

## 2.2

# Les apports scientifiques du projet CAROL Camargue-Rhône-Languedoc

Pour mieux répondre aux besoins d'expertises et aux demandes sociétales en matière d'environnement et de radioprotection, il est nécessaire de mener des études et des travaux de recherche appliquée permettant l'acquisition de connaissances spécifiques. Le projet CAROL (Camargue-Rhône-Languedoc) a été initié dans ce cadre au Laboratoire d'études radioécologiques en milieux continental et marin (LERCM) en 1998. Cette étude avait pour objectif d'analyser la répartition des radionucléides artificiels dans la basse vallée du Rhône, puis d'identifier et de quantifier les principaux flux ou transferts qui ont conduit à la répartition observée aujourd'hui.

Comme l'ensemble du territoire français métropolitain, la basse vallée du Rhône a reçu entre 1945 et 1980 les retombées des essais atmosphériques d'armes nucléaires, puis les retombées de l'accident de Tchernobyl en mai 1986. Par ailleurs, cette zone se situe à l'aval de toutes les installations nucléaires rhodaniennes avec les usines d'enrichissement de l'uranium, de fabrication et de retraitement du combustible et de cinq centres nucléaires de production électrique, dont certains sont implantés depuis trois, voire quatre décennies. De par le nombre et la variété de ces installations, le Rhône constitue la voie principale d'apport de radionucléides provenant de l'industrie nucléaire vers le golfe du Lion.

Cette région (*figure 1*) a donc été choisie pour son caractère exemplaire, afin de mener une étude globale, à l'échelle d'un bassin versant, sur ce qu'il advient des radionucléides apportés à l'environnement de manière chronique ou ponctuelle, dans les trois milieux : terrestre, fluvial et marin.

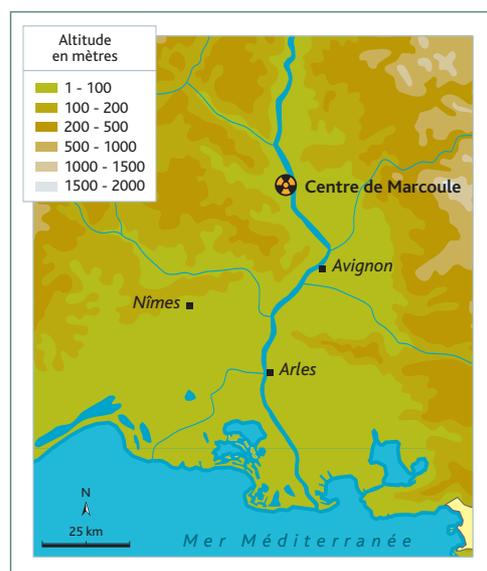


Figure 1 : Zone d'étude du projet CAROL dans la basse vallée du Rhône.

### Démarche

Les études de recherche appliquée menées dans le cadre du projet CAROL découlent d'un constat établi à partir de données déjà acquises dans d'autres cadres ou encore d'une question posée par la société civile.

À partir d'une première analyse des données existantes, un modèle conceptuel permet la définition d'une stratégie

Philippe RENAUD, Sabine CHARMASSON, Céline DUFFA, Laurent POURCELOT,  
Jacques MARQUET, Frédérique EYROLLE, Mireille ARNAUD, Gilles SALAUN, Yves DIMEGLIO  
Laboratoire d'étude radioécologique en milieux continental et marin

Jean-Michel METIVIER  
Laboratoire de modélisation environnementale

Evelyne BARKER  
Service de traitement des échantillons et de métrologie pour l'environnement

Rodolfo GURRIARAN  
Laboratoire de mesure de la radioactivité dans l'environnement

Marcel MORELLO  
Laboratoire de radioécologie et d'écotoxicologie

d'échantillonnage pour l'acquisition de nouvelles données susceptibles de répondre à la question posée. À l'échelle d'un grand ensemble géographique, cette acquisition n'est souvent faite que sur un compartiment de l'environnement, une « zone atelier » (aire ou bief), ou une période déterminée. Au cours du projet CAROL, plusieurs « zones ateliers » d'étendues variables ont ainsi été ouvertes, comme le Rhône en Arles en période de crue, les zones inondées de Camargue, la région de Vaison-la-Romaine, la zone influencée par les rejets atmosphériques de Marcoule, la zone atelier du col de la Lombarde (2000 m<sup>2</sup>) et la Corse. Les conditions d'extrapolation géographique ou temporelle de cette observation sont alors déterminées par le croisement des activités mesurées avec d'autres paramètres physico-chimiques du milieu ou d'évènements influents.

