

ACRO

ASSOCIATION POUR LE CONTRÔLE
DE LA RADIOACTIVITÉ DANS L'OUEST

2012-2013

2015-2017

Etude des niveaux de radioactivité dans les environs du centre de stockage CSFMA de l'Aube

Volet 4 - Biosurveillance par les abeilles Analyses des produits de la ruche

Etude réalisée à la demande de la CLI de Soulaines



RAP(1)170929-CSA-v1

Version du 29/09/2017

Feuille Qualité :

DEMANDE	
Mission	Etude des niveaux de radioactivité dans les environs du centre de stockage de l'Aube (CSA) Volet 4 – Biosurveillance par les abeilles – Analyses des produits de la ruche (années 2012-2013 & 2015-2017)
Demandeur	CLI de Soulaines Domaine Saint-Victor 10200 Soulaines-Dhuys
Commande	Du 22/02/12

REALISATION	
Association pour le Contrôle de la Radioactivité dans l'Ouest 138 rue de l'Eglise 14200 HEROUVILLE SAINT CLAIR tél. : 02.31.94.35.34 / fax : 02.31.94.85.31	
Responsables Scientifiques	P. BARBEY, D. BOILLEY, M. JOSSET
Auteur(s)	M. JOSSET
Prélèvements	CLI de Soulaines
Traitement des échantillons	E. DUNAND, G. ROUGIER
Analyses	de M. JOSSET, G. ROUGIER radioactivité :

DOCUMENT	
Date d'édition	29/09/2017
Identification	RAP(1)170929-CSA-v1
Version n°	01
Nombre de pages	19
Objet	Rapport concernant le volet 4 : Biosurveillance par les abeilles – Résultats 2012- 2017
Paramètres	éléments radioactifs : Tritium, Cobalt-58, Cobalt-60, Strontium-90, Ruthénium-106, Argent-110m, Antimoine-124, Antimoine-125, iode-129, Iode-131, Césium-134, Césium-137, Américium-241 autres : Teneur Hydrogène lieu(x) : Centre de Stockage de l'Aube (CSA), Région de Soulaines-dhuys

REMARQUE(S) PARTICULIERE(S)	
de l'A.C.R.O. :	La reproduction du document n'est autorisée que sous la forme de fac-similé photographique intégral.

--

Sommaire

1. Préambule	4
2. Pourquoi s'intéresser aux abeilles ? (revue bibliographique).....	4
3. Présentation de l'étude menée autour du CSA.....	6
4. Résultats et commentaires.....	9
5. Synthèse et conclusion	11
6. Bibliographie	12
Annexe 1 : Méthodologie appliquée aux analyses	13
1. Analyses par spectrométrie gamma.....	13
2. Mesures de tritium organiquement lié (TOL)	13
Annexe 2 : Résultats détaillés.....	15
1. Résultats des mesures des radioéléments émetteurs gamma	15
2. Résultats des mesures du tritium organiquement lié (TOL)	18

Etude des niveaux de radioactivité dans les environs du centre de Stockage de l'Aube (CSA) - VOLET 4 : Biosurveillance par les abeilles (2012-2017)

1. Préambule

Dans le cadre de sa mission d'information, la CLI de Soulaines a mis en place en 2012 un suivi de l'environnement autour du centre de stockage de l'Aube (CSA). L'objectif était de poursuivre un premier bilan réalisé par la CLI en 2007 [1] afin :

- de suivre l'évolution des niveaux de radioactivité en renouvelant les mêmes analyses,
- d'élargir le référentiel à partir de nouvelles investigations.

A cette fin, un plan de surveillance et d'analyses a été proposé afin de répondre au mieux au cahier des charges demandé. Celui-ci se décompose en 4 volets :

1. Prélèvements et analyses d'échantillons prélevés dans les domaines terrestres et aquatiques du site du CSA et dans ses environs,
2. Mesures des niveaux d'irradiation (débit de dose) autour du périmètre du CSA, durant un jour d'activité du site et un jour d'inactivité,
3. Implantation de mousses aquatiques exogènes afin d'évaluer la qualité radiologique des eaux de surfaces (Noues d'Amances),
4. Utilisation des abeilles, et par extension des produits de la ruche, pour la surveillance radiologique de l'environnement.

La première phase de cette étude a été réalisée en 2012-2013 et a concerné plus spécifiquement la réalisation des trois premiers volets [2].

Ce rapport présente, quant à lui, les résultats obtenus dans le cadre du quatrième volet basé sur la bio-surveillance exercée par les abeilles, dont le suivi a été mené sur deux années de collecte (2012 et 2015).

Beaucoup d'études ont montré l'intérêt d'utiliser les colonies d'abeilles et les matrices apicoles dans l'évaluation des pollutions présentes dans l'environnement où elles butinent. Dans le domaine particulier de la radioactivité, ce volet de surveillance constituait une étude pionnière en France.

2. Pourquoi s'intéresser aux abeilles ? (revue bibliographique)

Les abeilles sont reconnues comme étant d'excellents indicateurs biologiques parce qu'elles signalent la dégradation de l'environnement dans lequel elles vivent par le biais par exemple des agents polluants que l'on peut retrouver sur leur corps et dans les produits de la ruche.

De nombreuses caractéristiques éthologiques et morphologiques font ainsi de l'abeille de véritables « sentinelles de l'environnement ». Pendant leur voyage, les butineuses récoltent les substances potentiellement polluées et interceptent sur leurs corps des particules aérodispersées sur une surface géographique définissable (pouvant atteindre 7 km²). Sachant qu'une ruche peut compter plusieurs

milliers de butineuses effectuant chacune un millier de voyage par jour, on peut évaluer l'activité d'une colonie à environ une dizaine de millions de micro-prélèvements par jour [3] [4].

