème} percentile) et des débits de dose d'effet (10 ^{ème} percentile).....	41
Figure 20 : comparaison des distributions de probabilité cumulée des concentrations d'exposition (U dissous ajouté, 90 ^{ème} percentile) et des concentrations d'effet (10 ^{ème} percentile).	42
Figure 21 : survival probability function S of the multiply-censored flipped Oahu data.....	57
Figure 22 : empirical cumulative distribution function of the multiply-censored Oahu original data.	57
Figure 23 : spéciation chimique de l'uranium (VI) en solution au point SR11.	68
Figure 24 : diagramme de spéciation pH-concentration de l'uranium pour la composition ionique moyenne de la station SR11	69
Figure 25 : distribution temporelle de probabilité cumulée des concentrations d'exposition à l'uranium, à la station SR6 entre janvier à octobre 2006.....	70
Figure 26 : distribution temporelle de probabilité cumulée de la borne inférieure de l'intervalle de confiance de la moyenne géométrique sur les espèces du débit de dose d'exposition, à la station SR6 entre janvier à octobre 2006	71
Figure 27 : distribution temporelle de probabilité cumulée de la moyenne géométrique sur les espèces du débit de dose d'exposition, à la station SR6 entre janvier à octobre 2006	72
Figure 28 : distribution temporelle de probabilité cumulée de la borne supérieure de l'intervalle de confiance de la moyenne géométrique sur les espèces du débit de dose d'exposition, à la station SR6 entre janvier à octobre 2006	72

8 ANNEXE A : CONCENTRATIONS D'EXPOSITION

Tableau 20 : concentrations annuelles maximales totales calculées dans l'eau du Ritord (Bq.l⁻¹) pour les éléments en équilibre avec U238 (d'après les mesures en mg ²³⁸U/l fournies par AREVA NC)

Station	1993	1994	1995	1996	1997	1998	1999	2000	2001	2002	2003	2004	2005	2006
BdF	2.48	2.48	2.48	2.48	2.48	0.025*	2.48	1.24	1.24	1.24	1.116	0.248	0.248	0.0248
SR5	2.48	2.48	2.48	2.48	2.48	2.48	2.48	1.49	1.24	1.24	1.24	0.25	0.25	0.10
SR6	n.a.	16.62	7.81	2.48	2.48	2.48	2.29	2.06	1.60	1.15	1.15	1.15	0.76	0.53
SR7	5.09	12.52	5.58	2.48	2.48	2.48	2.48	1.74	1.24	1.24	1.24	0.99	0.52	1.04
SR8	5.46	9.55	4.59	2.48	2.48	2.48	2.48	n.a.	n.a.	n.a.	n.a.	n.a.	n.a.	n.a.
SR9	5.21	9.80	4.59	2.48	2.48	2.48	2.48	1.49	1.49	1.24	1.24	0.74	0.55	0.67
SR10	2.48	2.48	3.10	3.22	5.21	4.59	3.22	3.22	2.48	2.23	1.74	1.49	1.17	0.92
SR11	3.72	5.58	3.60	2.85	2.48	2.48	2.48	1.36	1.24	1.24	1.24	0.37	0.29	0.24

n.a. : non analysé / * en l'absence de mesures, plus faible de toutes les concentration « bruit de fond » reportées

Tableau 21 : concentrations annuelles maximales totales mesurées dans l'eau du Ritord (Bq.l⁻¹) pour les éléments en équilibre avec Ra226 (données AREVA NC)

Station	1993	1994	1995	1996	1997	1998	1999	2000	2001	2002	2003	2004	2005	2006
BdF	0.42	0.11	0.04	0.04	0.04	0.04	0.07	0.06	0.08	0.04	0.04	0.04	0.04	0.08
SR5	0.27	0.16	0.08	0.14	0.14	0.19	0.19	0.16	0.11	0.15	0.06	0.08	0.07	0.10
SR6	n.a.	0.30	0.32	0.28	0.22	0.48	0.34	0.30	0.28	0.30	0.33	0.32	0.32	0.30
SR7	0.43	0.19	0.30	0.22	0.25	0.22	0.26	0.19	0.24	0.21	0.29	0.22	0.17	0.21
SR8	0.35	0.24	0.18	0.19	0.21	0.15	0.31	n.a.						
SR9	0.31	0.24	0.26	0.16	0.16	0.20	0.72	0.19	0.22	0.21	0.27	0.21	0.20	0.23
SR10	0.24	0.17	0.20	0.22	0.49	0.45	0.38	0.32	0.34	0.29	0.30	0.25	0.24	0.24
SR11	0.30	0.48	0.21	0.14	0.19	0.22	0.21	0.20	0.27	0.16	0.17	0.16	0.16	0.15

n.a. : non analysé

Tableau 22 : concentrations annuelles maximales totales calculées dans l'eau du Ritord (Bq.l⁻¹) pour les éléments en équilibre avec U235

Station	1993	1994	1995	1996	1997	1998	1999	2000	2001	2002	2003	2004	2005	2006
BdF	0.12	0.12	0.12	0.12	0.12	1.2E-03	0.12	0.06	0.06	0.06	0.05	0.01	0.01	0.001
SR5	0.12	0.12	0.12	0.12	0.12	0.12	0.12	0.07	0.06	0.06	0.06	0.01	0.01	0.005
SR6	n.c.	0.78	0.37	0.12	0.12	0.12	0.11	0.10	0.08	0.05	0.05	0.05	0.04	0.02
SR7	0.24	0.59	0.26	0.12	0.12	0.12	0.12	0.08	0.06	0.06	0.06	0.05	0.02	0.05
SR8	0.26	0.45	0.21	0.12	0.12	0.12	0.12	n.c.						
SR9	0.24	0.46	0.21	0.12	0.12	0.12	0.12	0.07	0.07	0.06	0.06	0.03	0.03	0.03
SR10	0.12	0.12	0.15	0.15	0.24	0.21	0.15	0.15	0.12	0.10	0.08	0.07	0.05	0.04
SR11	0.17	0.26	0.17	0.13	0.12	0.12	0.12	0.06	0.06	0.06	0.06	0.02	0.01	0.01

n.c. : non calculable

Tableau 23 : concentrations annuelles maximales en U238 mesurées ou calculées dans les sédiments du Ritord (Bq.kg⁻¹ frais)

Station	1993	1994	1995	1996	1997	1998	1999	2000	2001	2002	2003	2004	2005	2006
BdF	286	286	286	286	286	2.86	286	143	143	143	129	29	29	3
SR5	286	286	286	286	286	286	286	172	143	143	143	29	29	12
SR6	n.c.	499	901	286	123	123	264	238	185	123	122	158	87	62
SR7	588	204	644	150	176	100	147	209	105	95	143	114	60	120
SR8	630	1102	529	286	286	286	286	n.c.						
SR9	601	1088	565	170	181	138	233	280	128	119	100	212	63	77
SR10	286	286	788	968	390	314	271	328	190	167	126	192	134	106
SR11	429	556	81	336	556	162	123	123	81	138	53	165	73	85

Application du Kd / n.c. : non calculable

Tableau 24 : concentrations annuelles maximales en Ra226 mesurées ou calculées dans les sédiments du Ritord (Bq.kg⁻¹ frais)

Station	1993	1994	1995	1996	1997	1998	1999	2000	2001	2002	2003	2004	2005	2006
BdF	143	143	143	143	143	1.4	143	72	72	72	64	14	14	1.4
SR5	143	143	143	143	143	143	143	86	72	72	72	14	14	6
SR6	n.c.	196	451	143	115	100	132	119	93	77	92	100	44	31
SR7	294	54	322	58	112	58	73	115	50	58	72	57	30	60
SR8	315	551	265	143	143	143	143	n.c.						
SR9	300	285	111	37	123	96	135	138	81	85	89	119	31	39
SR10	143	143	273	135	173	162	58	104	58	135	85	65	67	53
SR11	215	223	96	63	119	81	54	73	46	43	45	81	63	65

Application du 50^{ème} percentile du ratio ²²⁶Ra/²³⁸U mesuré dans les sédiments / n.c. : non calculable

Tableau 25 : concentrations annuelles maximales en Pb210 mesurées ou calculées dans les sédiments du Ritord (Bq.kg⁻¹ frais)