Les rapports des activités de différents isotopes sont fréquemment utilisés pour déterminer l'origine, les contributions des apports ou le devenir des radionucléides mesurés, à l'instar des méthodes développées en géochimie.

Pour interpréter les résultats des mesures, tester les modèles empiriques qui en sont dérivés ou quantifier certains flux, des calculs sont effectués au moyen notamment de modèles radioécologiques génériques couramment utilisés à l'IRSN tels que FOCON, ASTRAL ou COTRAM.

L'aboutissement de ces études est l'établissement de bilans des stocks et des flux de radionucléides à l'échelle du bassin versant, notamment par des représentations cartographiques ou schématiques compartimentales, la compréhension, et dans certains cas, la quantification des mécanismes ou des processus qui les sous-tendent, par la détermination de valeurs de référence des activités présentes dans l'environnement ou de paramètres radioécologiques usuels.

## Principaux résultats

Au terme des six années du projet (1998-2003), les origines des radionucléides mesurés dans chaque milieu ont été identifiées et leurs contributions estimées. Les hétérogénéités dans leur répartition spatiale ont été identifiées et expliquées. Les principaux stocks et flux ont été quantifiés, notamment les flux à l'interface des différents milieux. Il est ainsi possible de connaître la contribution des essais atmosphériques dans les

activités apportées aux sols durant 40 années d'irrigation ou lors d'inondations, en prenant en compte leur dépôt sur le bassin versant, le lessivage des sols, leur spéciation dans le fleuve, les conditions hydrauliques des crues et les pratiques d'irrigation.

### Répartition des actinides

À la suite des retombées liées aux essais d'armes nucléaires effectués dans l'atmosphère entre 1945 et 1980 et de l'explosion du satellite américain SNAP 9A équipé d'un générateur au <sup>238</sup>Pu lors de sa rentrée dans l'atmosphère en 1964, les radionucléides émetteurs alpha <sup>238</sup>Pu, <sup>239,240</sup>Pu et <sup>241</sup>Am sont omniprésents à l'état de traces dans l'environnement.

À partir des mesures existantes, on a pu établir leurs activités moyennes dans les sols cultivés de la basse vallée du Rhône non influencés par les rejets des installations de Marcoule :  $1,4 \pm 0,1$  Bq.m<sup>-2</sup> de <sup>238</sup>Pu,  $47 \pm 3$  Bq.m<sup>-2</sup> de <sup>239,240</sup>Pu et  $19 \pm 1$  Bq.m<sup>-2</sup> de <sup>241</sup>Am. La valeur du rapport d'activité <sup>238</sup>Pu/<sup>239,240</sup>Pu de 0,03 montre que cette contamination est bien liée aux retombées des essais nucléaires et de l'accident du

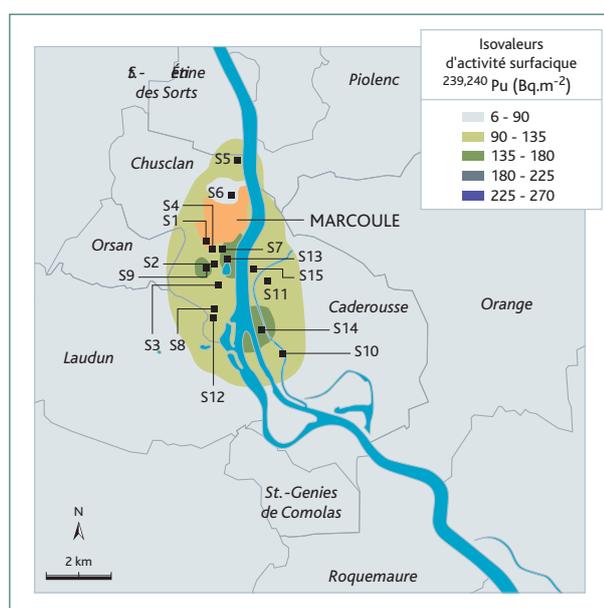


Figure 2 : Répartition du <sup>239,240</sup>Pu dans les sols autour du site de Marcoule.

