



RAPPORT D'ETUDE

Etude préliminaire de la répartition de ^{129}I
dans l'environnement de l'usine de
retraitement de La Hague à l'aide d'une
mousse terrestre : *Homalotecium sericeum*.

DEMANDEUR : Direction de Sûreté des Installations Nucléaires (DSIN) 99 rue de Grenelle 75353 PARIS 07 SP Tel : 01 43 19 36 36 / Fax : 01 43 19 48 69	DATE édit.: 01/10/99
	PHOTOS : VERSION : 02
REALISATION : A.C.R.O. 138 rue de l'Eglise 14 200 HEROUVILLE St CLAIR Tél : 02.31.94.35.34 / Fax : 02.31.94.85.31	Nb. PAGE : 27 (hors annexes)
	FOLIO : 1
	CONTRAT : 97/2/43/0005
	AUTEUR(S) : Gilbert Pigrée Jerome Guillevic Laurent Ponçet

SOMMAIRE

PREAMBULE.....	3
REMERCIEMENTS	3
INTRODUCTION.....	4
I) L'IODE 129, UN ISOTOPE RADIOACTIF	6
I.1) GENERALITES SUR L'IODE.....	6
I.2) CARACTERISTIQUES NUCL EAIRES.....	6
I.3) ORIGINE.....	7
• <i>La production naturelle</i>	7
• <i>La production artificielle</i>	7
I.4) CAS DE L'USINE DE RETRAITEMENT DES COMBUSTIBLES IRRADIES DE LA HAGUE.....	8
• <i>Les diverses formes d'élimination</i>	8
• <i>Les diverses formes physico-chimiques de l'iode rejeté (généralités)</i>	8
• <i>Dispositif réglementaire</i>	9
• <i>Les rejets gazeux et liquides effectifs</i>	9
I.5) DISTRIBUTION DE L'IODE STABLE DANS L'ENVIRONNEMENT (GENERALITES).....	10
• <i>L'iode et l'eau de mer</i>	10
• <i>L'iode et l'atmosphère</i>	11
II) LES MOUSSES TERRESTRES, INDICATEURS DE CONTAMINATION RADIOACTIVE	12
II.2) GENERALITES SUR LES BIO-INDICATEURS.....	12
II.2) CARACTERES GENERAUX, APERÇU SYSTEMATIQUE, PHYLOGENIE.....	13
II.3) ECOLOGIE (D'APRES JAHNS, 1989).....	14
III) ETUDE PRELIMINAIRE ; VALIDATION D'UNE MOUSSE TERRESTRE COMME BIO-INDICATEUR	15
III.1) DEFINITION DU PROGRAMME ET DES MOYENS.....	15
III.2) ABANDON DE <i>BRYUM ARGENTEUM</i>	15
III.3) SELECTION D'UNE MOUSSE TERRESTRE : <i>HOMALOTHECIUM SERICEUM</i>	16
IV) ETUDE DE LA REPARTITION SPATIALE DE L'IODE 129 DANS L'ENVIRONNEMENT PROCHE DE L'USINE DE RETRAITEMENT DE LA HAGUE.....	18
IV.1) MATERIEL ET METHODES.....	18
• <i>Remarques sur les mesures</i>	19
IV.2) RESULTATS ET DISCUSSION	20
• <i>Analyses des données brutes</i>	20
• <i>Comparaison des teneurs à celles obtenues par le passé</i>	21
• <i>Note sur l'origine de l'iode 129 et du césium 137</i>	21
• <i>Note sur la distribution spatiale de ¹²⁹I et sur quelques facteurs influents</i>	22
V) CONCLUSION	24
VI) BIBLIOGRAPHIE.....	26

Préambule

Ce rapport a été établi dans le cadre d'une convention passée entre l'Association pour le Contrôle de la Radioactivité dans l'Ouest (A.C.R.O.) et la Direction de la Sûreté des Installations Nucléaires (D.S.I.N.).

Il constitue, pour l'année 1998, une extension au programme de surveillance mené par l'A.C.R.O. sur le plateau de La Hague. En effet, l'A.C.R.O. n'effectue des mesures régulières que pour le milieu aquatique continental et dispose de peu de données pour les autres écosystèmes.

Avec le présent travail, des données nouvelles sont fournies sur les teneurs en iode 129, radioélément caractéristique du retraitement, observable chez un bio-indicateur atmosphérique reconnu de longue date et couramment utilisé pour traduire la qualité de l'air.

Si l'ensemble des résultats permet d'établir une cartographie des teneurs en iode 129 dans La Hague, ce travail n'en constitue pas moins une démarche préliminaire destinée à alimenter la réflexion sur ce thème.

Cette étude est un élément nécessaire pour définir une stratégie applicable à un travail de plus grande envergure qui permette de préciser la manière dont se répartit l'iode 129 " atmosphérique " dans la région de La Hague. En second lieu, elle constitue un support à la mise en place d'une future surveillance radiologique de l'air à l'aide de bio-indicateurs.

Remerciements

Nous remercions le Dr Deperier et le Pr. Lecointe¹ du laboratoire de Botanique et de Phytogéographie de l'Université de Caen, qui ont bien voulu typer les mousses terrestres et former l'équipe à la reconnaissance phylogénétique de *Homalotecium sericeum*, ainsi que le Professeur J. Touffet du laboratoire de botanique de l'université de Rennes, le Professeur Bardat du Muséum d'Histoire Naturelle de Paris et M. R.B. Pierrot auteur de "Les Bryophytes du centre-ouest : Classification, Détermination." pour leurs précieux conseils.

Nous remercions également Pierre Barbey (Maître de conférence en biochimie et Conseiller Scientifique de l'ACRO) et David Boilley (Maître de conférence en physique nucléaire et Président de l'ACRO) pour leur collaboration à la réalisation et la vérification de cette étude.

¹ Une pensée particulière à notre ami, Alain Lecointe, Lychenologue passionné dont la compétence et le soutien amical et associatif vont nous manquer.

Introduction

Parmi les isotopes radioactifs de l'iode qui peuvent être décelés dans l'environnement, l'iode 129 (¹²⁹I) est celui qui présente la demi-vie la plus importante (de l'ordre de 16 millions d'années). Son accumulation, à l'échelle planétaire, est donc possible faute d'une bonne élimination par décroissance physique. Les estimations de production mondiale atteignent 2.10⁶Ci pour 2060 et on admet que la quantité d'iode 129 présente dans l'environnement sera voisine de 2.10⁴Ci soit environ 120 tonnes (Saas *et al.*, 1977).

Produit naturellement, l'iode 129 présent dans l'environnement est aussi depuis 1945 en partie d'origine anthropogénique due d'abord aux essais de l'arme atomique puis à la chaîne du combustible nucléaire.

S'il n'est pas décelable dans l'environnement des centrales nucléaires (AEN, 1980) sauf en cas d'accident comme celui de Tchernobyl (Chant L.A., 1996), en revanche, l'élévation du niveau d'iode 129 dans l'environnement d'une usine de retraitement a été avancée à de multiples reprises : Brauer et Strebin, 1982 ; Kantelo et al., 1982 ; Stewart et Wilkins, 1985 ; Muramatsu et Ohmomo, 1986 ; etc. De même et plus récemment, dans la région du Nord-Cotentin où se situe l'usine de retraitement des combustibles irradiés de La Hague², la présence d'iode 129 a été soulignée à partir de prélèvements de mousses terrestres de l'espèce *Bryum argenteum* effectués fin 94 (CRIIRAD, 1995).

Parce que ¹²⁹I est très mobile dans l'environnement, qu'il y a actuellement peu d'informations sur sa distribution dans les différents compartiments de l'environnement, qu'il est susceptible de contribuer d'une façon appréciable à l'exposition de vastes ensembles de populations (AEN, 1980) et que sa présence dans la région de La Hague n'est abordée que depuis quelques années, nous avons trouvé intéressant de mener une campagne de mesure à l'aide de mousses terrestres. Ceci afin d'actualiser les données qui ont pu être obtenues par le passé ; données qui traduisent, sous certaines conditions, la qualité radiologique de l'air.

L'intérêt d'utiliser des mousses terrestres comme radio-indicateurs de l'air a été clairement démontré par le passé, notamment par Bovard et Grauby (1967) suite aux essais atmosphériques de l'arme atomique.

Ce travail présente les résultats d'une étude de la répartition (cartographie) du radioélément autour de l'usine de retraitement des combustibles irradiés de La Hague à l'aide de 18 échantillons de mousses terrestres utilisées comme bio-indicateurs.