Ainsi, l'abeille, via le butinage, est en contact avec un grand nombre de contaminants qu'elle peut accumuler dans la ruche. De nombreux travaux scientifiques montrent l'intérêt des abeilles dans l'évaluation des niveaux de pollutions chimiques dans l'environnement (pesticides, amiante, métaux lourds, hydrocarbure, etc.) [5] [6]. La matrice la plus représentative à cet égard est, en général, le pollen : celui-ci rassemble une proportion plus grande des contaminants auxquels est exposée la ruche.

Dans le domaine particulier de la radioactivité, des expériences dans de nombreux pays témoignent également de l'intérêt des abeilles dans la surveillance de l'environnement à partir de l'analyse des produits de la ruche (pollens, cire, miel, propolis) mais également des insectes eux-mêmes.

Ainsi, aux Etats-Unis, des réseaux de surveillance basés sur l'installation spécifique de ruches autour d'installations nucléaires ont été testés, comme par exemple autour du site nucléaire de Los Alamos (Nouveau Mexique) ou encore de Hanford (Washington), à partir des années 70.

Les matrices analysées sont les abeilles elles-mêmes ou le miel. Les éléments recherchés sont le tritium, le césium 137, le plutonium et d'autres radionucléides. Pour ce faire, les colonies d'abeilles sont placées en bordure du site ou sur celui-ci. A Los Alamos, un tel réseau de veille est resté en place pendant 17 ans, entre 1979 et 1995 [7] [8]. Il ressort de ces études que les abeilles conviennent bien au suivi de la radioactivité dans l'environnement. Par exemple, les concentrations en tritium qu'on y retrouve coïncident avec celles mesurées dans les eaux de surface ; en saison de butinage ces concentrations évoluent pour se rapprocher de celles de la végétation. Les concentrations en césium-137 sont également celles de la végétation du site. De ces études les auteurs concluent que les abeilles exposées à la radioactivité montrent, pour les différents éléments radioactifs mesurés, des concentrations représentatives des concentrations environnementales, celles de l'eau, de l'air et de la végétation notamment. [9].

Suite à l'accident de Tchernobyl, un projet de surveillance de la contamination environnementale a été mené par des chercheurs d'universités du Nord de l'Italie [10]. A cette fin, ont été prélevés et analysés des échantillons de pollen, de miel et d'abeilles provenant de ruches de plusieurs régions d'Italie. Les échantillons de miel montrent nettement la contamination présente, notamment dans les premiers mois suivant l'accident, par l'iode et par le césium. Les auteurs de ces études ont remarqué que la contamination du miel pouvait varier en fonction de l'origine botanique du miel dans la mesure où toutes les plantes ne retiennent pas les éléments radioactifs de la même façon. Les concentrations observées dans le pollen reflètent quand-à-elles fidèlement celles observées dans l'air. Contrairement au miel, le pollen apparaît comme une excellente matrice pour ce type d'études.

D'autres études comparatives sur différents produits de la ruche montrent également que le miel n'est pas forcément la meilleure matrice à utiliser. En effet, certains des éléments chimiques recherchés ne s'y accumulent pas et le miel apparaît moins contaminé que ne le sont les abeilles, ce qui laisse à penser que le processus dont il est issu pourrait comporter vis-à-vis de certains éléments chimiques un effet de filtre [11]. Des matrices telles que la cire et la propolis, qui restent dans la ruche plusieurs années de suite, sont quant à elles capables d'accumuler les éléments au fil du temps. Plusieurs études montrent enfin que le propolis présente les niveaux les plus élevés vis-à-vis des éléments chimiques surveillés [12] [13] [14].

3. Présentation de l'étude menée autour du CSA

L'élaboration et le suivi du projet a été réalisé en collaboration avec la CLI au travers notamment de son comité de pilotage. Plus particulièrement, l'implantation des ruches et la collecte des produits apicoles ont été réalisées par un apiculteur, membre de la CLI. L'étude présentée ici a été menée sur deux années de collecte (2012 et 2015).

Implantation des ruches et matrices retenues :

La première phase du suivi (2012) s'est intéressée à deux lieux existants d'implantation de ruches, situés respectivement à la Ville-aux-bois à une distance d'environ 1,5 km à l'Est du centre de stockage CS-FMA de l'Aube (CSA) et à environ 4 km au sud, non loin de l'entrée du CIRE¹ sur la commune de La Chaise. Miel, pollen et propolis ont pu être récoltés dans les ruches situées sur la commune de la Chaise. Pour des raisons techniques (absence notamment de pièges à pollen), seul le miel a pu être récolté dans les ruches situées à la ville-aux-bois.

Pour la seconde phase du suivi (2015), il est apparu intéressant d'implanter de nouvelles ruches à proximité du CSA. Celles-ci ont été installées près de l'étang-des-cailles, aux abords immédiats du site de l'ANDRA.

Afin de prendre en compte la variabilité des origines botaniques du miel, deux récoltes ont été réalisées : l'une en juin, privilégiant le miel de colza, la seconde en septembre correspondant au miel de tilleul. Le pollen quant à lui a été collecté régulièrement au cours de la saison d'activité des abeilles. La cire et propolis ont été collectées sur ces mêmes ruches en septembre.

A titre de comparaison, des miels de même nature ont été prélevés sur les mêmes périodes dans les communes de Juvanzé et Dosches, situées respectivement à 12 et 32 km du CSA.