satellite. Les mesures existantes ont également conduit à définir de nouvelles campagnes de prélèvements aux environs immédiats du centre de Marcoule, où des activités supplémentaires, évaluées à 0,1 GBq de  $^{238}\text{Pu}$ , 2,1 GBq de  $^{239,240}\text{Pu}$  et 0,6 GBq de  $^{241}\text{Am}$ , se sont ajoutées à ces retombées sur une zone de 25 km<sup>2</sup> (figure 2, page 13). Le rapport d'activité  $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$  de ces apports supplémentaires est de 0,05, valeur caractéristique du plutonium de qualité militaire produit à Marcoule au début des années 1960.

Sur la période 1945-1998, on estime que  $3 \pm 1$  GBq de  $^{238}\text{Pu}$ ,  $92 \pm 28$  GBq de  $^{239,240}\text{Pu}$  et  $12 \pm 4$  GBq de  $^{241}\text{Am}$  ont été apportés au Rhône par érosion de son bassin versant. Les rejets liquides de l'installation de Marcoule sont estimés, à partir des données communiquées par l'exploitant COGEMA, à  $92 \pm 5$  GBq de  $^{238}\text{Pu}$ ,  $441 \pm 72$  GBq de  $^{239,240}\text{Pu}$  et  $386 \pm 64$  GBq de  $^{241}\text{Am}$ . Le Rhône constitue bien la principale voie de transfert de Pu et Am dans la région étudiée. Les mesures effectuées au niveau d'Arles

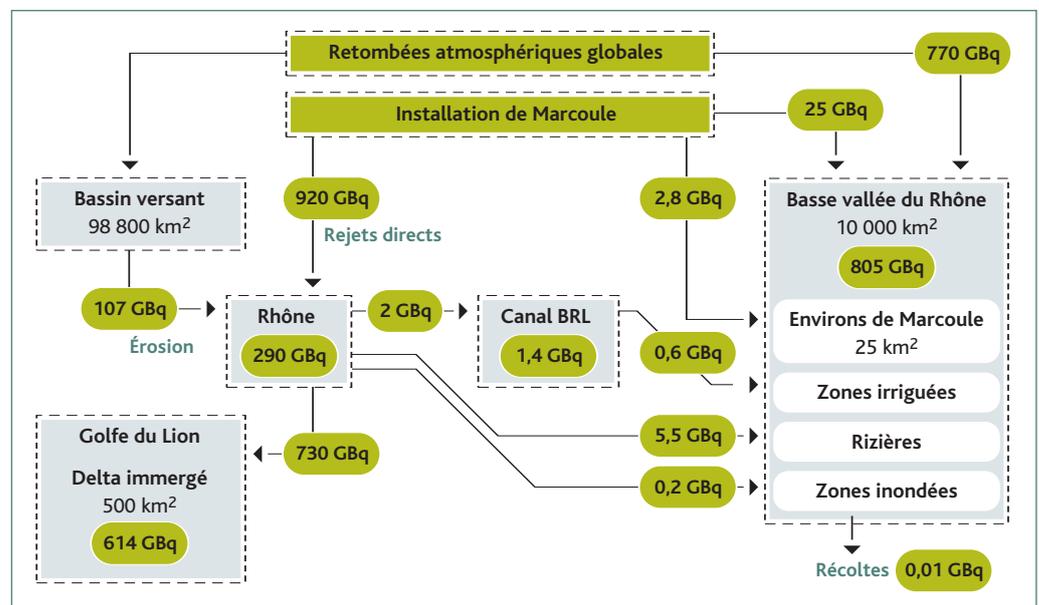


Figure 3 : Bilan des stocks et des flux de plutonium  $^{238}$ ,  $^{239}$ ,  $^{240}$  et d'américium  $^{241}$  intégrés sur la période 1945-1998. Canal BRL : canal Bas-Rhône-Languedoc.