Station	1993	1994	1995	1996	1997	1998	1999	2000	2001	2002	2003	2004	2005	2006
BdF	114	114	114	114	114	1.1	114	57	57	57	52	11	11	1
SR5	114	114	114	114	114	114	114	69	57	57	57	11	11	5
SR6	n.c.	158	361	114	65	65	106	95	74	42	60	65	35	25
SR7	235	38	258	50	50	27	46	58	38	42	57	46	24	48
SR8	252	441	212	114	114	114	114	n.c.						
SR9	240	285	111	37	123	96	135	138	81	85	89	119	25	31
SR10	114	114	127	77	50	46	42	69	23	62	50	50	54	42
SR11	172	142	88	77	162	50	58	58	38	57	37	42	44	46

Application du 50^{ème} percentile du ratio ²¹⁰Pb/²³⁸U mesuré dans les sédiments / n.c. : non calculable

9 ANNEXE B : COEFFICIENTS DE TRANSFERT

Tableau 26 : synthèse des facteurs de transfert en milieu aquatique continental

Code couleur pour extrapolation (origine de la donnée) : **jaune** : crustacés d'eau douce - **violet** : poissons d'eau douce - **vert** : végétaux supérieurs - **bleu** : écosystème marin - **orangé** : crustacés marins - **rose** : phytoplancton - **gris** : fourrage - **vert pâle** : écosystème aquatique

	Kd ^a l.kg ⁻¹	TF (sed-plante) ^b kg.kg ⁻¹					BCF (eau-organisme) l.kg ⁻¹			Référence
	Sédiment	Pin	Algue	Myriophylle	Chironome, éphémère	Daphnie	Anodonte	Grenouille, goéland, carpe, poisson chat	Gardon, perche	
U	5.0 10 ¹ (E)	6.79 10 ⁻³ (LN, 1.41 10 ⁻²)	1.2 10 ² (LN, 3.4 10 ¹)	2.9 10 ³ (LN, 3.2 10 ³)	5.0 10 ² (E)	4.8 10 ¹ (LN, 2.6 10 ¹)	1.8 10 ² (E)	3.0 10 ¹ (E)	3.0 10 ¹ (LN, 6.0 10 ¹)	ERICA, 2006
Th	1.8 10 ⁷ (LN ; 1.8 10 ⁹)	1.08 10 ⁻³ (LN, 1.12 10 ⁻³)	4.0 10 ³ (E)	1.26 10 ³ (LN, 7.4 10 ²)	1.0 10 ² (E)	2.0 10 ³ (E)	1.0 10 ² (E)	1.1 10 ² (E)	1.1 10 ² (LN, 1.1 10 ²)	ERICA, 2006
Pa	1.0 10 ⁶ (E)	1.0 10 ⁻¹ (E)								AIEA, 2001
			3.0 10 ² (E)	3.0 10 ² (E)	3.0 10 ¹ (E)	3.0 10 ¹ (E)	3.0 10 ¹ (E)	1.0 10 ¹ (E)	1.0 10 ¹ (E)	Staven <i>et al</i> , 2003
Ac	2.0 10 ⁶ (E)	1.0 10 ⁻¹ (E)								AIEA, 2001
			1.0 10 ⁴ (E)	1.0 10 ⁴ (E)	1.0 10 ³ (E)	1.0 10 ³ (E)	1.0 10 ³ (E)	2.5 10 ¹ (E)	2.5 10 ¹ (E)	Staven <i>et al</i> , 2003
Ra	1.5 10 ⁴ (LN, 2.58 10 ⁴)	6.75 10 ⁻⁴ (LN, 7.52 10 ⁻⁴)	1.1 10 ³ (LN, 8.0 10 ²)	1.8 10 ³ (LN, 1.8 10 ³)	1.5 10 ³ (E)	1.1 10 ³ (E)	1.5 10 ³ (LN, 1.6 10 ³)	8.0 10 ¹ (E)	8.0 10 ¹ (LN, 1.2 10 ²)	ERICA, 2006
Rn	8.0 10 ⁻¹ (E)	8.0 10 ⁻¹ (E)	8.0 10 ⁻¹ (E)	8.0 10 ⁻¹ (E)	8.0 10 ⁻¹ (E)	8.0 10 ⁻¹ (E)	8.0 10 ⁻¹ (E)	8.0 10 ⁻¹ (E)	8.0 10 ⁻¹ (E)	Brown <i>et al</i> , 2004
Po	2.0 10 ⁷ (E)	3.84 10 ⁻² (LN, 2.24 10 ⁻²)	2.7 10 ⁴ (LN, 5.7 10 ³)	4.0 10 ³ (LN, 5.3 10 ³)	9.9 10 ³ (E)	2.7 10 ⁴ (E)	3.8 10 ⁴ (LN, 4.9 10 ⁴)	2.4 10 ² (E)	2.4 10 ² (LN, 2.0 10 ²)	ERICA, 2006

	Kd ^a l.kg ⁻¹	TF (sed-plante) ^b kg.kg ⁻¹					BCF (eau-organisme) l.kg ⁻¹			Référence
	Sédiment	Pin	Algue	Myriophylle	Chironome, éphémère	Daphnie	Anodonte	Grenouille, goéland, carpe, poisson chat	Gardon, perche	
Pb	1.0 10 ⁵ (E)	7.59 10 ⁻² (LN, 1.1 10 ⁻¹)	4.9 10 ⁵ (E)	1.0 10 ³ (E)	1.0 10 ⁴ (E)	2.6 10 ⁴ (E)	1.7 10 ³ (E)	3.0 10 ² (E)	3.0 10 ² (E)	ERICA, 2006
Bi	1.2 10 ³ (E)	5.0 10 ⁻¹ (E)	1.5 10 ³ (E)	1.5 10 ³ (E)	1.0 10 ⁵ (E)	1.0 10 ⁵ (E)	1.0 10 ⁵ (E)	1.5 10 ¹ (E)	1.5 10 ¹ (E)	Wang <i>et al</i> , 2001 - Wang <i>et al</i> , 2003
Tl	2.0 10 ⁻⁴ (E)	2.0 10 ⁰ (E)	1.0 10 ⁰ (E)	1.0 10 ⁰ (E)	1.0 10 ³ (E)	1.0 10 ³ (E)	5.0 10 ³ (E)	1.0 10 ⁴ (E)	1.0 10 ⁴ (E)	AIEA, 2001

^alitre par kilogramme de substrat sec /^bkg de végétal frais par kg de substrat sec

Les paramètres sont fournis sous forme : meilleure estimation (moyenne), puis dessous entre parenthèses loi de distribution et écart type si connus. En l'absence de connaissance sur la loi de distribution d'un paramètre, une loi exponentielle (E) lui est attribuée par défaut. Le symbole LN désigne la loi lognormale.

9.1 RÉFÉRENCES

AIEA (2001). Generic Models for Use in Assessing the Impact of Discharges of Radioactive Substances to the Environment. Safety Reports Series n°19, International Atomic Energy Agency, Vienne, 216 p.

Brown J, Jones SV, Saxen R, Thorring H, Vives I Battle J (2004). Radiation doses to aquatic organisms from natural radionuclides. *J. Radiol. Prot.*, 24 : A63-A77.

ERICA (2006) ERICA tool initial release- default databases (outil complet disponible sur <http://www.project.facilia.se/erica/download.html>, dernière version en date uniquement)

Staven LH, Rhoads K, Napier BA, Strenge DL (2003). A Compendium of Transfer Factors for Agricultural and Animal Products. Pacific Northwest Laboratory for US Department of Energy, PNNL-13421, Richland, Washington, USA.

Wang XK, Dong WM, Zang HX, Tao ZY (2001) A multitracer study on the adsorption of 36 elements on a silica: Effects of pH and fulvic acid. *J Radioanal Nucl Ch*, 250 (3) : 491-496.

Wang XK, Dong WM, Tao ZY (2003) A multitracer study on the adsorption of 32 elements on a natural hematite (α-Fe2O3): effects of pH and fulvic acid. *Colloid Surface A* 223 : 135-143.

10 ANNEXE C : PNEC POUR LES SUBSTANCES RADIOACTIVES

Tableau 27 : valeurs des concentrations sans effet (PNEC) vis-à-vis du risque d'écotoxicité radiologique chronique, obtenues par rétro-calcul à partir de la valeur benchmark de 10 µGy/h, sans pondération des DCC. L'organisme de référence à l'origine de la valeur minimale obtenue est indiqué entre parenthèses.