En complément de la mesure d'iode 129, le dosage de l'iode total (essentiellement stable : ^{127}I) a été effectué. Il s'agissait d'affiner la cartographie en faisant appel à un système normalisé (rapport $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$) qui permette de comparer entre elles les teneurs sans préjuger des mécanismes responsables des éventuelles répartitions observées. Cependant, pour des raisons exposées dans la suite de la communication, il n'a pas été possible de recourir au système normalisé.

Par ailleurs, des informations sur l'iode et les mousses terrestres sont exposées dans le but de clarifier des facteurs susceptibles de faire varier les activités en iode 129 dans l'environnement et dans l'indicateur considéré. Une réflexion est également menée sur l'espèce indicatrice retenue par le passé car il convenait de s'assurer qu'elle constituait toujours un bio-indicateur fiable pour cette étude.

² Dite « usine COGEMA La Hague » ; située dans le Nord-Cotentin (département de la Manche ; 50)

I) L'iode 129, un isotope radioactif

I.1) Généralités sur l'iode

L'iode est un élément chimique (cf. [tableau 1](#)) appartenant à la famille des halogènes qui peut exister sous forme minérale et organique.

Sous forme élémentaire (I), l'iode présente un aspect légèrement métallique et ses cristaux se subliment en vapeurs violettes à la température "ordinaire". Cet élément peut se combiner à de nombreux métalloïdes et métaux. En principe, l'iode peut prendre tous les états de valence entre -1 et +7. Parmi ceux-ci, les iodures (I) sont des agents d'oxydo-réduction. L'iode possède un seul isotope stable, l'iode 127 (^{127}I), et de nombreux isotopes radioactifs.

Les applications de certains de ses isotopes sont nombreuses et variées : chimie, pharmacie, médecine, biologie, etc. A titre d'exemple, l'iode stable sert en pharmacie pour la teinture d'iode, alors que l'iode 131 (isotope radioactif) est utilisé depuis plus de 50 ans en médecine nucléaire. Il permet, d'une part, d'étudier la morphologie et l'activité fonctionnelle de la thyroïde et, d'autre part, de traiter l'hyperthyroïdie et le cancer de la thyroïde (CSPI, 1996).

Dans l'environnement, aux côtés de l'iode 127 largement majoritaire, deux isotopes radioactifs sont couramment rencontrés. Il s'agit de l'iode 131 ($T_{1/2} = 8,02$ jours) et de l'iode 129 ($T_{1/2} = 15,7 \cdot 10^6$ ans). Tous deux sont des produits de fission du combustible.

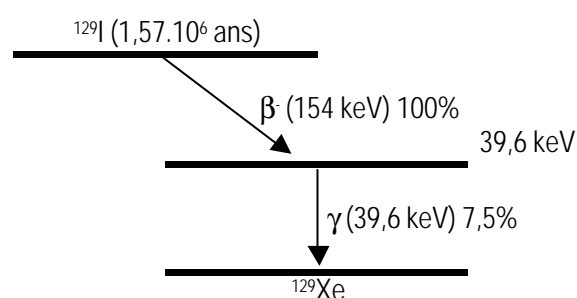
Tableau 1: caractéristiques physiques de l'iode

Symbole	Masse atomique (g)	Solubilité dans l'eau (mg/L)	Densité (g/cm ³)	Température	
				fusion (°C)	ébullition (°C)
I	126,9	290	4,93	113,5	184,35

Source : Comment utiliser en toute sécurité les produits chimiques dangereux ; Editions Weka ; Juillet 1998.

I.2) Caractéristiques nucléaires

L'iode 129 (^{129}I) est un produit de fission de période 15,7.10⁶ ans qui se désintègre (émission d'un bêta moins β^-) vers les niveaux excités du Xénon 129 (^{129}Xe). Il s'en suit une émission X/gamma de faible énergie (cf. [tableau 2](#)).



Le nombre de désintégrations par seconde dans un gramme d'iode 129 est de $6,41 \cdot 10^6$; un Becquerel d'iode 129 correspond donc à une masse de $1,56 \cdot 10^{-7}$ g de celui-ci.

Tableau 2: émissions provenant de la désintégration de ^{129}I

Emissions	Energie (en keV)	Taux d'émission (%)
β^-	154	100
X	29,4 + 29,8 33,6 + 34,4	57 13,2
γ	39,6	7,46

I.3) Origine

Si initialement la production d'iode 129 est liée à des processus naturels, les niveaux enregistrés depuis 1945 amènent à considérer une origine anthropogénique liée d'abord aux essais de l'arme atomique puis à la chaîne du combustible nucléaire.

- **La production naturelle**

L'iode 129 est issu de la fission spontanée de l'uranium 238 (^{238}U) contenu dans les sols et les océans ainsi que de l'interaction des rayonnements cosmiques secondaires sur divers isotopes du Xénon présents dans la haute atmosphère (Edwards, 1962). Dans ce contexte, et en l'absence d'apport anthropogénique, le rapport isotopique $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ dans l'environnement est de l'ordre de 10^{-12} (Lebourgeois V., 1997).

- **La production artificielle**

L'iode 129 est issu de la fission de l'uranium 235 (^{235}U) et du plutonium 239 (^{239}Pu) par les neutrons thermiques, soit directement comme produits de fission, soit indirectement par la désintégration d'autres produits de fission. La plupart des isotopes radioactifs de l'iode sont obtenus par décroissance β^- de l'étain, de l'antimoine et du tellure (Saas *et al.*, 1977).

D'après Chamberlain (1991), les explosions de l'arme atomique ont contribué à un apport en iode 129 estimé à $2 \cdot 10^{26}$ atomes (environ $4 \cdot 10^{11}$ Bq). L'accident de Tchernobyl (mai 1986) a été une source d'émission d'iode 129 très importante ($8,4 \cdot 10^{12}$ Bq).

Actuellement l'émission d'iode 129 est principalement liée à la chaîne du combustible nucléaire. L'iode 129 est produit dans le combustible des centrales nucléaires, néanmoins sa présence dans l'environnement d'un réacteur électronucléaire n'a jamais été identifiée (AEN, 1980) ; seul l'iode 131 est couramment décelé. Il faut souligner que la production d'iode 129 est faible - $0,02\text{Ci/t}$ - comparativement à celle des isotopes à vie courtes - 10^6Ci/t - (Saas *et al.*, 1977).

Vu sa longue période, l'iode 129 s'accumulerait tout au long de la phase d'exploitation du combustible dans les centrales nucléaires. La principale source d'émission d'iode 129 résulte alors du retraitement

des combustibles irradiés et les quantités ainsi que les mécanismes d'émission dépendent fortement du site et de la conception spécifique de l'usine.

I.4) Cas de l'usine de retraitement des combustibles irradiés de La Hague

Ces installations constituent une étape de fin de chaîne du combustible nucléaire. Mises en service en 1966, elles assurent la séparation des diverses catégories d'éléments contenues dans les combustibles " usés " suivant des procédés d'extraction chimiques (procédé PUREX™).

- **Les diverses formes d'élimination**

Le procédé de traitement des iodes aboutit à leur élimination sous la forme d'effluents liquides rejetés en mer, de déchets après piégeage / conditionnement et d'effluents gazeux rejetés dans l'atmosphère. Parmi les isotopes de l'iode relâchés avec les effluents, l'iode 129 prédomine très largement (cf. [tableau 3](#)).

De plus, les effluents liquides sont la principale forme d'élimination (cf. [tableaux 4 et 6](#)) ; ils sont dispersés dans un courant marin appelé le Raz Blanchard (au Sud-Ouest du Nez de Jobourg) à une distance de 1,7 km des côtes et à une profondeur de 28 mètres.

Tableau 3 : proportions des isotopes de l'iode rejetés en 1994 avec les effluents de l'usine de retraitement de La Hague.

rejet (nature)	iode 129	iode 131	iode 133	$\Sigma(129+131+133)$
GAZEUX (Bq)	$2,1 \cdot 10^{10}$	$4,9 \cdot 10^8$	$2,2 \cdot 10^9$	$2,17 \cdot 10^{10}$
Proportion (en %)	96,7%	2,3%	1,0%	100%
LIQUIDE (Bq)	$1,1 \cdot 10^{12}$	$3,7 \cdot 10^9$	$2,0 \cdot 10^9$	$1,106 \cdot 10^{12}$
Proportion (en %)	99,5%	0,3%	0,2%	100%

Source : données Cogéma-La Hague ; extrait du rapport final (juillet 99) du Groupe de travail n°1 du Groupe Radioécologie Nord-Cotentin.