ont permis de dresser un bilan des contributions de ces différentes sources en fonction du régime hydraulique du fleuve. Pour des débits moyens annuels inférieurs à  $1\,700\text{ m}^3\cdot\text{s}^{-1}$ , la source prépondérante est constituée par les rejets liquides des installations de Marcoule. En période de crue, le drainage du bassin versant et la remise en suspension des stocks sédimentaires fluviaux représentent les sources majeures. La source sédimentaire contribue jusqu'à 30 % de la radioactivité transportée en période de crue pour les isotopes du plutonium. Un bilan global permet, en extrapolant ces conclusions, d'estimer qu'en 1998, près de 290 GBq de  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{239,240}\text{Pu}$  et  $^{241}\text{Am}$  sont piégés dans les sédiments du Bas-Rhône. Néanmoins, les mesures ne permettent pas de mettre en évidence un enrichissement des sols en Pu et Am lié à l'irrigation par les eaux du Rhône. Sur la période 1961-1998, la déviation annuelle de 105 millions de mètres cubes d'eau du Rhône vers le canal Bas-Rhône-Languedoc (BRL) est associée à des flux totaux de  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{239,240}\text{Pu}$  et  $^{241}\text{Am}$  de 2 GBq. Près de 70 % de cette activité reste piégée dans le canal d'acheminement par décantation d'une partie des particules en suspension auxquelles les radionucléides sont associés. En Camargue, en tenant compte d'une consommation d'eau pour la culture du riz d'environ  $28\,000\text{ m}^3$  par hectare et de l'évolution des surfaces de rizières, on évalue les apports en  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{239,240}\text{Pu}$  et  $^{241}\text{Am}$  à 5,5 GBq pour la période 1960-1998. Enfin, sur une zone particulière au nord-ouest

de la Camargue inondée lors des crues du Rhône de 1993 et 1994, les échantillons de sols prélevés montrent des niveaux d'activité significativement plus élevés que les valeurs attribuables aux seules retombées globales. Ces sols témoignent des dépôts des 400 000 tonnes de sédiments du Rhône dispersés de manière très hétérogène qui ont apporté environ 15 MBq de  $^{238}\text{Pu}$ , 90 MBq de  $^{239,240}\text{Pu}$  et 83 MBq de  $^{241}\text{Am}$ .

À l'embouchure du Rhône, la confrontation des eaux douces et des eaux marines du golfe du Lion génère des processus physico-chimiques complexes qui entraînent une sédimentation massive des particules apportées par le fleuve (formation du prodelta) et des radionucléides qui y sont associés. Il en résulte une forte accumulation des radionucléides dans les sédiments du prodelta et du plateau continental du golfe du Lion. Le bilan auquel a abouti le projet CAROL (*figure 3*) a mis en évidence la nécessité d'établir l'inventaire des actinides accumulés dans cette zone.