	Sédiment (Bq/kg)	Eau (Bq/l)
U-238	3.28 10 ⁴ (colvert)	4.95 10 ⁻¹ (myriophylle)
Th-234	2.40 10 ⁶ (rat musqué)	7.12 10 ¹ (daphnie)
Pa-234m	2.80 10 ⁴ (chironome)	2.11 10 ¹ (myriophylle)
U-234	3.27 10 ⁴ (colvert)	4.27 10 ⁻¹ (myriophylle)
Th-230	1.64 10 ⁵ (chironome)	6.72 10 ⁻¹ (daphnie)
Ra-226	4.62 10 ⁴ (colvert)	7.28 10 ⁻¹ (myriophylle)
Rn-222	1.19 10 ³ (pin)	1.33 10 ³ (éphémère/colvert)
Pb-210	3.59 10 ⁴ (pin)	3.00 10 ⁻² (anodonte)
Bi-210	1.91 10 ⁴ (pin)	1.14 10 ⁻¹ (anodonte)
Po-210	1.97 10 ⁴ (colvert)	1.79 10 ⁰ (daphnie)
U-235	3.11 10 ⁴ (colvert)	4.63 10 ⁻¹ (myriophylle)
Th-231	3.38 10 ⁵ (chironome)	2.83 10 ¹ (daphnie)
Pa-231	1.03 10 ⁴ (pin)	3.84 10 ⁰ (myriophylle)
Ac-227	6.44 10 ⁵ (pin)	7.08 10 ⁰ (myriophylle)
Th-227	8.05 10 ⁴ (chironome)	5.30 10 ⁻¹ (daphnie)
Ra-223	4.26 10 ⁴ (colvert)	6.11 10 ⁻¹ (myriophylle)
Pb-211	1.58 10 ³ (pin)	9.02 10 ⁻³ (éphémère)

11 ANNEXE D : MÉTHODES STATISTIQUES POUR JEUX DE DONNÉES INCLUANT DES VALEURS NON DÉTECTÉES

11.1 MÉTHODE DE KAPLAN-MEIER

11.1.1 PRINCIPLE

Kaplan-Meier (K-M) is the standard nonparametric method for estimating summary statistics of multiply censored data. It has seen widespread usage in the fields of medical sciences and systems-engineering where it is employed within a more general framework termed “survival analysis” or “reliability analysis”; in these contexts data are right-censored data (expressed as “greater than” values). Nevertheless, Kaplan-Meier method could also be employed for estimating statistics when data are left-censored (expressed as “less than” values) as there are in the environmental sciences. Kaplan-Meier method consists in computing a survival probability function S for “greater than” values, usually defined by Equation 1.

$$S(x) = \text{Prob}(X > x) \quad \text{Equation 1}$$

In order to use Kaplan-Meier with “less than” values, there are firstly to be flipped into “greater than” form, using Equation 2 and Equation 3.

$$\text{Flipped Data} = \text{Constant} - \text{Original Data} \quad \text{Equation 2}$$

or

$$\text{Flipp}_i = M - c_i \quad \text{Equation 3}$$

Using flipped data and Equation 3 the Equation 4 is obtained.

$$S(x) = \text{Prob}(\text{Flipp} > x) = \text{Prob}(M - c > x) \quad \text{Equation 4}$$

Equation 5 shows that survival probabilities of the flipped data are also cumulative distribution function of the original x data, usually defined by Equation 6.

$$\text{Prob}(M - c > x) = \text{Prob}(c < M - x) \quad \text{Equation 5}$$

$$F(x) = \text{Prob}(X \leq x) \quad \text{Equation 6}$$

Thus, with “less than” values, Kaplan-Meier method produces empirical cumulative distributions (ECDFs) which are discrete-interval step functions.

Regarding the flipped data, K-M method computes the survival probabilities S for each detected value. “Using the flipped values, the detected observations (“failures”, or “deaths” in survival analysis terminology) are ranked from small to large, accounting for the number of censored data in between each detected observations. [...] K-M places each nondetect at its detection limit prior to ranking. The “number at risk” b equals the number of observations, both detected and censored, at and below each detected concentration. The number of detected observations at

that concentration is d , where d is greater than 1 for tied values. The incremental survival probability is the probability of “surviving” to the next lowest detected concentration, given the number of data at and below that concentration or $(b-d)/b$. The survival function probability is the product of the $j = 1$ to k incremental probabilities to that point, going from high to low concentration for the k detected observation” (Helsel, 2005). This is illustrated by Equation 7.

$$S = \prod_{j=1}^k \frac{b_j - d_j}{b_j} \quad \text{Equation 7}$$

“For the case of ties, K-M assigns the smallest rank possible to each observation, rather than the average rank as is done for most nonparametric test. K-M will assign a probability of 0 to the smallest observation (largest flipped value), if there are no nondetects below this value in the data set. This represents a plotting position of i/n for the empirical distribution function of flipped values, so that the probability of exceeding the last value is 0. If the smallest concentration is a censored value, as is usually the case, the smallest detected observation will have a nonzero exceedance probability, while probabilities are indeterminate for all nondetects below the lowest detected observation” (Helsel, 2005).

11.1.2 DETAILED EXAMPLE

The dataset used is the Oahu one (Table 28) from the NADA add-on package (Lee and Helsel, 2005; 2007). It is related to arsenic (As) concentrations. The associated survival probabilities are given in Table 29. Considering for example the As concentration of $0.9 \mu\text{g/l}$, its survival function probability (0.688) is obtained by the multiplication of the survival probability associated with the concentration 1.5 (0.786) by the ratio $(b-d/d)$, that equals $7/8$.

Estimation of the summary statistics

“For percentiles, the estimate is the minimum X value on the survival function graph that is intersected by the line drawn at probability value from the Y -axis. It is the smallest flipped observation having a survival probability equal to or less than the stated probability of the percentile. The 25th (Q1) has a survival probability of exceedance of 0.75. A horizontal line drawn from 0.75 on the Y -axis intersects the vertical line at an X -value of 4.1 (cf. Figure 21 ; the same result is obtained considering the empirical cumulative distribution function, cf. Figure 22). Looking at Table 29, the flipped observation at 4.1 is the smallest flipped value for which the survival probability is 0.75 or less. Subtracting this from the flipping constant of 5, the 75th percentile of the original data is 0.9. The process is similar for others percentiles” (Helsel, 2005).

Table 28 : the Oahu dataset

<i>As</i>	<i>AsCen*</i>
1.0	TRUE
1.0	TRUE
1.7	FALSE
1.0	TRUE
1.0	TRUE
2.0	TRUE
3.2	FALSE
2.0	TRUE
2.0	TRUE
2.8	FALSE
2.0	TRUE
0.7	FALSE
0.9	FALSE
0.5	FALSE
0.5	FALSE
0.9	TRUE
0.5	FALSE
0.7	FALSE
0.6	FALSE
1.5	FALSE

*AsCen is the censoring variable, when it equals TRUE that means that the data is a nondetect one.

Table 29 : computation of Kaplan-Meier survival probabilities for the Oahu dataset (n=24).