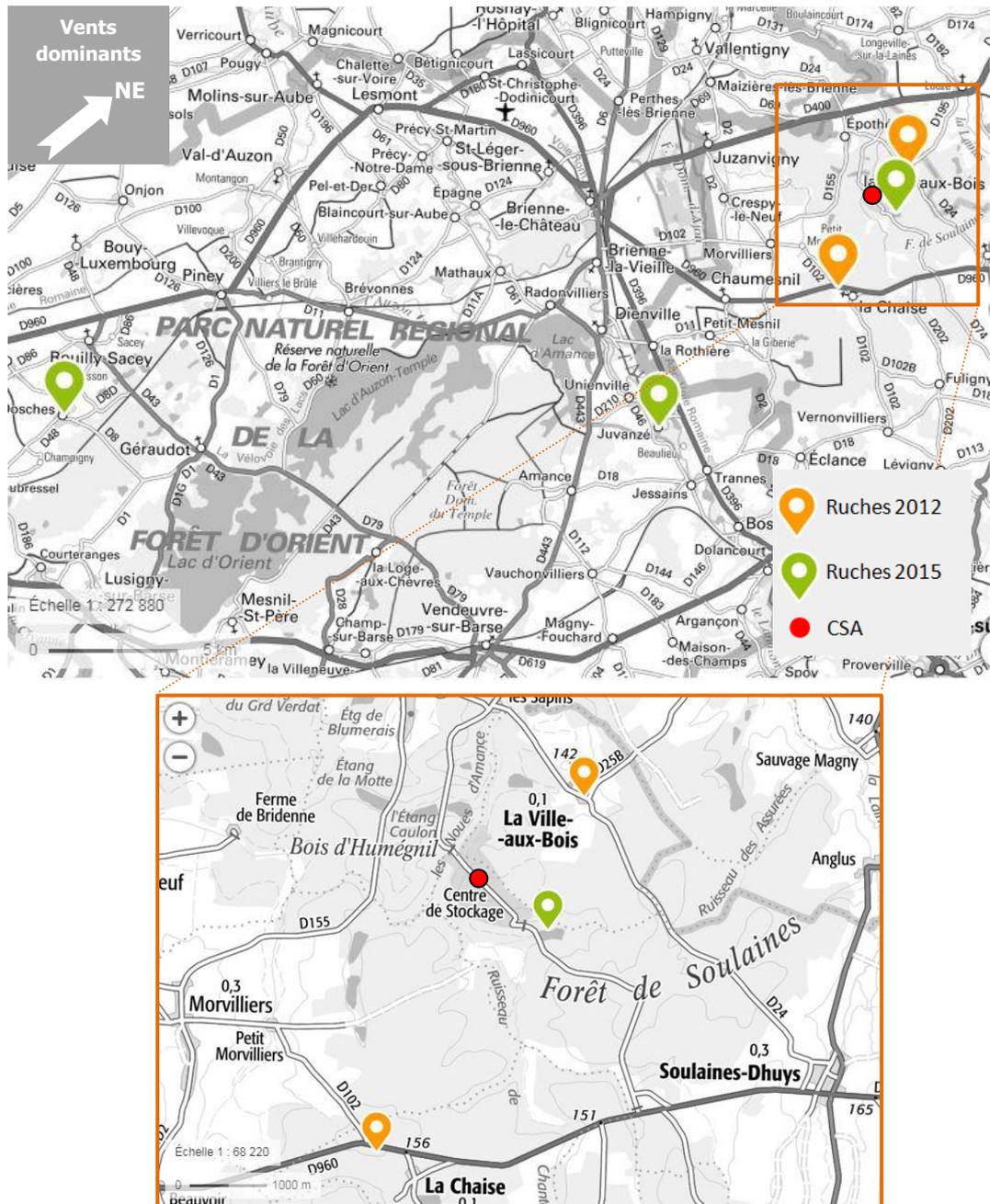
La localisation des ruches est présentée ci-après (figure 1).



Photo 1 : Ruches installées à la Ville-aux-bois (à gauche) et à la Chaise (à droite).

¹ Centre d'entreposage et de stockage des déchets radioactifs de très faible activité (TFA), géré par l'ANDRA.

Figure 1 : Carte générale puis détaillée de la localisation des ruches autour du CSA.



Analyses réalisées :

Pour l'ensemble des échantillons, il a été réalisé une recherche et un dosage des émetteurs gamma (naturels et artificiels).

La mesure du tritium, sous sa forme liée (TOL), a également été réalisée sur les échantillons de miel, de pollen et de cire. Cette mesure n'a pu être réalisée sur le propolis compte tenu d'une quantité disponible insuffisante.

Les analyses des radionucléides émetteurs gamma ont été réalisées au sein du laboratoire de l'ACRO, agréé pour ces mesures. Les mesures des teneurs en tritium organiquement lié (TOL) ont été, quant à elles, sous-traitées au laboratoire des sciences et du climat et de l'environnement (LSCE) en 2012 puis à l'institut de radioprotection et de sûreté nucléaire (IRSN), pour la deuxième campagne de collecte (2015). Les méthodes d'analyses utilisées et les références des laboratoires sont données en annexe.

Note concernant l'expression des résultats et leur interprétation :

La quantification des éléments radioactifs dans un échantillon solide est usuellement exprimée en Becquerel par kilogramme de matière sèche (Bq/kg sec) pour un échantillon solide. La référence à la matière sèche permet de s'affranchir des différences d'humidité d'un échantillon à l'autre.

De la même manière, on exprime les concentrations mesurées dans un échantillon liquide en Becquerel par litre (Bq/L).

En ce qui concerne la mesure du tritium lié (tritium intégré à la matière organique), l'expression des résultats est bien souvent liée à la méthode de mesure utilisée.

Dans le cas présent, les résultats sont donnés sous deux unités : **Bq/kg sec de la matière étudiée et en Bq/L d'eau de combustion**. Il s'agit pour cette dernière de l'eau obtenue par combustion de l'échantillon (par pyrolyse et oxydation complète des gaz de combustion).

Pour des échantillons de même nature (par exemple, deux miels), les résultats donnés en Bq/kg sec sont directement comparable. Par contre, cela n'est pas le cas pour des échantillons de natures différentes car la quantité de tritium dépend de la teneur en hydrogène de la matière étudiée. **C'est pourquoi lorsque l'on veut comparer différentes matrices on utilise préférentiellement les résultats donnés en Bq/L d'eau de combustion.**

Valeurs de références

En milieu continental non influencé, les concentrations en tritium² (« bruit de fond ») sont actuellement de 1 à 4 Bq/L d'eau de combustion compte tenu de la rémanence des retombées des essais nucléaires atmosphériques.