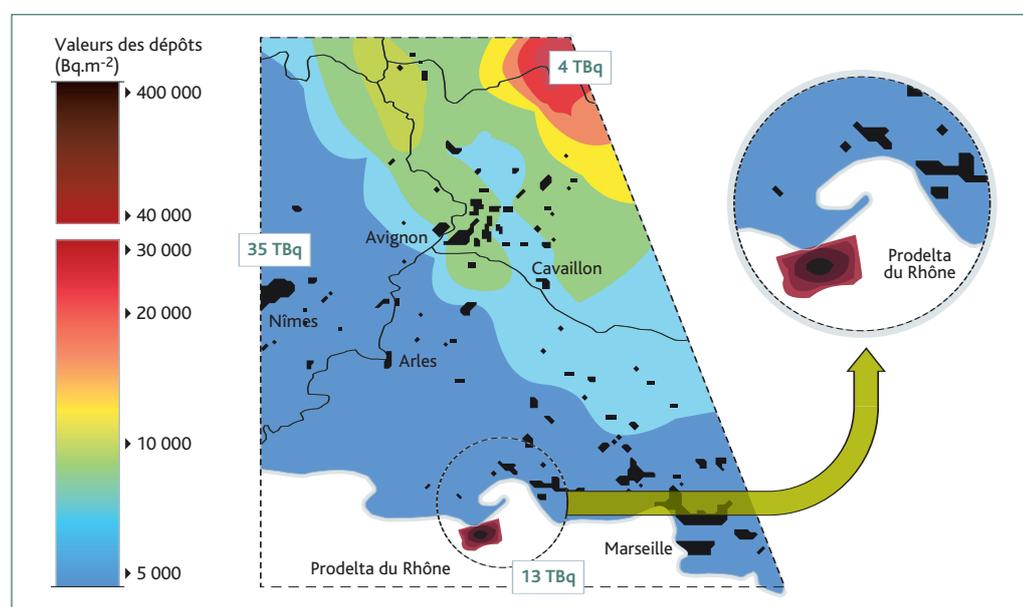


Figure 4 : Bilan de la répartition spatiale et des stocks de  $^{137}\text{Cs}$  dans la basse vallée du Rhône en 2000.

### Répartition du $^{137}\text{Cs}$

Le  $^{137}\text{Cs}$  est le seul radionucléide artificiel émetteur gamma encore mesurable dans les échantillons de l'environnement non soumis à des rejets d'installations nucléaires en France.

Les activités mesurées dans les sols de la basse vallée du Rhône en 1999 et 2000, comprises entre 1 500 et 40 000 Bq.m<sup>-2</sup>, sont très hétérogènes. En effet, les dépôts consécutifs à l'accident de Tchernobyl ne se sont pas faits de manière uniforme. Les observations réalisées dans le cadre du projet CAROL ont permis d'établir une relation empirique entre ces dépôts et les précipitations qui ont eu lieu entre le 1<sup>er</sup> et le 5 mai 1986, période durant laquelle les masses d'air contaminées ont survolé la région. À partir de cette relation, la carte des activités de  $^{137}\text{Cs}$  dans la basse vallée du Rhône a été reconstituée. On estime qu'environ un dixième de l'activité stockée dans la zone CAROL est concentré sur moins de 2 % de sa surface, dans la région de Vaison-la-Romaine (*figure 4*), où les stations de Météo-France ont enregistré les hauteurs de pluie les plus élevées (plus de 40 mm) les 3 et 4 mai 1986.

La singularité de ces résultats a conduit à s'intéresser à deux autres régions particulièrement pertinentes de par leur situation géographique et l'intensité des précipitations qui y ont été enregistrées entre le 1<sup>er</sup> et le 5 mai 1986 : la Corse et le massif du Mercantour.

**Dans le massif du Mercantour**, la répartition de la radioactivité est caractérisée par une très forte hétérogénéité due à la présence de points de concentration de quelques mètres carrés où l'activité surfacique en  $^{137}\text{Cs}$  du sol dépasse  $100\,000\text{ Bq}\cdot\text{m}^{-2}$ . Les chutes de neige sur le massif du Mercantour qui ont accompagné le passage des masses d'air contaminées lors de l'accident de Tchernobyl, la formation de congères et le ruissellement lors de la fonte des neiges sont à l'origine de la formation des points de concentration du césium. Toutefois, ceux-ci représentent moins de 1 % de la totalité du stock de  $^{137}\text{Cs}$  pour le bassin versant cartographié ( $27\text{ km}^2$ ).

**Dans la basse vallée du Rhône**, comme pour les actinides, c'est le Rhône qui constitue la principale voie de transfert du  $^{137}\text{Cs}$ . Sur la période de janvier 1998 à mars 1999, de façon analogue aux isotopes du plutonium, les activités des radionucléides émetteurs gamma dans la phase particulaire en Arles augmentent avec l'accroissement du débit du fleuve. Ces résultats soulignent la contribution de la remobilisation des sédiments du fleuve comme source secondaire de radionucléide. La dynamique sédimentaire du Rhône joue par conséquent un rôle fondamental dans les processus d'exportation du  $^{137}\text{Cs}$ .

**En milieu marin**, une première évaluation des quantités de  $^{137}\text{Cs}$  déposées à l'embouchure du Grand-Rhône a été réalisée sur la base de mesures effectuées en 1990 et 1991. La quantité de  $^{137}\text{Cs}$  présente sur une zone de  $480\text{ km}^2$  s'élevait alors à  $19,5\text{ TBq}$ , environ 45 % de cet inventaire se trouvant confinés dans la zone prodeltaïque proprement dite ( $30\text{ km}^2$ ). La diminution importante des rejets de Marcoule depuis 1991 a conduit à une nouvelle estimation de ce stock, sur la base de mesures réalisées en 2001. Celui-ci a été évalué à  $13,2\text{ TBq}$  (figure 5).