<i>[As]</i> <i>(original data, µg/l)</i>	<i>AsCen</i>	<i>FlipAs</i> <i>(Flipped data = 5 - original data)</i>	<i>rank r</i>	<i>Number at risk</i> <i>b=(n-r+1)</i>	<i>Event (d)</i>	<i>incremental survival probabilities</i> <i>p=(b-d)/b</i>	<i>Survival probabilities (flipped data) =</i> <i>Cumulative probabilities (original data)</i>
3.2	FALSE	1.8	1	24	1	0.958	0.958
2.8	FALSE	2.2	2	23	1	0.957	0.917
1.7	FALSE	3.3	11	14	1	0.929	0.851
1.5	FALSE	3.5	12	13	1	0.923	0.786
0.9	FALSE	4.1	17	8	1	0.875	0.688
0.7	FALSE	4.3	19	6	2	0.667	0.458
0.6	FALSE	4.4	21	4	1	0.750	0.344
0.5	FALSE	4.5	22	3	3	0.000	0.000

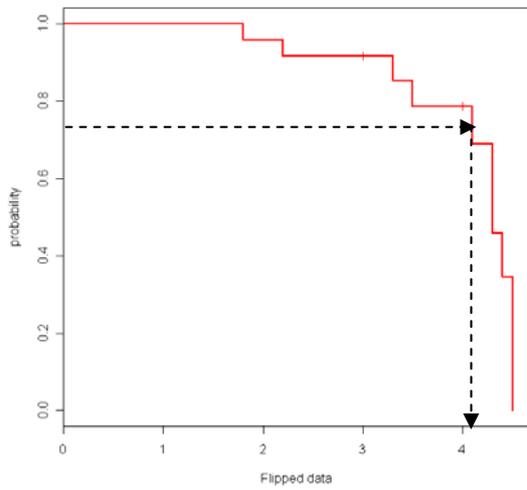
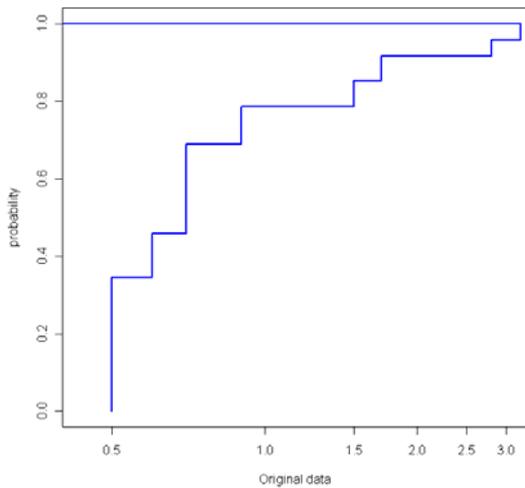


Figure 21 : survival probability function S of the multiply-censored flipped Oahu data.



Survival function of the multiply-censored Oahu original data.

Under the K-M survival curve. To see why this is so, consider the equation 8, Table 30].

Equation 8

value, the equation can be stated as [Equation 9]

Equation 9

Where f_i is the number of observations at each of the i unique values of x and f_i/n is the proportion of the data set at that value. The mean is the sum of the products of the proportion of data for each value times the magnitude of the observation's value. This is just what is accomplished when integrating under the K-M survival curve. The curve is divided by drawing horizontal lines at the value of each detected observation. The resulting set of rectangles

have as their height the estimated proportion of data at that value, with the proportions summing to 1. The width of rectangle is the magnitude of the observation, x. The mean is estimated by multiplying the width of each rectangle by it's height to get the area, and then summing over all rectangles" (Helsel, 2005).

"Location estimates for flipped data (mean, median, other percentiles) must be re transformed back into the original scale by subtraction from the constant M used to flip the data" (Helsel, 2005).

The estimate for the **standard error** of the survival function (S) is known as Greenwood's formula (Equation 10):

$$\text{Std Error of } S = \text{s.e.}[S] = S \cdot \sqrt{\sum_{j=1}^k \frac{d_j}{b_j(b_j - d_j)}} \quad \text{Equation 10}$$

The standard deviation (sd) could be estimated multiplying standard error of the mean by the square root of the sample size n (Equation 11).

$$sd = \text{std.error} \cdot \sqrt{n} \quad \text{Equation 11}$$

Estimates of variability (variance, standard deviation, standard error, IQR; Table 30) are the same for both flipped and original units; no retransformation is needed.

Table 30 : summary statistics using Kaplan-Meier for the multiply censored Oahu data

<i>mean</i>	<i>sd</i>	<i>Q1</i>	<i>median</i>	<i>Q3</i>
0.949	0.807	0.5	0.7	0.9

Remarks

When more than 50% of data are censored, and the smallest observation (largest flipped value) is censored, the median cannot be estimated using K-M. A method which assumes some sort of model for the data distribution must be employed if an estimate for the median is required.

11.2 MÉTHODE ROS (REGRESSION ON ORDER STATISTICS)

11.2.1 PRINCIPLE

The robust ROS is a semiparametric method developed by Helsel and Cohn (1988).

"It is a probability plotting and regression procedure that models censored distributions using a linear regression model of observed concentrations vs.their normal quantiles (or "order statistics"). The method has been evaluated as one of the most reliable procedures for developing summary statistics of multiplycensored data (Shumway et al., 2002)" [from Lee and Helsel, 2007].

The robust ROS method can be summarized in four steps. They will be described using the dataset Oahu of the NADA add-on package (Lee and Helsel, 2005 ; 2007).

11.2.1.1 Step 1: Computation of plotting position for both censored and uncensored data

“Plotting positions of both censored and uncensored data are computed using the exceedance probability, E_j , of each censoring limit. E_j is the probability of exceeding the j th censoring limit. It is defined by [Equation 12]

$$E_j = E_{j+1} + (A_j / [A_j + B_j]) (1 - E_{j+1}) \quad \text{Equation 12}$$

where A_j is the total number of uncensored observations in the range $[j, j+1)$ and B_j is the total number of observations, censored and uncensored, less than or equal to the j th censoring limit. For a given uncensored observation, a Weibull-type plotting position p can be calculated by considering the exceedance probability of the censoring limit below the observation E_j , the exceedance probability of the censoring limit above the observation E_{j+1} , and the observation's rank among all the values within the j and $j + 1$ censoring limit. In general, the Weibull-type plotting positions for uncensored observations are [Equation 13]

$$p(i) = (1 - E_j) + (E_j - E_{j+1})r_i / (A_j + 1) \quad \text{Equation 13}$$

where r_i is the rank of the i th observation among the observations in the range $(j, j+1]$ (Hirsch and Stedinger, 1987). Similarly, the Weibull-type plotting positions for censored observations are given by [Equation 14]

$$p(i) = (1 - E_j) r_i / (C_j + 1) \quad \text{Equation 14}$$

where C_j is the total number of censored values in the range $(j; j + 1]$ (Lee and Helsel, 2005).

“When $j =$ the highest limit, $E_{j+1} = 0$ and A_j and $B_j = n$. The numbers of nondetects below the j th detection limit is defined as $C_j = B_j - B_{j-1} - A_{j-1}$ ” (Helsel, 2005).

11.2.1.2 Step 2: Forming the linear regression model

“A linear regression of the uncensored observations vs. the normal quantiles of the uncensored plotting positions is formed. The normal quantiles of the plotting positions are the “order statistics” of the ROS method” (Lee and Helsel, 2005).

“The intercept, the y value associated with a normal score of 0 at the center of the plot, estimates the mean of the distribution. The slope of the line equals the standard deviation, as normal scores are scaled to units of standard deviation” (Helsel, 2005).

11.2.1.3 Step 3: Estimation of the censored concentrations

“The censored concentrations are modeled using the parameters of the linear regression and normal quantiles of the censored data. These modeled censored observations are only used corporately, along with the uncensored observations, to model the distribution of the sample population. Individually, they are not considered the values that would have existed in the absence of censoring” (Lee and Helsel, 2005).

11.2.1.4 Step 4: Computation of summary statistics:

"The observed uncensored values are combined with modeled censored values to corporately estimate summary statistics of the entire population. By combining the uncensored values with modeled censored values, this method avoids transformation bias (Helsel and Cohn, 1988)" (Lee and Helsel, 2005).

11.2.1.5 Remark

"The ROS method assumes that all censoring thresholds are "left censored", i.e., all censored values are "less thans". It is applicable to any dataset containing 0 to 8 % of its values censored. As noted by Helsel and Cohn (1988) and Helsel (2005), statistics derived from ROS models of populations having 80 % or more censored values are very tenuous. For data whose highest detection limit is below the 50th percentile, the median will equal the sample median computed by standard software without special consideration for censored values. The primary advantages of using ROS are realized when 50 % to 80 % of data are below the highest detection limit, or when estimates of the mean and standard deviation are required. Unlike the median, the mean and standard deviation cannot be estimated without some accommodation for censoring.

Additional assumptions are those inherent to linear regression. This includes the assumptions that the response variable (concentration) is a linear function of the explanatory variable (the normal quantiles) and that the error variance of the model is constant. Since the statistical distribution of water-quality data is typically skewed, these assumptions are usually addressed by transforming the data prior to analysis. Since most water-quality data with multiple censoring limits are lognormally distributed, the default behavior of our routines is to perform a log-normal transformation to input data prior to computation. However, this feature can be entirely suppressed or the user may provide an alternative set of transformation functions" (Lee and Helsel, 2005).