Tableau 4 : proportion d'iode 129 par forme d'élimination ; bilan pour l'usine de retraitement de La Hague en 1994.

formes d'élimination	proportion
Effluents liquides en mer	86,7%
Piégeage et conditionnement sous forme de déchets	11,6%
Effluents gazeux rejetés dans l'atmosphère	1,6%

Source : CSPI – L'iode – Mai 1996.

- **Les diverses formes physico-chimiques de l'iode rejeté (généralités)**

Il n'a pas été possible de rassembler de données concrètes sur les formes physico-chimiques (et les proportions) spécifiquement rejetées par l'usine de retraitement de La Hague.

En général, on admet que l'iode est émis sous sept formes chimiques différentes (cf. [tableau 5](#)) et que les proportions à l'émission varient en fonction du type de réacteurs ou selon la méthode de traitement du combustible dans le cas du retraitement (Saas *et al.*, 1977).

Dans le cas de rejets d'effluents gazeux, un nouvel équilibre chimique s'établit rapidement au contact de l'atmosphère local (cf. [figure 4](#)).

Tableau 5 : formes physico-chimiques de l'iode rejeté par les réacteurs et les usines de retraitement de combustibles.

Formes	réacteurs Graphite-gaz	réacteur à eau pressurisée	retraitement
I ₂	+	+	+
CH ₃ I	10%	2,5%	+
I ⁻	+	+	+
HI	+	+	+
HOI	+	+	+
IO ₃ ⁻			+
IO ₄ ⁻			+
autres			C ₂ H ₅ I: vinyl – propyl – butyl – iso-butyl

Source : A.. Saas et A. Grauby - Cycle de l'iode dans l'environnement – 1977.

- **Dispositif réglementaire**

L'arrêté du 22 octobre 1980³ indique que la valeur limite annuelle applicable aux rejets gazeux est fixée à 110 GBq pour les halogènes. Après dispersion au niveau du sol, l'activité volumique moyenne hebdomadaire ajoutée pour les " halogènes + aérosols " ne doit pas dépasser 37 mBq/m³ (par calcul). Pour l'élimination des halogènes avec les effluents liquides en mer, il n'y a pas d'autorisation spécifique. Les rejets en ¹²⁹I sont comptabilisés dans l'autorisation annuelle des rejets des émetteurs bêta-gamma hors tritium (limite fixée à 1 700 000 GBq).

Il s'agit là d'une distinction notable avec l'usine de retraitement de Sellafield (U.K.) à laquelle sont imposées des limites de rejet par radionucléides. Cependant, des modifications devraient être apportées par le législateur français ; on parle de futures limites individualisées pour les iodes et le carbone 14.

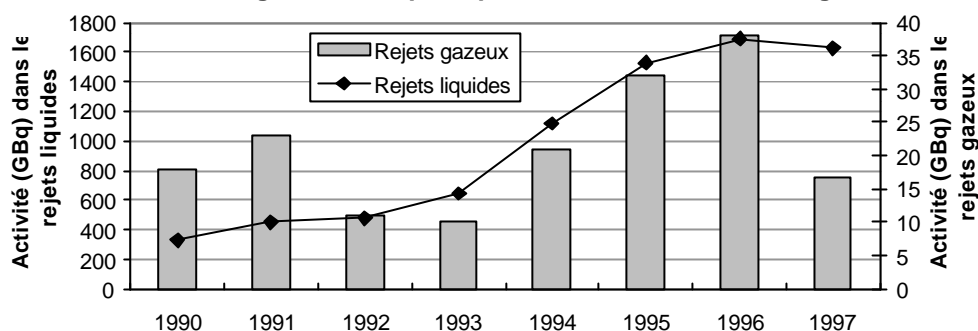
- **Les rejets gazeux et liquides effectifs**

Tableau 6: activités en iode 129 rejetées avec les effluents liquides et gazeux par l'usine COGEMA-La Hague depuis 1990.

	90	91	92	93	94	95	96	97
Rejets liquides (GBq)	327	455	479	646	1120	1530	1690	1630
Rejets gazeux (GBq)	18	23	11	10	21	32	38	16,7
<i>rapport des rejets liquides / gazeux</i>	18	20	44	65	53	48	45	98

³ arrêté complété par celui du 27 février 1984.

Evolution des activités en iode 129 rejetées avec les effluents gazeux et liquide par l'usine COGEMA La Hague



I.5) Distribution de l'iode stable dans l'environnement (généralités)

D'après Saas (1980), l'iode 129 de par longue demi-vie et son activité spécifique relativement faible (6 kg/Ci) se comporte dans l'environnement comme son homologue stable (¹²⁷I) avec lequel il entre en compétition. En conséquence, nous avons choisi de traiter de la distribution de l'iode stable, sujet pour lequel existe une bibliographie assez riche. Les éléments rapportés ne concernent que l'eau de mer et l'atmosphère, compartiments qui recueillent les radioéléments libérés avec les effluents de l'usine de retraitement de La Hague, les véhiculent et favorisent leur dispersion.

Particulièrement volatil, l'iode est très mobile dans l'environnement où sa répartition n'est pas uniforme : il est environ cinq fois plus abondant dans la lithosphère (partie solide de la sphère terrestre) que dans l'eau des océans. Cependant, dans l'eau de mer, l'iode semble provenir essentiellement de l'érosion terrestre, et dans la biosphère il dérive principalement des océans par la voie de l'atmosphère.

Cette volatilisation depuis l'eau de mer, aspect le plus significatif de sa géochimie, classe l'iode parmi les éléments " atmosphile " en plus de la description qui en est faite sous la forme d'élément biophile et hydrophile (Fuge R., 1989).

- **L'iode et l'eau de mer...**

Dans l'eau de mer, l'iode est présent à une concentration moyenne de 60 µg.L⁻¹. D'après Ancellin *et al.* (1979), l'iode est essentiellement sous formes anioniques solubles à l'état de valence I (iodure ; I⁻) ou V (iodate ; IO₃⁻). D'autres formes sont présentes mais à l'état de traces. Tsunogai et Sase (1969) avancent que la forme chimique qui prédomine est l'iodate puisqu'elle est la plus stable d'un point de vue de la thermodynamique.

Cependant, la température, la lumière et l'activité biologique sont des facteurs qui influent sur les formes chimiques de l'iode dans l'eau de mer. Ainsi, Tsunogai et Sase (1969) ont suggéré que dans les eaux de surface, l'iodate était convertit en iodure par l'action du soleil mais aussi par des

organismes utilisant des enzymes réductrices des nitrates. Dans les eaux de surface, l'iode représenterait 50 % de l'iode total (Lebourgeois V., 1997).

Les variations spatiales sont quant à elles attribuées à des facteurs terrestres (érosion des sols), à l'activité biologique, à l'adsorption sur des métaux oxydants et aux échanges avec les sédiments (Lebourgeois V., 1997).

- **L'iode et l'atmosphère...**

Dans l'atmosphère, plusieurs contributions doivent être envisagées.

D'une part, le recyclage de l'iode présent dans l'eau de mer par évaporation. Miyake et Tsunogai (1963) ont estimé que $5 \cdot 10^{11}$ g d'iode étaient transférés chaque année des océans à l'atmosphère après oxydation photochimique des iodures en iode volatil (I_2). Cependant, Whitehead (1984) partage l'idée que la plupart de l'iode transféré à l'atmosphère l'est sous forme volatile organique tel CH_3I . Toujours est-il que les deux mécanismes majeurs qui conduisent à la formation d'iode volatil en milieu marin sont l'oxydation photochimique de I⁻ en I_2 et la formation de CH_3I due à l'activité microbologique et à celles des algues (Stephenson *et al.*, 1995).

Concernant la fraction d'iode transféré de l'océan à l'atmosphère marin, Kocher (1981) estime que le ratio est de l'ordre de 0,0015/an et Wrong (1991) l'évalue plutôt à 0,00012/an si l'on tient compte de l'ensemble des mécanismes de transfert.

D'autre part, il est probable que des quantités appréciables d'iode soient recyclées du sol, des plantes et des eaux terrestres par volatilisation (Fuge R., 1989). Les aérosols terrestres peuvent aussi contribuer à la présence d'iode dans l'atmosphère par la remise en suspension de fines particules de sol contenant de l'iode (Hirofuni *et al.*, 1990).