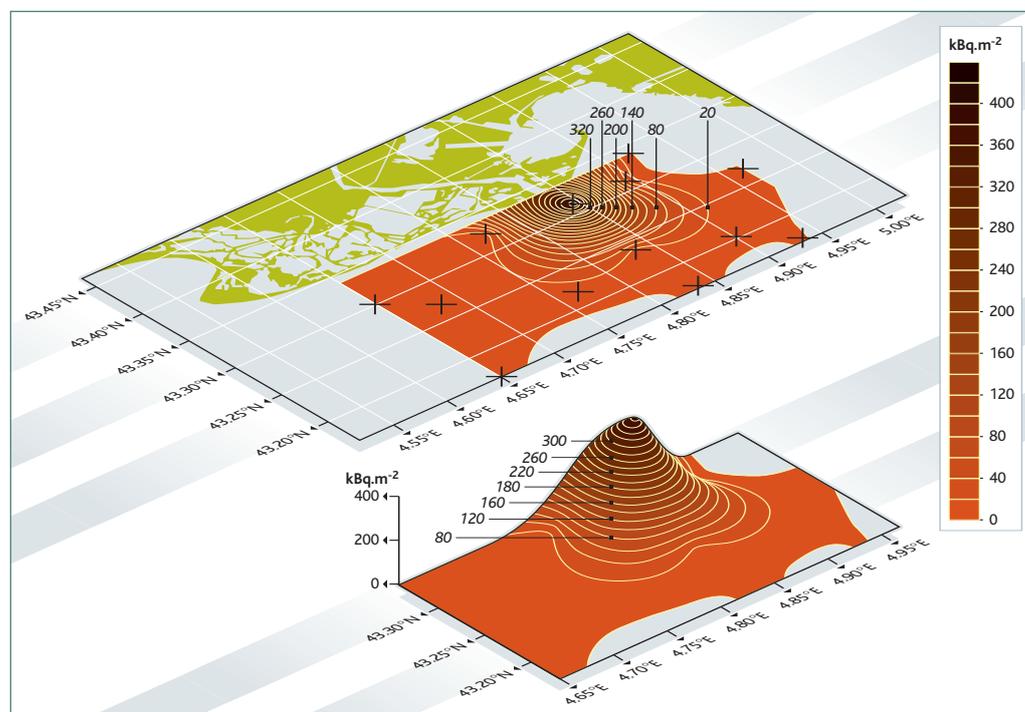


Figure 5 : Cartographie de la répartition du stock de  $^{137}\text{Cs}$  dans les sédiments au droit de l'embouchure du Grand-Rhône.

## ■ Conclusion et valorisation des résultats

Les résultats obtenus au cours du projet CAROL ont permis des avancées, particulièrement dans les domaines suivants :

- les dépôts de  $^{137}\text{Cs}$  liés à l'accident de Tchernobyl, et leur distribution sur le territoire ;
- les niveaux d'activités de Pu et d'Am en France métropolitaine ;
- l'utilisation des rapports d'activités isotopiques comme outil d'interprétation des résultats.

Ces connaissances contribuent aussi à l'amélioration d'un savoir-faire en matière d'expertise environnementale. Les études effectuées dans le cadre du projet ont notamment permis de répondre à des questions posées par la société civile ou par les pouvoirs publics. Par exemple, la superposition de la carte des dépôts de  $^{137}\text{Cs}$  consécutifs à l'accident de Tchernobyl, établie sur la base des études en basse vallée du Rhône, avec celle des retombées des essais atmosphériques d'armes nucléaires nous permet aujourd'hui de répondre aux questions sensibles sur l'activité en  $^{137}\text{Cs}$  dans certaines régions de France (Pourcelot *et al.*, 2001 ; Pourcelot et Métivier, 2001 ; Pourcelot et Renaud, 2002).