11.2.2 DETAILED EXAMPLE

The dataset used is still the Oahu one (Table 31) from the NADA add-on package (Lee and Helsel, 2005; 2007).

Step 1 : Computation of plotting position for both censored and uncensored data

First, data have to be ranked from highest value to lowest value. When a nondetect and a detect data have the same value, the detect one has to be placed before the nondetect. As there are 3 censoring limits in the Oahu dataset, j varies from 1 to 3, from the lowest detection limit to the highest one. The exceedance probability of j=3 has to be computed first, then E(j=2) and E(j=1) :

- $E(3) = 0 + (2 / [2 + 22]) (1 - 0) = 0.083,$
- then $E(2) = 0.083 + (2 / [2 + 12]) (1 - 0.083) = 0.214,$
- and $E(1) = 0.214 + (1 / [1 + 7]) (1 - 0.214) = 0.313.$

Then the plotting position for the detect observations can be computed:

- the plotting position corresponding to the 3.2 detect value is estimated by
 $(1-0.083) + (0.083 - 0) * 2 / (2+1) = 0.972 ;$
- the plotting position corresponding to the 2.8 detect value is estimated by
 $(1-0.083) + (0.083 - 0) * 1 / (2+1) = 0.944.$

Table 31 : Oahu dataset

As	AsCen*
1.0	TRUE
1.0	TRUE
1.7	FALSE
1.0	TRUE
1.0	TRUE
2.0	TRUE
3.2	FALSE
2.0	TRUE
2.0	TRUE
2.8	FALSE
2.0	TRUE
0.7	FALSE
0.9	FALSE
0.5	FALSE
0.5	FALSE
0.9	TRUE
0.5	FALSE
0.7	FALSE
0.6	FALSE
1.5	FALSE

* When AsCen variable =TRUE that means that the data is a nondetected one.

In the same way, the others plotting position are estimated. For the detect data which are under the lowest detection limit, $E_j=1$. Thus the plotting position for the 0.7 value corresponding to $r_i=6$ is:

$$(1-1)+(1-0.313)*6/(6+1) = 0.589.$$

For the censored observation computation of plotting position involves no difficulties.

Plotting positions are summarised in Table 32.

Table 32 : computation of plotting position for both detects and nondetects data

j	r _i	As	AsCen	A _j	B _j	C _j	E _j	p(i) detected	p(i) censored
	2	3.2	FALSE					0.972	
	1	2.8	FALSE					0.944	
3	8	2.0	TRUE	2	22	8	0.083		0.815
	7	2.0	TRUE						0.713
	6	2.0	TRUE						0.611
	5	2.0	TRUE						0.509
	4	2.0	TRUE						0.407
	3	2.0	TRUE						0.306
	2	2.0	TRUE						0.204
	1	2.0	TRUE						0.102
	2	1.7	FALSE					0.873	
	1	1.5	FALSE					0.829	
2	4	1.0	TRUE	2	12	4	0.214		0.629
	3	1.0	TRUE						0.471
	2	1.0	TRUE						0.314
	1	1.0	TRUE						0.157
		0.9	FALSE					0.737	
1	1	0.9	TRUE	1	7	1	0.313		0.344
	6	0.7	FALSE					0.589	
	5	0.7	FALSE					0.491	
	4	0.6	FALSE					0.393	
	3	0.5	FALSE					0.295	
	2	0.5	FALSE					0.196	
	1	0.5	FALSE					0.098	

Step 2 : Forming the linear regression model

First, the standard normal quantiles of the detect plotting positions have to be computed from a table of the standard normal distribution (Table 33). Then a linear regression of logarithms of detect observations (because log normal distribution is usually assumed with environmental data) vs. the normal quantiles of the detect plotting position is computed in order to estimate the mean and the standard of the distribution.

In the example, mean equals - 0.23, and the standard deviation equals 0.6468.

Table 33 : computation of the normal quantiles of the detect plotting positions

As	ln As	detect plotting positions	Standard normal quantiles of the detect plotting positions
3.2	1.163	0.972	1.915
2.8	1.030	0.944	1.593
1.7	0.531	0.873	1.141
1.5	0.405	0.829	0.952
0.9	-0.105	0.737	0.633
0.7	-0.357	0.589	0.226
0.7	-0.357	0.491	-0.022
0.6	-0.511	0.393	-0.272
0.5	-0.693	0.295	-0.540
0.5	-0.693	0.196	-0.854
0.5	-0.693	0.098	-1.292

Step 3 : Estimation of the censored concentrations

First, standard normal quantiles of the nondetects have to be computed from a table of the standard normal distribution. Then, using the mean and the standard deviation estimated in step 2, and the plotting position of the nondetects data, log values for individual nondetect data are predicted (Table 34).

Table 34 : estimation of the nondetect concentrations

As	Non detect plotting positions	Standard normal quantiles of the nondetect plotting positions	predicted log values = - 0.24 + 0.65 normal quantiles
2.0	0.815	0.896	0.351
2.0	0.713	0.562	0.135
2.0	0.611	0.282	-0.047
2.0	0.509	0.023	-0.215
2.0	0.407	-0.234	-0.382
2.0	0.306	-0.508	-0.560
2.0	0.204	-0.828	-0.768
2.0	0.102	-1.271	-1.055
1.0	0.629	0.328	-0.017
1.0	0.471	-0.072	-0.277
1.0	0.314	-0.484	-0.544
1.0	0.157	-1.006	-0.883
0.9	0.344	-0.402	-0.491

Step 4 : Computation of summary statistics:

Using the detect values and the retransforming individual predicted log values summary statistics are computed (Table 35).

Table 35 : computation of summary statistics

As	AsCen	Predicted log values	Retransforming predicted log values (exp)	Data use to compute summary statistics
3.2	FALSE			3.20
2.8	FALSE			2.80
2.0	TRUE	0.35	1.42	1.42
2.0	TRUE	0.13	1.14	1.14
2.0	TRUE	-0.05	0.95	0.95
2.0	TRUE	-0.21	0.81	0.81
2.0	TRUE	-0.38	0.68	0.68
2.0	TRUE	-0.56	0.57	0.57
2.0	TRUE	-0.77	0.46	0.46
2.0	TRUE	-1.05	0.35	0.35
1.7	FALSE			1.70
1.5	FALSE			1.50
1.0	TRUE	-0.02	0.98	0.98
1.0	TRUE	-0.28	0.76	0.76
1.0	TRUE	-0.54	0.58	0.58
1.0	TRUE	-0.88	0.41	0.41
0.9	FALSE			0.90
0.9	TRUE	-0.49	0.61	0.61
0.7	FALSE			0.70
0.7	FALSE			0.70
0.6	FALSE			0.60
0.5	FALSE			0.50
0.5	FALSE			0.50
0.5	FALSE			0.50
			Mean	0.97
			sd	0.72

11.3 REFERENCES

- Helsel D (2005). Nondetects And Data Analysis - Statistics for Censored Environmental Data. Collection "Statistics in Practice", Eds John Wiley & Sons, Hoboken, New Jersey. ISBN 0-471-67173-8
- Helsel, D.R., Cohn, T.A., 1988. Estimation of descriptive statistics for multiply-censored water quality data. *Water Resources Research* 24 (12), 1997-2004.

Hirsch, R., Stedinger, J., 1987. Plotting positions for historical floods and their precision. *Water Resources Research* 23 (4), 715-727.

Lee L., Helsel D. (2005). Statistical analysis of water-quality data containing multiple detection limits: S-language software for regression on order statistics. *Computer & Geosciences*, 31, 1241-1248.

Lee L., Helsel D. (2007). Statistical analysis of water-quality data containing multiple detection limits II: S-language software for non parametric distribution modelling and hypothesis testing. *Computer & Geosciences*, 33, 696-704.

12 ANNEXE E : ÉTUDE DE SPÉCIATION COMPLÉMENTAIRE

La station SR11 a été la seule station suivie sur le Ritord lors de l'étude de spéciation de 2002 (CEMRAD/LSCE/CREGU, 2002), elle est en outre également incluse dans le screening du risque environnemental. Elle s'impose donc comme le seul support possible au complément d'étude relatif à la spéciation. Le calcul de spéciation nécessite de connaître la composition ionique de l'eau et la concentration totale en uranium au point de calcul. Elles sont déterminées respectivement aux paragraphes 12.1 et 12.2. Le paragraphe 12.3 présente les résultats obtenus sur ces bases.