² D'après *Fiche radionucléides Tritium et environnement*, 2012, IRSN.

4. Résultats et commentaires

Les résultats des analyses gamma et tritium sont présentés dans les trois tableaux ci-dessous. Leurs détails sont présentés en annexe.

Tableau 1 : Synthèse des résultats obtenus dans les produits de la ruche collectés en 2012.

			Miel	Miel	Pollen	Propolis
Identification		120913-CSA-	08	06	05	07
radionucléide	période		2012	2012	2012	2012
Distance / émissaires de rejet			Ville-aux-bois 1,5 km	La Chaise 3,6 km	La chaise 3,6 km	La chaise 3,6 km
Radionucléides artificiels émetteurs gamma						
Cobalt-60	5,3 ans	<i>Bq/kg sec</i>	< LD	< LD	< LD	< LD
Ru/Rh-106	373 jours	<i>Bq/kg sec</i>	< LD	< LD	< LD	< LD
Argent-108m	438 ans	<i>Bq/kg sec</i>	< LD	< LD	< LD	< LD
Argent-110m	250 jours	<i>Bq/kg sec</i>	< LD	< LD	< LD	< LD
Iode-129	16 10 ⁶ ans	<i>Bq/kg sec</i>	< LD	< LD	< LD	< LD
Césium-134	2,1 ans	<i>Bq/kg sec</i>	< LD	< LD	< LD	< LD
Césium-137	30,0 ans	<i>Bq/kg sec</i>	< LD	< LD	< LD	< LD
Américium-241	437,7 ans	<i>Bq/kg sec</i>	< LD	< LD	< LD	< LD
Radionucléides émetteur bêta pur						
Tritium lié (TOL)	12 ans	<i>Bq/kg sec</i>	0,20 ± 0,03	0,12 ± 0,02	1,05 ± 0,06	NA
		<i>Bq/L d'eau de combustion</i>	0,30 ± 0,05	0,19 ± 0,03	1,59 ± 0,06	NA
<i>Teneur en Hydrogène</i>		<i>% massique</i>	7,18%	7,34%	7,12%	

Légende : < LD : inférieur à la limite de détection (non décelé) - NA : non analysé, faute de quantité suffisante.

Tableau 2 : Synthèse des résultats obtenus dans les miels collectés en 2015.

			Miel Colza	Miel Tilleul	Miel Colza	Miel Tilleul
Identification		150916-CSA-	03	04	01	02
Date de récolte			Juin 2015	Sept. 2015	Juin 2015	Sept. 2015
Lieu de récolte			Dosches	Juvanzé	Etang des Cailles	Etang des Cailles
Distance / émissaires de rejet			32 km	12 km	0,5 km	0,5 km
Radionucléides artificiels émetteurs gamma						
Cobalt-60	5,3 ans	<i>Bq/kg sec</i>	< LD	< LD	< LD	< LD
Ru/Rh-106	373 jours	<i>Bq/kg sec</i>	< LD	< LD	< LD	< LD
Argent-108m	438 ans	<i>Bq/kg sec</i>	< LD	< LD	< LD	< LD
Argent-110m	250 jours	<i>Bq/kg sec</i>	< LD	< LD	< LD	< LD
Iode-129	16 10 ⁶ ans	<i>Bq/kg sec</i>	< LD	< LD	< LD	< LD
Césium-134	2,1 ans	<i>Bq/kg sec</i>	< LD	< LD	< LD	< LD
Césium-137	30,0 ans	<i>Bq/kg sec</i>	< LD	< LD	< LD	< LD
Américium-241	437,7 ans	<i>Bq/kg sec</i>	< LD	< LD	< LD	< LD
Radionucléides émetteur bêta pur						
Tritium lié (TOL)	12 ans	<i>Bq/kg sec</i>	0,385 ± 0,027	0,641 ± 0,045	0,54 ± 0,24	0,507 ± 0,083
		<i>Bq/L d'eau de combustion</i>	0,611 ± 0,043	1,040 ± 0,074	0,84 ± 0,37	0,79 ± 0,13
<i>Teneur en Hydrogène</i>		<i>% massique</i>	7,01%	6,85%	7,17%	7,15%

Légende : < LD : inférieur à la limite de détection (non décelé) NA : non analysé, faute de quantité suffisante.

Tableau 3 : Synthèse des résultats obtenus dans le pollen, la cire et le propolis, collectés en 2015 dans les ruches implantés à proximité de l'étang des Cailles.

			pollen	cire	propolis
Identification	150916-CSA-		05	06	07
Date de récolte			2015	2015	2015
Lieu de récolte			Etang des Cailles	Etang des Cailles	Etang des Cailles
Distance / émissaires de rejets			0,5 km	0,5 km	0,5 km
Radionucléides artificiels émetteurs gamma					
Cobalt-60	5,3 ans	Bq/kg sec	< LD	< LD	< LD
Ru/Rh-106	373 jours	Bq/kg sec	< LD	< LD	< LD
Argent-108m	438 ans	Bq/kg sec	< LD	< LD	< LD
Argent-110m	250 jours	Bq/kg sec	< LD	< LD	< LD
Iode-129	16 10 ⁶ ans	Bq/kg sec	< LD	< LD	< LD
Césium-134	2,1 ans	Bq/kg sec	< LD	< LD	< LD
Césium-137	30,0 ans	Bq/kg sec	< LD	< LD	< LD
Américium-241	437,7 ans	Bq/kg sec	< LD	< LD	< LD
Radionucléides émetteur bêta pur					
Tritium lié (TOL)	12 ans	Bq/kg sec	0,673 ± 0,048	0,866 ± 0,068	NA
		Bq/L d'eau de combustion	1,003 ± 0,071	0,787 ± 0,062	NA
Teneur en Hydrogène		% massique	7,46%	12,2%	-

Légende : < LD : inférieur à la limite de détection (non décelé) NA : non analysé, faute de quantité suffisante.