D'après un rapport de l'OCDE sur l'Energie Nucléaire (AEN, 1980), les concentrations en iode dans l'atmosphère varient entre 1 et 2500 ng/m³ ; la majorité des valeurs sont comprises entre 1 et 10 ng/m³. Cependant dans la région normande, Saas (1981) indique que la teneur en iode de l'air atteint 0,6 à 1 µg/m³ (la moyenne oscillant entre 0,1 et 0,3 µg/m³) durant les périodes, avril-mai et septembre-octobre, propices à la volatilisation depuis le sol.

Il faut noter que les pluies modifient la distribution de l'iode élémentaire (à l'état de vapeur) présent dans l'air. A ce sujet, les approches théoriques diffèrent selon que l'on admet ou non la réversibilité de la captation du gaz par les gouttes de pluies.

D'après une étude expérimentale du lavage de l'iode par la pluie (Caput *et al.*, 1993), tout se passe comme si la captation de l'iode élémentaire par les gouttes de pluie (en iodures non volatils) était irréversible. Ces mêmes auteurs précisent que ce phénomène pourrait être liée à la composition de l'eau de pluie et en particulier à son contenu en substances réductrices.

De plus, des travaux menés par Muramatsu et Ohmomo (1988) sur l'iode radioactif dans les pluies suggèrent que l'iode est essentiellement présent sous les formes chimiques IO_3^- et I^- , et que IO_3^- évolue lentement vers la forme chimique I^- (Fuge R., 1989).

Concernant les teneurs en iode de l'eau de pluie, Saas (1981) indique qu'en France la " normalité " est comprise entre 0,5 et 2,0 $\mu\text{g/L}$ à une distance de 50 km du bord de mer. Plus à l'intérieur des terres, à Cadarache (Bouches-Du-Rhones), Fournier-Bidoz *et al.* (1992) ont obtenu, d'octobre 88 à juin 90, des concentrations comprises entre 0,5 et 5,4 $\mu\text{g/L}$ (l'essentielle des teneurs étant inférieures à 3,6 $\mu\text{g/L}$). En revanche, les teneurs apparaissent plus élevées en bord de mer, elles peuvent atteindre 10 à 12 $\mu\text{g/L}$ pour la frange littorale du Cotentin (Saas A., 1981).

Par ailleurs, à partir de l'étude des transferts de l'iode contenu dans l'atmosphère au sol via les pluies, Bachhuler et Bunzl (1992) constatent que l'iode stable est déposé principalement depuis les hauts niveaux de la troposphère, de manière similaire au ^7Be et au ^{137}Cs issu des essais atmosphériques de l'arme atomique. Ces mêmes auteurs, constatent une absence de variation saisonnière dans les dépôts d'iode stable qui indiquerait que cet isotope, à la différence de ^7Be et de ^{137}Cs issu des essais atmosphériques de l'arme atomique, n'est pas transféré périodiquement de la stratosphère à la troposphère.

II) Les mousses terrestres, indicateurs de contamination radioactive

II 2) Généralités sur les bio-indicateurs

La détection et le dosage directs dans l'atmosphère de polluants posent souvent les problèmes des moyens analytiques, en raison des faibles concentrations observées, et des interprétations eu égard à la variabilité des concentrations dans le temps. C'est pourquoi, il est généralement fait recours à des organismes vivants, appelés bio-indicateurs, capables de concentrer le ou les polluant(s) recherché(s) et stabiliser les teneurs dans le temps.

Cette utilisation, destinée à évaluer l'importance d'une pollution, n'est pas récente, et de nombreuses études ont été et sont réalisées à ce sujet ; soit dans l'optique de déterminer un indice synthétique de la qualité d'un écosystème (à partir des observations de modifications de la nature et de la structure d'une communauté), soit dans le but d'évaluer précisément la charge en polluants d'un écosystème (à partir des concentrations mesurées dans l'espèce indicatrice).

Parmi les bio-indicateurs étudiés, les lichens et les mousses sont reconnus depuis longtemps pour leur capacité à capter les polluants atmosphériques (métaux lourds entre autres) ainsi que pour leur longue période de rétention de ces polluants, et ceci à un degré de concentration plus élevé que la plupart

des plantes vascularisées. Par exemple, les bryophytes ont été utilisées dès les années soixante en tant qu'indicateurs de la contamination radioactive liée aux retombées des essais atmosphériques de l'arme atomique (Bovard et Grauby, 1967).

L'avantage des mousses terrestres comme bio-indicateurs est d'ailleurs souligné par Sawidis et al. (1988) qui précisent qu'elles captent bien les polluants atmosphériques de par leur grande surface aérienne et par le fait qu'elles absorbent l'humidité de l'atmosphère susceptible de contenir différents radioéléments recherchés. Ce sont donc des bio-indicateurs appropriés à ces différents types de pollutions atmosphériques (Papastefanou et al., 1989).

II.2) Caractères généraux, aperçu systématique, phylogénie

On suppose que les bryophytes sont les premiers végétaux qui ont essayé de conquérir le milieu terrestre en cherchant à s'établir dans des endroits très peu ensoleillés et surtout à degré hygrométrique très élevé (Jahns H.M., 1989).

Une mousse est souvent caractérisée par un coussinet qui se présente sous l'aspect de tiges feuillées fixées au sol par de fins filaments cellulaires non chlorophylliens qui ne sont pas de véritables racines, aussi les appelle-t-on rhizoïdes.

Le terme mousse est plus communément utilisé pour définir l'ordre des Bryales (appartenant à la classe des Muscinées). On observe cependant deux formes principales : les formes thalloïdes (lames vertes) et les formes feuillées qui s'y opposent. Nous verrons que cette dernière forme ne représente qu'une faible partie des Bryophytes.

Dans son *guide des fougères, mousses et lichens d'Europe*, Jahns classe les bryophytes de la manière suivantes :

1) Classe des Anthocérotes.

Longtemps réunies aux Hépatiques, l'étude du sporophyte et surtout des organes reproducteurs a permis d'en faire une classe à part ; très peu d'espèces la compose.

2) Classe des Hépatiques.

Elle se subdivise en 4 ordres : les Sphaerocarpales, les Marchantiales, les Metzgeriales et les Jungermanniales qui constituent plus de 90% des Hépatiques.

Il existe dans cette classe des individus présentant deux formes : à lame thalloïde et à tige feuillée. Concernant les individus à tige feuillée, leurs feuilles n'ayant jamais de nervure médiane, ils ne peuvent être confondus avec les mousses feuillées de la classe des Muscinées.

3) Classe des Muscinées.

*Elle se subdivise en 3 ordres : les Sphagnales, les Andréales et les Bryales que nous appelons couramment les mousses (ex : *Bryum argenteum*) pour lesquelles l'identification des quelques 1500 genres est très délicate.*

II.3) Ecologie (d'après Jahns, 1989)

A quelques exceptions près, les Bryophytes sont des plantes terrestres. Ne possédant qu'une très mince cuticule protectrice, les mousses sont sujettes à la dessiccation et ont une prédilection pour les endroits humides et ombragés.

Elles possèdent la faculté de s'adapter à des milieux où l'éclairage est très faible (0,1% de la lumière incidente du jour est suffisante). Dépourvues de véritables racines, les mousses absorbent l'eau sur toute la surface de leurs feuilles, de leurs tiges ou de leur lame thalloïde.

Pour se protéger de la dessiccation, certaines mousses se resserrent au fur et à mesure qu'elles perdent de l'eau, entraînant ainsi un raccourcissement des faces exposées. D'autres stockent de grandes quantités d'eau dans le coussinet (ex : les *Sphaignes*) et peuvent la relarguer dans les milieux ambiants agissant ainsi comme des régulateurs d'eau.

III) Etude préliminaire ; validation d'une mousse terrestre comme bio-indicateur

III.1) Définition du programme et des moyens

Pour réaliser la cartographie dans les meilleures conditions, il convenait de s'interroger sur les qualités bio-indicatrices de la mousse terrestre initialement retenue, *Bryum argenteum*⁴, sans pour autant les démontrer à nouveaux.

Plus simplement, *Bryum argenteum* était-elle toujours présente dans la région étudiée avec une aire de répartition et une abondance sur site suffisantes pour mener cette nouvelle étude ?

Dans le cas contraire, une (de préférence) ou plusieurs espèces de mousses terrestres présentes dans la région de La Hague et palliants au(x) défaut(s) de *Bryum argenteum* devaient être recherchées.