12.1 COMPOSITION IONIQUE AU POINT SR11

D'après les conclusions de l'étude de spéciation (CEMRAD/LSCE/CREGU, 2002), la plupart des eaux prélevées ont des caractéristiques intermédiaires entre deux pôles : le pôle « diluant » et le pôle « eaux d'exhaure ». Il s'agit d'eaux faiblement minéralisées, dominées du point de vue des cations par les ions alcalins et alcalino-terreux (par ordre d'importance : Na, K et Ca), pauvres en chlorures, et dominées du point de vue des anions par les sulfates et les carbonates. La composition en ions majeurs des eaux du Ritord est relativement homogène d'après l'étude de 2002, il a donc été décidé d'utiliser pour le calcul de spéciation la composition ionique moyenne des eaux à la station SR11 (Tableau 36).

Tableau 36 : composition ionique moyenne des eaux à la station SR11 (mg/l)

	pH moyen	Ca	Mg	Na	K	Cl	SO4
août-99	7,0	18,4	3,8	13,7	2,4	11,7	51,5
févr-00	6,3	5,9	1,2	6,4	3,9	7,5	13,4
nov-00	6,3	5,0	1,1	6,7	1,6	15,0	18,6
févr-01	6,9	8,2	1,9	9,8	1,5	7,7	20,3
mars-01	6,5	5,4	0,9	5,1	1,1	6,4	13,0
avr-01	6,4	4,5		5,2	0,9	7,0	14,0
mai-01	6,4	4,6		4,4	1,2	5,3	8,8
juin-01	6,7	8,1	1,8	5,7	1,6	7,6	23,0
moyenne	6,6	7,5	1,8	7,1	1,8	8,5	20,3
écart-type	0,3	4,6	1,1	3,1	1,0	3,2	13,4
CV%	4%	62%	60%	44%	55%	38%	66%

12.2 CONCENTRATIONS EN URANIUM AU POINT SR11

A la station 11, trois types de filtration ont été mis en œuvre lors de l'étude de 2002, correspondant à différentes fractions de l'uranium dans les eaux :

- concentrations totales (eau brute)
- concentrations des formes colloïdales (0,1 à 0,45 µm)
- concentrations des formes dissoutes vraies (résultat de l'ultrafiltration)

La fraction particulaire est alors obtenue par différence entre la concentration brute et la somme des concentrations des formes colloïdales et dissoutes.

Les résultats des analyses effectuées par le CREGU, plus complètes en 1999 et 2000, ont été considérées, sachant que les analyses menées par le CEMRAD donnent des résultats du même ordre. Les concentrations relatives à

chacune des fractions ne sont simultanément disponibles qu'en avril, mai et juin 2001. La répartition de l'uranium se fait alors pour 52 à 59% sous forme colloïdale, 7 à 15% sous forme dissoute et, par différence, de 28 à 40% sous forme particulaire. Par ailleurs, la fraction 0.45-0.1µm a été la seule mesurée sur l'ensemble de la période 1999-2001, les concentrations en U y varient alors entre 7.3 et 18.7 µg/l. En première approche, en appliquant le spectre de répartition déterminé en 2001 (50% colloïdal, 10% dissous et 40% particulaire), il est considéré que les concentrations totales valent environ le double de ces valeurs, et que les concentrations dissoutes représentent 20% de celles-ci. Les données correspondant à chaque date sont présentées dans le Tableau 37.

12.3 SPÉCIATION CHIMIQUE DE L'URANIUM AU POINT SR11

Les calculs de spéciation ont été effectués avec le logiciel JCHESS[®] version 2.0 - release 2, avec la base de données compilée et validée pour l'uranium(VI) (IRSN_LRE_TDPv6.tdb) basée sur le travail de Denison (Denison, 2004).

Les calculs ont été effectués pour une température de 25°C (valeur par défaut dans le logiciel), en considérant un système ouvert à l'équilibre avec l'atmosphère ($p\text{CO}_2=3.16 \cdot 10^{-4}$), à pH=6.58 et en équilibrant la balance ionique sur SO_4 (29.6 mg/l). Une concentration moyenne de 23 µg/l d'uranium dissous a été utilisée. Les résultats sont présentés au Tableau 38.

Tableau 37 : concentrations en uranium à la station SR11 et répartition par taille. Les points non mesurés (*) sont estimés pour une répartition 50% colloïdale et 10% dissoute.

	µg/L	%
août-99 brut	37,4	* 100%
0.45- 0.1 µm	18,7	50%
ultra	3,7	* 10%
févr-00 brut	23,2	* 100%
0.45- 0.1 µm	11,6	50%
ultra	2,3	* 10%
nov-00 brut	19,8	* 100%
0.45- 0.1 µm	9,9	50%
ultra	2,0	* 10%
févr-01 brut	25,6	* 100%
0.45- 0.1 µm	12,8	50%
ultra	2,6	* 10%
mars-01 brut	14,6	* 100%
0.45- 0.1 µm	7,3	50%
ultra	1,8	12%
avr-01 brut	16,2	100%
0.45- 0.1 µm	9,3	57%
ultra	2,4	15%
mai-01 brut	23,0	100%
0.45- 0.1 µm	12,0	52%
ultra	1,7	7%
juin-01 brut	16,1	100%
0.45- 0.1 µm	9,5	59%
ultra	1,7	11%

Tableau 38 : spéciation chimique de l'uranium pour une composition ionique moyenne du point SR11 (pH=6.6, [U]=23 µg/L - espèces >0.1%, soit >99.9% des espèces présentes)

Espèce chimique	µg/L U	%
$(\text{UO}_2)_2\text{CO}_3(\text{OH})_3^-$	9,7	42,3%
$\text{UO}_2(\text{OH})_2(\text{aq})$	5,4	23,6%
UO_2OH^+	3,7	16,0%
$\text{UO}_2\text{CO}_3(\text{aq})$	3,2	13,9%
$\text{UO}_2(\text{OH})_3^-$	0,3	1,3%
UO_2^{2+}	0,3	1,1%
$\text{UO}_2(\text{CO}_3)_2^{2-}$	0,2	1,0%
$\text{UO}_2\text{SO}_4(\text{aq})$	0,1	0,3%
$(\text{UO}_2)_3(\text{OH})_5^+$	0,1	0,5%

La limite théorique de solubilité est estimée à 291 µg/L U. Au-delà de 320 µg/L, les espèces d'uranium précipité dominant ($\text{UO}_3 \cdot 2\text{H}_2\text{O}(\text{c})$) est formé à l'équilibre, cependant la formation de précipités amorphes est plus plausible). En considérant une variation maximale de la concentration totale de l'uranium à la station SR11 de 1 à 100 µg/l, les calculs montrent que la proportion de l'espèce ternaire $(\text{UO}_2)_2\text{CO}_3(\text{OH})_3^-$ augmente avec la concentration totale (Figure 23), pour atteindre un plateau aux environs de 60 %, tandis que la proportion des autres espèces baisse : par exemple, la proportion d'uranium libre baisse de 1.8% à 0.8%, respectivement entre 1 et 100µg/l U. Ainsi, selon que la donnée d'entrée du calcul de spéciation est la concentration totale, filtrée ou ultrafiltrée, les proportions des espèces présentes peuvent varier de manière importante, en fonction de la concentration d'uranium. En dessous de 10µg U /l, les espèces hydroxylées dominant. Au-delà, l'espèce ternaire est majoritaire.