Commentaires des résultats

Concernant les analyses gamma, aucun radionucléide artificiel émetteur gamma n'est détecté dans l'ensemble des échantillons collectés au cours des deux phases de l'étude, ni dans le miel, ni dans les autres produits de la ruche.

Seuls le potassium-40 et le béryllium-7, radioéléments naturels, sont détectés et quantifiés à des niveaux habituellement mesurés pour ce type de matrice (voir résultats détaillés en annexe).

Les niveaux de tritium organiquement lié mesurés dans le pollen (1,59 et 1,003 Bq/L d'eau de combustion obtenus respectivement en 2012 et 2015) et dans la cire sont comparables à ceux obtenus dans les échantillons d'herbe collectés dans l'environnement autour du CSA lors de la première phase de l'étude³, et conformes aux niveaux attendus dans des zones non influencées par l'activité humaine⁴.

Dans le miel les concentrations mesurées sont également du même ordre que le « bruit de fond » radiologique, voire même parfois en deçà dans le cas des deux échantillons collectés en 2012. Les niveaux obtenus sont respectivement de 0,19 et 0,30 Bq/L d'eau de combustion pour les deux miels récoltés en 2012 et situés entre 0,611 et 1,04 Bq/L d'eau de combustion pour ceux collectés en 2015. Ces variations peuvent traduire l'existence d'une discrimination isotopique légèrement défavorable pour le tritium au niveau de certains nectars sécrétés par les plantes.

Aucune corrélation n'est notée entre les niveaux de concentrations mesurés et la distance entre les lieux de collecte et le CSA.

³ Cf. RAP(1)130910-CSA-V1, Etude des niveaux de radioactivité dans les environs du Centre de Stockage de l'Aube (CSA), 2013.

⁴ En milieu continental non influencé, les concentrations en tritium sont homogènes dans toutes ses composantes ; elles sont actuellement de 1 à 4 Bq/L d'eau de combustion, compte tenu de la rémanence des retombées des essais nucléaires atmosphériques.

5. Synthèse et conclusion

Cette étude s'inscrit dans la démarche initiée en 2007 par la CLI de Soulaines, d'une construction d'un référentiel de connaissance permettant d'évaluer au fil des années l'impact des activités de stockage du centre CSFMA de l'Aube.

Ce quatrième volet avait pour objectif de tester la faisabilité de la mise en place d'une bio-surveillance par les abeilles et d'en évaluer la pertinence.

Les résultats obtenus montrent l'absence d'impact radiologique quantifiable lié à l'activité du centre de stockage de l'Aube dans les produits de la ruche collectés aux abords du site.

Les niveaux observés pour les radionucléides émetteurs gamma et le tritium organiquement lié, sont conformes aux niveaux attendus dans des zones non influencées par l'activité humaine.

Les résultats des mesures effectuées dans les différents produits de la ruche montrent que le pollen constitue un bon « indicateur » de la qualité de l'environnement, c'est-à-dire, représentatif de ce qui peut être observé dans les autres composantes environnementales (eaux de surface, air, végétaux, etc.). C'est également le cas de la cire qui peut également offrir l'avantage d'accumuler sur plusieurs années les éléments présents dans la nature. D'autres études montrent que le propolis offre également cet avantage, même s'il n'a pas été possible de le vérifier dans le cadre de cette étude, faute de quantité de matière suffisante.

On notera par contre que les niveaux de tritium organiquement lié (TOL) obtenus dans les miels peuvent varier notablement en fonction de la date de récolte et de leurs origines botaniques. C'est pourquoi, le miel ne semble pas être la matrice la plus adéquate pour effectuer une surveillance du tritium dans l'environnement.

6. Bibliographie

- [1] ACRO, Analyses des niveaux de radioactivité dans les environs du centre de stockage FMA-VC de l'Aube, 2007
- [2] ACRO, Etude des niveaux de radioactivité dans les environs du Centre de Stockage de l'Aube (CSA) – Phase 2 (volets 1 à 4), 2013.
- [3] Sabatini A, L'abeille bio-indicateur, in revue abeille & Cie, n°108, 2005
- [4] Bromenshenk, J. J. (1992) Site-specific and regional monitoring with honey bees. In *Ecological Indicators*, Vol. 1 Proceedings of the International Symposium on Ecological indicators, Fort Lauderdale, FL. 16-19 oct. 1990 5McKenzie D.H., Hyatt D.E and McDonald V.J., (Eds). Elsevier Science, London, UK.
- [5] Leita L., Muhlbachova G., Cesco S., Barbattinin R. and Montini C., Investigation of the use of honey bees and honey bee products to assess heavy metals contamination. *Environ. Monit. Assess* 43, 1-9, 1996.
- [6] Claudio Porrini, A.G. Sabatini, Honey bees and bee products as monitors of the environmental contamination, *APIACTA* 38 63-70, 2003.
- [7] Fresquez PR, Armstrong DR and Pratt LH, Radionuclides in bees and honey within and around Los Alamos national laboratory, *Journal of Environmental Science and Health A* 32(5):1309-1323, 1997.
- [8] T. K. Haarmann, Honey bees as indicator of radionuclide contamination : comparative studies of contaminant levels in forager and nurse bees and in the flowers of three plant species, *Environmental Contamination and Toxicology*, 35,287-294, 1998
- [9] Simmons MA, Bromenshenk JJ and Gudatis JL, Honeybees as monitors of Low Levels of Radioactivity, Pacific Northwest Laboratory Operated for the U.S. Department of Energy by Battelle Memorial Institute, 1990.
- [10] Tonelli D, Gattavecchia E, Porrini C, Celli G and Mercuri AM, Honey bees and their products as indicators of environmental radioactive pollution, *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 141(2): 427-436, 1990.
- [11] A. Roman, B. Madras-Majewska, E. Popiela-Pleban, Comparative study of selected toxic elements in propolis and Honey, 2011.
- [12] Fakhimzadeh K and Lodenius M, Heavy metals in Finnish honey, pollen and honeybees, *Apiata* 35(2): 85-95, 2000.
- [13] Madras-Majewska B and Jasiński S, Lead content of bees, brood and bee products from different regions of poland, *Journal of Apicultural Science* 47(2): 47-54, 2003.
- [14] S. Bogdanov, Contaminants of bee product, *Apidologie* 37 1-18, 2006 et INRA/DIB-AGIB/EDP Sciences, 2005.