Pour évaluer les qualités de bio-indicateur d'une mousse terrestre, cinq critères ont été retenus : l'ubiquité (ou l'aire de répartition), l'abondance (ou la quantité disponible sur les sites), la détermination aisée du genre et de l'espèce (ou la reconnaissance), la concentration du ou des polluant(s) recherché(s) (ou l'accumulation) et, dans une moindre mesure, la simplicité d'analyse.

Pour apprécier les qualités de bio-indicateur d'une mousse en regard de chacun des critères retenus, l'étude préliminaire s'est appuyée sur l'expérience du laboratoire, sur deux campagnes dites "de reconnaissance" menées sur site et sur les conseils de différents spécialistes en bryologie. Les bryologues consultés étaient : le Docteur S. Deperrier et le Professeur A. Lecointe du laboratoire de botanique et de phytogéographie de l'université de Caen, le Professeur J. Touffet du laboratoire de botanique de l'université de Rennes, le Professeur Bardat du Muséum d'Histoire Naturelle de Paris et M. R.B. Pierrot auteur de " Les Bryophytes du centre-ouest : Classification, Détermination. ".

III.2) Abandon de *Bryum argenteum*

Parmi les critères évoqués précédemment, si les deux derniers ont pu être appréciés lors de la participation du laboratoire à l'étude réalisée par la CRIIRAD (1995), en revanche, il convenait de préciser la " réponse " de *Bryum argenteum* vis à vis des autres.

⁴ Bio-indicateur utilisé par la CRII-RAD pour l'étude menée dans le cap de La Hague fin 1994.

Dans un premier temps, des prélèvements ont été réalisés sur plusieurs sites au cours d'une campagne dite " de reconnaissance " ; opération nécessaire pour se familiariser avec la région de La Hague puisque la réalité du terrain est un facteur souvent très limitant pour ce type d'étude.

Sur sept stations de prélèvements (situées dans le quart nord-est par rapport à l'usine COGEMA La Hague) jugées abondantes et complémentaires⁵, des échantillons de mousses représentatifs des peuplements présents ont été collectés. Typées au laboratoire de botanique et de phytogéographie de l'université de Caen par le Dr Sandrine Deperrier, les espèces retrouvées sont présentées en [annexe 2](#).

Il apparaît que sur les quatorze espèces répertoriées, *Bryum argenteum* n'est pas identifié.

L'inventaire des différentes espèces de mousses prélevées ne pouvant être que partiel, *Bryum argenteum* aurait pu être à nouveau recherché. Mais, il ressort des multiples entretiens que *Bryum argenteum* semble se rencontrer de plus en plus rarement et en quantité insuffisante /J. Touffet/ surtout dans la région de La Hague /S. Deperrier/.

En conséquence, *Bryum argenteum* a été abandonné au profit d'une autre mousse terrestre pour des raisons d'aire de répartition et d'abondance sur le lieu étudié ; critères fixés pour définir les qualités d'un bio-indicateur dans le cadre de la présente étude.

III.3) Sélection d'une mousse terrestre : *Homalothecium sericeum*

Dans un premier temps, une présélection a été faite parmi les quatorze espèces recensées lors de la campagne de reconnaissance ([annexe 2](#)).

En fonction de la probabilité d'apparition de chacune des espèces et des choix fait pour l'étude menée par l'ADEME⁶ et l'université Pierre et Marie Curie (Paris VI), les six espèces suivantes ont été retenues : *Tortulas muralis*, *Homalothecium sericeum*, *Hypnum cupressiforme*, *Grimmia pulvinata*, *Scleropodium purum* et *Ceratodon purpureus*.

Après consultation des différents bryologues, quatre espèces ont été rejetées du fait de la difficulté dans la reconnaissance du genre et/ou de l'espèce (par des non spécialistes) et, du manque d'abondance sur site. Les espèces éliminées sont :

- 1) *Tortula muralis* : espèce annuelle ou bisannuelle, très polymorphe en fonction de l'hygrométrie et rencontrée généralement en faible quantité.

⁵ Situation géographique et exposition différentes.

⁶ Etude de la qualité de l'air menée de juin à novembre 1996 par l'ADEME et l'université Pierre et Marie Curie (Paris VI) sur le territoire français ; mesure des dépôts atmosphériques des métaux lourds à partir de mousses terrestres de l'espèce : *Pleurozium schreberi*, *Hylocomium splendens*, *Hypnum cupressiforme* ou *Scleropodium purum*.

- 2) *Ceratodon purpureus* : cosmopolite mais très polymorphe (difficilement identifiable) ; elle paraît se développer dans des milieux écologiques assez particuliers (ex : sur les cendres après les incendies).
- 3) *Hypnum cupressiforme* : ubiquiste mais très polymorphe ; elle présente un grand nombre de sous espèces et de variétés (vivants sur des milieux écologiques différents) et pose un problème de détermination sur le terrain , même pour des bryologues.
- 4) *Grimmia pulvinata* : généralement présente en faible quantité, elle est très difficile à déterminer.

Dans un second temps, une nouvelle campagne de reconnaissance a été envisagée afin de préciser (dans la région étudiée) pour *Homalothecium sericeum* (espèce saxicole) et *Scleropodium purum* (espèce terricole), outre la fréquence d'apparition et l'abondance moyenne par site, s'il y avait accumulation ou non du radioélément recherché (¹²⁹I).

Cette campagne est intervenue le 18 mars 1998 après formation⁷ de l'équipe à la reconnaissance phylogénétique des mousses *Homalothecium sericeum* et *Scleropodium purum* ; étape nécessaire pour réduire l'incertitude sur la détermination.

Treize stations, localisées au nord de l'usine Cogéma-La Hague (de Hameau Sanson - à l'Ouest - à l'Epine Due - à l'Est -), ont été étudiées. Pour trois d'entre elles, situées sous les vents dominants et par conséquent susceptibles d'avoir été influencées par les rejets d'effluents gazeux (CRIIRAD, 1995), des mousses ont été collectées en vue de la recherche de ¹²⁹I par spectrométrie gamma Ge pur.

L'inventaire (figure 3) souligne que *Homalothecium sericeum* et *Scleropodium purum* ont été retrouvées respectivement, huit et trois fois avec une abondance par station généralement forte⁸. Concernant la recherche de l'iode 129, un marquage de chacune des mousses (analysées) a pu être mis en évidence.

Finalement, il a été décidé de poursuivre avec une seule espèce afin de limiter les biais possibles. Dans ce contexte, *Homalothecium sericeum* a été préférée à *Scleropodium purum* pour étudier la répartition de l'iode 129 car elle présente une fréquence d'apparition plus importante et une meilleure distribution géographique.

⁷ Formation au sein du laboratoire de botanique et de phytogéographie de l'université de Caen par le Dr. Sandrine Deperrier.

⁸ Sur le terrain, sept prélèvements de mousses s'apparentant à *Scleropodium* ont été effectués. Cependant, pour quatre d'entre eux, l'espèce retrouvée n'était pas *Scleropodium*, mais *Brachythecium* et d'*Eurynchium* qui appartiennent à un même groupe taxinomique. (Brachythéciacés).

IV) Etude de la répartition spatiale de l'iode 129 dans l'environnement proche de l'usine de retraitement de La Hague

IV.1) Matériel et méthodes

Le secteur étudié se situe dans le Nord-Cotentin (département de la Manche), région de La Hague, et correspond à l'environnement proche de l'usine de retraitement des combustibles irradiés.

Dix huit stations de prélèvement (réparties sur quinze secteurs) ont été sélectionnées dans un rayon de 5 km autour de l'usine (figure 1) et une station a été retenue dans la région caennaise (département du Calvados) pour servir de référence.

L'espèce indicatrice retenue est la mousse terrestre *Homalothecium sericeum* (espèce ubiquiste). Les mousses ont été prélevées les 6 et 7 avril 1998 après détermination *in situ* ; la validation a été faite a posteriori par le Dr. Sandrine Deperrier du laboratoire de botanique et de phytogéographie de l'université de Caen.

Sur le terrain, les échantillons ont été collectés sur des murs de pierres (exposition essentiellement verticale) à une hauteur moyenne de 1,5 m et sur une superficie de l'ordre de 0,5 m².

Au laboratoire, les mousses ont été stockées (1 semaine maximum) au réfrigérateur à 4°C dans l'obscurité en attente de traitement.