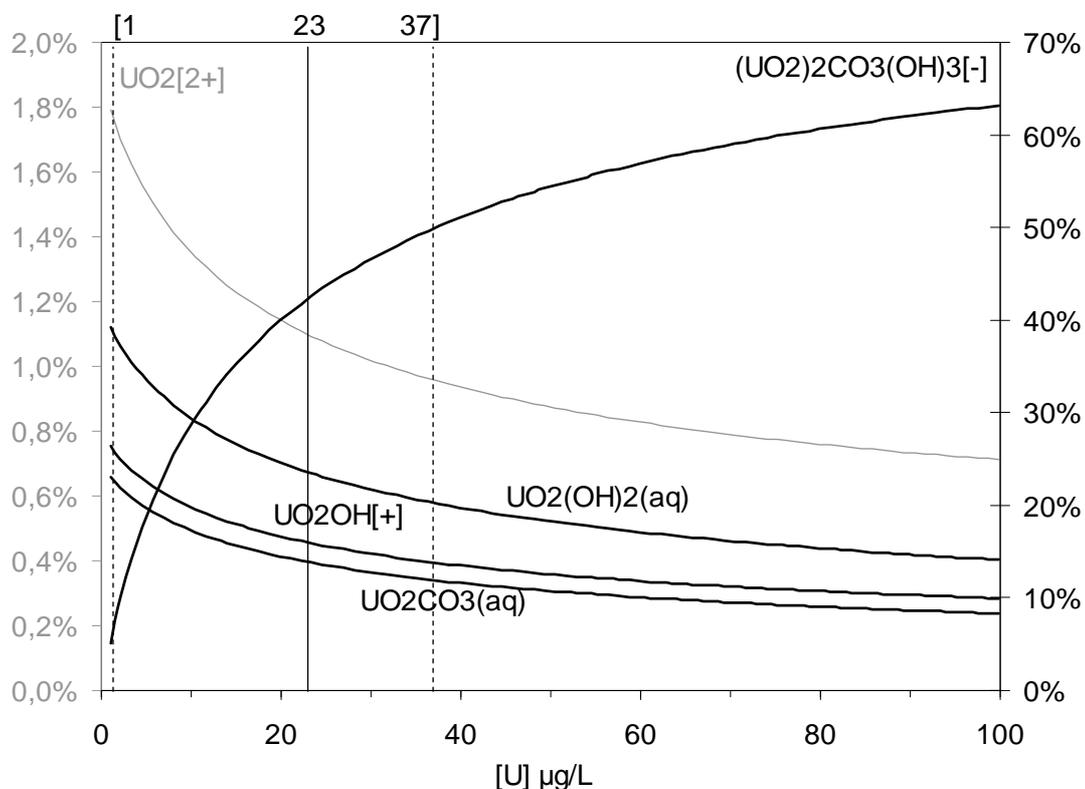


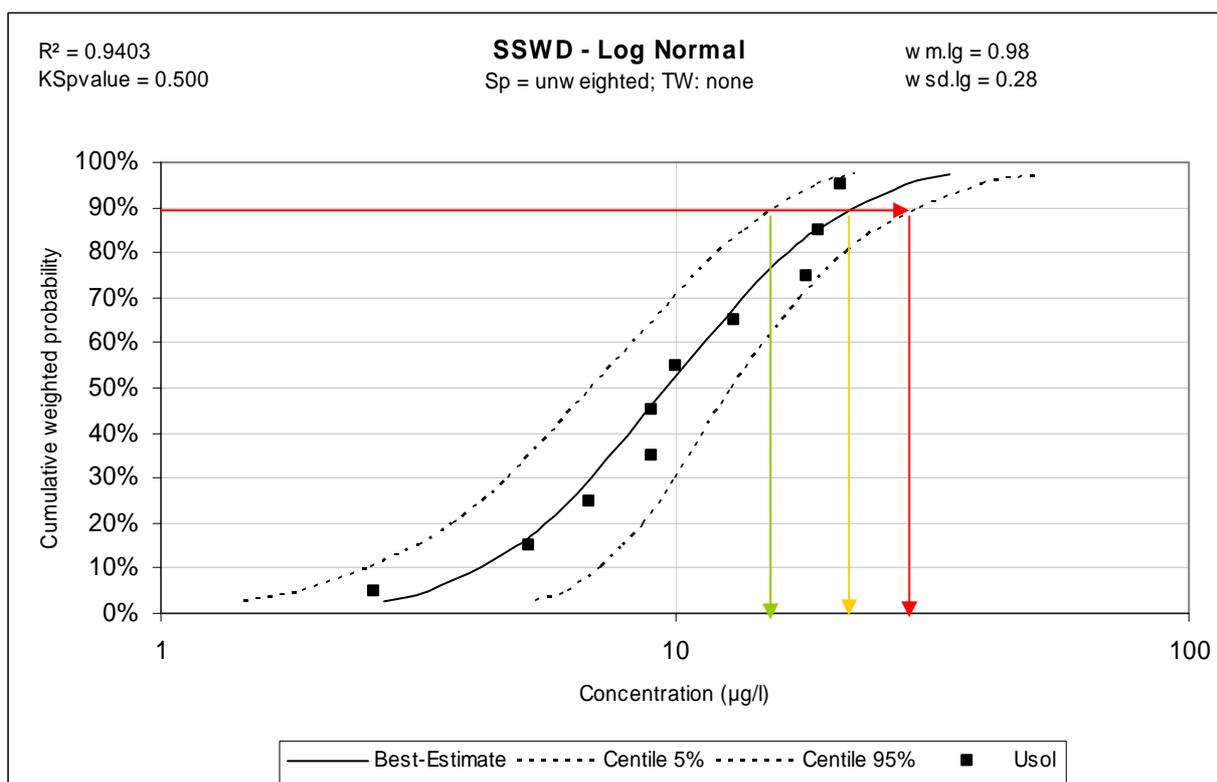
Figure 23 : spéciation chimique de l'uranium (VI) en solution au point SR11.

13 ANNEXE F : DISTRIBUTIONS TEMPORELLES DE PROBABILITÉ CUMULÉE DES DONNÉES D'EXPOSITION

Les distributions de probabilité cumulée au cours de l'année 2006 des données d'exposition ont été déterminées en utilisant la version 1.0 du logiciel SSWD⁶, avec les options suivantes :

- absence de pondération des genres ou des espèces (mois de janvier à octobre en l'occurrence) ;
- absence de pondération taxonomique (1 « taxon » unique, le mois) ;
- distribution log-normale ;
- 1000 échantillons pour le bootstrap ;
- paramètre a de Hazen à 0,5.

Afin de ne pas surcharger le document, cette démarche est illustrée pour la station SR6, du point de vue chimique (Figure 25) et radiologique (Figure 26 à Figure 28). L'ensemble des résultats des traitements est tenu à la disposition de toute personne intéressée.

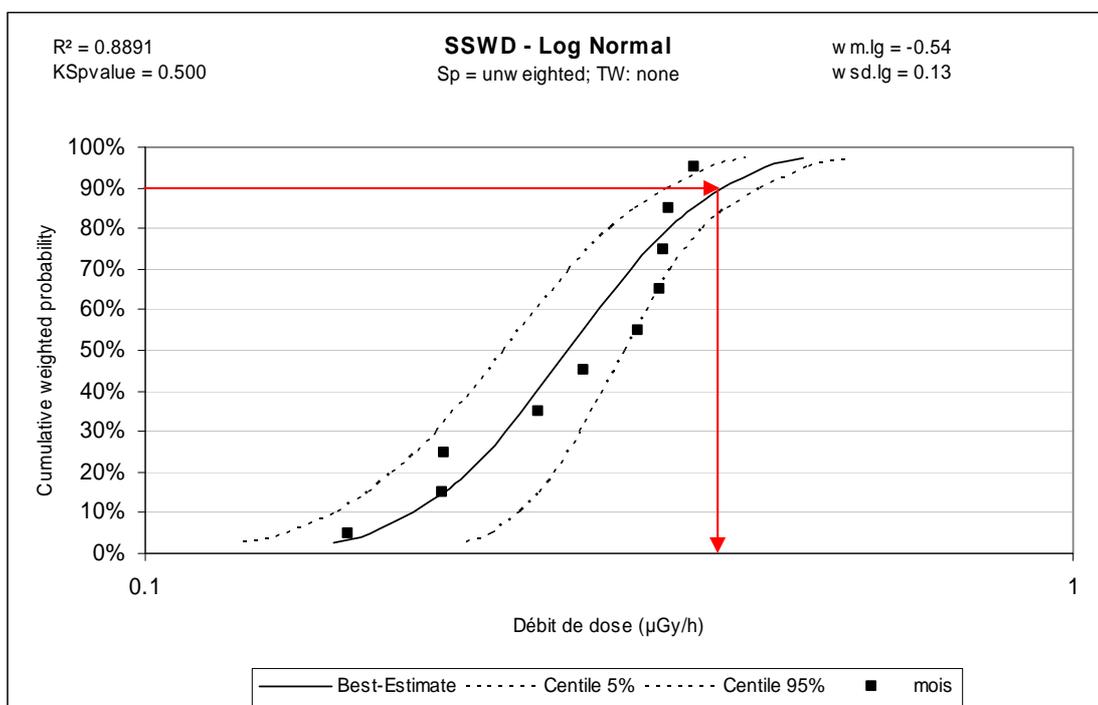


90^{ème} percentile et intervalle de confiance à 90 % : 22 µg/l [16 - 30]