Annexe 1 : Méthodologie appliquée aux analyses

1. Analyses par spectrométrie gamma

1.1 Méthode :

Aucun traitement n'est effectué sur les échantillons en vue de leur analyse qualitative et quantitative par spectrométrie gamma (laboratoire de l'ACRO) : l'échantillon brut est conditionné dans une géométrie de comptage afin d'être soumis à l'analyse.

1.2 Matériel :

Voie 1 : Spectrométrie gamma Ortec de type N comprenant : un blindage en plomb d'épaisseur 10 cm, un système d'acquisition numérique (DSPEC), un détecteur au germanium hyperpur coaxial d'efficacité 32% monté dans un cryostat vertical.

Voie 2 : Spectrométrie gamma Itech de type P (fenêtre mince) comprenant : un blindage en plomb d'épaisseur 10 cm, un système d'acquisition numérique (Orion), un détecteur au germanium hyperpur coaxial d'efficacité 42% monté dans un cryostat vertical.

La plage d'énergie prise en référence s'étend de 27 à 2000 keV pour les deux voies.

Les conteneurs utilisés sont des géométries de volumes utiles de 500 et 61 ml.

1.3 Expression des résultats :

Les mesures sont réalisées avec des géométries identiques à celles des sources de référence et concernent les radionucléides émetteurs gamma présentant une ou plusieurs raies d'émission sur la plage d'énergie prise en référence. Une correction liée à l'atténuation des rayonnements dans la matrice, liée principalement à sa densité, est appliquée.

Seules les activités supérieures au seuil de décision (SD) de la chaîne d'analyse sont exprimées. Dans le cas contraire, et pour les seuls radionucléides mentionnés, la limite de détection (LD), ou plus petite activité quantifiable est rapportée, précédée du signe " < ".

L'activité de chaque radioélément présent dans l'échantillon est exprimée en becquerel par kilogramme (Bq/kg), suivi de son incertitude absolue calculée pour un intervalle de confiance de 95%. Toute activité exprimée, y compris la limite de détection, est rapportée à la date de prélèvement indiquée dans les tableaux de résultats.

2. Mesures de tritium organiquement lié (TOL)

La détermination du tritium organiquement lié (TOL) a été réalisée en 2012 au laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement (LSCE), unité mixte de recherche de Gif-sur-Yvette (91) puis en 2015, au laboratoire de Mesure de la Radioactivité dans l'Environnement (LMRE) de l'Institut de radioprotection et de sûreté nucléaire (IRSN).

2.1 Méthode :

Le tritium est déterminé par la mesure par spectrométrie de masse de l'hélium-3 issu de la désintégration du tritium.

Cette méthode permet d'obtenir des limites de détection très basses mais nécessite un temps de stockage de l'échantillon après lyophilisation et « dégazage » d'une durée de 6 à 12 mois environ, selon les concentrations attendues.

Expression des résultats :

L'expression des résultats de concentration en tritium est liée à la méthode de mesure utilisée.

Dans le cas présent, le tritium total est mesuré indirectement par quantification de l'hélium-3, issu de sa désintégration. Les résultats sont donnés sous l'expression : **Bq/kg sec de la matière étudiée et par calcul^(*) en Bq/L d'eau de combustion.**

Entre deux échantillons de même nature (par exemple, entre deux miels), les résultats donnés en Bq/kg sec sont directement comparable. Cela n'est pas le cas pour des échantillons de nature différente car la quantité de tritium dépend de la teneur en hydrogène de la matière étudiée. C'est pourquoi lorsque l'on veut comparer différentes matrices on utilise préférentiellement les résultats donnés en Bq/L d'eau de combustion.

En milieu continental non influencé, les concentrations en tritium⁵ (« bruit de fond ») sont actuellement de 1 à 4 Bq/L d'eau de combustion compte tenu de la rémanence des retombées des essais nucléaires atmosphériques.

(*) La valeur donnée en Bq/L d'eau de combustion est évaluée par calcul par connaissance de la teneur en hydrogène (%H) de la matrice étudiée, selon la formule suivante :

$$\text{Bq/L d'eau de combustion} = \text{Bq/kg sec} \times (\%H_{\text{eau}} / \%H_{\text{échantillon}})$$

$$\text{Avec } \%H_{\text{eau}} = 2/18 = 11,1\%$$

⁵ D'après *Fiche radionucléides Tritium et environnement*, 2012, IRSN.