Après avoir été séchée à l'air libre pendant quelques heures et soigneusement brossée, seule la partie aérienne (verte) a été conservée pour analyse. Trié et légèrement tamisé (maille carré 0,5 mm) afin d'éliminer au maximum les parties indésirables (fragments de support, grain de sable, etc.), chaque échantillon a ensuite été séché⁹ à 60°C en étuve ventilée jusqu'à l'obtention d'un poids sec constant. A l'issue du séchage, une quantité d'environ 8,5 g de matière sèche a alors été conditionnée (en l'état) dans une géométrie¹⁰ de 50cc pour analyse.

La mesure de ¹²⁹I et des autres radioéléments émetteurs gamma éventuellement présents (¹³⁷Cs, ⁷Be, ⁴⁰K et ²¹⁰Pb) a été effectuée par spectrométrie gamma sur les raies d'émissions rapportées dans le tableau 7.

La chaîne d'analyse comprenait un détecteur (ORTEC) au germanium hyperpur coaxial type N, efficacité 32%, monté dans un cryostat vertical, et l'analyseur était un système d'acquisition numérique " DSPEC " (ORTEC).

Concernant les résultats, ils ont été obtenus après 20 heures de comptage (minimum).

⁹ consignes de séchage en accord avec la norme NF M 60-780-4.

¹⁰ référence 9AC-ETL5, distributeur LMRI.

Seules les activités supérieures à la limite de détection de la chaîne d'analyse sont exprimées ; dans le cas contraire, la limite de détection précédée du signe "<" est rapportée. L'activité de chaque radioélément présent dans l'échantillon a été exprimée en becquerel par kilogramme sec (Bq/kg sec), suivi de son incertitude absolue calculée pour un intervalle de confiance de 95%. Toute activité donnée a été rapportée au jour de prélèvement.

Tableau 7: raies et pourcentages d'émissions retenus pour la détermination des radionucléides, présents dans les échantillons, par spectrométrie gamma.

Isotopes	Energie (en kev)	Taux d'émission (%)
⁷ Be	477,6	10,4
⁴⁰ K	1460,8	10,7
²¹⁰ Pb	46,5	4,1
¹²⁹ I	29,4 + 29,8	57
¹³⁷ Cs	661,7	85,2

Concernant le mesurage de l'iode stable (¹²⁷I), il a été effectué par le Laboratoire d'Analyses de Brest Océan¹¹ sur les aliquotes comptées en spectrométrie gamma.

Après calcination à 500°C en milieu carbonate puis reprise par H₂O, l'iode a été dosé par méthode calorimétrique au sel sérique (cf. [Norme NF 90021](#)).

- **Remarques sur les mesures**

Habituellement, la méthode analytique (mise en œuvre au sein du laboratoire) pour la mesure des échantillons de faibles densités fait appel à une intrusion en gel dans le but d'obtenir une densité finale de 1 puisque les résultats (Bq/kg sec) sont obtenus par comparaison des taux d'émissions avec un étalon liquide de densité 1.

Le peu de quantité disponible et la nécessité de conserver les caractéristiques initiales de chaque échantillon pour le dosage de l'iode stable ont fait que la méthode citée avant n'a pas été employée. Aussi, pour que les résultats restent parfaitement comparables entre eux, la mesure des radioéléments émetteurs gamma a été effectuée sur des échantillons de densité proche (densité moyenne de 0,165).

Cependant, cette différence de densité entre étalon et échantillons mesurés conduit vraisemblablement à surestimer les activités obtenues ; surtout dans le cas de l'iode 129 (émetteur gamma de faible énergie).

Pour les résultats d'iode total, l'incertitude associée à la mesure n'a pas été calculée. Il convient de signaler que pour une prise d'essai de 5 g d'échantillon, la sensibilité était de 0,5 mg/kg, et pour une teneur supérieure à 5 mg/kg, la précision était de ± 10% (communication du laboratoire Brest-Océan).

¹¹ 120 rue A. De Rochon - BP 52 - 29280 PLOUZANE.

IV.2) Résultats et discussion

- **Analyses des données brutes**

Dans la région de La Hague, l'iode 129 est fréquemment détecté (15 échantillons sur 19) et les activités mesurées sont comprises entre 10,7 et 99 Bq/kg sec ([annexe 1](#)).

A titre de comparaison, l'échantillon témoin prélevé dans le Calvados (région caennaise) ne présente pas d'activité significative en iode 129 ($L_d = 9,2$ Bq/kg sec).

Concernant l'environnement de l'usine de retraitement, il est possible de distinguer quatre zones en fonction des activités relevées ([figure 2](#)) :

- 1) La première zone, définie par le quart Nord-Est, se caractérise par des activités comprises entre 20 et 50 Bq/kg sec. Sur huit stations étudiées, seule celle située à 5 km à l'Est (Eculleville) ne présente pas de marquage par ^{129}I .
- 2) La deuxième zone, définie par l'axe Sud-Ouest, se distingue par la présence de la valeur maximale : 99 Bq/kg sec mesuré à Calais le Mesnil, station située à environ 1 km de l'usine.
- 3) La troisième zone, définie comme le Sud affranchie de l'axe Sud-Ouest, se caractérise par des activités significatives globalement inférieures à 20 Bq/kg sec.
- 4) La dernière zone, définie par l'axe Nord-Ouest, se singularise par l'absence d'activité significative au droit de chacune des stations étudiées.

Par ailleurs, l'orientation des mousses ne paraît pas avoir de répercussion importante sur les niveaux d'activités enregistrés si on se réfère aux valeurs obtenues pour les prélèvements doubles¹² effectués à Hameau Grainval et Omonville la Rogue.

Pour le site de Digulleville, l'état des mousses, très variable d'une station de prélèvement à l'autre (communication de l'équipe de prélèvement), pourraient expliquer en partie les différences relevées.

En plus de ^{129}I , le césium 137 est l'unique radioélément artificiel émetteur gamma à être décelé. Sur les dix-neuf échantillons analysés, seuls quatre (prélevés dans la région de La Hague) présentent un marquage par ce radioélément et l'activité mesurée est alors comprise entre 13 et 27 Bq/kg sec ([annexe 1](#)).

A titre de comparaison, l'échantillon témoin prélevé dans le Calvados (région caennaise) ne présente pas non plus d'activité significative en césium 137.

Concernant l'iode total, il a pu être quantifié pour dix-sept échantillons sur dix-neuf. Les teneurs sont comprises entre 0,03 et 3,6 mg/kg. Cependant, la présence d'insolubles en quantité variable d'un

¹² Prélèvements espacés d'environ 200 m et concernant des expositions différentes.

échantillon à l'autre a vraisemblablement conduit à rendre les résultats hétérogènes. Pour certains échantillons, la reproductibilité du résultat n'a pu être obtenue (communication du laboratoire Brest-Océan).

Par conséquent, les résultats d'iode total ont été jugés inexploitable (voir résultats en [annexe 1](#)) et il n'a pas été possible de recourir à un système normalisé ($^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$).

- **Comparaison des teneurs à celles obtenues par le passé**

Comme évoquée en introduction, une campagne de mesure similaire avait déjà eu lieu fin 1994 (CRIIRAD, 1995) en collaboration avec l'ACRO.

A cette époque, l'indicateur retenu était *Bryum argenteum* chez lequel ^{129}I (de 5,3 à 103 Bq/kg sec) et ^{137}Cs (de 14,2 à 292 Bq/kg sec) avaient pu être mis en évidence avec une fréquence de détection respectivement de 80% et de 100%.

Trois ans après, on constate que l'iode 129 est toujours décelable à des teneurs qui restent très comparables. En outre, la distribution spatiale des activités apparaît également en bonne cohérence. En revanche, il en est autrement pour ^{137}Cs puisqu'en avril 1998 il est rarement détecté (4 éch. sur 19) et que les teneurs significatives n'excèdent pas 27 Bq/kg sec soit 1/10^{ème} de la plus forte valeur enregistrée par la CRIIRAD fin 94. Cette baisse notable des teneurs en ^{137}Cs pourrait éventuellement s'expliquer par une réduction des quantités rejetées avec les effluents gazeux (3,90.10⁵ Bq en 1994 contre 6.10⁴Bq en 1997 selon les données COGEMA), mais également à partir des espèces sélectionnées puisqu'il ne s'agit pas des mêmes.

- **Note sur l'origine de l'iode 129 et du césium 137**

Dans la zone littorale étudiée, l'usine de retraitement des combustibles irradiés de La Hague, avec ses rejets d'effluents radioactifs est la principale source industrielle de radionucléides artificiels.

La frange côtière autour de l'installation peut donc se trouver influencée par les rejets marins et atmosphériques.