Figure 25 : distribution temporelle de probabilité cumulée des concentrations d'exposition à l'uranium, à la station SR6 entre janvier à octobre 2006

⁶ SPECIES SENSITIVITY WEIGHTED DISTRIBUTION SOFTWARE et documentation associée (EDF & INERIS, 2003). Téléchargeable sur <http://chimie.ineris.fr/fr/lien/expositionchronique/presentationoutil/outilpnec.php>

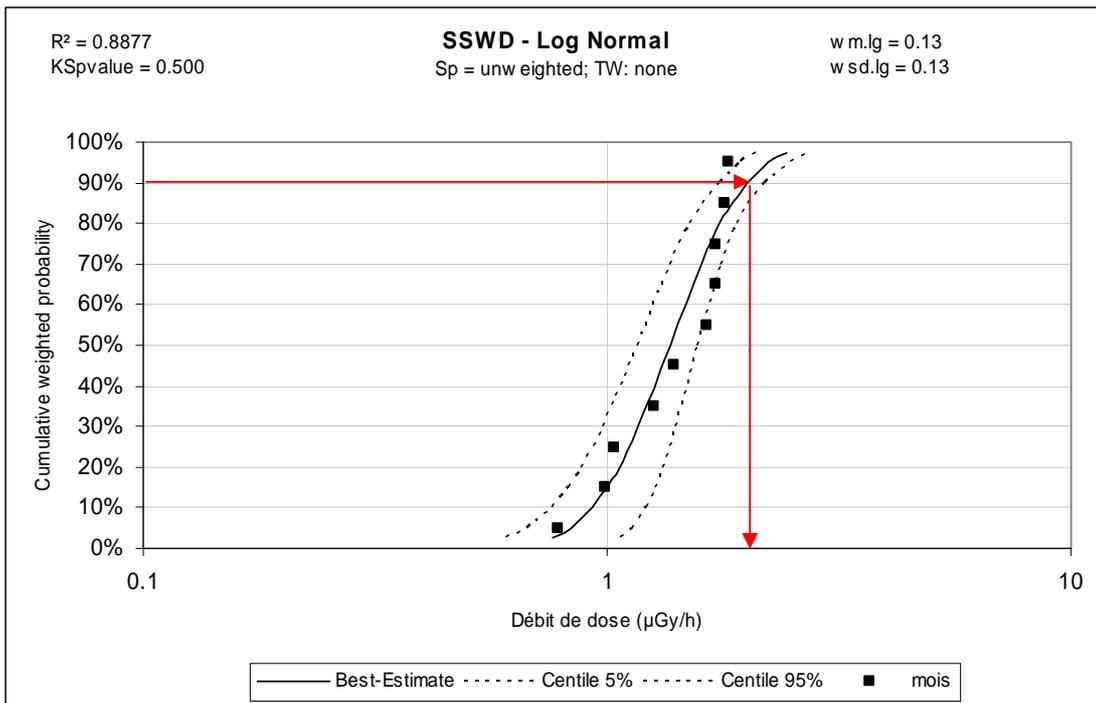
Concernant le risque radiologique, les débits de dose totaux sont calculés pour chacun des organismes de référence à partir des concentrations mensuelles en ^{238}U et ^{226}Ra dissous mesurées en 2006, en appliquant les hypothèses retenues par ailleurs pour le screening (équilibres de filiation, facteurs de conversion de dose, facteurs de transfert, etc.). En chaque station, le jeu de données comporte donc pour chaque organisme dix débits de dose mensuels totaux. Pour chaque mois, un débit de dose total moyen est alors calculé sur l'ensemble de ces organismes (moyenne géométrique), assorti d'un intervalle de confiance déterminé par un bootstrap⁷ de 5000 échantillons, qui représente la variabilité inter-spécifique de ce débit de dose. A ce stade, ce sont dix débits de dose moyens mensuels et les bornes de leurs intervalle de confiance à 95 % qui sont disponibles, soient trois séries temporelles de données, la première formée des débits de dose mensuels moyens, la deuxième des débits de dose mensuels minimaux, la troisième des débits de dose mensuels maximaux. Une distribution temporelle de probabilité cumulée est déterminée sur chacune de ces trois séries (minima : Figure 26 ; moyennes : Figure 27 ; maxima : Figure 28) dont les 90^{ème} percentiles sont alors comparés pour chaque station au 10^{ème} percentile de la SSD des données d'effet, assorti de son intervalle de confiance (cf.§.3.3, Figure 19).



90^{ème} percentile : **0.42** µGy/h

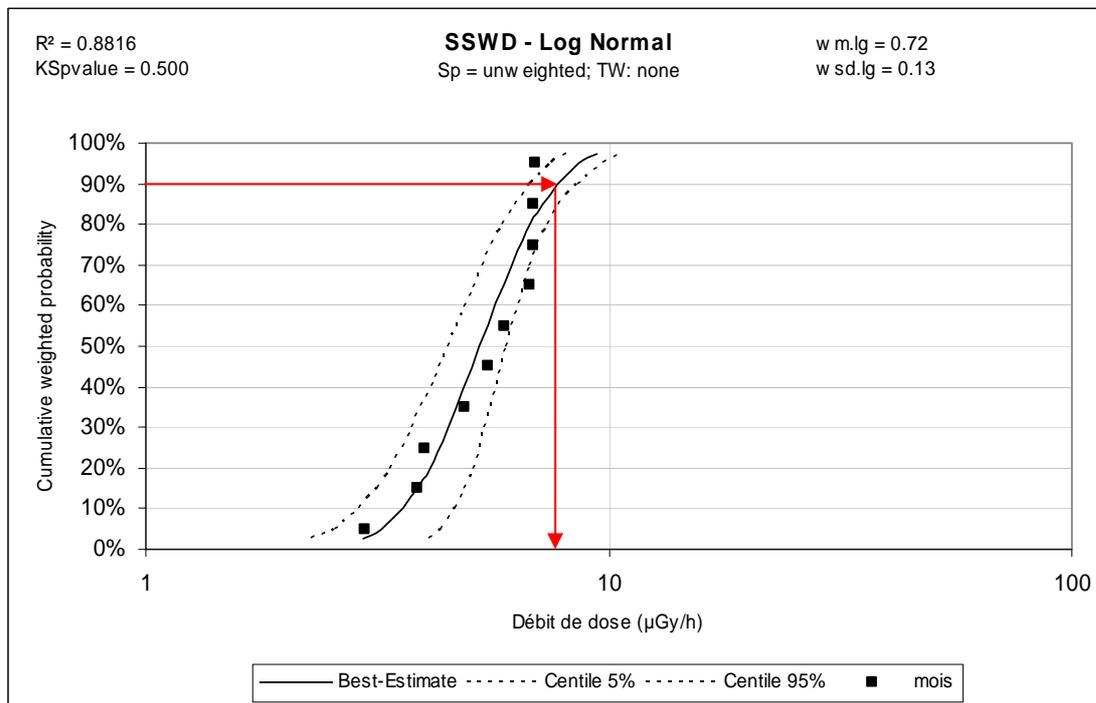
Figure 26 : distribution temporelle de probabilité cumulée de la borne inférieure de l'intervalle de confiance de la moyenne géométrique sur les espèces du débit de dose d'exposition, à la station SR6 de janvier à octobre 2006

⁷ Méthode non paramétrique d'estimation de toute quantité (médiane, moyenne, écart-type, etc) sur une distribution de probabilité non connue, et de l'incertitude associée, basée sur une succession de ré-échantillonnages.



90^{ème} percentile : 2 $\mu Gy/h$

Figure 27 : distribution temporelle de probabilité cumulée de la moyenne géométrique sur les espèces du débit de dose d'exposition, à la station SR6 de janvier à octobre 2006



90^{ème} percentile : 7.7 $\mu Gy/h$

Figure 28 : distribution temporelle de probabilité cumulée de la borne supérieure de l'intervalle de confiance de la moyenne géométrique sur les espèces du débit de dose d'exposition, à la station SR6 de janvier à octobre 2006