Annexe 2 : Résultats détaillés

1. Résultats des mesures des radioéléments émetteurs gamma

Tableau A2.1 : Résultats des analyses gamma des produits apicoles récoltés en 2012

IDENTIFICATION DES ECHANTILLONS					
n° d'enregistrement interne	120913-CSA-05	120913-CSA-06	120913-CSA-07	120913-CSA-08	
Catégorie	Produit apicole	Produit apicole	Produit apicole	Produit apicole	
Dénomination ou [Genre - espèce]	Pollen	Miel	Propolys	Miel	
Prélèvement					
Période de la récolte	juillet 2012	juillet 2012	juin à sept 2012	août 2012	
Code de station	R2	R2	R2	R1	
Lieu (commune) ou site	La chaise	La chaise	La chaise	Ville-aux-bois	
Département	10	10	10	10	
Localisation (détail)	face entrée TFA	face entrée TFA	face entrée TFA	jardin J1	
Distance / émissaires de rejet	3,6 km	3,6 km	3,6 km	1,5 km	
EXPRESSION DES RESULTATS					
Date de référence	15-juil-12	15-juil-12	15-sept-12	15-aout-12	
Unité	Bq/kg	Bq/kg	Bq/kg	Bq/kg	
RESULTATS DES ANALYSES PAR SPECTROMETRIE GAMMA					
Comptage					
n° de manipulation	7304	7305	7404	7306	
Temps de comptage actif (s)	223437	121417	86911	87974	
Géométrie (ml)	500	500	61	500	
Masse de l'échantillon conditionné (g)	384,8	736,5	44,5	694,0	
âge de l'échantillon (jours)	76	18,4	35	20	
âge du conditionnement (jours)	0	2	0	0	
Fraction analysée	entier	entier	entier	entier	
Etat du conditionnement	brut	brut	brut	brut	
Densité analysée	0,77	1,47	0.72	1,39	
Radionucléides ARTIFICIELS					
57 Co	271,8 jours	< 0,2	< 0,2	< 0,8	< 0,2
58 Co	70,8 jours	< 0,5	< 0,3	< 4,4	< 0,3
60 Co	5,3 ans	< 0,3	< 0,2	< 1,2	< 0,3
106 Ru-Rh(*)	373 jours	< 6	< 3,2	< 32	< 4,4
108mAg	418 ans	< 0,2	< 0,2	< 1,2	< 0,2
110m Ag	250 jours	< 0,3	< 0,2	< 2,0	< 0,3
129 I	16. 10 ¹⁶ ans	< 0,3	< 0,7	< 0,3	< 0,8
131 I	8,0 jours	-	< 0,9	-	< 1,2
134 Cs	2,1 ans	< 0,3	< 0,2	< 1,6	< 0,3
137 Cs	30,0 ans	< 0,3	< 0,3	< 1,6	< 0,3
154 Eu	8,6 ans	< 0,3	< 0,2	< 1,2	< 0,4
241 Am	437,7 ans	< 0,3	< 0,4	< 1,2	< 0,4
Radionucléides NATURELS					
234 Th	Ch. 238U	-	-	-	-
226 Ra max	235U-238U	< 8	< 7	< 30	< 7
214 Pb (= 226Ra min)	Ch. 238U	< 0,8	< 0,8	< 3,2	< 0,7
214 Bi	Ch. 238U	< 0,9	< 0,7	< 4,0	< 0,8
210 Pb	Ch. 238U	< 5	< 6	< 20	< 8
228 Ac	Ch. 232Th	< 5	< 1,2	< 10	< 1,6
212 Pb	Ch. 232Th	< 0,5	< 0,5	< 2,5	< 0,5
235 U	Ch. 235U	< 2	< 1,2	< 6	-
40 K	1,3 10 ⁹ ans	118 ± 11	42 ± 0,6	< 40	26,2 ± 4,6
7 Be	53,2 jours	< 5	< 2	< 52	< 2,5

Tableau A2.2: Résultats des analyses gamma réalisées sur les échantillons de miel récoltés en 2015

IDE.2NTIFICATION DES ECHANTILLONS					
n° d'enregistrement interne	150916-CSA-01	150916-CSA-02	150916-CSA-03	150916-CSA-04	
Catégorie	Produit apicole	Produit apicole	Produit apicole	Produit apicole	
Dénomination ou [Genre - espèce]	MIEL Colza	MIEL Tilleul	MIEL Colza	MIEL Tilleul	
Prélèvement					
Période de la récolte	mars 2015	Juin 2015	mars 2015	Juin 2015	
Code de station	-	-	-	-	
Lieu (commune) ou site	Etang des Cailles SOULAINES	Etang des Cailles SOULAINES	DOSCHES	JUVANZE	
Département	10	10	10	10	
Localisation (détail)	proximité clôture CSA (ANDRA)	proximité clôture CSA (ANDRA)			
Distance / émissaires de rejet	0,5 km	0,5 km	32 km	12 km	
EXPRESSION DES RESULTATS					
Date de référence	17/03/15	12/06/15	17/03/15	12/06/15	
Unité	Bq/kg	Bq/kg	Bq/kg	Bq/kg	
RESULTATS DES ANALYSES PAR SPECTROMETRIE GAMMA					
Comptage					
n° de manipulation	8212	V2-1581	8214	V2-1583	
Temps de comptage actif (s)	171081	172061	234972	234972	
Géométrie (ml)	61	61	61	61	
Masse de l'échantillon conditionné (g)	86,0	87,9	88,2	88,2	
âge de l'échantillon (jours)	256	172	262	173	
âge du conditionnement (jours)	2	2	4	4	
Fraction analysée	entier	entier	entier	entier	
Etat du conditionnement	brut	brut	brut	brut	
Densité analysée	1,41	1,44	1,42	1,44	
Radionucléides ARTIFICIELS					
57 Co	271,8 jours	< 0,5	< 0,3	< 0,4	< 0,2
58 Co	70,8 jours	< 6,9	< 2,1	< 6,2	< 0,2
60 Co	5,3 ans	< 0,6	< 0,5	< 0,5	< 0,4
106 Ru-Rh(*)	373 jours	< 8	< 4,7	< 7,0	< 4,0
108mAg	418 ans	< 0,5	< 0,3	< 0,4	< 0,2
110m Ag	250 jours	< 1,0	< 0,6	< 1,0	< 0,5
129 I	16. 10 ¹⁶ ans	< 0,5	< 0,4	< 0,4	< 0,3
131 I	8,0 jours	-	-	-	-
134 Cs	2,1 ans	< 0,7	< 0,5	< 0,6	< 0,4
137 Cs	30,0 ans	< 0,7	< 0,5	< 0,5	< 0,4
154 Eu	8,6 ans	< 0,5	< 0,4	< 0,4	< 0,3
241 Am	437,7 ans	< 0,6	< 0,4	< 0,5	< 0,3
Radionucléides NATURELS					
40 K	1,3 10 ⁹ ans	< 15	34 ± 5	< 15	42 ± 6
7 Be	53,2 jours	< 125	< 25	< 110	< 23