De plus, dans le cas du césium 137, il y a lieu de tenir compte des retombées des anciens essais atmosphérique de l'arme atomique et, dans une moindre mesure, de celles de l'accident de Tchernobyl. En effet, ces termes sources ont conduit pour le ^{137}Cs , à la différence de ^{129}I , à un marquage de l'environnement (sur de grandes étendues) parfaitement décelable, même encore aujourd'hui.

Dans le cas d'un transfert de radionucléides du milieu marin au milieu terrestre, il est important de souligner que la " micro-couche " d'eau située à l'interface océan/atmosphère peut être considérée comme un " réservoir " de radionucléides, quelles que soient leurs origines, pouvant alimenter des transferts via les aérosols et embruns marins (Frazier *et al.*, 1982). L'accroissement de la radioactivité

de la frange côtière en relation avec le marquage industriel du milieu marin contigu a déjà été démontré pour le césium 137 (et d'autres radionucléides).

Pour l'iode 129 rejeté avec les effluents liquides en mer, si aucune étude (en notre possession) ne confirme le transfert de ce radioélément suivant le processus évoqué précédemment, son recyclage dans la biosphère et finalement son retour sur le milieu terrestre (par transfert depuis l'eau de mer via l'atmosphère) peut être raisonnablement avancé à partir des informations tirées de la littérature sur l'iode stable (voir Ch. I.5).

Dans ce cas de figure, deux facteurs devraient être prépondérants. D'une part, la dilution isotopique puisque l'iode 129 rejeté avec les effluents liquides se trouve mélangé à de l'iode 127 présent à une concentration importante ($60 \mu\text{g.L}^{-1}$). D'autre part, l'évolution des formes chimiques de l'iode 129 puisque Miyake/Tsunogai (1963) et Whithehead (1984) ne partagent pas la même opinion sur la forme chimique de l'iode 127 préférentiellement transférée à l'atmosphère par volatilisation.

Finalement, les radionucléides mis en jeu sont susceptibles de marquer l'environnement étudié par l'intervention de différentes voies de transfert avec recyclage éventuel, ce qui complique l'analyse de leur origine (effluent gazeux et/ou liquide).

Cependant, pour l'iode 129 (d'origine industrielle ; usine de retraitement), si l'hypothèse d'un marquage partiel des mousses terrestres par des radionucléides provenant des rejets d'effluents liquides en mer ne peut être écartée en l'absence de données, en revanche, les rejets d'effluents gazeux resteraient le terme source privilégié d'après l'étude réalisée par la CRIIRAD (1995). Ce qui semblerait être confirmé par les mesures faites par le SPR Cogéma-La Hague sur l'herbe prélevée en deux points (l'un au nord-est, l'autre au sud-ouest) situés à 1 km de l'usine et sous les vents dominants (voir figure 6). En effet, on constate qu'à partir de 1996 les teneurs mesurées dans l'herbe diminuent tout comme les quantités rejetées avec les effluents gazeux alors que celles évacuées en mer avec les effluents liquides restent sensiblement les mêmes pour la période concernée.

- **Note sur la distribution spatiale de ^{129}I et sur quelques facteurs influents**

Dans le contexte d'un marquage par des rejets d'effluents gazeux, outre les caractéristiques physiques de l'élément et les qualités du rejet, les conditions climatiques vont jouer un rôle déterminant dans la distribution spatiale de l'élément.

Sur le plateau de La Hague, zone étudiée, le climat océanique se caractérise pour les deux dernières années¹³ par des précipitations plus fréquentes qu'abondantes (moyenne journalière de 2,3 mm) et

¹³ Du 01/01/96 au 31/12/97.

Nota : Pour le césium 137 d'origine multiple, l'absence d'un marquage significatif pour les stations les plus proches de l'usine COGEMA La Hague et sous les vents dominants ne permet pas de justifier d'une contribution des rejets d'effluents gazeux.

des vents (moyens et forts) soufflant presque constamment ([annexe 3](#)). Concernant la rose des vents (de 1992 à 1997), trois zones dominantes sont constatées par tous temps alors que par temps de pluie, une seule direction domine : du sud-ouest vers le nord-est.

Pour l'iode 129, la distribution spatiale des activités présente une bonne concordance avec la rose des vents. Les activités les plus importantes se situent dans la zone des vents dominants (au nord-est de l'usine), et l'axe nord-ouest qui se singularisait par l'absence d'activités significatives correspond à la direction où la fréquence des vents est la plus faible. Cette observation principale confirme bien l'origine dominante de l'iode 129 mesuré comme le produit des rejets d'effluents gazeux de l'usine de retraitement.

Cependant, quelques "irrégularités" doivent être soulignées. Il s'agit de la variation des teneurs mesurées à Digulleville, mais aussi et surtout de la faible décroissance des niveaux de ^{129}I en fonction de l'éloignement à l'émissaire (essentiellement pour l'axe nord-est).

Ces "anomalies", qui peuvent traduire des différences de sorption en fonction de paramètres physiques comme la topographie ou biologique comme l'état des mousses (et leur âge), soulignent la nécessité de prendre en compte de multiples facteurs.

1. D'abord, l'absence de pseudo régime permanent des conditions météorologiques et donc l'absence de trajectoires "résiduelles" que la rose des vents pourrait traduire de façon plus claire.
2. Puis, la longue demi-vie de l'iode 129 qui nécessite de prendre en compte les phénomènes éventuels d'intégrations. Or, à cet égard, il n'a pas été possible de dater les mousses prélevées.
3. Mais encore, les précipitations qui sont, dans la région de La Hague, plus fréquentes qu'abondantes. Des études récentes (Caput *et al.*, 1992 ; Fournier-Bidoz V., 1992) montrent à quel point les pluies sont susceptibles, par lavage, de modifier la distribution de l'iode élémentaire à l'état de vapeur ([figure 5](#)).
4. En outre, il y a également nécessité de s'interroger sur un phénomène propre au cap de La Hague, à savoir la grande fréquence des brouillards persistants qui n'a toujours pas reçu un intérêt particulier dans le cadre des études de dispersion des radioéléments et autres polluants. Guénot *et al.* (1981) ont montré qu'en présence d'air humide, la vitesse de dépôt de I_2 est multipliée par 10 comparativement à celle obtenue en présence d'air sec. Ces mêmes auteurs ont également avancés l'existence d'un mécanisme d'adsorption dépendant de l'humidité dans l'air qui, lorsque celle-ci est élevée, transforme la surface foliaire en « piège quasi parfait ».
5. Et finalement, les formes chimiques de l'iode présentes dans l'atmosphère et leurs évolutions dans le temps ([figure 4](#)) qui vont jouer un rôle sur le comportement du radionucléide. A titre d'exemple, la vitesse de dépôt de CH_3I est plus faible que celle de I_2 , comme cela a été démontré pour les grains riz (Yasuyuki *et al.*, 1996) mais également pour quelques végétaux comme l'herbe (Atkins *et al.*, 1967).

V) Conclusion

L'étude préliminaire de la répartition de l'iode 129 (radioélément principalement d'origine industrielle) a permis de souligner les limites d'utilisation d'une mousse terrestre du genre *Homalotecium sericeum* comme bio-indicateur. Bien que celle-ci paraissait adaptée à une telle étude, les quantités disponibles sont apparues insuffisantes pour obtenir une précision satisfaisante sur les mesures par spectrométrie gamma. De plus, certaines difficultés techniques liées au traitement de l'échantillon ont rendu les résultats des mesures d'iode total très hétérogènes et donc inexploitable. De ce fait, l'interprétation s'est trouvée limitée puisque le rapport $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ n'a pu être utilisé. De plus, l'absence d'information sur l'âge et les cinétiques de sorption et désorption de l'iode 129 par *Homalotecium sericeum* constitue un facteur limitant dans le cadre de l'utilisation de ce bryophyte pour traduire la qualité radiologique de l'air sur un laps de temps donné¹⁴.

Cependant, cette étude préliminaire a tout de même permis de donner une répartition spatiale de ce radioélément autour de l'usine de retraitement de La Hague (terme source) qui souligne l'existence de quatre zones géographiques en fonction des activités relevées. Les niveaux sont dans l'ensemble inférieurs à 99 Bq/kg sec ; valeur maximale décelée au sud-ouest de l'usine.