Ces travaux ont également permis de répondre aux préoccupations d'associations, de catégories socioprofessionnelles ou d'élus interpellés par des déclarations ou publications d'associations écologistes. L'étude de l'influence des retombées de l'accident de Tchernobyl sur les vins des Côtes-du-Rhône (Renaud *et al.*, 2003) illustre ce souci d'apporter des réponses et de communiquer les résultats des travaux à la fois au milieu scientifique et à un public plus large.

Enfin, il faut noter que la Commission locale d'information (CLI) du Gard et l'Autorité de sûreté nucléaire (ASN) ont saisi l'IRSN en décembre 2003 sur les conséquences radiologiques des inondations exceptionnelles survenues en Camargue. Les compétences acquises dans le cadre du projet CAROL et les réflexions sur la continuité des travaux liés aux crues et autres événements extrêmes ont été utilisées pour répondre à cette demande d'expertise.

18 publications et 23 présentations en congrès ont été produites dans le cadre du projet CAROL, ainsi que plusieurs rapports. Une thèse sur les actinides y a été entièrement consacrée et deux thèses sur le milieu marin y ont contribué.

### Références

- S. Charmasson, 1998. Cycle du combustible nucléaire et milieu marin - Devenir des effluents rhodaniens en Méditerranée et des déchets immergés en Atlantique nord-est. Thèse d'État, université Aix-Marseille 2, 359 p. Rapport CEA-R-5826.
- B. Lansard, 2005. Distribution et remobilisation du plutonium dans les sédiments du prodelta du Rhône (Méditerranée nord-occidentale). Thèse de doctorat, université Aix-Marseille 2. Rapport SESURE 2005-12, 180 p.
- C. Duffa, 2001. Répartition du plutonium et de l'américium dans l'environnement terrestre de la basse vallée du Rhône. Thèse de doctorat, université Aix-Marseille 3. Rapport CEA-R-5977, 171 p.
- S. Charmasson, O. Radakovitch, M. Arnaud, P. Bouisset, A.S. Pruchon, 1998. Long-core profiles of  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{60}\text{Co}$  and  $^{210}\text{Pb}$  in sediment near the Rhône mouth (Northwestern Mediterranean Sea). *Estuaries*, 21, 3, 367-378.
- S. Charmasson, 2003.  $^{137}\text{Cs}$  inventory in sediment near the Rhône mouth: role played by different sources. *Oceanologica Acta*, 26, 435-441.
- C. Duffa, Ph. Renaud, D. Calmet, 2001.  $^{238}\text{Pu}$  and  $^{239,240}\text{Pu}$  activities in lower Rhône valley cultivated soils. *Comptes rendus de l'Académie des sciences - Earth and Planetary Sciences*, 332, 275-281.
- C. Duffa, Ph. Renaud, F. Goutelard, 2002. Activities and transfers in rice samples from Camargue, France. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 252 (2), 247-248.
- C. Duffa, P. Renaud, 2005.  $^{238}\text{Pu}$  and  $^{239,240}\text{Pu}$  inventory and distribution through the lower Rhone valley terrestrial environment (Southern France). *Science of the Total Environment*, article in press.
- F. Eyrolle, M. Arnaud, C. Duffa, Ph. Renaud, 2002. Plutonium fluxes from the Rhône River to the Mediterranean Sea. *Radioprotection-Colloques*, 37, C1, 87-92.
- F. Eyrolle, S. Charmasson, D. Louvat, 2004. Plutonium isotopes in the lower reaches of the river Rhône over the period 1945-2000. Fluxes toward the Mediterranean Sea and sedimentary inventories. *Journal of Environmental Radioactivity, Special Issue*, 74, 127-138.
- L. Pourcelot, D. Louvat, F. Gauthier-Lafaye, P. Stille, 2003. Formation of radioactivity enriched soils in mountain areas. *Journal of Environmental Radioactivity*, 68, p. 215-233.
- L. Pourcelot, Ph. Renaud, D. Louvat, R. Gurriaran, P. Richon, 2003. Influence des points de concentration en césium 137 sur la contamination d'une chaîne alimentaire de type alpin et doses associées. *Environnement, risques et santé*, 2, p. 112-120.
- Ph. Renaud, L. Pourcelot, J.M. Métivier, M. Morello, 2003.  $^{137}\text{Cs}$  deposits and behaviour over eastern France after the Chernobyl accident. *The Sciences of the Total Environment*, 309, p. 257-264.