Tableau A2.3 : Résultats des analyses gamma réalisées sur les échantillons de pollens, cire et propolis récoltés en 2015

IDENTIFICATION DES ECHANTILLONS				
n° d'enregistrement interne	150916-CSA-05	150916-CSA-06	150916-CSA-07	
Catégorie	Produit apicole	Produit apicole	Produit apicole	
Dénomination ou [Genre - espèce]	POLLEN	CIRE	PROPOLIS	
Prélèvement				
Période de la récolte	Année 2015	Année 2015	Année 2015	
Code de station	-	-	-	
Lieu (commune) ou site	Etang des Cailles SOULAINES	Etang des Cailles SOULAINES	Etang des Cailles SOULAINES	
Département	10	10	10	
Localisation (détail)	proximité clôture CSA (ANDRA)	Clôture CSA	Clôture CSA	Clôture CSA
Distance / émissaires rejet	0,5 km	0,5 km	0,5 km	
EXPRESSION DES RESULTATS				
Date de référence (fin de collecte)	16/09/15	16/09/15	16/09/15	
Unité	Bq/kg	Bq/kg	Bq/kg	
RESULTATS DES ANALYSES PAR SPECTROMETRIE GAMMA				
Comptage				
n° de manipulation	8226	V2-1581	V2-1587	
Temps de comptage actif (s)	230602	231033	231105	
Géométrie (ml)	500	61	61	
Masse de l'échantillon conditionné (g)	377,4	37,6	42,2	
âge de l'échantillon (jours)	60	56	56	
âge du conditionnement (jours)	18	2	2	
Fraction analysée	entier	entier	entier	
Etat du conditionnement	brut	brut	brut	
Densité analysée	0,75	0,61	0,69	
Radionucléides ARTIFICIELS				
57 Co	271,8 jours	< 0,2	< 0,7	< 0,2
58 Co	70,8 jours	< 0,7	< 0,7	< 0,2
60 Co	5,3 ans	< 0,3	< 1,3	< 0,8
106 Ru-Rh(*)	373 jours	< 2,8	< 15	< 5,0
108mAg	418 ans	< 0,3	< 0,9	< 0,5
110m Ag	250 jours	< 0,3	< 1,8	< 0,4
129 I	16. 10 ¹⁶ ans	< 0,3	< 0,9	< 0,8
131 I	8,0 jours	-	-	-
134 Cs	2,1 ans	< 0,3	< 1,3	< 0,6
137 Cs	30,0 ans	< 0,3	< 1,3	< 0,7
154 Eu	8,6 ans	< 0,3	< 0,9	< 0,5
241 Am	437,7 ans	< 0,3	< 1,1	< 0,7
Radionucléides NATURELS				
40 K	1,3 10 ⁹ ans	133 ± 13	< 25	23 ± 8
7 Be	53,2 jours	6,0 ± 2,9	< 50	0,2 ± 0,1

2. Résultats des mesures du tritium organiquement lié (TOL)



Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement

Mylène Josset
ACRO
138 rue de l'Eglise
14200 Hérouville Saint Clair

Objet : Résultats tritium lié d'échantillons de miel et de pollen

Ref : devis LSCE-GR-12-05

Pour la teneur en hydrogène, deux aliquotes ont été mesurées à chaque fois

Miel VAB	7,22%	7,13%
Miel "La Chaise" 120910-CSA-06	7,08%	7,16%
Pollen 120913-CSA-05	7,33%	7,36%

Teneurs en tritium organiquement lié (date de valeur : 10/09/2012)

	Bq/kg sec	+ 2sigma
Miel VAB	0,20	0,03
Miel "La Chaise" 120910-CSA-06	0,12	0,02
Pollen 120913-CSA-05	1,05	0,06

Mesure du tritium organiquement lié (TOL) par ³He

Rapport d'essai N° 2015-730-3

Numéro d'ordre hélium	Numéro échantillon client	Nature	Date de prélèvement	Résultats de mesure		Résultats de mesure		Calcul, correspondant en Bq/L d'eau de combustion		Ratio approximatif masse fraîche/sèche
				Activité Bq/kg sec	± (k = 2) Bq/kg sec	Hydrogène % en masse	± (k = 2) % en masse	Activité Bq/L	± (k = 2) Bq/L	
552	150916-CSA01	Miel colza	17/03/15	0,54	0,24	7,17	0,10	0,84	0,37	1,17
553	150916-CSA02	Miel Tilleul	12/06/15	0,507	0,083	7,15	0,20	0,79	0,13	1,13
554	150916-CSA03	Miel colza	17/03/15	0,385	0,027	7,01	0,05	0,611	0,043	1,15
555	150916-CSA04	Miel Tilleul	12/06/15	0,641	0,045	6,85	0,05	1,040	0,074	1,16
556	150916-CSA05	Pollen	12/06/15	0,673	0,048	7,46	0,05	1,003	0,071	1,13
557	150916-CSA06	Cire	12/06/15	0,866	0,068	12,24	0,05	0,787	0,062	1,03

Bq/L d'eau de combustion = Bq/kg sec x (%H_{eau} / %H_{ech})
avec %H_{eau} = 2/18 = 11,1 %

L'analyse est faite après relyphilisation de l'échantillon
L'activité est donnée à la date de prélèvement