Si l'existence d'une bonne corrélation entre la rose des vents et la répartition spatiale des activités conforte l'idée d'une contribution majoritaire des rejets d'effluents gazeux, néanmoins, il n'est pas possible, à partir des données acquises, de préciser l'importance prise par l'iode 129 issu des rejets marins. Alors que la bibliographie montre, d'une part, que pour d'autres radionucléides tels que le césium 137 il est nécessaire de tenir compte du transfert du milieu marin vers le milieu terrestre, et que d'autre part, pour l'iode stable ^{127}I (analogue chimique) plusieurs voies de transferts avec recyclage doivent être considérées.

En outre, la présence d'anomalies dans la distribution spatiale par rapport à la rose des vents, principalement la faible décroissance des niveaux en fonction de l'éloignement, soulignent, en relation avec la bibliographie, que plusieurs facteurs sont à prendre en compte : la topographie, la fréquence des pluies et brouillards persistants, les formes chimiques de l'iode dans l'atmosphère (et leur évolution), l'absence de pseudo-régime permanent des conditions météorologiques... Tous ces facteurs vont modifier la distribution spatiale de l'iode 129 libéré avec les effluents gazeux et compliquent l'analyse que l'on peut faire de la répartition spatiale de cet élément.

Dans un avenir proche, il est souhaitable d'améliorer la connaissance que l'on peut avoir des transferts (et quantité) d'iode 129 du milieu marin au milieu terrestre, mais également, celle que l'on peut avoir des facteurs pouvant modifier la distribution spatiale de ce radionucléide ; surtout dans le cas de La Hague où les conditions environnementales sont particulières.

De plus, l'endroit où peut être mesurée la plus forte activité en ^{129}I (Calais le Mesnil dans le cadre de cette étude) et son évolution géographique en fonction des conditions météorologiques devront revoir un intérêt particulier.

Par ailleurs, si l'utilisation des mousses terrestres comme bio-indicateur peut paraître parfois délicate, ces bryophytes restent tout de même un indicateur de choix, couramment utilisé, pour renseigner sur la qualité de l'air. Ce type de mesure est nécessaire pour améliorer la connaissance théorique de l'impact des rejets d'effluents radioactifs. D'autant que l'iode 129 est aujourd'hui mesuré (dans La Hague) à des niveaux significatifs dans plusieurs compartiments et qu'il contribue significativement à la dose imputable aux rejets atmosphériques : environ 45% de l'exposition globale du groupe « agriculteur » à Pont Durand (nord-ouest) en 1996 (rapport du groupe de travail n°4 du Groupe Radioécologie Nord-Cotentin, 1999).

Rappelons, que les modèles théoriques utilisés pour le calcul des CTA (coefficient de transfert atmosphérique) sont très approximatifs et les validations expérimentales difficiles. Par exemple, à La Hague, les conditions de rejets (hauteur de cheminée) et météorologiques font que l'on est souvent en dehors du domaine de validité du modèle de Doury. On comprend alors tout l'intérêt des mesures dans l'environnement.

Aussi, il serait souhaitable de mettre en place pour quelques stations, choisies en fonctions des résultats de cette étude, un suivi régulier (éventuellement d'un autre bio-indicateur) pour apprécier l'évolution des teneurs dans le temps et noter les possibilités de corrélations avec des paramètres météorologiques. Dans ce contexte, *Homalotecium sericeum* devra être remplacé par un autre bio-indicateur offrant une meilleure abondance sur site et la possibilité de mesurer l'iode stable.

¹⁴ Beaugelin-Seiller (1994) a démontré, à partir d'études de décontamination réalisées à la suite de phases d'accumulation, que les bryophytes aquatiques n'élimineraient pas l'iode.

VI) Bibliographie

- 1) **Fraizier A. Masson M. et Guary J.C., 1977.** *Recherches préliminaires sur le rôle des aérosols dans le transfert de certains radioéléments du milieu marin au milieu terrestre.* J. Rech. Atmos., 11, n°1, pp. 49-60.
- 2) **Saas A. et Graubry A., 1977.** *Cycle de l'iode dans l'environnement.* In : Proceeding of a meeting on iodine 129, Paris, 13-16 juin 1977. pp. 15-31.
- 3) **Ancellin J., Guéguénat P. et Germain P., 1979.** *Radioécologie marine. Etude du devenir des radionucléides rejetés en milieu marin et application à la radioprotection.* 256 p. Paris : Eyrolles.
- 4) **AEN, 1980.** *Importance radiologique et gestion des radionucléides (tritium, carbone 14, krypton 85 et iode 129) produits au cours du cycle du combustible nucléaire.* Rapport de l'OCDE.
- 5) **Saas A., 1981.** *Géochimie de l'iode dans les principaux types de sols français.* C.R. Séances Acad. Agric. Fr., 21 janvier 1981. pp. 161-175.
- 6) **Fraizier A. et Baron Y., 1982.** *Radioactivité d'un secteur littoral de la manche. Données nouvelles sur les sources et transferts au continent par aérosols et embruns marins.* IPSN. Rapport CEA-R-5193.
- 7) **Pierrot R.B., 1982.** *Les Bryophytes du centre-ouest : Classification, Détermination.* Bulletin de la société botanique du centre-ouest.
- 8) **Sawidis T. et al., 1988.** *Uptake of radionuclides by plants after the Chernobyl Accident.* Environmental Pollution, 50, pp. 317-324
- 9) **Fuge R., 1989.** *The role of volatility in the distribution of iodine in the secondary environment.* Applied Geochemistry, 5, pp. 357-360.
- 10) **Jahns H.M., 1989.** *Guide des fougères, mousses et lichens d'Europe.* Ed Delachaux et Niestlé.
- 11) **Papastefanou et al., 1989.** *Lichens and mosses : Biological Monitors of Radioactive Fallout from the Chernobyl Reactor Accident.* J. Environ. Radioactivity, 9, pp. 199-207.
- 12) **Hirofumi Tsukada, Junichiro Ishida et Osamu Narita, 1990.** *Particle-size distributions of atmospheric ^{129}I and ^{127}I aerosols.* J. Atmospheric Environment, 25A, n°5/6, pp. 905-908.
- 13) **Bachhuber H. et Bunzl K., 1992.** *Background Levels of Atmospheric Deposition to Ground and Temporal Variation of ^{129}I , ^{127}I , ^{137}Cs and ^7Be in a Rural Area of Germany.* J. Environ. Radioactivity, vol.16, pp. 77-89.

- 14) **Caput C., Camus H., Gauthier D. et Belot Y., juin 1992.** *Etude expérimentale du lavage de l'iode par la pluie.* Radioprotection, vol 28, n°1, pp. 15-22.
- 15) **Fournier-Bidoz V., 1992.** *Contribution à l'étude du lavage de l'iode moléculaire gazeux par les pluies naturelles.* IPSN. Rapport CEA-R-5604.
- 16) **Beaugelin - Seiller K., 1994.** *Caractérisation de mousses dulçaquicoles comme indicateurs de contamination radioactive.* Thèse, Université Montpellier II, 244 p.
- 17) **CRII-RAD, 1995.** *Contrôle radiologiques dans l'environnement des installations nucléaires de la Hague.*
- 18) **Stephenson M. et Motycka M, 1995.** *Volatility of ^{125}I in Fresh Water.* J. Environ. Radioactivity. Vol. 28, n°3, pp. 295-311.
- 19) **Chant L.A., 1996.** *^{129}I and ^{36}Cl Concentration in lichens Collected in 1990 from Three Regions around Chernobyl.* Appl. Radiat. Isot., Vol. 47, No. 9/10, pp. 933-937.
- 20) **CSPI, Mai 1996.** *L'iode, son origine, ses rejets, son contrôle et son impact dans l'environnement.*
- 21) **OPRI (Office de Protection contre les rayonnements ionisants), 1997.** *Rapport d'activité – année 1996 -.* 363 p.
- 22) **Lebourgeois V. 1997.** *Le comportement de l'iode dans les organismes marins.* Mémoire de maîtrise, Université de Caen, 20 p.
- 23) **Yasuyuki Muramatsu, Shiegeo Uchida, Misako Sumiya et Yoichiro Ohmomo, 1996.** *Deposition velocity of gaseous organic iodine from the atmosphere to rice plants.* Health Physics Society, pp. 757-761.
- 24) **Guenot J., Caput C., Belot Y., Bourdeau F. et Angeletti L., 1981.** *Dépôt de l'iode sur les végétaux : influence de l'ouverture stomatique et de l'humidité relative.* Congrès de radioprotection sur l'impact radiologique des centrales et autres installations nucléaires sur l'homme et son environnement. Lausanne 30 sept. – 2 oct. 1981.